HAL
open science

Approche expérimentale et phénoménologique des rendements de la fission induite par neutron thermique du 239Pu et du 241Pu

Sylvain Julien-Laferrière

To cite this version:

Sylvain Julien-Laferrière. Approche expérimentale et phénoménologique des rendements de la fission induite par neutron thermique du 239Pu et du 241Pu. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Grenoble Alpes, 2018. Français. NNT : 2018GREAY038 . tel-01995046

HAL Id: tel-01995046

https://theses.hal.science/tel-01995046

Submitted on 25 Jan 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Communauté UNIVERSITÉ Grenoble Alpes

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Physique Subatomique et Astroparticules**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Sylvain JULIEN-LAFERRIÈRE

Thèse dirigée par **Grégoire KESSEDJIAN**
et codirigée par **Olivier SEROT**

préparée au sein du **Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (LPSC, Grenoble)** et du **Laboratoire d'Études de Physique (LEPh, CEA Cadarache)**
dans **l'École Doctorale de Physique**

Approche expérimentale et phénoménologique des rendements de la fission induite par neutron thermique du ^{239}Pu et du ^{241}Pu

Thèse soutenue publiquement le **05 octobre 2018**,
devant le jury composé de :

M. Éric LIATARD
Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Président du Jury
M. Stephan OBERSTEDT
Scientific Officer au JRC Geel, Rapporteur
M. Laurent TASSAN-GOT
Scientific Coordinator au CERN, Rapporteur
M. Philippe DESSAGNE
Directeur de Recherche à l'IPHC, Examinateur
Mme Audrey CHATILLON
Chercheur au CEA-DAM Bruyères-le-Châtel, Invitée
M. Ulli KÖSTER
Chercheur à l'ILL, Invité
M. Grégoire KESSEDJIAN
Maître de Conférences à l'INPG, Directeur de thèse
M. Olivier SEROT
Directeur de Recherche au CEA-DEN Cadarache, Co-Directeur de thèse
M. Abdelaziz CHEBBOUBI
Chercheur au CEA-DEN Cadarache, Encadrant

Remerciements

« Sois satisfait des fleurs, des fruits, même des feuilles,
Si c'est dans ton jardin à toi que tu les cueilles ! »
Edmond Rostand, *Cyrano de Bergerac*, acte II, scène 8

Regarder ces trois dernières années, c'est réaliser les changements qui ont eu lieu dans ma vie durant cette thèse. D'ingénieur je suis passé à Docteur, et trois années n'ont pas été de trop pour cette transformation. Si mon avenir ne sera peut-être pas fait de recherche, cette expérience de thèse fut passionnante, avec des hauts et des bas (merci, les analyses des spectres γ), pour au final, un travail et des résultats dont je suis fier. Je n'aurais pas pu en arriver là sans le soutien moral et spirituel, qu'ont été mes collègues, mes amis et ma famille, à qui je souhaiterais rendre hommage.

J'aimerais commencer par remercier Arnaud Lucotte et Cyril de Saint-Jean qui m'ont accueilli dans leur laboratoire respectif. Merci à mes collègues avec qui j'ai pu échanger tout au long de ma thèse et dont la liste est trop longue pour être détaillée ici. Merci aux personnes qui, dans les services administratifs et financiers du CNRS, du CEA, de l'ILL ou de l'ED, ont contribué à me rendre la vie plus simple. Merci également aux membres du service informatique du LPSC pour leur disponibilité.

Merci, aux membres de mon jury et en particulier aux rapporteurs, qui ont pris le temps de lire ce manuscrit et de juger le travail de ma thèse, aussi bien à travers ce document que durant ma soutenance. Merci pour vos nombreuses remarques et questions qui ont permis d'améliorer ce manuscrit ainsi que mon recul sur mes recherches.

Un grand Merci à mon équipe de travail sur qui j'ai toujours pu compter et grâce à laquelle mon expérience de thèse fut heureuse, malgré les difficultés et les exigences de la recherche. En particulier, merci à mes directeurs de thèse, Grégoire Kessedjian et Olivier Serot, pour m'avoir pris sous leur aile, pour leur patience, leur compréhension, leur enthousiasme et leurs connaissances, qui m'ont aiguillé tout au long de ma thèse sans même m'envoyer dans le mur (ça j'y arrivais tout seul). Encore un merci à Grégoire, qui m'a transmis le goût de la recherche en faisant vibrer en moi des cordes encore inconnues pendant mes cours d'école d'ingénieur. Merci d'avoir été passionné et passionnant.

Merci à Abdelaziz pour m'avoir accompagné lui aussi depuis mon stage jusqu'à la fin de ma thèse, que ce soit dans mes recherches, dans mes exploits sportifs, dans mes calls brillants sur la League ou dans mes conquêtes impitoyables de Westeros.

Merci à Olivier Litaize, Olivier Méplan et Christophe Sage pour avoir été disponibles, au LPSC ou à Cadarache, toujours prêts à discuter et à répondre à mes questions, parfois nombreuses et répétées.

Merci à tous les shifters, pour avoir été présent, qu'il pleuve ou qu'il vente, sur LOHENGRIN, et bien sûr merci à Ulli Köster, pour ses nombreuses idées et sa perspicacité, ainsi qu'à Aurélien Blanc, auquel je souhaite une reconversion fructueuse !

Je souhaiterais maintenant remercier mes collègues doctorants et stagiaires dont j'ai croisé le chemin. Un grand Merci tout d'abord, à mes collègues doctorants du LPSC, en particulier, merci à Stéphane pour ses nombreux pichets et à ses actions épiques dans sa courte carrière de père chartreux, merci à Toto pour ses pauses thé/madeleines toujours bienvenues, merci à Robin pour ses tilts, merci à Laura pour ses bouclettes de bonne humeur et ses défis de grimpe, merci à Simon pour avoir partager ma passion en se prenant des gnons et m'avoir fait découvrir d'excellentes BD, merci à Astrid pour sa présidence impeccable et merci à Clément pour m'avoir appris l'existence de l'atome de Savoie.

Il en va de même pour mon passage au CEA, merci en particulier à Paul pour son lancer de tasse olympique et ses modulations de voix inégalées sur Discord, merci à Axel pour les covoiturages à 6h30, merci à Virginie pour avoir faire vivre mes réflexes de survie, merci à Bastien pour les séances d'escalade en intérieur ou en plein air, merci à Tim pour les invitations multiples et les séances de bricolage et merci à mes deux cobureaux de la cave aussi ... compatissants à mon sort l'un que l'autre.

Bien entendu, je souhaiterais remercier du plus profond de mon cœur les membres de ma famille qui ont fait, chacun à leur manière, qui je suis aujourd'hui. Ma famille que je sais présente et aimante, quelles que soient la distance et la fréquence de nos retrouvailles et qui, j'espère, sait que l'inverse est vrai. Un Merci bonus à mon père qui a pris du temps et du café pour relire mon manuscrit.

Un dernier merci, et non des moindres, à Anastasia, pour m'avoir aimé, épaulé et supporté (et c'est réciproque évidemment) pendant deux longues années.

TABLE DES MATIÈRES

Introduction **1**

1 Contexte de l'étude des rendements de fission **4**
1.1 Le mix énergétique mondial 5
1.2 Le nucléaire en France et dans le monde 7
1.2.1 Un levier pour lutter contre le réchauffement climatique 7
1.2.2 Le principe de la production électrique d'origine nucléaire 8
1.2.3 Les contraintes du nucléaire : sûreté, durabilité et gestion des déchets 10
1.3 Les besoins en rendements de fission 12
1.3.1 Le dimensionnement de réacteur 12
1.3.2 La puissance résiduelle 13
1.3.3 La gestion des déchets 13
1.3.4 Compréhension de phénomènes physiques et tests de modèles . . . 15
1.4 Les bibliothèques de données nucléaires évaluées : entre mesures expérimentales et modèles 15
1.4.1 Les cas particuliers du ^{239}Pu et du ^{241}Pu 16
1.5 Les objectifs de ma thèse 16

2 Des modèles de fission nucléaire à FIFRELIN **18**
2.1 Comprendre et décrire la fission nucléaire 19
2.1.1 L'image de la fission par le modèle de la goutte liquide (LDM) . . 20
2.1.2 Du LDM au modèle microscopique-macroscopique 22
2.1.3 La fission vue comme processus thermodynamique 26
2.1.4 Modèles microscopique, statique ou dynamique 29
2.2 Les modèles utiles à l'évaluation des rendements de fission 31
2.2.1 Les modèles de Wahl 32
2.2.2 Le modèle de Madland-England 32
2.2.3 Le code GEF : GEneral description of Fission observables 34
2.3 Vers une évaluation unifiée des observables de fission : le code Monte Carlo de désexcitation nucléaire FIFRELIN 35
2.3.1 Données d'entrée 37
2.3.2 Modèles de désexcitation 41
2.4 Travaux préliminaires sur FIFRELIN 44

2.5 Conclusions 48

3 Étude des rendements en masse du ^{239}Pu et du ^{241}Pu 49

3.1 Le spectromètre de masse LOHENGRIN 51
3.1.1 Principe de fonctionnement 52
3.1.1.1 Principe de sélection des produits de fission 54
3.1.1.2 Résolution en énergie et en masse 55
3.1.1.3 Cibles utilisées dans LOHENGRIN 57
3.1.2 Principe de détection de la chambre d'ionisation 62
3.1.2.1 Principe de fonctionnement 62
3.1.2.2 Résultats types d'une mesure avec la chambre d'ionisation 63
3.2 Analyse des rendements 64
3.2.1 Prise en compte du BU 66
3.2.2 Prise en compte des corrélations entre charge ionique et énergie cinétique 67
3.2.2.1 Correction de l'évolution de la cible 68
3.2.2.2 Correction de la distribution en charge ionique 69
3.2.3 Moyenne des différentes estimations du taux de comptage total $\overline{N}(A)$ 72
3.2.4 Particularités de l'analyse des données du ^{239}Pu 76
3.2.5 Particularité de la réanalyse des données du ^{241}Pu de Mai 2013 . . 78
3.2.6 Décontamination des bas rendements 80
3.2.7 Moyenne des résultats de Mai 2013 et de Novembre 2015 91
3.2.8 Normalisation 93
3.2.9 Résumé des étapes d'analyses 93
3.3 Extraction de la distribution d'énergie cinétique en fonction de la masse . 95
3.3.1 Correction de l'évolution de la cible 95
3.3.2 Corrections des pertes d'énergie et estimation de l'énergie moyenne post et pré-émission neutrons 96
3.3.3 Estimation de l'énergie moyenne pré-émission neutrons prompts . 99
3.4 Discussions des résultats et applications 100
3.4.1 Comparaison à une méthode Monte Carlo 100
3.4.2 Interprétation des distributions en énergie cinétique par les modes de Brosa 103
3.4.3 Comparaison des résultats de LOHENGRIN aux données évaluées 108
3.5 Conclusions 114

4 Étude des rendements isotopiques et isomériques du ^{241}Pu 116

4.1 Mesure des rendements isotopiques et isomériques auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN 117
4.1.1 Principe de détection des détecteurs Ge et mesure de rendements isotopiques ou isomériques 118
4.1.1.1 Les détecteurs Ge 121
4.1.1.2 Efficacité des détecteurs 123
4.1.1.3 Effet de somme 125
4.1.2 Cibles utilisées 129
4.1.3 Choix des raies γ 129
4.1.4 Principe d'analyse 131

4.1.4.1 Extraction du nombre de coups avec le logiciel TV 132
4.1.4.2 Calcul du nombre de coups corrigés 133
4.1.4.3 Cas des raies communes à plusieurs isotopes ou isomères 137
4.1.4.4 Résolution des équations de Bateman 138
Remarques sur l'utilisation des équations de Bateman : . . . 143
4.1.4.5 Correction du Burn-Up 144
4.1.4.6 Correction de la dépendance en énergie cinétique 145
4.2 Normalisation 150
4.2.1 Normalisation relative 150
4.2.2 Normalisation absolue 150
4.2.3 Résumé des étapes d'analyse et des sources de corrélation. 152
4.3 Détermination du rendement résiduel 156
4.4 Extraction de la polarisation de charge 157
4.5 Mesure de la dépendance en énergie cinétique des rendements isotopiques 161
4.5.1 Comparaison à FIFRELIN 163
4.5.2 Discussion sur l'effet pair-impair en fonction de l'énergie cinétique 169
4.6 Discussions et comparaison 173
4.6.1 Comparaison des résultats à JEFF-3.3 173
4.6.2 Ré-analyse des données de ^{233}U 177
4.7 Conclusions 178

Conclusion Générale et Perspectives **182**

Annexes **183**

A Tests statistiques **184**
A.1 Espérance mathématique et moments d'une distribution 184
A.2 Propagation d'incertitudes 186
A.3 Ajustement et test de modèle 187
A.3.1 Généralisation du test de χ^2 190
A.3.2 Estimation de l'incertitude d'un paramètre 190
A.3.3 Addition d'incertitudes indépendantes 190

B Calcul Monte-Carlo pour des paramètres corrélés **192**

C Décontamination des distributions en charge ionique **194**

D Ajustement des distributions en énergie cinétique des masses symétriques et très asymétriques **197**

E Résolution des équations de Bateman **202**
E.1 Cas d'une chaîne ne comprenant pas d'isomère visible 203
E.2 Cas d'une chaîne comprenant au moins un isomère visible 207
E.2.1 Exemple à travers le cas de l'état isomère du ^{138}Cs 207

F Résolution des équations de Bateman pour corriger du bruit de fond **209**

Liste des Figures **213**

Liste des Tableaux **224**

Bibliographie **226**

Résumé **237**

INTRODUCTION

L'industrialisation et la mondialisation, exacerbées ces dernières décennies, ont mené l'ensemble des sociétés modernes au bord du gouffre. La biodiversité (humanité comprise) se trouve malmenée et les espèces animales et végétales disparaissent à un rythme sans précédent. Nous sommes au cœur d'une crise écologique dont nous sommes tous responsables, acteurs, victimes et, potentiellement, pourvoyeurs de solutions. Les émissions de gaz à effets de serre (GES) responsables en partie du réchauffement climatique, sont devenues l'exemple phare de cette catastrophe planétaire.

La production d'énergie est responsable d'environ deux tiers (68%) de la production mondiale de GES, suivie de loin par les secteurs de l'agriculture (12%) [1] et de l'industrie (7%) [2] [1]. Les émissions de GES dues à la production d'énergie ont augmenté de 58% entre 1990 et 2015, avec des pics impressionnants comme au Bénin (+849% pour atteindre 0,49 t_{CO_2}/hab en 2015) ou au Vietnam (+597% pour atteindre 1,83 t_{CO_2}/hab en 2015). Ces deux pays sont pourtant bien loin de la moyenne de l'Union Européenne (6.28 t_{CO_2}/hab), des États-Unis d'Amérique (15,33 t_{CO_2}/hab) ou de la Chine (6,59 t_{CO_2}/hab), ces deux derniers pays étant en absolu les plus gros émetteurs de GES au monde.

Pour résoudre un problème aussi critique, une solution globale se doit d'être mise en place. En décembre 2015, les accords de Paris sur le climat ont regroupé le monde à l'occasion de la COP21, pour un premier pas vers une action planétaire. Entrés en vigueur le 4 Novembre 2016, 195 pays ou organisations en sont signataires [3] [2]. L'année 2015 fut doublement historique, car c'est la première année depuis le début des années

1. Notamment par l'émission de CH_4 et N_2O par le bétail et la riziculture.
2. Principalement des gaz fluorés et du N_2O.
3. Le Nicaragua et la Syrie ont depuis ratifié les accords. Les États-Unis ont annoncé leur souhait de se retirer des accords, mais cela ne serait effectif qu'en 2020 minimum.

90, où les émissions de GES n'ont pas augmenté par rapport à l'année précédente malgré un taux de croissance économique positif.

Étant responsable d'une grande majorité des émissions de GES, la production d'énergie est la clé majeure de la diminution de l'émission de GES. Parmi les solutions disponibles, la production d'électricité d'origine nucléaire est mise en avant par certains pour participer à cet effort. Le terme « nucléaire » est, par bien des aspects, porteur de polémique. Il s'est lourdement chargé d'histoires militaires, politiques, sociales et environnementales, depuis la découverte de la fission nucléaire il y a 80 ans, à laquelle « nucléaire » fait largement référence dans le langage courant. Pourtant, la quantité d'énergie libérée par la fission nucléaire en fait une source d'énergie exceptionnelle. Mieux comprendre la fission nucléaire, c'est pouvoir maîtriser et garantir la sécurité de son utilisation.

Cette thèse est une contribution à l'étude de la fission nucléaire. Elle prend place au sein de la collaboration, démarrée en 2010, entre le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA), le Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) et l'Institut Laue-Langevin (ILL). Cette dernière a pour but la mesure précise des rendements de la fission induite par neutron thermique pour les actinides d'intérêts du cycle Uranium-Plutonium et Thorium-Uranium. Récemment, des campagnes de mesures portant sur les rendements de fission des réactions ^{239}Pu(n$_{th}$,f) et ^{241}Pu(n$_{th}$,f) ont été menées auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN à l'ILL. Cette thèse porte sur l'analyse des rendements isobariques de ^{239}Pu(n$_{th}$,f) et de ^{241}Pu(n$_{th}$,f) et des rendements isotopiques et isomériques de ^{241}Pu(n$_{th}$,f). D'autres observables d'intérêt pour l'étude de la fission nucléaire ont aussi été étudiées parallèlement à ces rendements.

Ce manuscrit est la synthèse de mes travaux de recherches au sein de cette collaboration. Il est composé de quatre chapitres. Le premier chapitre exposera le contexte de l'énergie nucléaire et de l'étude des rendements de fission dans le cadre de l'évaluation des données nucléaires, dans lequel cette thèse s'inscrit.

Ensuite, le chapitre 2 sera l'occasion d'une présentation non exhaustive des premiers modèles de fission nucléaire visant à prédire les rendements de fission et de leurs améliorations au cours du temps. Nous présenterons aussi le code de calcul FIFRELIN [4] auquel nous ferons appel pour interpréter certaines des observables mesurées.

Le chapitre 3 portera tout d'abord sur la présentation du spectromètre LOHENGRIN et du dispositif expérimental de mesure des rendements isobariques. Puis, nous présenterons l'analyse mise en place pour l'étude de ces rendements et de leur distribution en énergie cinétique. Une partie des régions de la fission symétrique et très asymétrique ont été mesurées pour le ^{241}Pu et feront l'objet d'une analyse dédiée.

4. FIssion FRagment Evaporation Leading to an Investigation of Nuclear data.

Enfin, le chapitre 4 exposera le dispositif expérimental et le procédé d'extraction des rendements isotopiques et isomériques. Nous présenterons les résultats obtenus pour une partie des masses du pic lourd. De plus, une mesure dédiée à la dépendance du rendement des produits de fission à leur énergie cinétique sera aussi examinée et interprétée à l'aide de FIFRELIN.

Cette thèse a largement profité de l'expérience accumulée par la collaboration par des années de mesures sur le spectromètre LOHENGRIN. Les méthodes de mesure et d'analyse utilisées et présentées dans ce manuscrit se veulent un aboutissement de ce retour d'expérience, combinant des procédures d'analyses éprouvées à de nouvelles améliorations. Un accent particulier est mis sur l'utilisation systématique de tests statistiques et sur la prise en compte des covariances expérimentales et de leurs propagations pour que les résultats finaux et leurs incertitudes soient rigoureux et précis.

CHAPITRE 1

CONTEXTE DE L'ÉTUDE DES RENDEMENTS DE FISSION

Sommaire

1.1 Le mix énergétique mondial **5**

1.2 Le nucléaire en France et dans le monde **7**

1.2.1 Un levier pour lutter contre le réchauffement climatique 7

1.2.2 Le principe de la production électrique d'origine nucléaire . . . 8

1.2.3 Les contraintes du nucléaire : sûreté, durabilité et gestion des déchets 10

1.3 Les besoins en rendements de fission **12**

1.3.1 Le dimensionnement de réacteur 12

1.3.2 La puissance résiduelle 13

1.3.3 La gestion des déchets 13

1.3.4 Compréhension de phénomènes physiques et tests de modèles . 15

1.4 Les bibliothèques de données nucléaires évaluées : entre mesures expérimentales et modèles **15**

1.4.1 Les cas particuliers du ^{239}Pu et du ^{241}Pu 16

1.5 Les objectifs de ma thèse **16**

La fission nucléaire est un processus physique par lequel un noyau atomique se scinde en deux voire trois noyaux plus légers. C'est une réaction exothermique [1] dont le résultat diffère d'une fission à l'autre, que ce soit par la nature des fragments produits (charge nucléaire et masse) ou leurs états d'énergie et de spin. Le taux de production d'un fragment particulier est appelé le rendement de fission. Ces rendements sont des grandeurs capitales pour d'éventuelles applications en physique des réacteurs et en radioprotection. Le vieillissement de matériaux sous irradiations, par exemple, est dépendant du nombre et de l'énergie des neutrons et γ émis par les fragments de fission, découlant directement des caractéristiques de ces fragments de fission.

De par la complexité et la multiplicité des interactions mises en jeux, la modélisation de la fission nucléaire est encore loin de reproduire fidèlement les mesures, en particulier les rendements de fission. Puisque ces données de rendements ne sont pas prédites avec la précision requise par les applications, elles doivent être mesurées, afin d'essayer de satisfaire les exigences de la physique des réacteurs et permettre l'élaboration de modèles plus sophistiqués. La thématique des données nucléaires regroupe les communautés d'évaluateurs, d'expérimentateurs et de théoriciens dans le but de proposer un ensemble cohérent de données nucléaires.

Afin d'introduire cet enjeu et les objectifs de cette thèse, nous allons nous placer dans un contexte plus large, en présentant tout d'abord dans ce premier chapitre la place de la production nucléaire civile dans la production d'énergie mondiale et dans quelle mesure elle peut aider à répondre à la réduction d'émissions de GES. Nous verrons ensuite l'importance de la connaissance précise des rendements de fission dans cette optique ainsi que pour d'autres applications et quelle est spécifiquement la place que propose de prendre cette thèse dans la thématique des données nucléaires.

1.1 Le mix énergétique mondial

Historiquement et aujourd'hui encore (voir la figure 1.1) la production d'énergie repose essentiellement sur l'exploitation de combustibles fossiles : gaz naturel, pétrole et charbon. En plus de dégager lors de leur combustion des éléments nocifs pour l'homme et l'environnement, ces sources d'énergie sont limitées en quantité. Diverses estimations existent et divergent dans leurs conclusions mais la majorité s'accorde pour un épuisement de ces ressources au cours du XXIe siècle.

Dans notre consommation finale d'énergie, l'électricité tient une place de plus en plus importante et n'est pas exempte de cet asservissement aux combustibles fossiles

1. Dans le cas de la fission d'un actinide.

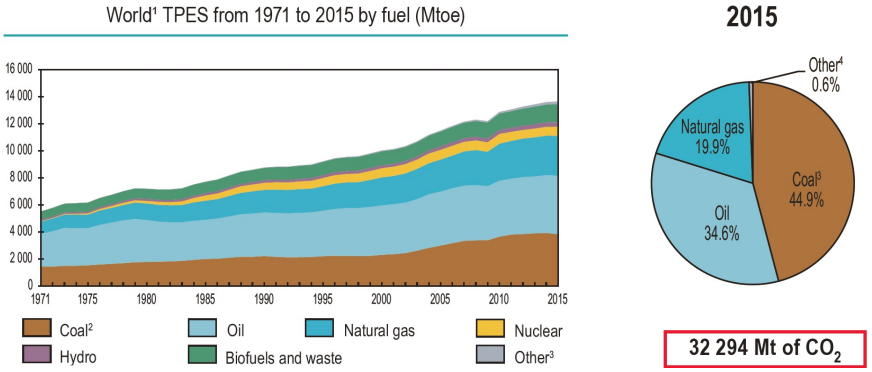


FIGURE 1.1: À gauche, l'évolution dans le temps de la production mondiale d'énergie primaire (TPES pour Total Primary Energy Supply) par type d'énergie. Le terme « other » regroupe entre autres la géothermie, le solaire, l'éolien et l'exploitation des forces de marée. À droite, la part de chaque type d'énergie primaire dans les émissions de GES. Tiré de [3].

(voir la figure 1.2). Elle repose principalement sur la combustion de pétrole, de charbon et de gaz dans des centrales thermiques, malgré le récent essor massif des énergies dites renouvelables dans certains pays (voir la figure 1.3).

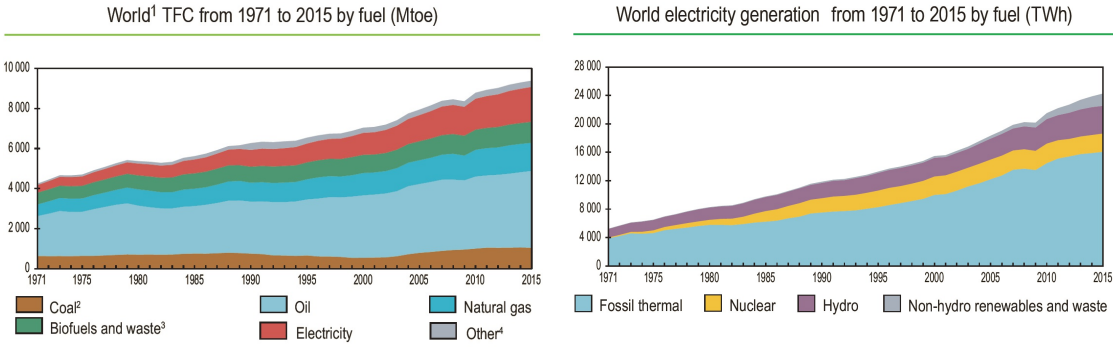


FIGURE 1.2: À gauche, l'évolution de la consommation mondiale d'énergie (TFC pour Total Final Consumption) par type d'énergie. Le terme « other » regroupe entre autres le chauffage solaire et la géothermie. À droite, la production d'électricité par type d'énergie. Tiré de [3].

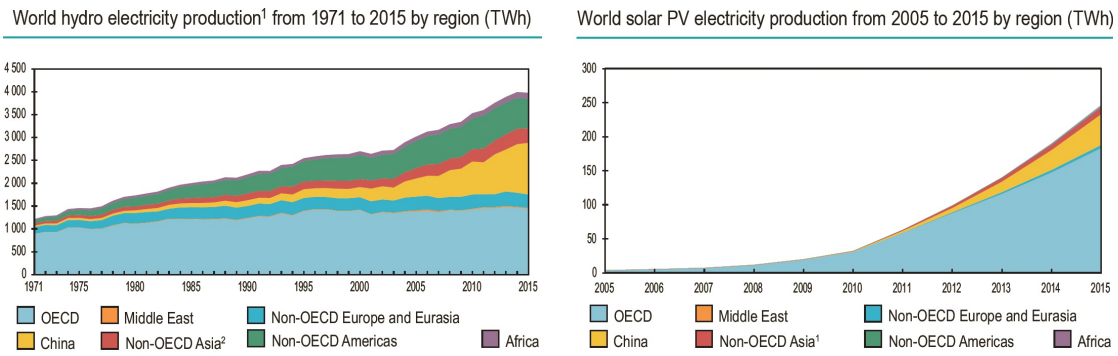


FIGURE 1.3: L'évolution de la production d'électricité d'origine hydraulique (à gauche) et solaire (à droite), dans les différentes régions du monde. Tiré de [3].

La consommation d'électricité est pourtant l'un des secteurs où la production peut être rapidement et efficacement décarbonée, puisque des solutions éprouvées, peu émettrices de GES, peuvent se substituer aux combustibles fossiles.

1.2 Le nucléaire en France et dans le monde

Parmi ces candidats, l'énergie nucléaire tient une place déjà importante dans la production d'électricité. Elle a bénéficié durant de nombreuses années, de forts investissements pour la recherche (voir la figure 1.4).

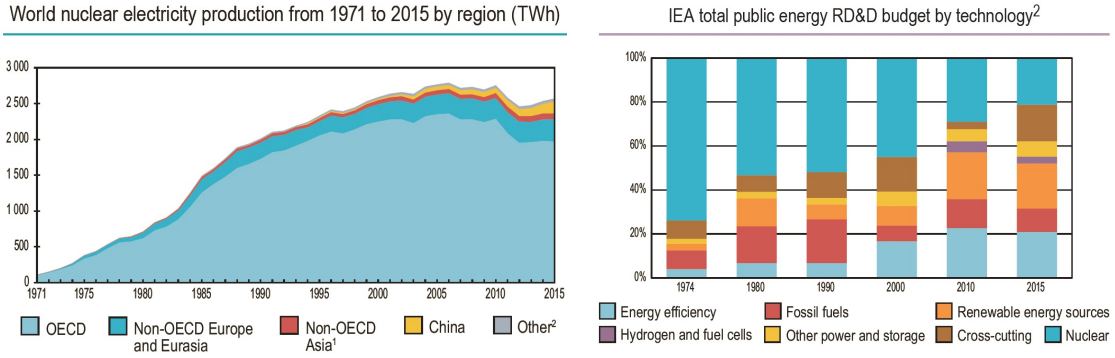


FIGURE 1.4: À gauche, l'évolution en temps de la production mondiale d'électricité nucléaire par région. À droite, la distribution du budget public de recherche et développement alloué aux énergies. Tiré de [3].

En France, cet investissement s'exprime notamment à travers la création en 1945 du Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA), devenu récemment le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives. Les premiers réacteurs français, mis en place dans les années 60, sont issus de la filière Uranium Naturel Graphite Gaz (UNGG), développée par le CEA. Ils sont aujourd'hui tous à l'arrêt et ont cédé leur place aux Réacteurs à Eau Pressurisée (REP), basés sur le design développé par Westinghouse (États-Unis). Aujourd'hui, l'énergie nucléaire est majoritaire dans la production d'électricité française, avec une part de 72,3 % [4] pour 58 réacteurs [2].

1.2.1 Un levier pour lutter contre le réchauffement climatique

Si nous comparons les émissions de GES de la France et de ses voisins, présentées sur la figure 1.5, nous voyons que la France fait figure depuis longtemps de bon élève. C'est notamment sur la production d'électricité et de chaleur que la France se démarque de ses voisins européens, comme cela est illustré sur la partie droite de la figure 1.5. La

2. La France est par ailleurs le premier exportateur mondial d'électricité (données de 2015).

Suède, qui base aussi sa production d'électricité sur l'hydraulique et le nucléaire présente un niveau similaire à la France dans cette catégorie.

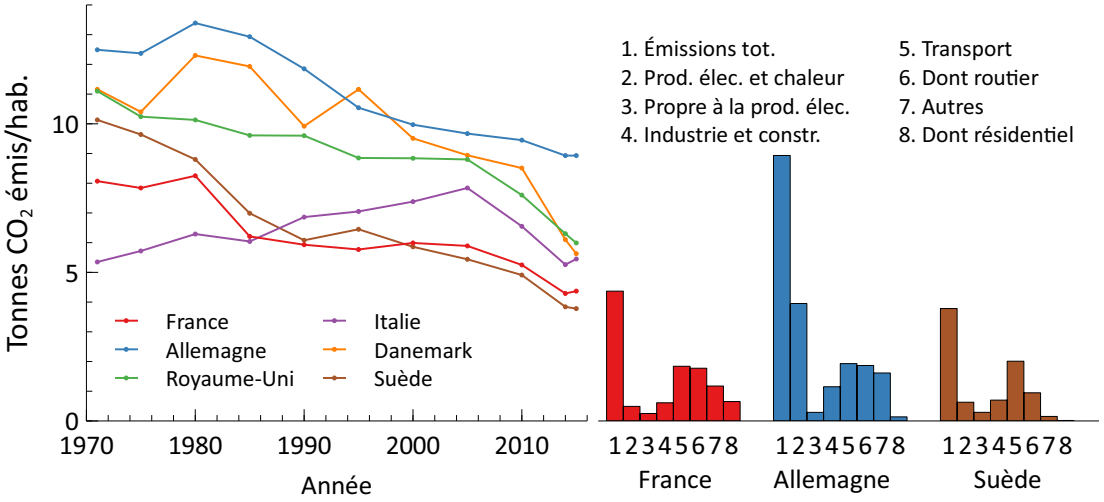


FIGURE 1.5: À gauche, l'évolution dans le temps des émissions de GES pour la production d'énergie, par habitant, dans plusieurs pays européens. À droite, le détail par catégories d'émetteurs pour l'année 2015, pour la France, l'Allemagne et la Suède. Données provenant de [1].

C'est sur ce constat que certains pays se sont tournés vers l'exploitation civile de l'énergie nucléaire pour décarboner leur production d'électricité. Dans la conjoncture actuelle où la demande en énergie et notamment en électricité est en forte augmentation, l'électricité produite à l'aide de la fission nucléaire a l'avantage certain d'être une énergie concentrée pouvant produire de manière continue, tout en évitant le dégagement massif de GES. À l'échelle mondiale, à la fin de l'année 2017, ce sont 446 réacteurs qui sont exploités dans le monde, pour une capacité totale de 389 GW_e [5]. Avec trois nouveaux réacteurs raccordés en Chine et un au Pakistan en 2017 et 58 réacteurs actuellement en construction dans le monde, l'énergie nucléaire est encore en développement.

Nous allons maintenant très succinctement décrire le procédé de production d'électricité nucléaire dans les centrales françaises.

1.2.2 Le principe de la production électrique d'origine nucléaire

Certains noyaux atomiques particulièrement lourds, tels que l'^{233,235}U ou le ^{239,241}Pu [3], peuvent, lorsqu'ils capturent un neutron, se scinder en plusieurs fragments. C'est le phénomène de fission nucléaire induite par neutron [4] qui sera abordé plus en détail dans le

3. Ces noyaux sont dits fissiles. À l'état naturel, uniquement l'^{235}U existe, ce qui est la raison principale du développement historique de la filière uranium.
4. Une fission peut être induite par d'autres voies (ex : photo-fission).

chapitre suivant. *A contrario*, certains noyaux, par exemple le ^{242}Cm ou le ^{252}Cf, peuvent se scinder sans apport extérieur, c'est la fission spontanée.

Les fragments résultants d'une fission (fragments de fission) sont caractérisés par leur nombre de protons (charge nucléaire), Z, leur nombre de neutrons, N et de constituant total, $A = Z + N$, le nombre de masse du fragment. Formés dans un état d'énergie généralement très élevée, ils vont libérer cette énergie en émettant quasi-instantanément des neutrons et γ prompts, devenant alors des produits de fission. Ces produits de fission, très riches en neutrons, vont décroitre par β^- vers la vallée de stabilité, en émettant à leur tour des particules, dites retardées.

Dans le cœur d'un réacteur nucléaire, où se situe le combustible, les neutrons libérés par les fragments et produits de fission vont induire de nouvelles fissions et instaurer une réaction de fission en chaîne. L'énergie libérée par chaque fission, de l'ordre de 200 MeV [5], va permettre la montée en température du fluide caloporteur du réacteur [6]. La chaleur accumulée sera restituée à un circuit d'eau secondaire au niveau des générateurs de vapeur. La vapeur ainsi créée est conduite vers une turbine pour produire de l'électricité. La génération de vapeur puis le passage de cette vapeur dans une turbine est le procédé classique mis en place dans une centrale thermique, quel que soit le combustible.

Pour un évènement de fission, la probabilité d'obtenir le noyau (A, Z) est le rendement isotopique $Y(A, Z)$ [7]. Le rendement en masse $Y(A)$, ou rendement isobarique, est la probabilité d'obtenir pour une fission un noyau de masse A, toute charge nucléaire confondue. Naturellement, nous avons la relation :

$$Y(A) = \sum_i Y(A, Z_i) \tag{1.1}$$

Pour ces deux types de rendements, nous faisons la distinction entre le rendement des fragments de fission (ou pré-émission neutrons), avant l'émission des neutrons prompts et le rendement des produits de fission (ou post-émission neutrons), après l'émission des neutrons prompts (mais avant les décroissances β^-).

5. 1 eV = $1{,}602 \cdot 10^{-19}$ J
6. De l'eau légère sous pression pour les REP.
7. Des isotopes sont des noyaux possédants la même charge nucléaire mais des nombres de masses différents. Le rendement isotopique est le rendement d'un isotope en particulier, défini par son couple (A, Z).

1.2.3 Les contraintes du nucléaire : sûreté, durabilité et gestion des déchets

L'exploitation massive de l'énergie nucléaire soulève des problèmes majeurs : la sûreté des installations (intrinsèque et contre les menaces extérieures, naturelles ou criminelles), la durabilité de l'approvisionnement des ressources naturelles et la gestion des déchets. Ceux-ci font de l'énergie nucléaire une énergie très polémique et fortement politisée. L'opinion publique française est d'ailleurs très majoritairement (68%) pour une réduction de la part du nucléaire dans le mix énergétique français [6].

Les accidents de Three Miles Island, en 1979, de Tchernobyl, en 1986 et de Fukushima, en 2011, sont les exemples traumatisants des failles que peut présenter l'industrie nucléaire en matière de sûreté.

En terme de durabilité, les ressources en uranium, qui est le combustible majoritaire des réacteurs en fonctionnement [8], sont limitées. L'Agence de l'Énergie Nucléaire (AEN) estime que les ressources en uranium couvriront 135 ans [7] d'exploitation, pour une consommation et une technologie équivalente à celle d'aujourd'hui [9]. Si la production d'électricité nucléaire est augmentée pour diminuer l'utilisation des énergies fossiles, c'est bien évidemment insuffisant.

Enfin, la gestion des déchets est un problème sensible, en particulier avec la polémique actuelle du projet français de stockage souterrain Cigéo. Dans la législation française, l'encadrement de la gestion des déchets nucléaires est défini par la loi Bataille de 1991, réactualisée en 2006. Cette loi demande aux organismes de recherche d'étudier les solutions de recyclage des déchets et la transmutation des éléments à longue durée de vie, ainsi que le stockage, en surface ou géologique. Pour bien comprendre ce sujet, il est nécessaire de bien identifier d'où viennent ces déchets. Il existe trois catégories de radionucléides dans le combustible nucléaire usé [10] :

- Les actinides majeurs, qui sont les isotopes de l'U et du Pu.
- Les actinides mineurs, qui sont les isotopes de la famille des actinides autres que l'U et le Pu.
- Les produits de fission.

Les actinides transuraniques [11] sont produits dans le réacteur par l'enchainement de captures neutroniques et de désintégrations β^-. Pour les actinides majeurs, deux

8. Le thorium, en quantité entre trois et cinq fois plus importante que l'uranium, est un autre combustible possible pour les réacteurs nucléaires et fait l'objet de recherches actives, en Inde en particulier.
9. Différentes équipes de recherche se concentrent depuis quelques décennies sur l'extraction de l'uranium contenu dans l'eau de mer, qui est une source gigantesque d'uranium, avec des résultats très prometteurs. Voir par exemple [8].
10. Nous ne parlerons pas ici des déchets d'exploitation qu'il est souvent nécessaire de vitrifier.
11. Dont le numéro atomique est supérieur à l'U, $Z = 92$.

solutions existent. En France ou au Japon, les combustibles usés sont recyclés afin d'en extraire les actinides majeurs qui peuvent être réutilisés en réacteur. Cette approche permet de régénérer une partie du combustible et de diminuer le volume de déchets. D'autres pays, comme les États-Unis, ne recyclent pas jusqu'à maintenant ces actinides majeurs et les considèrent comme des déchets. Dans les deux cas, les actinides mineurs et les produits de fission sont des déchets ultimes.

La durée de vie de la majorité des déchets ultimes est « courte » ($T_{1/2} < 30$ ans) et un stockage (en surface ou géologique) est envisageable. Pour les actinides mineurs, mais aussi certains produits de fission [12], leur temps de vie est trop long pour cette dernière solution. Le stockage ne peut apparaître que comme une solution temporaire. Du point de vue de la recherche, des solutions sont développées pour ces déchets à vie longue, nous en aborderons deux en particulier.

Tout d'abord la transmutation dans les ADS (Accelerator Driven System). Les ADS sont des réacteurs nucléaires sous-critiques couplés à un accélérateur de particules qui est une source de neutron extérieur au système. Le caractère sous-critique, que nous présenterons dans la sous-section 1.3.1, permettrait d'éviter les accidents dits de criticité. Le principe de la transmutation est de favoriser une réaction nucléaire de capture (pour les produits de fission) ou de fission induite (pour les actinides mineurs) afin de transformer les isotopes à vie longue en d'autres à vie plus courte. Plusieurs projets existent à travers le monde, par exemple le projet MYRRHA [9] (Multipurpose Hybrid Research Reactor for High-tech Applications) développé en Belgique, ou le projet BRAHMMA [10] (Beryllium oxide Reflected And HDPe Moderated Multiplying Assembly) en Inde.

Enfin, une partie de la communauté scientifique se porte sur le développement de réacteur dit de quatrième génération (la flotte actuelle étant composée de réacteurs de deuxième et troisième générations). Ces réacteurs de quatrième génération ont pour objectifs :

- D'être durables en étant capable de fournir de l'énergie sur le long terme, en utilisant efficacement le combustible tout en minimisant les déchets produits.
- D'être compétitifs économiquement en proposant des prix similaires aux autres sources d'énergie.
- D'être résistants à la prolifération, en consommant les éléments transuraniques (qui peuvent être détournés pour la fabrication d'armes nucléaires).
- D'être plus sûrs, en reposant sur des systèmes de sécurité intrinsèque, tout en assurant la protection des hommes et de l'environnement.

12. Le ^{99}Tc, de demi-vie radioactive $T_{1/2} = 2,111 \cdot 10^5$ ans ou le ^{135}Cs, $T_{1/2} = 2,3 \cdot 10^6$ ans.

Forte de son expérience sur les réacteurs expérimentaux Rapsodie, Phénix et le prototype industriel Superphénix, la France a choisi le concept de réacteur à neutrons rapides refroidis au sodium (SFR) comme avenir de la filière nucléaire. Le projet ASTRID (Advance Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration) notamment, porté par le CEA et EDF (Électricité De France) reflète cet engagement.

L'objectif final est de fonctionner en cycle fermé en permettant le multi-recyclage du combustible nucléaire.

Nous allons maintenant discuter de l'utilité des mesures de rendements de produits de fission, entre autres pour l'exploitation des réacteurs nucléaires. Dans le cadre de cette thèse et pour la suite de ce chapitre, nous nous focaliserons sur les rendements de la fission induite par neutron thermique.

1.3 Les besoins en rendements de fission

Les rendements de fission sont tout d'abord utiles pour le dimensionnement des réacteurs nucléaires, ce sont par exemple des données d'entrée pour des simulations d'évolution de cœur du réacteur en fonctionnement. Nous allons voir quelques applications où la connaissance des rendements de fission est nécessaire.

1.3.1 Le dimensionnement de réacteur

La réactivité est le paramètre permettant le contrôle du cœur du réacteur nucléaire. Plus précisément, il s'agit de l'évolution dans le temps de la population de neutrons dans un réacteur, qui est une mesure de la propagation de la réaction de fission en chaîne. Si la réactivité est supérieure à 0, la réaction en chaîne s'amplifie. Le réacteur est alors surcritique, si rien n'est fait une situation accidentelle est très rapidement atteinte. Si elle est inférieure à 0, le réacteur est dit sous-critique, la réaction en chaîne s'épuise et finit par s'arrêter. Si la réactivité est de 0, la réaction en chaîne se poursuit de manière stable : en moyenne, pour chaque neutron consommé par la fission, un nouveau est disponible. Le réacteur est alors critique.

Pour connaître l'évolution de la réactivité, il faut connaître la quantité de matière fissile dans le cœur du réacteur et l'inventaire des produits de fission. La réactivité est particulièrement dépendante de la concentration de certains produits de fission qui peuvent capturer des neutrons (^{135}Xe, ^{149}Sm ...). Ils sont désignés comme poisons neutroniques, car ils induisent une baisse de la population de neutrons et donc de la réactivité. Connaître précisément le rendement de ces poisons neutroniques permet un contrôle plus

fin du réacteur et ils sont particulièrement importants à connaitre lors du redémarrage d'un réacteur.

De la même manière, les produits de fission gazeux (Xe et Kr en particulier) sont importants car ils participent significativement à la pression au sein de la gaine recouvrant le combustible. La présence de ces produits de fission gazeux contribue aux pressions mécaniques qui s'appliquent sur la gaine et peuvent changer la géométrie du combustible et ses propriétés thermiques. À l'excès, la gaine peut se rompre et entraîner une situation accidentelle, car alors une partie des produits de fission contaminent le circuit d'eau primaire. Bien connaître les quantités de ces produits de fissions au cours de la vie du combustible permet de pouvoir mieux modéliser son comportement.

1.3.2 La puissance résiduelle

Le dernier exemple que nous citerons concerne le calcul de la puissance résiduelle. C'est la puissance thermique émise par le combustible lorsque la réaction en chaîne est arrêtée. Elle constitue une donnée importante lorsque le combustible est sorti du réacteur à l'arrêt d'un réacteur, ou lors d'une situation accidentelle (arrêt inhabituel du réacteur). Cette puissance résiduelle est due aux décroissances des produits de fission et des actinides présents dans le combustible. Si elle n'est pas évacuée, une surchauffe du combustible usé peut amener à une situation accidentelle.

L'importance des rendements de fission pour la puissance résiduelle est illustrée par les figures 1.6 et 1.7. Nous pouvons voir tout d'abord sur la figure 1.6 que l'incertitude des rendements de fission est une part importante de l'incertitude totale (ici pour le cas de la fission du ^{239}Pu) et devient même majoritaire après une heure. La figure 1.7 illustre l'impact des matrices de corrélation des rendements de fission. Selon l'hypothèse de corrélation prise en compte, les incertitudes finales sont très différentes. Pour une estimation précise de l'incertitude d'une grandeur physique, les incertitudes et les corrélations des ingrédients utilisés doivent être connues. Si les corrélations ne sont pas prises en comptes, l'incertitude peut être surestimée ou sous-estimée.

1.3.3 La gestion des déchets

La France a choisi une politique de retraitement des déchets nucléaires. Lors de ce retraitement, la connaissance de la puissance résiduelle et des émissions radioactives du combustible usagé sont des enjeux importants. Pour le retraitement du combustible nucléaire et la radioprotection il est important de savoir avec précision, quels types de noyaux sont contenus dans le combustible en fin de cycle et en quelle quantité. Cela

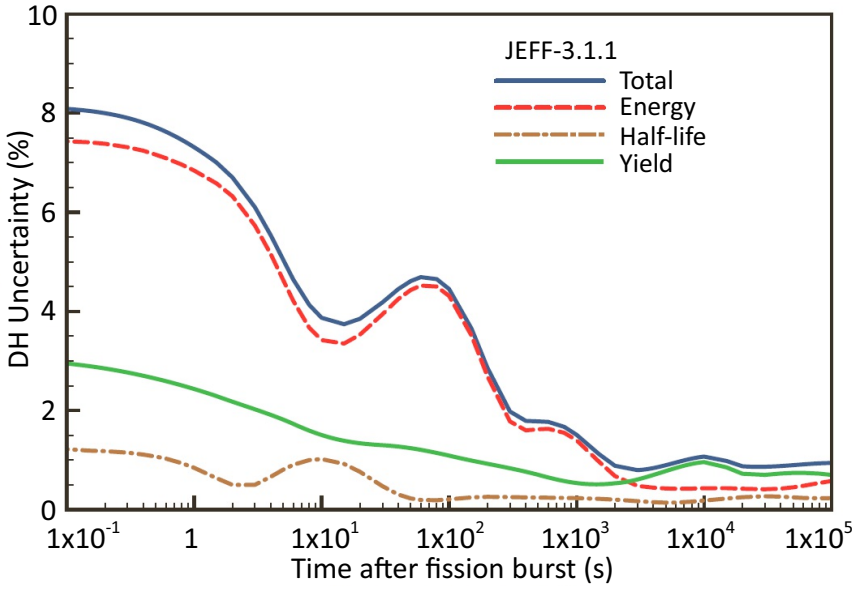


FIGURE 1.6: L'incertitude de la puissance résiduelle élémentaire venant de la fission induite par neutron thermique du ^{239}Pu. Adapté de [11].

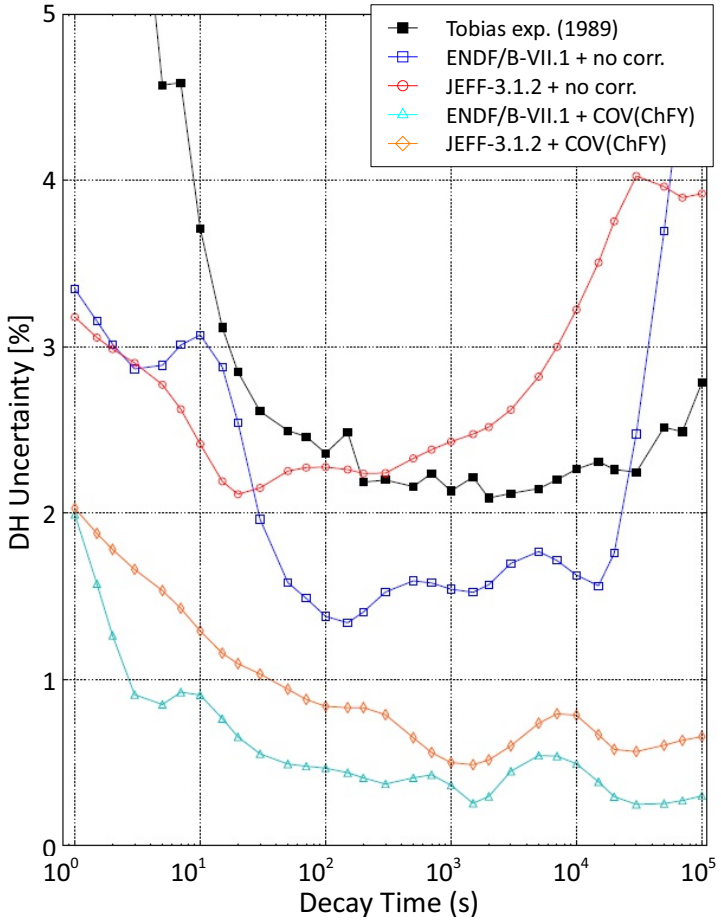


FIGURE 1.7: L'incertitude de la puissance résiduelle élémentaire venant de la fission induite par neutron thermique du ^{235}U obtenue avec JEFF-3.1.2 et ENDF/B-VII.1., pour différentes hypothèses de covariances. Adapté de [12].

n'est possible que si les rendements des produits de fission de chaque noyau fissile sont bien connus.

1.3.4 Compréhension de phénomènes physiques et tests de modèles

L'importance de ces rendements de fission ne se restreint pas qu'à la physique des réacteurs. Elle a un impact direct sur d'autres domaines de recherche, comme par exemple la physique des neutrinos pour le calcul du spectre d'antineutrinos réacteurs [13].

Les modèles de fission nucléaire, comme nous le verrons plus en détail dans le chapitre suivant, chapitre 2, sont encore loin de reproduire les observations. Les rendements de fission font partie des observables à partir desquelles ces modèles peuvent être testés. La sensibilité des modèles à certaines données expérimentales (les rendements de la région symétrique ou très asymétrique, les rapports isomériques) est particulièrement importante, ce qui en fait des données de premier choix pour ces tests.

1.4 Les bibliothèques de données nucléaires évaluées : entre mesures expérimentales et modèles

Les mesures d'observables de la fission nucléaire, comme les rendements de fission, sont regroupées dans des bibliothèques de données nucléaires, que nous allons maintenant décrire.

Ces bibliothèques de données nucléaires évaluées regroupent les connaissances expérimentales acquises au cours des dernières décennies, couplées à des modèles empiriques et un long processus d'évaluation. L'évaluation consiste à proposer un ensemble d'observables cohérentes, prenant en compte les données expérimentales disponibles et des modèles empiriques. Les évaluations sont constamment testées, en particulier par comparaison à des mesures intégrales.

Ces bibliothèques reposent généralement sur les mêmes mesures expérimentales, mais pas nécessairement sur les mêmes modèles. La multiplicité des jeux de données et les incohérences entre expériences font du processus d'évaluation une tâche ardue, de plus, des méthodes d'évaluations différentes sont utilisées. Cela entraîne parfois des divergences significatives entre les bibliothèques de données nucléaires usuelles.

Il existe différentes bibliothèques de données nucléaires, nous citerons en particulier les bibliothèques des États-Unis, ENDF (Evaluated Nuclear Data File) et européenne,

JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion). Dans les prochains chapitres, nous comparerons nos données avec ENDF/B-VII.1 [14], JEFF-3.1.1 [15] et JEFF-3.3 [16].

1.4.1 Les cas particuliers du ^{239}Pu et du ^{241}Pu

Les noyaux de ^{239,241}Pu sont des noyaux fissiles produits et consommés au cours de l'exploitation d'un REP. Sur l'ensemble du cycle, le plutonium est responsable d'environ 30% de l'énergie thermique produite. En particulier, dans le cadre du multi-recyclage, cette proportion serait de plus en plus importante. Ainsi, leurs rendements de fission sont utiles aux calculs que nous venons de voir. Pourtant, les incertitudes sur les rendements de fission isotopiques ou isobariques que proposent les évaluations sont bien souvent proche de 10 à 20%. Ce sont des incertitudes trop importantes si nous souhaitons simuler précisément le comportement des réacteurs nucléaires, surtout en l'absence de matrices de covariance.

En particulier, il existe pour le ^{239}Pu une divergence entre ENDF/B-VII.1 et JEFF-3.1.1 sur la forme de la distribution du pic lourd, notamment autour de la masse 134. Dans JEFF-3.1.1, le rendement de la masse 134 est de 6,9% et de 7,7% dans ENDF/B-VII.1. C'est pourtant une masse dont le rendement est primordial pour le contrôle des réacteurs. En effet, lors du fonctionnement d'un réacteur nucléaire, l'activité de l'^{134}I est mesurée. Si elle dépasse un seuil, cela peut indiquer une perte d'étanchéité conduisant à la dissémination d'une partie des produits de fission dans le circuit primaire, nécessitant un arrêt immédiat du réacteur [17]. Le ^{134}Xe, dont le rendement cumulé est équivalent au rendement de la masse 134, est aussi important du fait de son état gazeux, comme nous l'avons vu précédemment.

Le problème est différent pour le ^{241}Pu. Pour cet isotope, peu de données expérimentales existent, en particulier pour les rendements isotopiques du pic lourd, ce qui nécessite un travail complet de mesure dans cette région de masses.

1.5 Les objectifs de ma thèse

Ma thèse s'inscrit dans cette thématique générale d'évaluation de données nucléaires et de tests de modèles, au sein de la collaboration entre le CEA, le CNRS et l'ILL. Elle fait suite aux travaux de thèse portés par A. Bail [18], F. Martin [19], C. Amouroux [20] et A. Chebboubi [21] qui ont su faire évoluer la méthode de mesure et d'analyse.

Cette thèse porte en premier lieu sur les mesures des rendements en masse de la fission induite par neutron thermique du ^{239}Pu, afin de proposer une réévaluation d'une

partie du pic lourd et fournir une solution aux différences observées entre JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.1. Pour le ^{241}Pu, nous voulons proposer des données plus complètes en fournissant l'intégralité des rendements en masse du pic lourd, comprenant les régions de la fission symétrique et très asymétrique et une partie importante du pic léger. Il est important de mesurer l'intégralité du pic lourd pour permettre une auto-normalisation et ainsi une indépendance aux données existantes (expérimentales ou évaluées). De plus, les régions symétrique et très asymétrique sont particulièrement sensibles aux effets prédits par certains modèles. Nous souhaitons aussi proposer pour le ^{241}Pu une partie des rendements isotopiques du pic lourd.

Pour les différentes analyses menées, une attention particulière est portée à la production et la propagation des incertitudes et de leurs covariances. Ces covariances, qui comme nous l'avons vu sont primordiales pour utiliser des données, sont comme un passeport de l'analyse, elles reflètent le chemin d'analyse suivi. Leur prise en compte permet une propagation juste de l'incertitude expérimentale. Ces matrices sont malheureusement souvent manquantes dans les données expérimentales et de manière générale non incluses ou incomplètes dans le processus d'évaluation, malgré des efforts récents dans ce sens [22; 23].

CHAPITRE 2

DES MODÈLES DE FISSION NUCLÉAIRE À FIFRELIN

Sommaire

2.1 Comprendre et décrire la fission nucléaire 19

2.1.1 L'image de la fission par le modèle de la goutte liquide (LDM) 20

2.1.2 Du LDM au modèle microscopique-macroscopique 22

2.1.3 La fission vue comme processus thermodynamique 26

2.1.4 Modèles microscopique, statique ou dynamique 29

2.2 Les modèles utiles à l'évaluation des rendements de fission 31

2.2.1 Les modèles de Wahl 32

2.2.2 Le modèle de Madland-England 32

2.2.3 Le code GEF : GEneral description of Fission observables . . . 34

2.3 Vers une évaluation unifiée des observables de fission : le code Monte Carlo de désexcitation nucléaire FIFRELIN . . 35

2.3.1 Données d'entrée 37

2.3.2 Modèles de désexcitation 41

2.4 Travaux préliminaires sur FIFRELIN 44

2.5 Conclusions 48

La physique nucléaire est une des disciplines scientifiques majeures du XXe siècle, dont l'un des points culminants fut la découverte de la fission nucléaire, qui a eu et a toujours des impacts sociétaux et géopolitiques conséquents.

En 1938 et 1939, O. Hahn et F. Strassman publient leurs observations [24] [25] [26] qui en quelques mois trouvent une première interprétation théorique par L. Meitner et O. R. Frisch [27] [1]. O. Hahn obtint le prix Nobel de chimie en 1944, la fission, alors dans la thématique de la chimie nucléaire, était pressentie pour révolutionner le monde, tant l'énergie libérée par ce processus, de l'ordre de 200 MeV, est imposante.

La plupart des grands noms de la physique se joignent alors à cette nouvelle discipline, développant modèles et expériences afin de comprendre et tester ce nouveau pan de la physique nucléaire.

Près de 80 ans après, son étude n'est plus autant à la mode, détrônée par d'autres domaines comme la physique des particules [2] ou la cosmologie [3]. Pour autant, la fission nucléaire est loin d'avoir livré ses secrets. La complexité des interactions du système à N corps que représente le noyau atomique est impossible à démêler malgré les outils actuels : aucune théorie ne prédit efficacement les différentes observables de la fission nucléaire.

Nous proposons dans ce chapitre une revue de quelques modèles développés autour de la fission nucléaire, afin d'introduire le processus d'évaluation de données nucléaires et les modèles empiriques dont elle a besoin. Ces deux premières parties nous permettrons d'expliquer les raisons et fondements du code de désexcitation nucléaire FIFRELIN, qui sera un outil essentiel à ce travail de thèse.

2.1 Comprendre et décrire la fission nucléaire

La fission nucléaire est le processus au cours duquel un noyau lourd se scinde en plusieurs fragments de masses comparables (à la différence d'une désintégration α [4]). La fission est majoritairement binaire et asymétrique, deux fragments sont formés : un fragment léger et un fragment lourd. Il existe de rares évènements de fission ternaire (de l'ordre de 0,1% des évènements), ou encore plus rare de fission quaternaire (de l'ordre

1. À noter que la possibilité qu'un noyau lourd se brise en plusieurs larges fragments est évoquée quelques années auparavant par I. Noddack [28].
2. Mise en évidence de l'existence du boson de Higgs (au LHC en 2012, récompensé par le prix Nobel de Physique 2013), de l'oscillation des neutrinos (par Super-Kamiokande en 1998, récompensé par le prix Nobel de Physique 2015).
3. Première mesure d'ondes gravitationnelles (par l'interféromètre LIGO en septembre 2014, récompensé par le prix Nobel de Physique 2017).
4. Pour certains, la désintégration α peut être vue comme une fission très asymétrique, voir par exemple [29].

de 10^{-7} par fission), l'étude de la fission ternaire est un sujet en soit et ne sera pas abordée dans cette thèse. Les travaux de H. Diehl et W. Greiner [30], C. Wagemans [31] ou U. Köster [32] sont de bonnes lectures sur ce sujet.

L'étude de la fission apporte de nouvelles connaissances sur le comportement de la matière nucléaire. Mais c'est un processus complexe où des effets collectifs (macroscopiques) se couplent à ceux caractéristiques de particules individuelles (effets microscopiques).

2.1.1 L'image de la fission par le modèle de la goutte liquide (LDM)

Le premier modèle de fission à voir le jour s'appuie sur la description du noyau introduite par C. F. von Weizsäcker [33], où, par analogie à une goutte liquide, le noyau est composé d'un fluide incompressible de nucléons [5]. Cette goutte de matière nucléaire se déforme et peut se scinder, naturellement (pour la fission spontanée) ou sous l'action d'une perturbation extérieure (en l'occurrence un neutron pour la fission induite par neutron).

Déjà reprise par Meitner et Fisch, cette analogie inspire N. Bohr et J. A. Wheeler qui proposent un modèle macroscopique simple et compréhensible [35]. La compétition de la répulsion coulombienne et de l'interaction forte donne naissance à une surface d'énergie potentielle dépendante de la déformation dans laquelle évolue le noyau.

La figure 2.1 reprend des calculs d'énergie potentielle de Karpov et al. [36] qui serviront à illustrer les différentes étapes de la fission induite par neutron.

Le noyau initial (^{233,235}U, ^{239,241}Pu ...) capture un neutron (dit neutron incident) pour former un noyau composé. Grâce à l'énergie apportée par le neutron capturé (l'énergie de liaison du neutron et son énergie cinétique), le noyau composé va se déformer jusqu'au point selle. Le point selle est un maximum d'énergie potentielle et définit la hauteur de la barrière de fission. De cette position de non-retour, le noyau composé emprunte un chemin d'énergie potentielle minimale jusqu'à la scission. À la scission, deux fragments sont formés et accélérés par répulsion coulombienne. Environ 80 à 90% de l'énergie libérée par la fission est convertie en énergie cinétique des fragments de fission. Le reste étant sous la forme d'énergie d'excitation des fragments de fission. Après accélération [6], les deux fragments de fission sont dans un état excité et vont émettre des

5. Notons que l'idée de la description d'un noyau comme une goutte est déjà évoqué par G. Gamow [34] quelques années auparavant.

6. Le temps caractéristique de l'accélération des fragments est court devant le temps moyen de l'émission de particules promptes, voir [38].

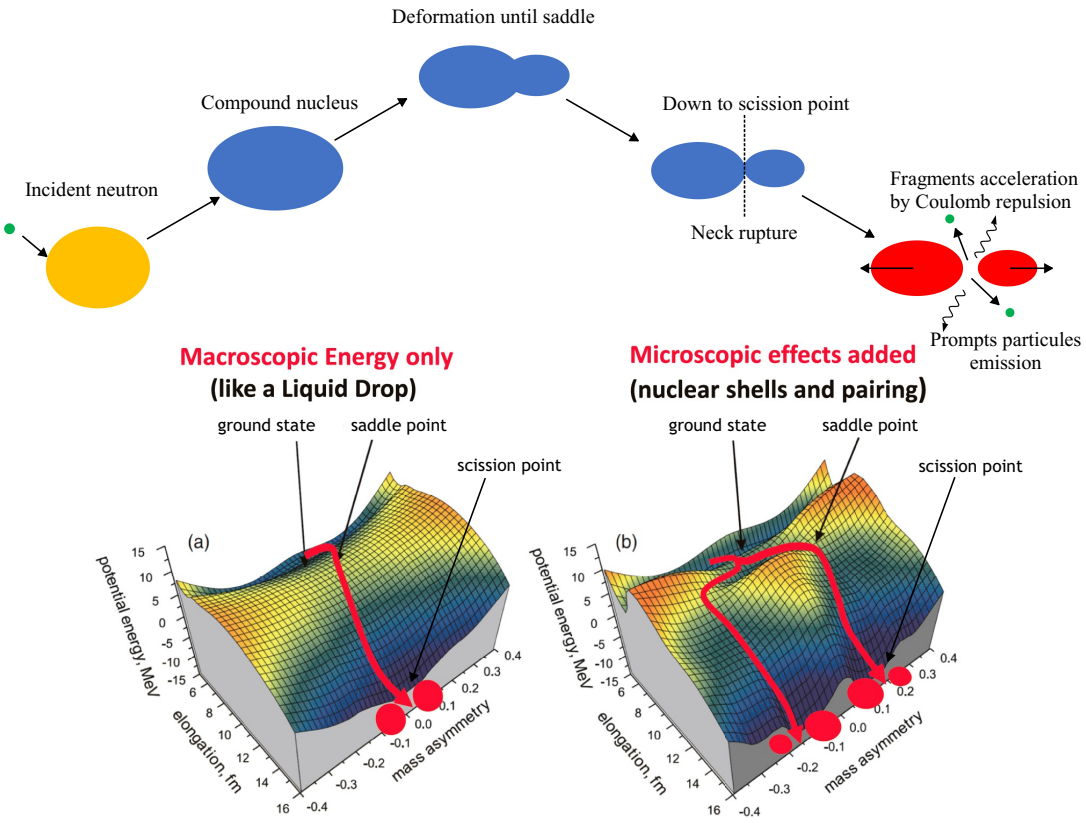


FIGURE 2.1: En haut, les différentes étapes du processus de fission. En bas, la topographie de l'énergie potentielle en fonction de deux degrés de liberté clés : l'asymétrie des masses des fragments et l'élongation (distance entre les barycentres des deux fragments). En rouge, le chemin que peut parcourir le noyau fissionnant, de son état stable jusqu'au point de scission. Adapté de [37].

neutrons puis des γ prompts (en négligeant la compétition neutrons/γ) pour évacuer cet excès d'énergie et former deux produits de fission [7].

Les produits de fission ainsi formés sont toujours riches en neutrons et vont décroître par émission β^- : ${}^{A}_{Z}X \longmapsto {}^{A}_{Z+1}Y + e^- + \overline{\nu}_e$, suivie par l'émission de neutrons et γ retardés, jusqu'à atteindre la stabilité. La figure 2.2 donne à titre indicatif l'ordre de grandeur des temps des différentes étapes.

Il est aussi possible que le noyau composé émette des neutrons prompts avant la fission. Lorsqu'un neutron prompt dit de pré-fission est ainsi émis, la fission est de seconde chance (et d'ordres supérieurs quand plusieurs neutrons sont émis).

Habituellement, les particules promptes sont supposées émises lorsque les fragments sont complètement accélérés. Certains calculs, proposés par exemple par H. Marten

7. L'appellation fragment primaire et fragment secondaire est aussi utilisée pour distinguer les fragments avant et après émissions de particules promptes.

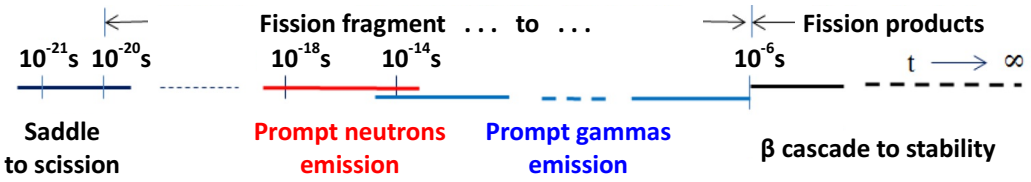


FIGURE 2.2: Les temps caractéristiques du phénomène de fission nucléaire à partir du point selle.

et D. Seeliger [39], suggèrent que des neutrons pourraient être émis durant la phase d'accélération. Certains suggèrent même que des neutrons soient émis lors de la scission, en tant que produit ternaire. C'est ce que propose notamment Fuller [40] avec le modèle dit de l'approximation soudaine.

2.1.2 Du LDM au modèle microscopique-macroscopique

L'énergie du noyau dans le modèle de la goutte liquide est décrite comme la somme d'un terme volumique, surfacique, coulombien, d'asymétrie et d'appariement. Tous dépendant de sa masse A ou de sa charge nucléaire Z :

$$E_{LDM} = \overbrace{-\alpha A}^{E_{vol}} + \overbrace{\beta A^{2/3}}^{E_{surf}} + \overbrace{\gamma \frac{Z(Z-1)}{A^{1/3}}}^{E_{coul}} + \overbrace{\delta \frac{(A-2Z)^2}{A}}^{E_{asym}} + \overbrace{\delta_{app}}^{E_{app}} \tag{2.1}$$

Lorsqu'il se déforme, la stabilité du noyau dépend de la compétition entre les termes de surface et coulombien, les deux termes dépendants de la déformation.

Pour qu'un noyau soit stable, il faut que pour une petite déformation, la variation de l'énergie coulombienne soit plus faible que celle de l'énergie surfacique. Cette considération donne naissance au paramètre de fissilité du noyau, défini comme le rapport $x = \frac{E_{coul}}{2E_{surf}}$. Ce paramètre est une mesure de la capacité d'un noyau à fissionner et peut être approximé à $x = \frac{Z^2}{A} \cdot \frac{1}{51,7}$. D'après le LDM, lorsque $x > 1$, le noyau est susceptible de fissionner spontanément. Or, pour la plupart des actinides, $0,68 < x < 0,76$. Il existe ainsi une barrière d'énergie potentielle par-delà laquelle le noyau doit passer pour fissionner. C'est la barrière de fission, illustrée sur la figure 2.3, tirée de la publication de Bohr et Wheeler [35].

Une description simple de la déformation du noyau peut pour de petites déformations autour de son rayon initial R_0 (pour un noyau sphérique) passer par l'utilisation des

harmoniques sphériques $Y_{\lambda,\mu}$:

$$R(\theta,\phi) = R_0 \left(1 + \sum_{\lambda,\mu}^{\infty} a_{\lambda,\mu} Y_{\lambda,\mu}(\theta,\phi)\right) \tag{2.2}$$

Les termes usuels sont les premiers ordres de ce développement, où a_0 caractérise le volume du noyau, a_1 la déformation dipolaire (position du centre de masse), a_2 sa déformation quadrupolaire (élongation du noyau), a_3 sa déformation octupolaire (asymétrie du noyau) et a_4 sa déformation hexadécapolaire (déviation de la forme du noyau par rapport à une ellipsoïde). Les termes d'ordre supérieurs sont rarement nommés.

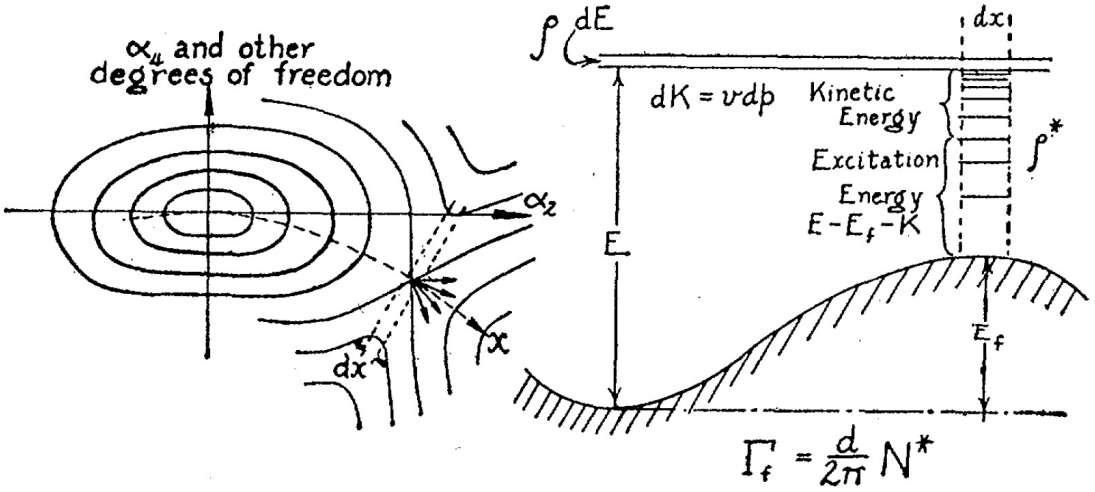


FIGURE 2.3: À gauche, les niveaux d'énergie en fonction de la déformation du noyau, plus particulièrement en fonction des moments quadrupolaire et hexadécapolaire. À droite, le chemin d'énergie minimale que suit le noyau. E_f représente la barrière de fission au point selle, au-delà duquel la fission est irréversible. Tiré de [35].

La barrière de fission peut être calculée à partir du LDM et des paramètres de déformation a_2 et a_4. Malgré les considérations simples du LDM, de tels calculs donnent des ordres de grandeurs comparables à des calculs plus récents. De manière générale, les concepts introduits par le LDM restent pertinents aujourd'hui.

Mais si uniquement les effets macroscopiques sont pris en compte, la fission est purement symétrique (deux fragments de même masse, situation en bas à gauche de la figure 2.1). C'est avec l'ajout d'effets microscopiques que V. M. Strutinsky [41; 42] vient compléter le LDM. En proposant un modèle microscopique-macroscopique qui considère les effets de couches et d'appariement, la fission asymétrique (un fragment lourd et un fragment léger, situation en bas à droite de la figure 2.1), majoritairement

observée dans la fission thermique, est expliquée théoriquement. Remarquons que les effets microscopiques sont lavés pour de hautes énergies d'excitation et la configuration est alors proche du pur LDM. Cela implique que pour un neutron incident à haute énergie cinétique, la fission symétrique prend plus d'importance [8].

Dans ce modèle, l'énergie du LDM est corrigée des effets de couches (d'où le nom : shell correction method ou SCM) :

$$E_{SCM} = E_{LDM} + \delta U + \delta P \tag{2.3}$$

Où δU est la correction provenant des effets de couches et δP la correction due à l'appariement. Plus explicitement :

$$\delta U = U - \tilde{U} = \sum_{\nu} 2 n_\nu \epsilon_\nu - 2 \int_{-\infty}^{\tilde{\lambda}} \epsilon \tilde{g}(\epsilon) \mathrm{d}\epsilon \tag{2.4}$$

Avec U l'énergie totale des n_ν niveaux occupés d'énergies ϵ_ν à laquelle est soustraite une énergie moyenne $\tilde{U}$ pour laquelle une densité de niveaux uniforme $\tilde{g}(\epsilon)$ est considérée ($\tilde{\lambda}$ est définie fonction du nombre de particules).

La force de ce modèle est de lier les effets moyens décrits par le modèle macroscopique aux fluctuations apportées par la description fine de la densité de niveaux du modèle en couche. L'appariement vient compléter ce tableau en prenant en compte les énergies d'appariement des niveaux d'énergie. De la même manière que δU, δP est la différence entre l'énergie d'appariement de la densité de niveaux que donne le modèle en couche et celle obtenue en considérant une densité de niveaux moyenne.

Barrière de fission à deux bosses

Les calculs suivant l'approche de Strutinsky pour certains noyaux, en particulier aux alentours de 146 neutrons [43], font apparaître une barrière de fission à deux bosses et donc un deuxième minimum d'énergie. La plupart des calculs et des expériences montrent que le deuxième minimum est un minimum local plus haut que l'état stable du noyau (premier minimum local).

Ce deuxième minimum fait apparaitre des états isomériques [9] de fission dits de classe II, différenciés de l'état fondamental de classe I. Il est parfois observé pour des actinides

8. Cette remarque est valide pour les isotopes fissionnant les plus communs (U, Pu). Certains noyaux plus exotiques, comme le ^{257}Fm ont une fission thermique majoritairement symétrique

9. Isomères de formes ou « shape isomers », car la forme de l'énergie potentielle en fonction de la déformation est bien spécifique.

légers un troisième minimum local, de classe III. L'étude de ces isomères de fission est importante pour la compréhension de la fission retardée. Cette nouvelle topographie a une importance primordiale sur la section efficace de fission et l'asymétrie des distributions en masse.

Finite Range Liquid Droplet Model

Il existe des paramétrisations décrivant la déformation du noyau différentes de celle de l'équation 2.2. C'est notamment le cas pour le modèle développé à Los Alamos [44], le « Finite Range Liquid Droplet Model » (FRLDM), qui propose une paramétrisation du noyau à cinq paramètres libres très parlants (voir sur la figure 2.4), ou celle proposée dans le modèle de V. V. Pashkevich [45] basée sur les ovales de Cassini, ou celle de U. Brosa [46] se basant sur les formes de Lawrence.

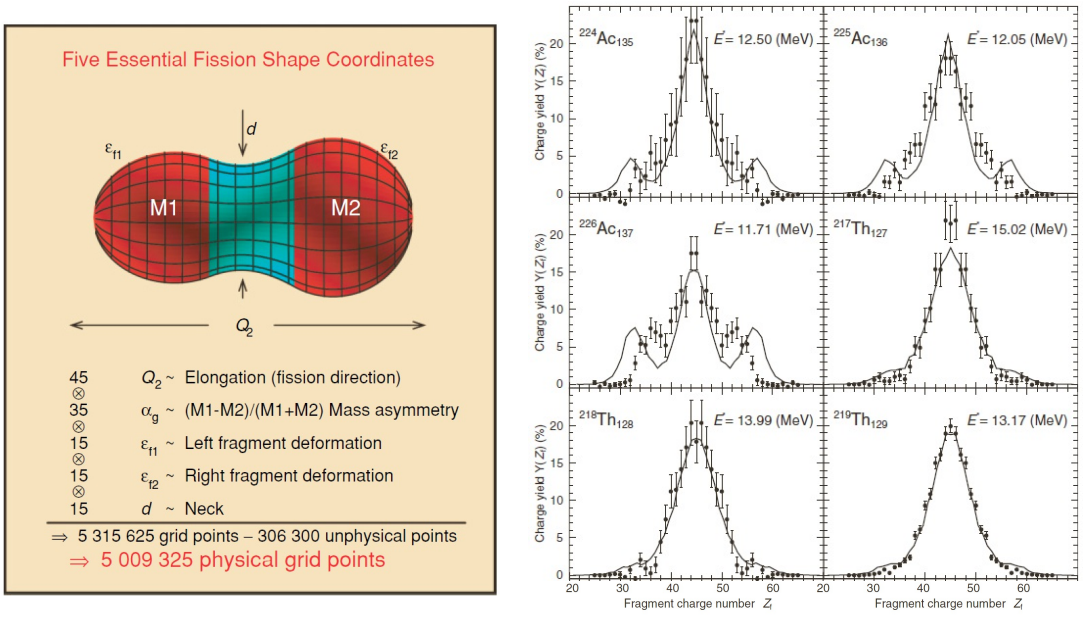


FIGURE 2.4: À gauche, la paramétrisation de la forme du noyau composé dans le FRLDM, tiré de [47]. À droite, les résultats de cette paramétrisation (traits pleins) comparés aux résultats du GSI [48] (points noirs). Tiré de [49].

Plus en détail, le FRLDM repose sur la résolution de l'équation de Langevin pour l'ensemble des paramètre $\boldsymbol{\chi}$, traduisant une marche aléatoire similaire au mouvement Brownien. La forme multidimensionnelle du noyau évolue dans le temps en fonction de son énergie potentielle de déformation et d'une force dissipative qui traduit l'interaction des degrés de liberté macroscopiques et microscopiques. Des résultats du FRLDM sont proposés sur la droite de la figure 2.4 pour des rendements en charge nucléaire de différents systèmes fissionnant et comparés aux données expérimentales du GSI [48] .

2.1.3 La fission vue comme processus thermodynamique

Le processus de fission induite peut être vu comme un processus thermodynamique, où les propriétés des fragments de fission sont déterminées pendant la descente du point selle au point de scission. Cette approche suppose un équilibre thermodynamique et il existe deux cas extrêmes.

Le premier suppose un équilibre entre tous les degrés de liberté (collectifs et intrinsèques) et ainsi l'existence d'une température unique T caractéristique de cet équilibre. Il existe donc un couplage (viscosité) fort entre les états collectifs et individuels. C'est notamment l'hypothèse du modèle de P. Fong [50]. P. Fong calcule les paramètres de densité de niveaux en fonction de la masse des fragments afin de déterminer le nombre d'état quantiques accessibles pour une fragmentation (A_L, A_H). Il suggère alors que cette grandeur est directement proportionnelle à la probabilité d'obtenir la fragmentation (A_L, A_H) et peut ainsi obtenir les distributions en masse des fragments de fission. Ce modèle arrive notamment à reproduire l'asymétrie de la distribution en masse de l'^{235}U. À l'opposé, le modèle adiabatique, suppose que les états individuels ne sont pas couplés (viscosité nulle) aux états collectifs.

B. D. Wilkins et al. [51] propose dans son modèle du point de scission (scission point model) un couplage intermédiaire. Ainsi, les degrés de liberté collectifs et intrinsèques sont en quasi-équilibres et une température est caractéristique des mouvements collectifs et une autre des mouvements individuels. Son hypothèse la plus radicale est de supposer un équilibre thermodynamique au point de scission, dénomination qui est d'ailleurs introduite par Wilkins. Ainsi, les caractéristiques des fragments de fission sont définies à la scission.

Ce modèle quasi-statique permet, à partir de l'énergie potentielle du point de scission, d'obtenir la distribution des fragments (A,Z,TKE). Il ne considère que trois paramètres pour décrire le système fissionnant à la scission :

- T une température caractéristique des degrés de liberté collectifs.
- τ une température caractéristique des degrés de liberté intrinsèques.
- d la distance entre les deux fragments, considérés comme deux sphéroïdes coaxiaux [10].

Wilkins considère ces trois paramètres comme constants pour tous les systèmes fissionnant et respectivement égaux à 1,0 MeV, 0,75 MeV et 1,4 fm. En plus de ces paramètres, le modèle prend en compte la déformation des fragments, β [11] et leurs composition en neutrons N et protons Z.

10. Ce paramètre n'a pas d'utilité physique mais permet de contourner la méconnaissance de l'énergie cinétique pré-scission KE_{pre}. L'énergie cinétique totale post-scission est $TKE = KE_{pre} + V_{coul}$.
11. β est définie à partir du demi-grand axe et demi-petit axe des ellipses.

L'énergie potentielle totale du système à la scission, V, est calculée comme la somme de l'énergie potentielle de chaque sphéroïde et de leurs énergies d'interaction, séparée en interaction coulombien V_C et nucléaire V_n. L'énergie de chaque sphéroïde est l'énergie du LDM, V_{LDM} avec une correction [12] d'effet de couche S et d'effet de parité P. Ces deux corrections incluent une correction pour les protons et les neutrons indépendamment.

$$\begin{aligned} V(N_L, Z_L, \beta_L, N_H, Z_H, \beta_H, \tau, d) = {} & V_{LDM_L}(N_L, Z_L, \beta_L) + V_{LDM_H}(N_H, Z_H, \beta_H) \\ & + S_L(N_L, Z_L, \beta_L, \tau) + S_H(N_H, Z_H, \beta_H, \tau) \\ & + P_L(N_L, Z_L, \beta_L, \tau) + P_H(N_H, Z_H, \beta_H, \tau) \\ & + V_C(N_L, Z_L, \beta_L, N_H, Z_H, \beta_H, d) \\ & + V_N(N_, Z_L, \beta_L, N_H, Z_H, \beta_H, d) \end{aligned} \tag{2.5}$$

La densité de probabilité des fragments est alors définie à travers T :

$$P(N, Z) \propto \int_{\beta_L=0}^{\beta_L} \int_{\beta_H=0}^{\beta_H} \exp\left(-\frac{V(N_L, Z_L, \beta_L, N_H, Z_H, \beta_H, \tau, d)}{T}\right) \mathrm{d}\beta_L \mathrm{d}\beta_H \tag{2.6}$$

Nous venons de voir comment la distribution (A,Z) (équivalente à (N,Z) puisque $A = N + Z$) est obtenue. Pour déterminer l'énergie cinétique totale, partons de l'énergie totale libérée, qui est composée de l'énergie cinétique post-scission provenant de l'énergie d'interaction coulombienne à la scission V_C, énergie cinétique pré-scission (acquise entre le point selle et le point de scission) E_{pre} et de la somme des énergies de déformation E_{def} et intrinsèque E_{int} des deux fragments :

$$Q = V_C + E_{pre} + \sum_L \sum_H E_{def} + \sum_L \sum_H E_{int} \tag{2.7}$$

Comme pour le couplage entre états collectifs et intrinsèques, Wilkins identifie deux cas extrêmes. Le premier dans lequel l'énergie cinétique pré-scission E_{pre} est supposée nulle et l'énergie cinétique vient uniquement de la répulsion coulombienne (cas 1) :

$$TKE_1 = \frac{Z_L Z_H \ e^2}{D} \tag{2.8}$$

Où D est la distance entre les deux centres de charge et dépend de β_L, β_H et d, e étant la charge électrique élémentaire.

12. L'indice L spécifie le fragment léger et H le fragment lourd.

Dans le deuxième cas, l'énergie intrinsèque est supposée nulle et TKE est alors (cas 2) :

$$TKE_2 = Q - \sum_L \sum_H E_{def} \tag{2.9}$$

Un point fort de ce modèle est de reproduire avec peu de paramètres la majorité des tendances des rendements en masse. Quelques exemples des résultats de ce modèle, tirés de [51] sont présentés sur la figure 2.5.

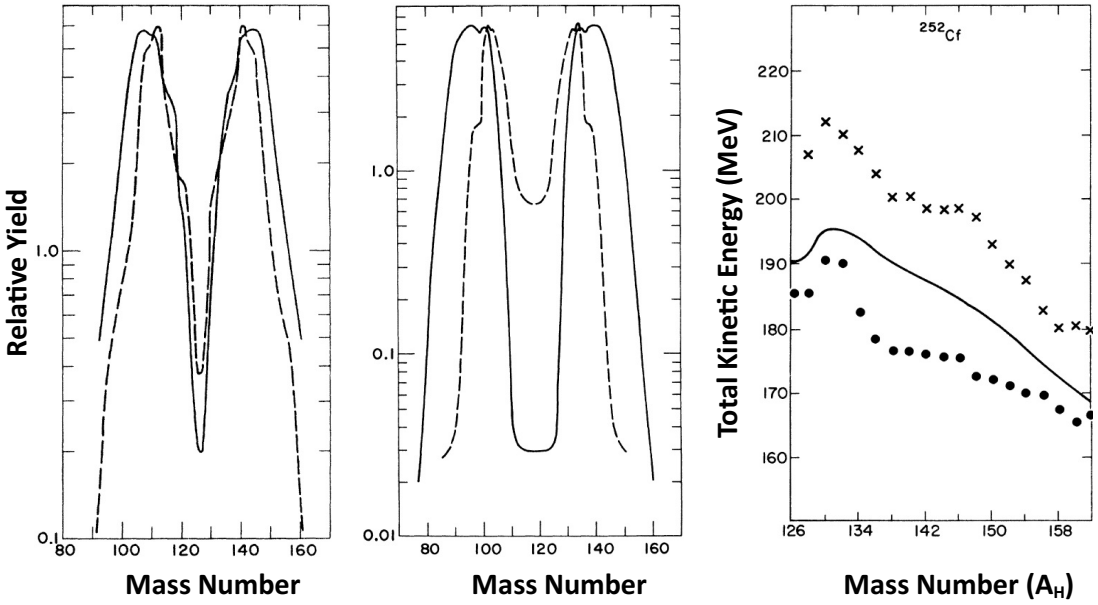


FIGURE 2.5: À gauche, la distribution en masse de ^{252}Cf(s.f.) et au milieu, de ^{235}U(n$_{th}$,f) : en traits pleins les données expérimentales, en pointillés, les calculs du modèle de point de scission. À droite, la distribution en énergie cinétique totale pour ^{252}Cf(s.f.). En traits pleins, les données expérimentales et les calculs du modèle de point de scission pour les cas 1 (points noirs) et 2 (croix noires). Tiré de [51].

Certaines améliorations récentes à ce modèle ont conduit à l'élaboration du code SPY, notamment durant la thèse de J.-F. Lemaître [52]. À la différence de Wilkins, la déformation des fragments, β_H et β_L, provient de calculs microscopiques. De plus, le paramètre d est supprimé par des considération de densités nucléaires. Quelques exemples des résultats de SPY sont montrés sur la figure 2.6.

Si la démarche de modélisation est plus poussée et plus satisfaisante, les résultats restent très éloignés des résultats expérimentaux, même si la tendance générale est reproduite.

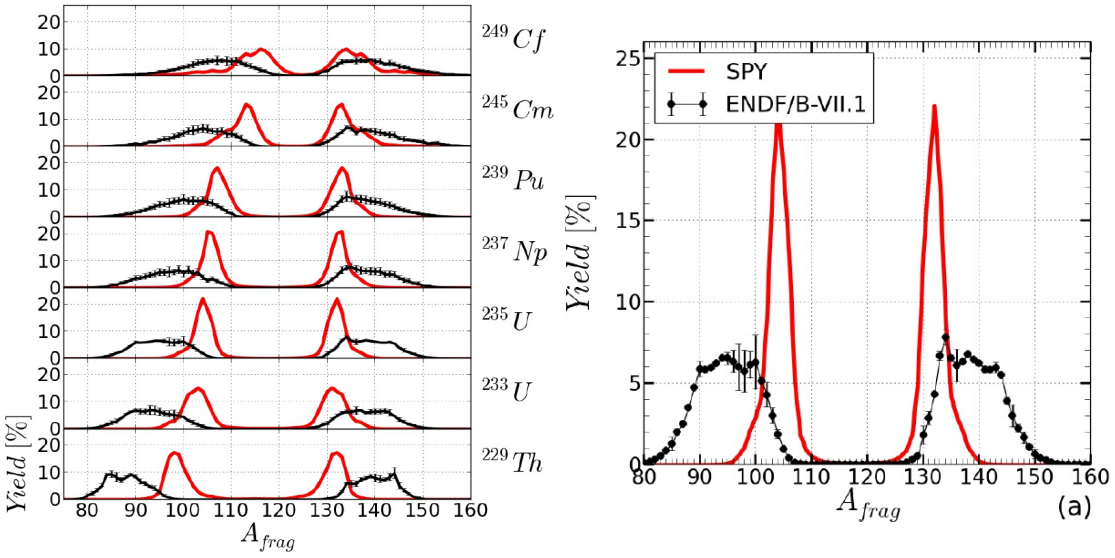


FIGURE 2.6: À gauche, les rendements (pré-neutron) de fission isobarique pour la fission induite par neutron thermique de différents actinides obtenus avec SPY (en rouge) et comparées à l'évaluation ENDF/B-VII.1 (en noir). À droite, un zoom de cette distribution pour l'^{235}U. Tiré de [52].

2.1.4 Modèles microscopique, statique ou dynamique

La manière la plus rigoureuse de décrire la fission est de résoudre les équations régissant le mouvement de chaque nucléon en considérant l'ensemble des interactions nucléon-nucléon. Le noyau est décrit dynamiquement, dans une approche microscopique par un calcul *ab initio*.

Le système est décrit par son Hamiltonien, $\mathcal{H}$:

$$\mathcal{H} = \sum_{i}^{A} \frac{p_i^2}{2m_i} + \frac{1}{2} \sum_{i}^{A} \sum_{j \neq i}^{A} V_{i,j} \tag{2.10}$$

Où les nucléons i de masse m_i et de quantité de mouvement p_i sont liés par un potentiel d'interaction $V_{i,j}$. Pour un actinide, où A dépasse aisément 200, c'est avec les moyens de calculs actuels un système impossible à résoudre.

Plusieurs méthodes ont vu le jour pour simplifier et résoudre ce problème, afin de calculer la surface d'énergie potentielle dans lequel évolue le noyau. K. A. Brueckner et C. A. Levinson [53; 54] proposent en 1955 un formalisme basé sur la méthode de Hartree-Fock déjà utilisée en atomistique. Cette méthode suppose un champ moyen dans lequel évolue les nucléons. Elle est donc itérative et doit être résolue numériquement.

Le formalisme de Hartree–Fock–Bogoliubov (HFB) ou son équivalent dynamique incluant en plus les corrélations qu'implique l'appariement : le « time dependant »

Hartree–Fock (TDHF) couramment utilisées se basent sur cette même méthode de Hartree-Fock. Des exemples récents de ce type de calculs sont présentés sur la figure 2.7. La complexité réside dans l'écriture des potentiels d'interaction. L'utilisation d'un modèle de potentiel nucléaire effectif est souvent nécessaire, les plus classiques sont ceux proposés par T. H. R. Skyrme [55] en 1959 et D. Gogny [56] en 1975.

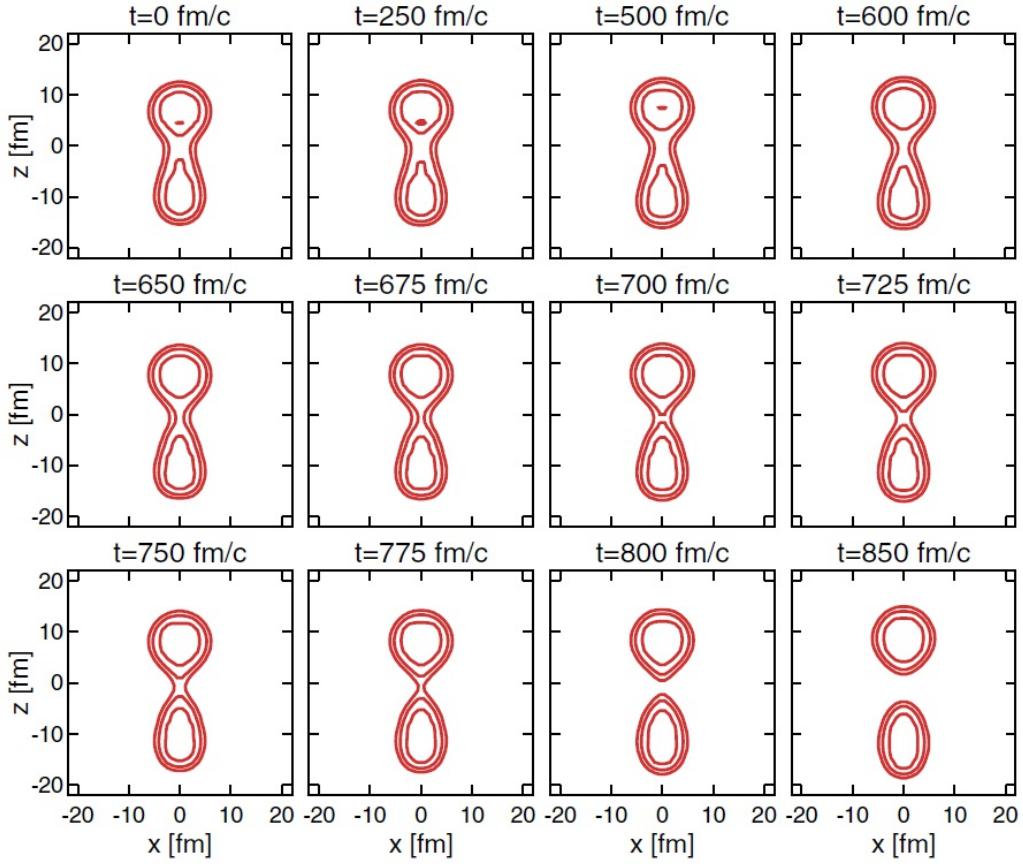


FIGURE 2.7: L'évolution temporelle d'une coupe 2D de la densité du noyau composé du ^{240}Pu obtenu par des calculs TDHF (Time Dependant Hartree-Fock) utilisant l'interaction de Skyrme. Les lignes iso sont de 0,05 nucléons par fm^3. Tiré de [57].

Une autre approche dynamique est aussi possible en se basant sur la Time Dependant Generator Coordinates Method (TDGCM) [58], dont de récents résultats sur les distributions en masse et en charge des fragments de fission sont montrés sur la figure 2.8, pour ^{239}Pu(n,f).

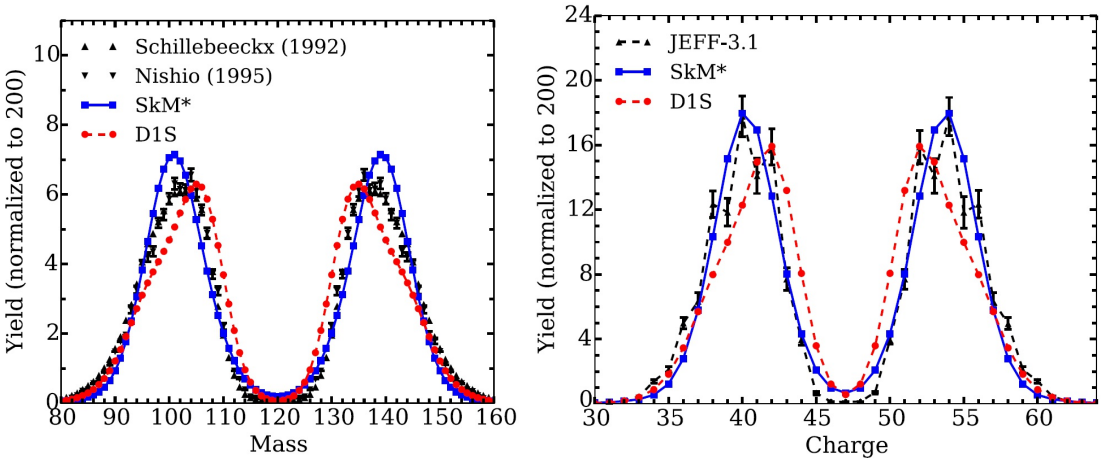


FIGURE 2.8: Résultats obtenues avec TDGCM pour ^{239}Pu(n,f), comparés aux données expérimentales [59; 60] et à JEFF-3.1 avec une paramétrisation utilisé pour l'interaction de Skyrme, SkM (en bleu) et de l'interaction de Gogny, D1S (en rouge). Tiré de [58].

2.2 Les modèles utiles à l'évaluation des rendements de fission

De nombreux modèles se sont développés pour le calcul des topographies d'énergie potentielles (Thomas-Fermi, Hartree–Fock, équations de transport de Langevin ...) à différents nombres de degrés de liberté (épaisseur du col, asymétrie des masses, élongation ...). Malgré leurs raffinements, même les développements les plus récents n'arrivent pas à prédire avec la précision requise pour les applications les distributions en masse et en charge nucléaire des fragments de fission ou d'autres observables (nombre de neutrons prompts émis).

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, c'est ici qu'intervient l'évaluation des données nucléaires. Puisqu'aucun modèle n'est représentatif de la réalité, il est nécessaire pour répondre aux besoins de la physique des réacteurs, d'avoir recours à des évaluations. Elles sont un condensé de notre connaissance, compromis entre modèles empiriques [13] et données expérimentales, dans l'attente d'un modèle unifié de physique nucléaire.

Les modèles utilisés dans les évaluations visent, à partir de considérations physiques plus ou moins présentes et pertinentes, à reproduire les données expérimentales en ajustant des paramètres libres. Pour les évaluations, c'est une nécessité, ces modèles sont utilisés lorsque les données expérimentales sont manquantes.

13. Le rôle d'un modèle empirique est de reproduire la réalité en se s'approchant au mieux des observations. Il n'a pas nécessairement de fortes considérations physiques. À la différence d'un modèle physique qui se base sur une mathématisation de lois et principes physiques.

2.2.1 Les modèles de Wahl

Les modèles de Wahl sont deux modèles développés dans les années 80 par A. C. Wahl [61; 62]. Le premier pour décrire la distribution en charge nucléaire des produits de fission à une masse donnée, le modèle Z_p, le second pour décrire la distribution en masse pour une charge nucléaire donnée, le modèle A'_p.

Le modèle Z_p est un raffinement de l'hypothèse gaussienne [63], qui prend en compte des effets à travers deux paramètres, F_Z et F_N, les effets pairs-impairs observés expérimentalement, respectivement pour les protons et les neutrons. Il considère une charge moyenne, Z_p, différente de l'hypothèse UCD (Unchanged Charge Density), dans laquelle le rapport charge nucléaire sur masse est constant entre le noyau composé et les deux fragments :

$$Z_p(A_{pre}) = Z_{UCD}(A_{pre}) + \Delta Z(A_{pre}) = \frac{Z_{CN}}{A_{CN}} \cdot A_{pre} + \Delta Z(A_{pre}) \tag{2.11}$$

Wahl s'appuie sur des données expérimentales pour fixer les paramètres intervenant dans son modèle dans différentes régions de masses : Z_p la charge moyenne, σ_Z, l'écart-type de la distribution gaussienne et $F_Z(A)$ et $F_N(A)$ les facteurs d'effets pairs-impairs. Les évolutions de ces paramètres en fonction de la masse du fragment sont représentées sur la figure 2.9, ils dépendent aussi du noyau fissionnant et de l'énergie du neutron incident.

Ce modèle était notamment utilisé jusqu'à récemment comme référence pour la base de données évaluées JEFF (jusqu'à la version 3.1.1) et est remplacé par le code GEF, que nous présenterons dans la sous-section 2.2.3.

Le deuxième modèle de Wahl, le modèle A'_p, repose sur la même démarche mais estime la distribution en masse à une charge nucléaire donnée

2.2.2 Le modèle de Madland-England

Le modèle de D. G. Madland et T. R. England, proposé en 1977 [64], vise à prédire les rendements des états isomères pour la fission induite par neutron. Dans leur article, Madland et England remarquent déjà l'importance de la connaissance des rendements isomériques en physique des réacteurs, pour, par exemple, le calcul de la puissance résiduelle.

Ce modèle se base sur une densité de niveaux statistique, où le noyau est considéré comme un gaz de Fermi (proposé par H. A. Bethe [65] et raffiné par C. Bloch [66]).

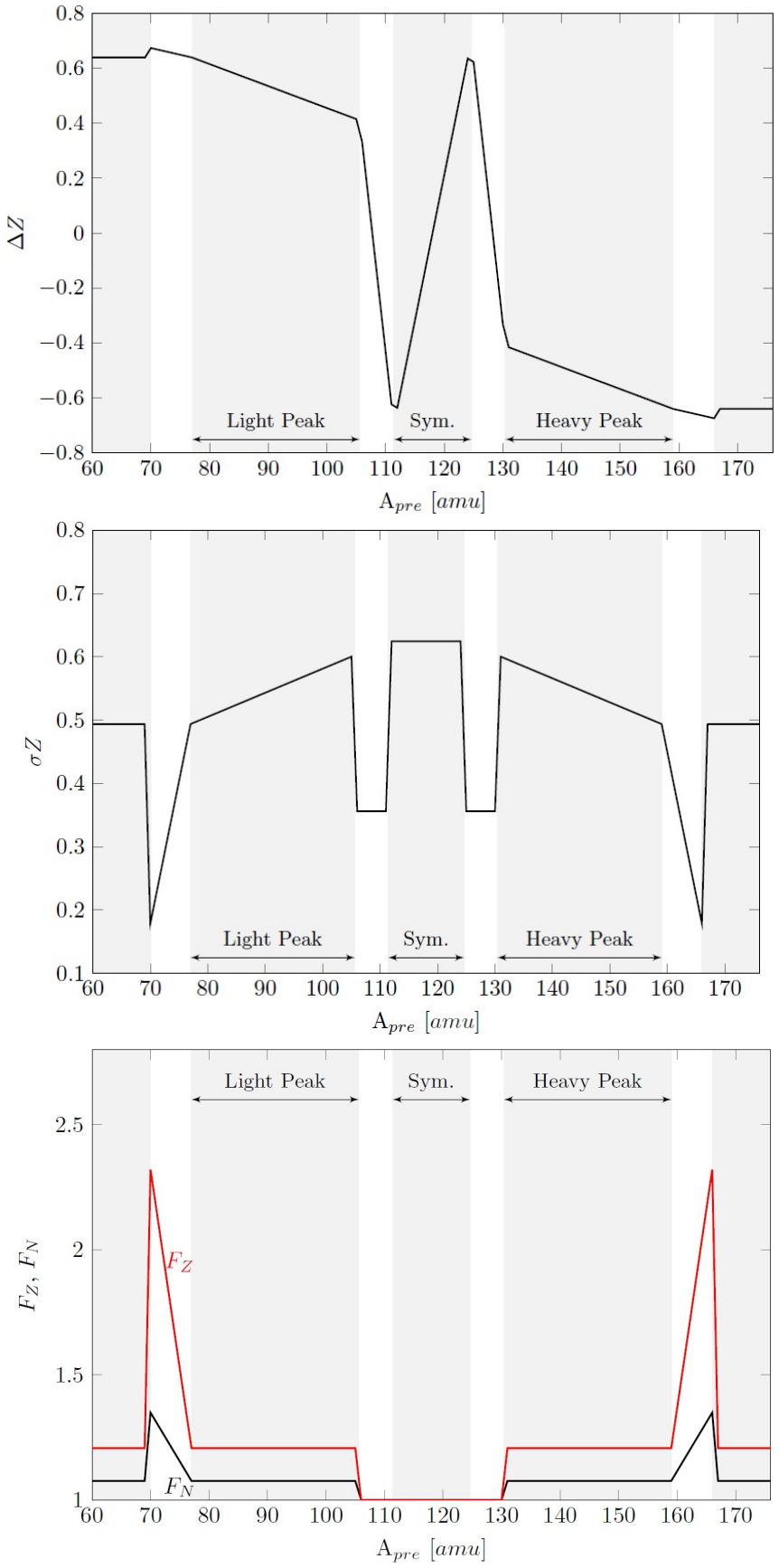


FIGURE 2.9: Distributions en utilisant les paramètres proposés par Wahl pour ^{235}U(n$_{th}$,f), en fonction de la masse du fragment, A_{pre}, pour : en haut, la polarisation de charge ΔZ, au milieu, la largeur de la distribution en charge, σ_Z et, en bas, les paramètres F_Z et F_N rendant comptes des effets pair-impairs protons et neutrons. Tiré de [22].

Madland et England s'appuient sur une approche statistique pour la distribution en spin, J, des fragments de fission, qui dans leur modèle suit une distribution de la forme :

$$P(J) = P_0 \cdot (2J+1) \cdot \exp\left(-\frac{\left(J+\frac{1}{2}\right)^2}{J_{rms}^2}\right) \tag{2.12}$$

Où J_{rms} caractérise la distribution en spin : $J_{rms} = \sqrt{< J^2 >}$ et P_0 est un facteur de normalisation.

J_{rms}, communément appelé spin cut-off, est l'unique paramètre libre du modèle et est dépendant de l'énergie cinétique du neutron incident. Il est considéré indépendant de l'actinide fissionnant et de la masse du fragment de fission. Pour un neutron incident thermique, la valeur de $J_{rms} = 7,5 \pm 0,5$ est préconisée.

Les spins de l'état isomère et de l'état stable sont supposés connus. A partir de cela, de simples considérations sont prises en compte, selon la valeur du spin J échantillonné à partir de l'équation 2.12 :

- Si J est plus proche du spin de l'état stable que du spin de l'état isomérique, alors le fragment de fission décroit sur l'état stable.
- Si J est plus proche du spin de l'état isomérique que du spin de l'état stable, alors le fragment de fission décroit sur l'état isomérique.
- Si J exactement entre les deux, il décroit à 50% sur l'état stable et à 50% sur l'état isomérique.

Il est alors directement possible de calculer le ratio du rendement isomérique indépendant sur le rendement indépendant de l'état stable : $R = \frac{Y(A,Z,m)}{Y(A,Z,GS)}$, détaillé dans [64]. La base de données évaluées JEFF-3.3, qui servira de comparaison dans les chapitres 4 et 3 est basée sur ce modèle lorsqu'aucune donnée expérimentale n'est disponible.

2.2.3 Le code GEF : GEneral description of Fission observables

Le code Monte Carlo GEF [67], pour GEneral description of Fission observables, est un code semi-empirique de fission. Il permet d'obtenir un grand nombre d'observables de fission pour la fission spontanée ou induite. Notamment, GEF permet d'obtenir les propriétés des fragments de fission et celles des particules promptes et retardées. GEF possède une centaine de paramètres qui ont été fixés afin de reproduire des données expérimentales de référence. Ces paramètres ne dépendent ni du système fissionnant, ni de son énergie d'excitation. Ces qualités en font un code très utilisé, car il peut fournir des données pré ou post-émission particules promptes dans un temps de calcul court,

avec une justesse raisonnable. La figure 2.10 présente quelques résultats récents [68] de GEF, comparés à des mesures expérimentales afin d'illustrer les capacités de GEF.

Les modes de Brosa

L'évaluation des barrières de fission dans GEF repose sur une approche microscopique-macroscopique. GEF considère quatre modes de fission, selon la terminologie du modèle de Brosa » : un symétrique (Standard Long, SL) et trois asymétriques (Standard 1, S1, Standard 2, S2 et Super Asymetric, SA ou S3). Ces modes de fissions proposés par Brosa, Grossmann et Müller (BGM) [72; 46; 73] [14] sont des chemins différents que peut prendre le noyau pour se désintégrer (similaires aux chemins tracés en rouge sur la figure 2.1). Une hypothèse importante sur ces modes concerne la position du col à la scission (voir figure 2.1) qui est déduite de la forme du noyau composé pré-scission et qui n'est pas prédéterminée [15]. La prise en compte de la multiplicité des chemins possibles pour le noyau à la scission ainsi que de la variabilité de la position du col à la scission permet notamment de bien reproduire l'asymétrie des distributions en masse et de leur variance pour la majorité des noyaux fissionnant. Différentes illustrations des modes de fission BGM sont proposés sur la figure 2.11.

2.3 Vers une évaluation unifiée des observables de fission : le code Monte Carlo de désexcitation nucléaire FIFRELIN

Le code FIFRELIN [75; 76] est développé depuis une dizaine d'années au CEA Cadarache sous l'impulsion d'O. Litaize et d'O. Serot. Son nom complet FIssion FRagment Evaporation Leading to an Investigation of Nuclear data résume parfaitement son rôle : décrire la désexcitation d'un noyau et fournir la liste quasi-exhaustive des observables physiques résultantes. Il est notamment applicable à la fission nucléaire binaire, dans l'hypothèse où les fragments sont complètement accélérés (la phase de répulsion coulombienne est terminée et ils n'ont plus d'interaction) avant l'étape de désexcitation.

FIFRELIN permet d'accéder à la liste quasi-exhaustive des observables de la fission ainsi qu'à leurs corrélations. Sa philosophie est simple : en fixant ses différents paramètres libres, que nous expliciterons dans la sous-section 2.3.1, si certaines observables « cibles » comme le nombre moyen de neutrons prompts émis par fission, $\overline{\nu}$, sont bien reproduites par la simulation, alors nous pouvons utiliser les résultats de la simulation pour regarder

14. Parfois appelé modèle BGM.
15. D'où le nom du modèle : multi-modal random neck-rupture model.

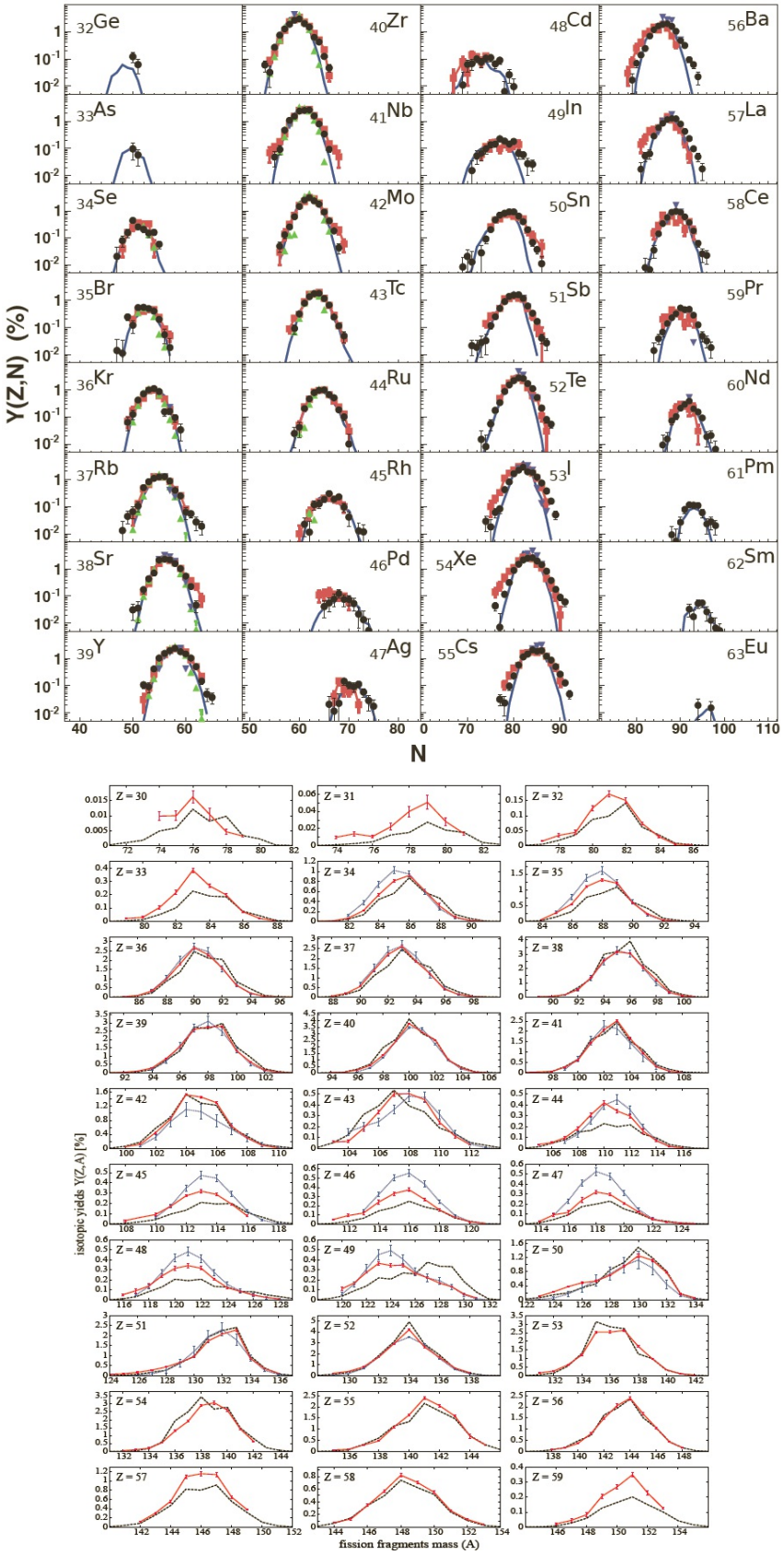


FIGURE 2.10: Quelques exemples récents des résultats de GEF. En haut, les rendements de fission post-émission neutron pour différents éléments : GEF (en bleu continu), comparé aux résultats de VAMOS [69] (en noir, vert et rouge) pour la fission à basse énergie d'excitation du ^{240}Pu, tiré de [68]. En bas, la distribution en masse à charge nucléaire donnée pour les rendements de fission post-émission neutron : GEF (en noir), comparé aux résultats de SOFIA [70] (en rouge) et du GSI [71] (en bleu) pour la fission à basse énergie d'excitation du ^{238}U, tiré de [70].

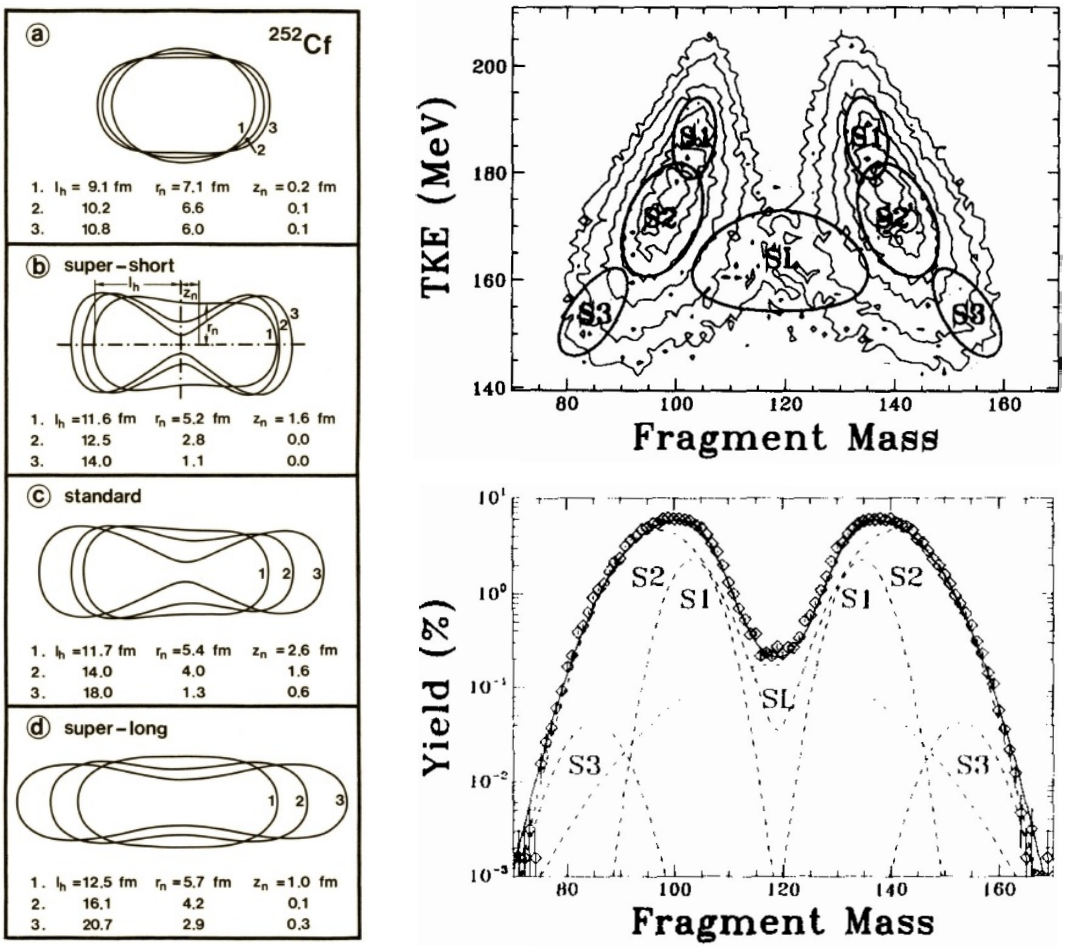


FIGURE 2.11: À gauche, une visualisation des modes de fission proposés par Brosa et al. pour la fission du ^{252}Cf, tiré de [72]. À droite, pour ^{237}Np(n,f), les résultats des calculs de Brosa avec la composante provenant de chacun des quatre modes hypothétisés, comparées aux résultats expérimentaux. Tiré de [74].

d'autres observables : les distributions post-émission neutrons, les rapports isomériques, etc ... et les corrélations éventuelles entre ces différentes observables.

Nous allons voir dans cette section les données d'entrée nécessaires à FIFRELIN et les modèles implémentés.

2.3.1 Données d'entrée

Génération du fragment de fission (A, Z, KE)

FIFRELIN est un code Monte-Carlo (MC) et a besoin d'un certain nombre de paramètres d'entrée, à commencer par la distribution en masse, en charge nucléaire et en énergie cinétique des fragments de fission (*i.e.* pré-émissions des particules promptes). L'échantillonnage est fait sur le fragment léger uniquement (indice L pour Light) et les

lois de conservations de masse, charge, énergie et quantité de mouvement permettent de calculer les équivalents lourds (indice H pour Heavy) :

$$\begin{aligned} A_H &= A_{CN} - A_L \\ Z_H &= Z_{CN} - Z_L \\ KE_H &= \frac{A_L}{A_H} KE_L \end{aligned} \tag{2.13}$$

L'indice CN désigne le noyau composé (Compound Nucleus). L'échantillonnage suppose la décorrélation de la distribution (A, Z, KE) suivante :

$$Y_{pre}(A_L, Z_L, KE_L) = Y_{pre}(A_L) P_{pre}(Z_L|A_L) P_{pre}(KE_L|A_L) \tag{2.14}$$

Lorsque cela est possible, les densités de probabilités échantillonnées par le code découlent de données expérimentales. Pour le ^{241}Pu (entre autres) pour lequel nous avons fait appel à FIFRELIN au cours de ce travail, de telles données n'existent pas. Le code GEF, présenté dans la sous-section 2.2.3, permet d'obtenir ces données pré-neutron et sera par conséquent utilisé dans ce travail. Lorsqu'aucun jeu de données expérimentales n'est disponible, c'est de lui que nous tirerons les distributions en masse, charge nucléaire et énergie cinétique des fragments de fission utiles à FIFRELIN.

Génération de l'état initial (J^π, E^*)

Le fragment est produit après la scission à une énergie d'excitation E^*, un spin J et une parité π donnée. L'énergie libérée par la fission, Q, est définie par la différence des masses atomiques m mises en jeux :

$$Q = (m_{CN} - (m_L + m_H)) \cdot c^2 \tag{2.15}$$

qui peut être réécrite avec les énergies de liaison [16] B de chaque noyau :

$$Q = B(A_L, Z_L) + B(A_H, Z_H) - B(A_{CN}, Z_{CN}) \tag{2.16}$$

En prenant en compte le neutron incident, le bilan énergétique complet s'écrit :

$$Q + S_n + E_n = TXE + TKE \tag{2.17}$$

16. L'énergie de liaison d'un noyau est la différence en masse (énergie) de la somme des constituants indépendants d'un noyau et de la masse du noyau.

Avec S_n l'énergie de séparation du neutron, E_n son énergie cinétique, TXE et TKE les énergies d'excitation et cinétique totale des fragments de fission :

$$TXE = E_L^* + E_H^* \quad \text{et} \quad TKE = KE_L + KE_H \tag{2.18}$$

À la scission, l'énergie d'excitation est séparée entre énergie d'excitation intrinsèque, énergie de déformation et énergie d'excitation collective [17] :

$$E^{*\ sc} = E_{int}^{*\ sc} + E_{def}^{*\ sc} + E_{coll}^{*sc} \tag{2.19}$$

FIFRELIN se place dans l'hypothèse où l'énergie de déformation acquise jusqu'à la scission est totalement convertie en énergie d'excitation intrinsèque lors de l'accélération des fragments de fission. C'est la phase dite de relaxation. FIFRELIN suppose aussi l'absence d'émission de neutrons à la scission et pendant la phase d'accélération des fragments de fission. Après accélération complète des fragments de fission, l'énergie d'excitation est séparée en énergie intrinsèque [18] et rotationnelle [19], la conservation de l'énergie donne :

$$TXE = E_{int}^* + E_{rot}^* = E^{*\ sc} \tag{2.20}$$

L'énergie rotationnelle s'exprime en fonction du spin J du fragment et de son moment d'inertie $\mathfrak{I}$:

$$E_{rot}^* = \frac{\hbar^2 J(J+1)}{2\mathfrak{I}} \tag{2.21}$$

Où $\mathfrak{I}$ est approximé à une fraction du moment d'inertie d'un sphéroïde rigide $\mathfrak{I} = k \cdot \mathfrak{I}_{rig}$. k est un paramètre libre de FIFRELIN, mais pour l'utilisation faite dans le cadre de ce travail de thèse, il est fixé à 1.

Pour calculer l'énergie d'excitation intrinsèque, le noyau est envisagé comme la superposition de deux gaz de fermions libres (neutrons et protons). H. A. Bethe [65] suggère que cette énergie est proportionnelle au paramètre de densité de niveaux a et à la température T du noyau :

$$E_{int\ L,H}^* = a_{L,H} T_{L,H}^2 \tag{2.22}$$

Où les paramètres de densité de niveaux utilisés suivent les prescriptions de A. Ignatyuk [78; 79]. Comme celles-ci dépendent de l'énergie d'excitation, une procédure itérative est nécessaire.

17. L'énergie collective est due aux modes de vibrations collectifs comme les bending et wriggling modes [77].
18. Qui intègre l'énergie intrinsèque à la scission et une part de l'énergie de déformation.
19. Qui intègre l'énergie collective à la scission et une part de l'énergie de déformation.

Si à la scission la température peut être considérée égale pour les deux fragments, ce n'est plus le cas après la phase de relaxation car l'énergie de déformation à la scission peut être très différente entre les deux fragments.

La loi en rapport de température, $R_T = \frac{T_L}{T_H}$, utilisée dans FIFRELIN, proposée par T. Ohsawa [80], intègre une dépendance en fonction de la masse du fragment, $R_T(A)$. Cette loi est primordiale, car l'énergie d'excitation est responsable de l'émission neutron. Elle permet de mieux reproduire la distribution de neutrons prompts émis par les fragments par rapport à une loi en rapport de température constant. Cette loi est représentée sur la figure 2.12, trois points particuliers existent pour des configurations limites de déformations :

- Pour une fission purement symétrique, la température des deux fragments est constante, $R_T = 1$
- Pour la masse complémentaire du fragment lourd $A = 132$, le ratio est supposé maximal. Les noyaux de masse 132 sont considérés quasi-sphériques (proche du noyau doublement magique $Z = 52$ et $N = 80$) et leur énergie d'excitation est minimale. *A contrario*, la masse complémentaire reçoit la majeure partie de l'énergie d'excitation.
- Pour une fission très asymétrique, le fragment léger est supposé quasi-sphérique autour du noyau doublement magique $Z = 28$, $N = 50$ [81] et le ratio est alors minimal et inférieur à 1.

Entre ces trois points, l'évolution de R_T est supposée linéaire, faute d'information pertinente. Cette loi introduit deux nouveaux paramètres libres, R_T^{max} et R_T^{min}.

En considérant les équations 2.17, 2.20 et 2.22, les énergies d'excitations de chaque fragment peuvent-être déterminées :

$$\begin{aligned} E_L^* &= \frac{TXE - E_{rot}^*}{1 + \frac{a_H}{a_L R_T^2}} \\ E_H^* &= \frac{TXE - E_{rot}^*}{1 + \frac{a_L R_T^2}{a_H}} \end{aligned} \tag{2.23}$$

L'échantillonnage du spin du fragment de fission est plus direct. Une distribution similaire à celle utilisée dans le modèle de Madland-England est considérée :

$$P\left(J_{L,H}\right) = \frac{2J_{L,H} + 1}{2\sigma_{L,H}^2} \cdot \exp\left(-\frac{\left(J_{L,H} + \frac{1}{2}\right)^2}{2\sigma_{L,H}^2}\right) \tag{2.24}$$

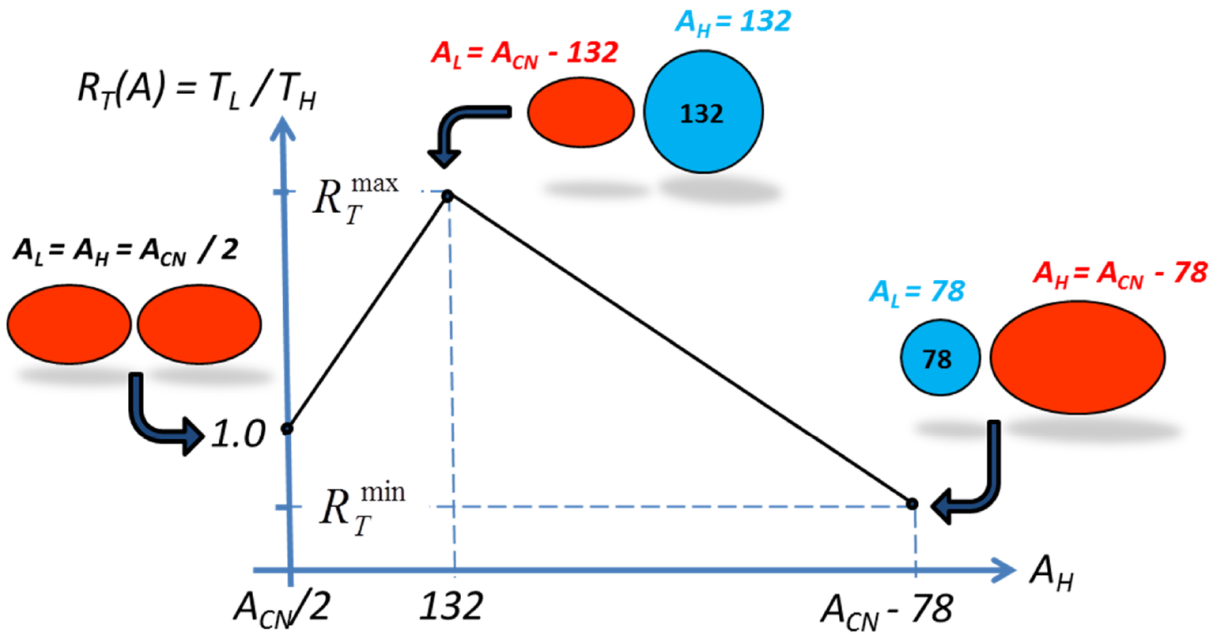


FIGURE 2.12: Tracé de la loi en rapport de température en fonction de la masse du fragment lourd.

Où $\sigma^2_{L,H}$ est équivalent au J_{rms} de l'équation 2.12. Ces deux spin cut-off distincts pour les fragments lourds et légers, σ^2_L et σ^2_H, sont les deux derniers paramètres libres de FIFRELIN dans le cas où le modèle de spin cut-off est choisi constant. D'autres modèles existent dans FIFRELIN où le spin cut-off n'est pas constant pour les lourds et les légers [82], mais nous ne les utiliserons pas dans cette thèse.

Enfin, la parité est considérée équiprobable et le fragment est échantillonné dans un état (+) à 50% et (-) à 50% :

$$P(+) = P(-) = 0,5 \tag{2.25}$$

Pour les calculs à l'énergie thermique du ^{241}Pu que nous utiliserons dans les chapitres 3 et 4, nous choisirons comme paramètres : $R_T^{min} = 0,5$, $R_T^{max} = 1,2$, $\sigma_L = 7,2$ et $\sigma_H = 8,6$. Ce jeu de paramètres fournit une multiplicité moyenne $\overline{\nu}$ comparable à la valeur de JEFF-3.1.1 ($\overline{\nu} = 2.92$).

2.3.2 Modèles de désexcitation

Une fois que les caractéristiques (A, Z, KE, E^*, J, π) des fragments sont déterminées, FIFRELIN procède au calcul de la désexcitation. Afin de « mimer » la désexcitation d'un noyau, son schéma de niveaux (E^*, J^π) doit-être connu et inclus dans FIFRELIN. Ces

connaissances, condensées dans la base de données RIPL-3 [83], sont partielles. Le code doit donc compléter le schéma de niveaux.

Génération des schémas de niveaux

Pour chaque noyau, trois zones d'énergies distinctes du schéma de niveaux sont définies, illustrées sur la figure 2.13 :

- À basse énergie, le schéma de niveaux discret est supposé connu de manière exhaustive (l'énergie est connue mais certains J^π peuvent ne pas être assignés) jusqu'à une énergie seuil, $E_{cut-off}$, fournie par RIPL-3.
- Entre $E_{cut-off}$ et E_{bin}, une partie des niveaux est connue. En s'appuyant sur un modèle de densité de niveaux, FIFRELIN complète le précédent schéma jusqu'à atteindre la densité théorique. À ce stade, la description des niveaux est encore discrète.
- Au-delà de l'énergie E_{bin}, correspondante à une densité de niveaux donnée (ici $5 \cdot 10^4$ niv/MeV), les niveaux sont d'énergies si proches qu'ils sont indiscernables. Une densité de niveaux (dépendante de l'énergie) est alors appropriée pour décrire ce continuum. Le traitement adopté se fait par valeurs moyennes, au sein de bins en énergie de largeur de 10 keV.

Plusieurs modèles de densité de niveaux nucléaires existent. Dans ce travail, c'est le Composite Gilbert and Cameron Model (CGCM), proposé par A. Gilbert et A. G. W. Cameron en 1965 [84] qui est choisi et mis à jour comme recommandé dans RIPL-3 [20]. Comme son nom l'indique, le CGCM regroupe deux approches distinctes. À faible énergie, une formulation classique de la densité de niveaux à une énergie E est considérée :

$$\rho(E) = \frac{1}{T} \exp\left(\frac{E - E_0}{T}\right) \tag{2.26}$$

Dans cette équation 2.26, une seule température T est requise pour décrire tout le domaine en énergie. Cela correspond au Constant Temperature Model (CTM). E_0 et T sont des paramètres ajustés afin de reproduire les données expérimentales.

Pour des énergies plus élevées, c'est le modèle de gaz de Fermi qui est appliqué :

$$\rho(E) = \frac{1}{12\sqrt{2}\sigma} \frac{\exp\left(2\sqrt{aU}\right)}{a^{1/4}U^{5/4}} \tag{2.27}$$

20. Avec, par exemple, un paramètre de densité de niveaux dépendant de l'énergie d'excitation.

Où, comme nous l'avons vu, a est le paramètre de densité de niveaux, U est l'énergie E corrigée de l'appariement et σ^2 le spin cut-off de la distribution en spin des niveaux, qui suit le Back-Shifted Fermi Gas Model (BSFGM), recommandée dans RIPL-3.

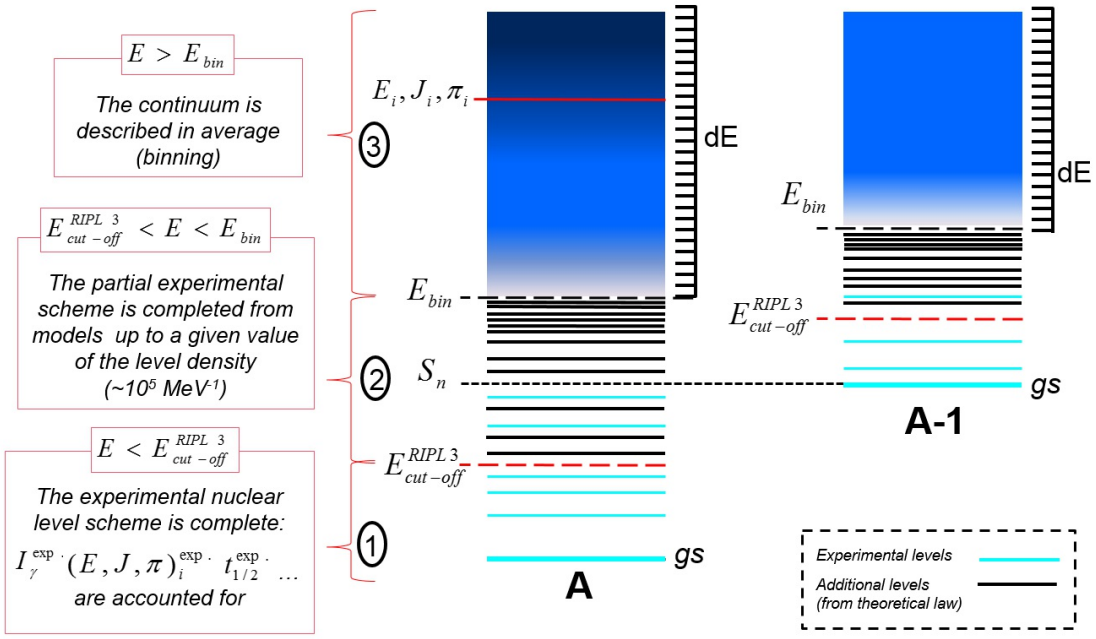


FIGURE 2.13: Illustration du schéma de niveaux échantillonné par FIFRELIN avec trois zones distinctes : les niveaux discrets connus (1), les niveaux discrets partiellement connues et complétés par un modèle de densité de niveaux (2) et le continuum (3).

Émission neutrons, γ et e^- de conversion

Plusieurs options sont disponibles dans FIFRELIN pour gérer les émissions de particules promptes. Nous allons ici citer les modèles utilisés pour les calculs dans le cadre de cette thèse.

FIFRELIN permet l'émission couplée de neutrons et de γ [85] pour fournir une description plus précise de la cascade de particules promptes que pour des émissions découplées [21], en particulier pour la zone de transition entre émission neutrons et émission γ. Ce processus de désexcitation couplé prend en compte la conservation de l'énergie, du spin et de la parité des états initiaux et finaux. Il permet également de simuler rigoureusement la compéririon n/γ.

21. Même si peu γ sont émis avant l'émission du dernier neutron.

Pour gérer l'émission des neutrons, les coefficients de transmission sont calculés à partir d'un modèle optique à travers le code ECIS [86]. Par défaut, c'est le potentiel Koning-Delaroche qui est utilisé [87; 88].

Les calculs des fonctions forces pour les émissions γ sont basées sur le modèle EGLO, pour Enhanced Generalized Lorentzian model [89; 90], en prenant en compte les fluctuations de Porter-Thomas [91].

Enfin, la prise en compte des e^- de conversion se fait à l'aide du programme BrIcc [92] pour les hautes énergies, à basse énergie, ce sont les recommandations de RIPL-3 qui sont utilisées.

2.4 Travaux préliminaires sur FIFRELIN

L'objectif de cette dernière partie de chapitre est de présenter par des exemples concrets l'impact de certains paramètres de FIFRELIN, illustré sur la multiplicité des neutrons prompts, qui nous sera utile dans les chapitres 3 et 4. Pour cela, nous allons présenter des travaux préliminaires effectués sur le ^{241}Pu pour généraliser l'utilisation de FIFRELIN à des énergies de neutron incident supérieures à l'énergie thermique, jusqu'à 5,5 MeV. Cette énergie correspond approximativement à la seconde chance de fission pour le ^{241}Pu.

Le nombre de neutrons prompts émis en moyenne par un fragment de masse A, $\overline{\nu}(A)$, a une forme en dent de scie (sawtooth) bien caractéristique. Malheureusement, nous ne disposons pas de données expérimentales de $\overline{\nu}(A)$ pour le ^{241}Pu(n_{th}, f). Cependant, pour une énergie thermique, le rapport du nombre de neutrons prompts émis en moyenne par le fragment léger, $\overline{\nu}_L$ et par le fragment lourd, $\overline{\nu}_H$ est d'environ [93] :

$$\frac{\overline{\nu}_L}{\overline{\nu}_H} = 1,2 \tag{2.28}$$

Lorsque l'énergie du neutron incident augmente (et avec elle l'énergie d'excitation du noyau composé), le nombre de neutrons prompts émis augmente à son tour. Afin de reproduire le comportement observé par Naqvi et al. [94], certains modèles comme le mécanisme d'« energy-sorting » parviennent, en augmentant l'énergie d'excitation initiale, à augmenter le nombre de neutrons prompts émis uniquement par le fragment lourd [95]. C'est notamment ce qui est implémenté dans GEF et le comportement que nous allons essayer de reproduire.

Nos observables cibles sont donc la multiplicité neutron totale, $\overline{\nu}_{tot}$, qui est extrapolé de JEFF-3.1.1 et $\overline{\nu}_L$, respectant le rapport de l'équation 2.28 pour une énergie thermique et constant avec l'énergie du neutron.

Lorsque l'énergie d'excitation augmente, les effets de couches disparaissent et les températures des deux fragments tendent à être égales. Nous allons donc dans un premier temps, voir si en faisant varier R_T^{min} et R_T^{max}, avec $\sigma_L = 7,2$ et $\sigma_H = 8,6$ constants, nous pouvons reproduire les tendances de $\overline{\nu}_{tot}$ et $\overline{\nu}_L$. Pour tester la reproductibilité de ces observables par FIFRELIN, nous calculons simplement un χ^2 :

$$\chi^2 = \frac{(\overline{\nu}_F - \overline{\nu}_{ci})^2}{\sigma(\overline{\nu}_{ci})^2} \tag{2.29}$$

Où l'indice F désigne les résultats de FIFRELIN et l'indice ci les observables cibles. La formule est similaire pour $\overline{\nu}_L$.

Nous obtenons les « nappes » de χ^2 des figures 2.14 pour le $\overline{\nu}_{tot}$ et 2.15 pour le $\overline{\nu}_L$. Pour calculer ces χ^2, nous choisissons une incertitude de 3% pour $\overline{\nu}$ et 10% pour $\overline{\nu}_L$ qui reflètent l'incertitude expérimentale de ces observables et l'incertitude statistique de FIFRELIN [22]. Observons d'abord que les paramètres choisis pour les simulations à l'énergie thermique utilisées dans la suite de la thèse : $R_T^{min} = 0,5$ et $R_T^{max} = 1,2$, correspondent bien à une région où le χ^2 est minimal pour $\overline{\nu}$ et $\overline{\nu}_L$.

Au regard de la figure 2.14, des R_T^{max} élevés sont favorisés pour la reproduction de l'évolution du $\overline{\nu}_{tot}$. Inversement et de manière plus franche, la figure 2.15 présente une tendance rapide vers des R_T^{max} faibles et proches de 1. Dans les deux cas R_T^{min} a une sensibilité bien plus faible que R_T^{max}. Ces deux figures présentent des tendances différentes, il semble qu'uniquement changer la loi en température ne soit pas suffisant [23].

Afin de reproduire l'évolution de $\overline{\nu}$ et $\overline{\nu}_L$, une dépendance linéaire pour R_T^{max} et σ_H a été testée, avec R_T^{min} et σ_L constants. Les résultats obtenus sont proposés sur les figures 2.16 et 2.17, pour :

$$\begin{aligned} R_T^{max} &= 1,20 - 0,06 \cdot E_n/\text{MeV} \\ \sigma_H &= 8,6 + 0,6 \cdot E_n/\text{MeV} \end{aligned} \tag{2.30}$$

Sur la figure 2.16 nous reproduisons l'évolution de $\overline{\nu}$, $\overline{\nu}_L$ et $\overline{\nu}_H$, que nous comparons à JEFF-3.1.1 et sur la figure 2.17, nous présentons les courbes de $\overline{\nu}(A)$ pour différentes

22. Pour des calculs courts, nous nous sommes restreints à 6000 évènements.
23. Ce n'est pas un résultat surprenant puisque l'énergie d'excitation et le spin sont fortement corrélés.

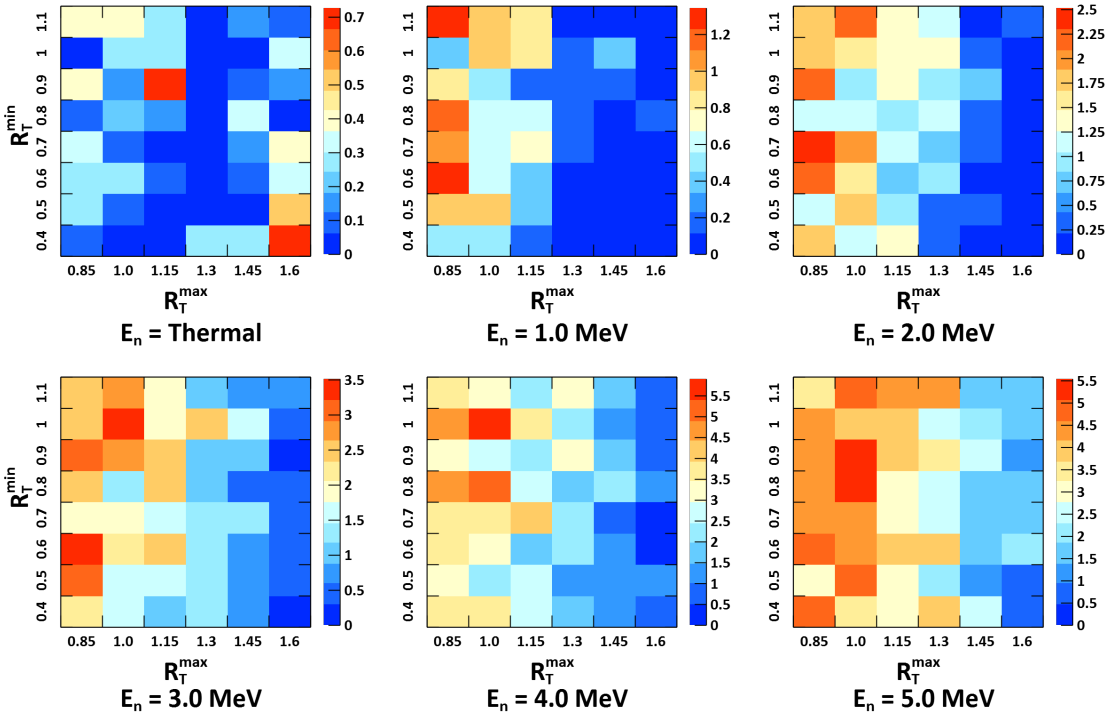


FIGURE 2.14: Nappe de χ^2 afin de reproduire les valeurs de $\overline{\nu}$ de JEFF-3.1.1 en fonction des valeurs de R_T^{min} et R_T^{max} obtenue pour différentes énergies de neutron incident.

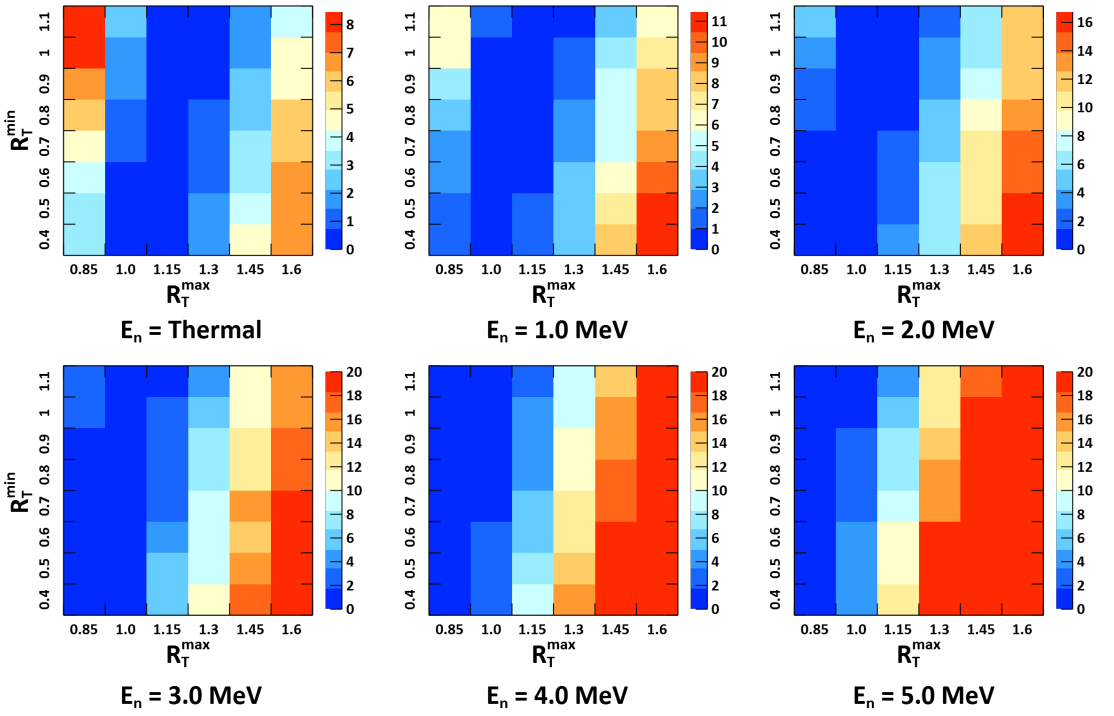


FIGURE 2.15: Nappe de χ^2 afin de reproduire les valeurs de $\overline{\nu}_L$ de JEFF-3.1.1 en fonction des valeurs de R_T^{min} et R_T^{max} obtenue pour différentes énergies de neutron incident. La valeur maximale de l'échelle est imposée à $\chi^2_{max} = 20$ pour les énergies de 3,0, 4,0 et 5,0 MeV, afin de faciliter la visualisation de l'évolution de cette nappe.

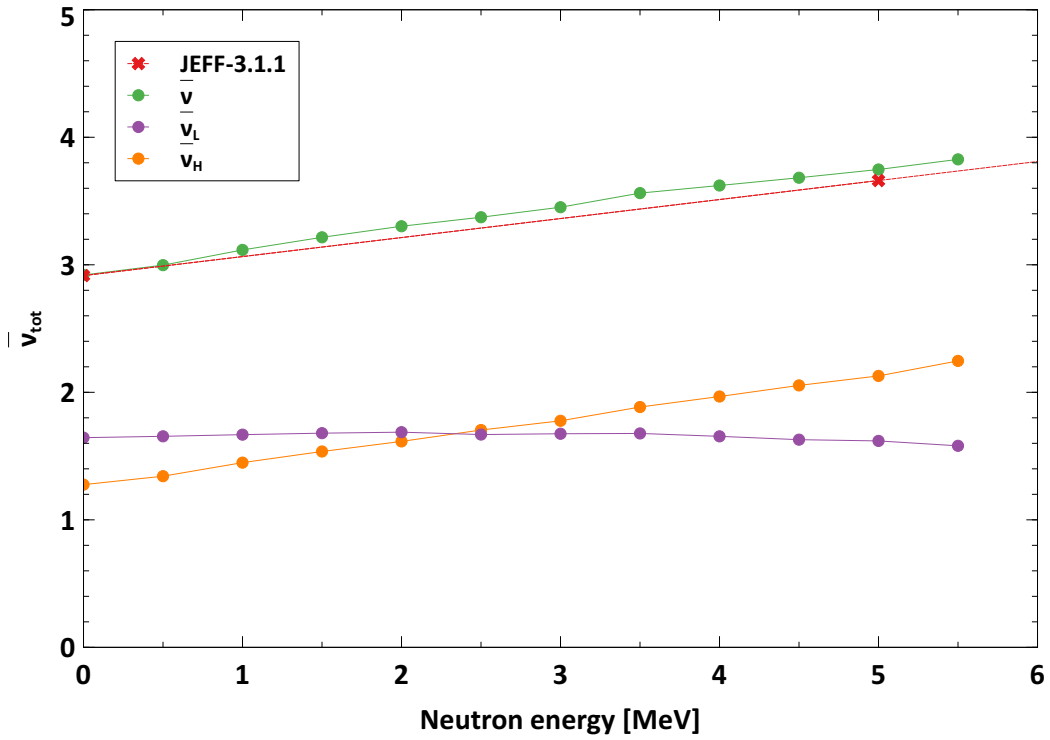


FIGURE 2.16: Évolution de $\overline{\nu}$, $\overline{\nu}_L$ et $\overline{\nu}_H$ obtenus avec FIFRELIN pour des énergies de neutrons allant du point thermique jusqu'à 5,5 MeV.

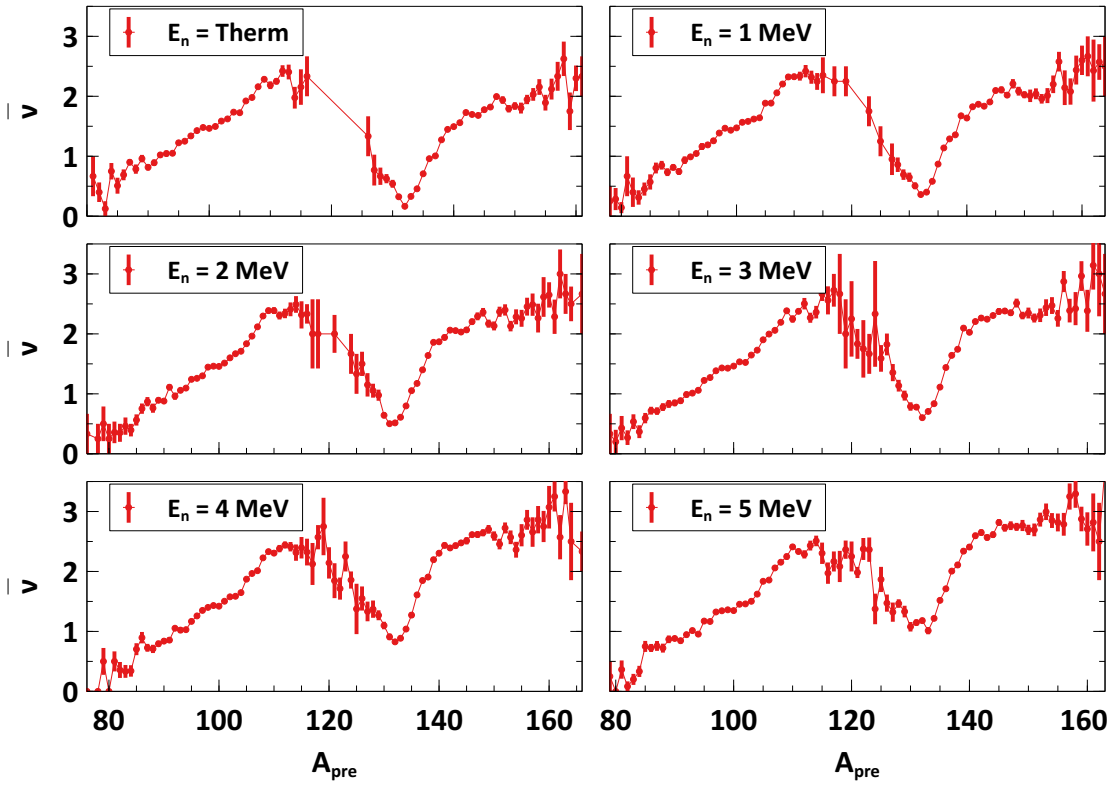


FIGURE 2.17: Évolution de $\overline{\nu}(A)$ obtenu avec FIFRELIN pour différentes énergies de neutron incident.

énergies de neutron incident. Le $\overline{\nu}$ obtenu est très proche de celui proposé par JEFF-3.1.1. Même si les tendances ne sont pas parfaites, notamment par la légère diminution de $\overline{\nu}_L$, le résultat reproduit le comportement attendu. Une reproduction plus fine est sans doute faisable mais au vu du peu d'informations expérimentales, nous n'avons pas de contraintes suffisantes pour plus de précision.

L'idée de ce travail préliminaire est de voir si des relations simples, notamment sur la loi en température peuvent représenter les tendances des évolutions attendues pour la multiplicité neutron. Sur l'exemple que nous avons traité, une évolution de σ_H semble aussi nécessaire. Nous avons fait ce travail sur le ^{241}Pu car c'est l'objet principal de cette thèse, à l'avenir, il faudrait réaliser la même prospection sur d'autres isotopes, notamment des isotopes où les données expérimentales, à la fois pour les observables d'entrée du code et les observables cibles, sont plus fournies, comme l'^{235}U. Si les mêmes conclusions sont obtenues il est envisageable de chercher une procédure systématique pour traiter des énergies neutrons supérieures à l'énergie thermique.

2.5 Conclusions

L'histoire des modèles de fission, dont nous avons fait une courte revue, foisonne d'approches différentes. Malgré un travail acharné depuis des décennies, l'ampleur de la complexité de la fission est loin d'être appréhendée.

En produisant l'ensemble des grandeurs du procédé de désexcitation, FIFRELIN est un formidable outil pour l'interprétation de résultats expérimentaux et l'évaluation des données nucléaires. C'est un outil ambitieux mais très complexe, il se doit d'être constamment validé, testé et amélioré, au fur et à mesure que de nouvelles données expérimentales sont agrégées. Un des objectifs de cette thèse est de proposer des mesures de référence pour FIFRELIN et pour d'autres modèles utiles à l'évaluation de données nucléaires.

CHAPITRE 3

ÉTUDE DES RENDEMENTS EN MASSE DU ^{239}PU ET DU ^{241}PU

Sommaire

3.1 Le spectromètre de masse LOHENGRIN 51

3.1.1 Principe de fonctionnement 52

3.1.2 Principe de détection de la chambre d'ionisation 62

3.2 Analyse des rendements 64

3.2.1 Prise en compte du BU 66

3.2.2 Prise en compte des corrélations entre charge ionique et énergie cinétique 67

3.2.3 Moyenne des différentes estimations du taux de comptage total $\overline{N}(A)$ 72

3.2.4 Particularités de l'analyse des données du ^{239}Pu 76

3.2.5 Particularité de la réanalyse des données du ^{241}Pu de Mai 2013 78

3.2.6 Décontamination des bas rendements 80

3.2.7 Moyenne des résultats de Mai 2013 et de Novembre 2015 . . . 91

3.2.8 Normalisation 93

3.2.9 Résumé des étapes d'analyses 93

3.3 Extraction de la distribution d'énergie cinétique en fonction de la masse 95

3.3.1 Correction de l'évolution de la cible 95

3.3.2 Corrections des pertes d'énergie et estimation de l'énergie moyenne post et pré-émission neutrons 96

3.3.3 Estimation de l'énergie moyenne pré-émission neutrons prompts 99

3.4 Discussions des résultats et applications 100

3.4.1 Comparaison à une méthode Monte Carlo 100

3.4.2 Interprétation des distributions en énergie cinétique par les modes de Brosa 103
3.4.3 Comparaison des résultats de LOHENGRIN aux données évaluées 108
3.5 Conclusions 114

Lorsque J. Chadwick prouve l'existence du neutron [1] en 1932 [97; 98] (récompensé du prix Nobel de Physique en 1935), il ouvre la voie à un immense domaine d'applications. Rapidement, le neutron est utilisé comme sonde de la matière et les expériences se multiplient pour user de ce nouvel outil.

Nommé en l'honneur des physiciens allemand Max von Laue et français Paul Langevin, l'Institut Laue-Langevin (ILL [99]) de Grenoble, est un centre de recherche fondé en 1967 par un accord entre la République Fédérale d'Allemagne et la République Française, rejoint par la Grande Bretagne, en 1974. Il est bâti autour d'un réacteur nucléaire modéré à l'eau lourde, d'une puissance thermique de 58,3 MW. Sa construction se termine en 1971 et le réacteur diverge pour la première fois le 31 août de la même année.

En utilisant un combustible enrichi à 93% en ^{235}U, le réacteur de l'ILL produit le flux de neutrons le plus intense au monde, d'environ 10^{15} neutrons par cm^2/s dans le modérateur, ce qui en fait un lieu de recherche de premier plan. En période nominale, l'ILL propose quatre cycles de cinquante jours par an. Les domaines qui y sont étudiés sont très variés, entre autres, la médecine, l'étude de la matière, le développement de nouveaux matériaux... et la physique subatomique.

En particulier, ce haut flux permet un taux de réaction important pour l'étude de la fission induite par neutron et est parfaitement adapté pour des mesures de précision nécessitant une forte statistique. C'est sur cette dernière idée que nous allons maintenant présenter le spectromètre de masse LOHENGRIN, opérationnel depuis 1975 sur l'aire expérimentale PN1 de la ligne de neutrons H9 de l'ILL. Nous exposerons ensuite les différentes étapes de l'analyse, des données expérimentales brutes jusqu'aux rendements isobariques et aux autres observables accessibles avec LOHENGRIN. Les résultats obtenus seront ensuite discutés et comparés aux données existantes et aux résultats de codes de calcul.

3.1 Le spectromètre de masse LOHENGRIN

Un spectromètre de masse est un instrument permettant de sélectionner un faisceau de particules en fonction de leur masse à l'aide d'un champ électromagnétique. LOHENGRIN est l'un de ces séparateurs, depuis sa mise en place, il a permis des mesures de rendements de la fission induite par neutron thermique sur bon nombre d'actinides : ^{229}Th, ^{233,235}U, ^{238}Np, ^{239,241}Pu, ^{242m,g}Am, ^{245m}Cm, ^{249,251}Cf. Un résumé complet des activités de recherches à l'ILL et en particulier sur LOHENGRIN est présenté par F. Gönnenwein dans l'ouvrage *The Neutron* [100].

1. Que E. Rutherford évoque déjà en 1920 [96].

Nous allons maintenant aborder le principe de séparation de ce spectromètre et ses principales caractéristiques. Ensuite, nous aborderons le fonctionnement de la chambre d'ionisation que nous avons utilisé pour la mesure de rendements en masse. Un schéma du spectromètre de masse LOHENGRIN est présenté sur la figure 3.1.

3.1.1 Principe de fonctionnement

Un chariot automatique apporte la cible près du réacteur. Cette cible est bombardée de neutrons, permettant la fission des éléments fissiles s'y trouvant, pour nos expériences, du ^{239}Pu ou du ^{241}Pu. Les fragments de fission ainsi formés ont une charge égale à leur charge nucléaire Z et une énergie cinétique $E_{k\ ini}$.

Les produits de fission obtenus après émission des neutrons et γ prompts vont interagir en traversant la cible et se recombiner partiellement avant d'en sortir. De par ces interactions, ils perdent une partie de leur énergie cinétique et acquièrent un cortège électronique. En entrant dans le canal de LOHENGRIN, les produits de fission ont une charge ionique q typiquement comprise entre 15 et 30 e et une énergie cinétique E_k entre 30 et 120 MeV.

Les fragments de fission sont émis de manière isotrope et seulement une petite partie passe dans le canal de LOHENGRIN. L'angle solide est inférieur à $3,2 \cdot 10^{-5}$ sr, ce qui correspond à une probabilité pour un noyau d'entrer dans le canal de LOHENGRIN de $p \leq 2,5 \cdot 10^{-6}$ [19]. Cette faible probabilité est compensée par le haut taux de fission, dû au flux neutronique très intense de l'ILL, d'environ $5,3 \cdot 10^{14}$ neutrons par cm^2/s au niveau de la cible.

Les produits de fission traversent ensuite le vide secondaire de l'instrument, jusqu'à atteindre la zone de détection. Ils parcourent les 23 m séparant la cible des détecteurs en un temps de vol de 1 à 2 μs, selon leur masse et énergie cinétique. Durant ce trajet, ils traversent un champ magnétique et un champ électrique, ce qui va permettre une sélection en fonction de leur masse A, de leur charge ionique q et de leur énergie cinétique E_k.

En bout de course il existe deux positions expérimentales, visibles sur la figure 3.2. Soit le faisceau entre directement dans une chambre d'ionisation à la position 1, c'est sur cette position que seront mesurés les rendements en masse $Y(A)$. Soit il est refocalisé à travers un second aimant, le Reverse Energy Dispersion (RED) [101] et déposé sur une bande déroulante. Ce deuxième aimant permet d'augmenter jusqu'à un facteur 7 le flux d'ions. Cette seconde position permet de placer des détecteurs Ge qui seront utilisés pour mesurer des rendements isotopiques, comme nous le verrons dans le chapitre 4.

LOHENGRIN possède aussi des shutters, ou obturateurs en français, qui servent à moduler la largeur du faisceau d'ions arrivant sur les positions expérimentales.

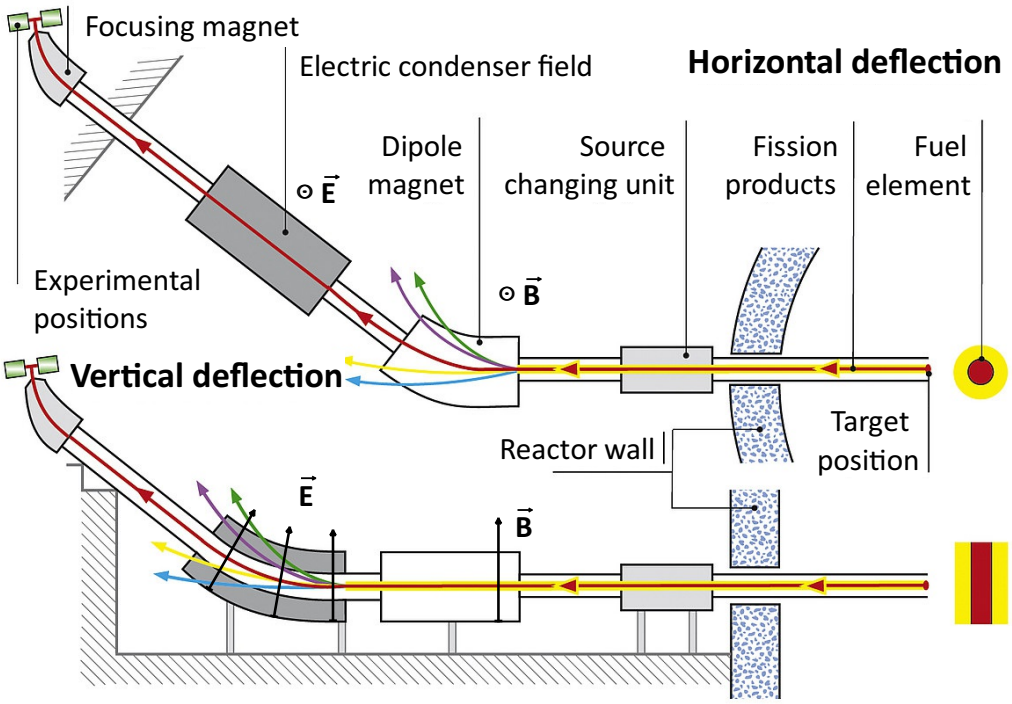


FIGURE 3.1: Schéma de principe du spectromètre de masse LOHENGRIN à l'ILL. Adapté de [99].

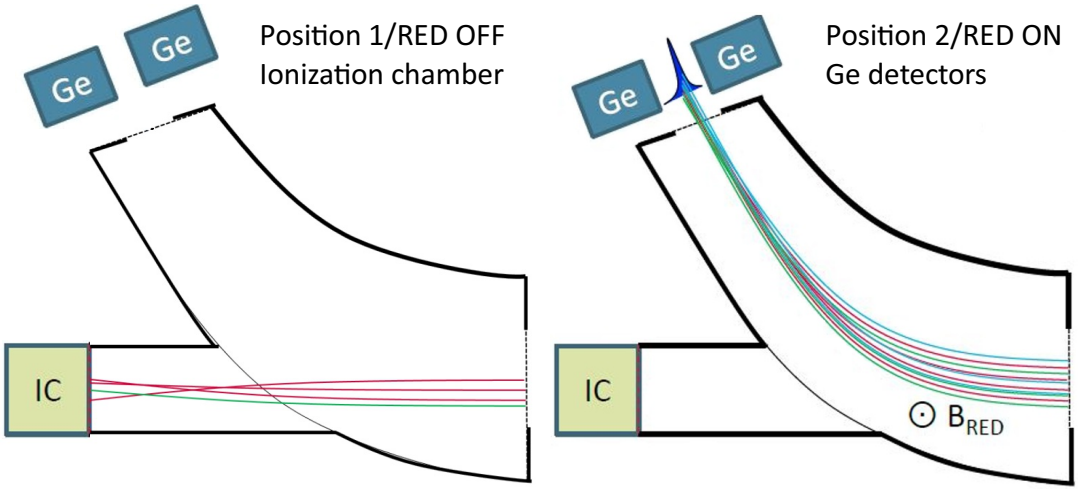


FIGURE 3.2: Les deux positions expérimentales, la première pour mesurer des rendements en masse, la deuxième, des rendements isotopiques.

Nous allons voir maintenant en détail comment sont sélectionnés les produits de fission entrant dans LOHENGRIN.

3.1.1.1 Principe de sélection des produits de fission

Sous l'action de la force de Lorentz, une particule chargée est accélérée orthogonalement au champ magnétique $\vec{B}$ et colinéairement au champ électrique $\vec{E}$ qu'elle traverse. Les champs de l'aimant et du condensateur de LOHENGRIN sont de telle sorte que, les produits de fission entrant dans LOHENGRIN vont être déviés horizontalement par le champ $\vec{B}$ et verticalement par le champ $\vec{E}$, comme cela est illustré sur la figure 3.1. Nous allons voir dans cette section comment sélectionner un faisceau d'ions bien déterminé en choisissant judicieusement les champs $\vec{E}$ et $\vec{B}$.

L'intégralité des calculs qui suivent se place dans une approche classique. Les produits de fission ne sont pas des particules relativistes dans le cas de la fission induite par neutron thermique [2].

Pour un produit de fission de masse A, de charge ionique q, de vitesse $\vec{v}$ et d'accélération $\vec{a}$, la force de Lorentz s'écrit :

$$A\vec{a} = q\vec{E} + q\vec{v} \otimes \vec{B} \tag{3.1}$$

Pour une mesure, les champs $\vec{E}$ et $\vec{B}$ étant constants, les produits de fission évoluant au centre du canal de LOHENGRIN décrivent une trajectoire circulaire, de rayon de courbure respectifs ρ_E et ρ_B, telle que [102] :

$$Aa_E = qE = \frac{Av^2}{\rho_E} \tag{3.2}$$

$$Aa_B = qvB = \frac{Av^2}{\rho_B} \tag{3.3}$$

Ainsi, en notant l'énergie cinétique de la particule $E_k = \frac{Av^2}{2}$, lorsque les particules traversent le champ $\vec{E}$, d'après l'équation 3.2 :

$$\frac{E_k}{q} = \frac{E\rho_E}{2} \tag{3.4}$$

En traversant le champ $\vec{B}$, en mettant l'équation 3.3 au carré :

$$\frac{A}{q} = \frac{B^2 \cdot \rho_B^2 \cdot q}{Av^2} \tag{3.5}$$

2. Dans le cas extrême de masse et d'énergie cinétique mesurées, typiquement A = 60 pour E_k = 120 MeV : $\beta = \frac{v}{c} = 6,6\%$.

Ce qui, en utilisant la relation 3.2 équivaut à :

$$\frac{A}{q} = \frac{B^2\rho_B^2}{E\rho_E} \tag{3.6}$$

La norme du champ électrique est fonction de la distance, d et de la différence de potentiel, V, entre les plaques du condensateur :

$$E = \frac{V}{d} \tag{3.7}$$

L'équation 3.4 peut se réecrire en fonction de paramètres géométriques $\phi = \frac{\rho_E}{2d}$:

$$\frac{E_k}{q} = \frac{E\rho_E}{2} = \frac{\rho_E V}{2d} = \phi V \tag{3.8}$$

et 3.6 en fonction de $\chi = \frac{\rho_E}{d \cdot \rho_B^2}$:

$$\frac{A}{q} = \frac{B^2\rho_B^2}{E\rho_E} = \frac{B^2 \cdot d \cdot \rho_B^2}{V\rho_E} = \frac{B^2}{V\chi} \tag{3.9}$$

Ces paramètres ϕ et χ vont respectivement permettre la calibration en énergie cinétique et en masse. La calibration de LOHENGRIN se fait avec des noyaux légers, les détails de la procédure sont fournis dans [102].

Il ressort des équations 3.6 et 3.4 que les rayons de courbure des particules dépendent de leur masse A et de leur énergie E_k. Ainsi les particules se répartissent dans différents rayons selon leur masse et leur énergie. Le couplage d'un champ magnétique et d'un champ électrique va donc permettre une sélection en $\frac{A}{q}$ et en $\frac{E_k}{q}$. Précisons que ces calculs sont valables pour des produits de fission suivant le milieu du canal de LOHENGRIN et sont considérés valable pour l'intégralité du faisceau.

Différents triplets (A, E_k, q) peuvent satisfaire les même ratios $\frac{A}{q}$ et $\frac{E_k}{q}$, il existe donc une dégénérescence des solutions. Nous verrons comment chacun des dispositifs expérimentaux permet de la résoudre.

3.1.1.2 Résolution en énergie et en masse

Les dispositifs expérimentaux sont placés au point focal de LOHENGRIN. Le grossissement est alors de 1. Le chemin que parcourent les produits de fission différera selon leur (A, E_k, q) et chaque (A, E_k, q) est déposé différemment sur le plan focal, ce qui est illustré sur la figure 3.3. Le (A, E_k, q) que nous souhaitons étudier est évidement placé

au centre et est suffisamment éloigné des autres triplets, comme cela est présenté sur la figure 3.4, pour permettre une séparation en masse quasi-parfaite. La résolution obtenue pour cet exemple est $\frac{\Delta A}{A} \approx \frac{1}{900}$, cette résolution est dépendante de la taille de la cible.

Comme cela est illustré sur la figure 3.3, la dispersion des masses sur LOHENGRIN est de :

$$\frac{\delta A}{A} = 1\% \qquad \text{pour 3,24 cm} \tag{3.10}$$

Et en énergie cinétique :

$$\frac{\delta E_k}{E_k} = 1\% \qquad \text{pour 7,2 cm} \tag{3.11}$$

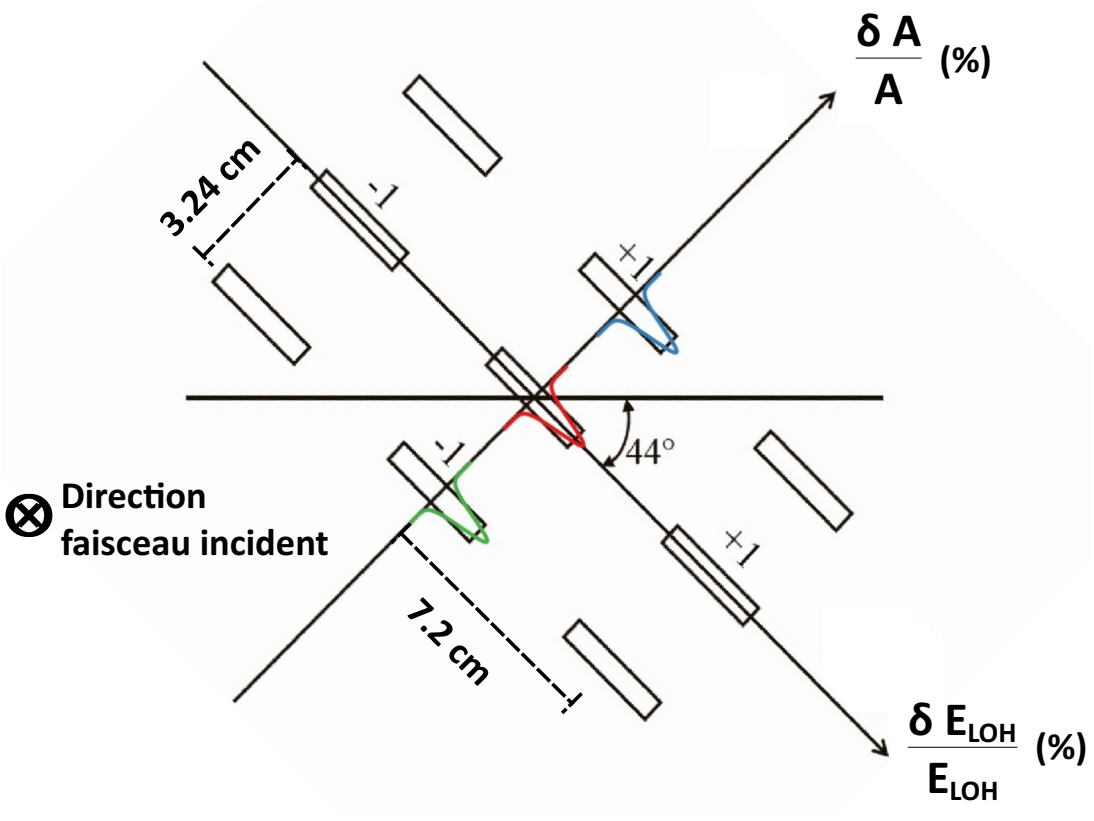


FIGURE 3.3: Schéma de la dispersion sur le plan focal de LOHENGRIN. Les gaussiennes de couleurs sont une représentation de l'image de différentes masses (à une énergie cinétique et une charge ionique donnée) par LOHENGRIN. Adapté de [101].

La résolution en énergie cinétique obtenue durant l'expérience, dépend de la taille du faisceau d'ions, qui est imposée par l'ouverture ou la fermeture des treize shutters. Cette résolution est proportionnelle à l'énergie cinétique sélectionnée par LOHENGRIN et au nombre de shutters ouverts :

$$\Delta E_k = N_{shutters} \cdot R_{sh} \cdot E_k \tag{3.12}$$

Où R_{sh} est la résolution pour un shutter de 3,5 cm et vaut $\frac{3,5}{7,2} \cdot 1\% = 0{,}49\%$.

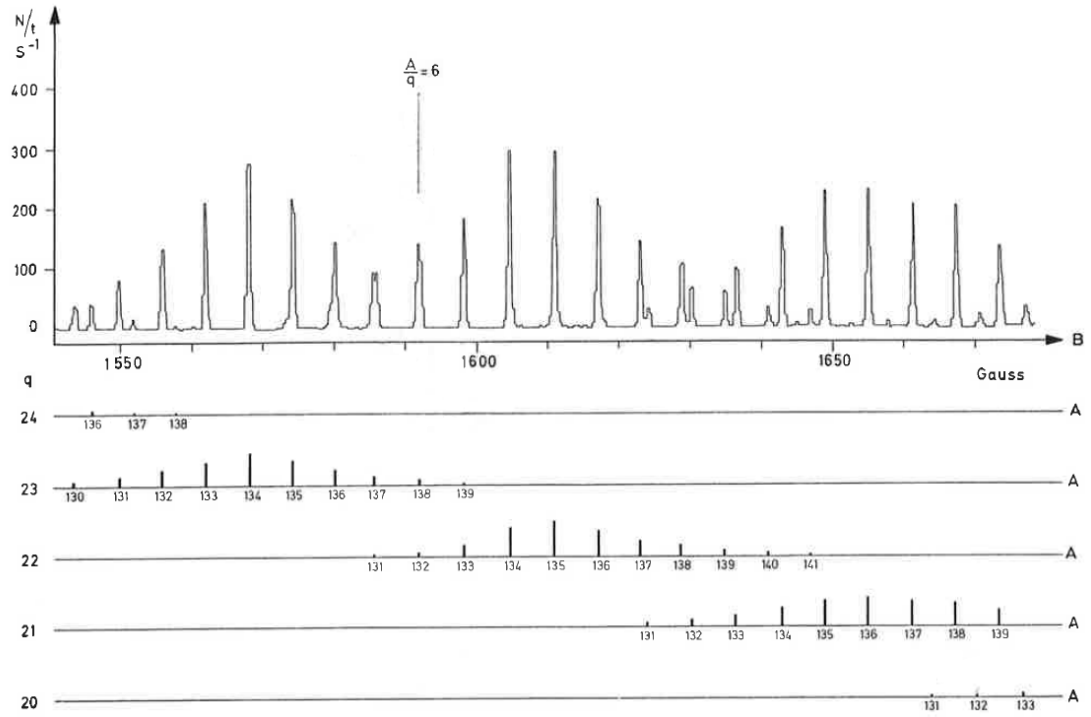


FIGURE 3.4: Mesure de la résolution en masse de LOHENGRIN pour les produits de fission lourds pour une tension de 350 kV aux bornes du condensateur. La résolution obtenue est $\frac{\Delta A}{A} \approx \frac{1}{900}$. Tiré de [103].

3.1.1.3 Cibles utilisées dans LOHENGRIN

Durant cette thèse, trois expériences sur les rendements en masse ont été analysées. Une expérience avec une cible de ^{239}Pu menée avant ma thèse, en novembre 2014. Deux expériences avec une cible de ^{241}Pu, la première effectuée avant ma thèse en mai 2013, l'autre pendant, en novembre 2015. L'expérience de mai 2013 a été analysée durant la thèse de F. Martin [19] mais sera réinterprétée dans le cadre de ce travail.

Les cibles utilisées sur LOHENGRIN présentent la même structure, dont une vue schématique est proposée sur la figure 3.5.

La matière fissile est dissoute puis électrodéposée sur une plaque support en titane (Ti) sous forme d'oxyde, PuO_2. Le Ti présente des propriétés thermomécaniques suffisantes pour une bonne résistance aux températures de fonctionnement de l'expérience. De plus, ses propriétés sont similaires à celles du plutonium, ainsi, ils se dilateront de la même manière, ce qui permet de préserver l'intégrité de la cible. Il a aussi une forte émissivité et peut donc dissiper une partie de l'énergie libérée par la fission et limiter l'échauffement. Enfin, ses propriétés chimiques permettent une bonne fixation du Pu.

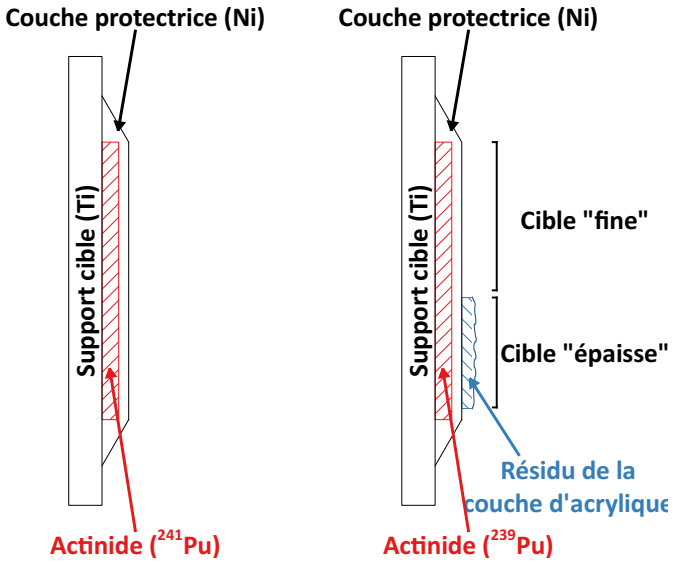


FIGURE 3.5: Coupe schématique (proportions non respectées) d'une cible type de ^{241}Pu utilisée lors de nos expériences (à gauche) et la cible de ^{239}Pu de l'expérience de novembre 2014.

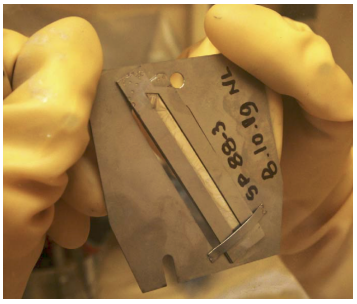


FIGURE 3.6: Photo d'une cible d'actinide utilisée sur LOHENGRIN avec une couche de Ni de 0,25 μm sur un diaphragme en Ti de 7 x 0,5 cm^2. Tirée de [104].

L'épaisseur de la couche d'actinide peut varier sensiblement d'une expérience à l'autre selon la qualité de la cible et le type d'expérience menée. Une cible épaisse fournira un taux de comptage important mais aura une résolution en énergie cinétique dégradée. C'est le type de cible privilégié pour les mesures avec les détecteurs Ge, sensiblement plus longues. La masse d'une telle cible est typiquement de 200 à 300 μg/cm^2. Lorsqu'une chambre d'ionisation est utilisée, les cibles peuvent être plus fines, car l'efficacité de détection est significativement plus importante. Les masses de ces cibles sont d'environ 100μg/cm^2 ou moins. Le tableau 3.1 indique entre autres les masses surfaciques des cibles utilisées au cours de cette thèse.

Un diaphragme en Ti est placé sur la couche d'actinide afin de parfaitement délimiter la partie « utile » de la cible. Une couverture protectrice recouvre la cible sur l'ouverture, composée de nickel (Ni) et épaisse de 0,25 μm pour les cibles utilisées durant cette thèse. Elle permet d'accroître la tenue de la cible et ainsi d'augmenter sa durée de vie dans le réacteur, au prix d'une résolution en énergie dégradée. Pour le transport à l'ILL, le Ni est stabilisé par une couche d'acrylique. Avant de poser le Ni sur la cible, l'acrylique est lavée à l'acétone. Afin d'illustrer ces différents propos, une photo d'une cible prête à être mise en pile est montrée sur la figure 3.6.

Pour la cible de ^{239}Pu, figure 3.5 à droite, l'acrylique n'a pas été totalement enlevée et la cible présentait donc une sur-couche inhomogène. En plus de dégrader sensiblement la résolution en énergie cinétique, du point de vue de la mesure, cette inhomogénéité rend la cible équivalente à la superposition de deux cibles, l'une « fine » lorsque la sur-couche

n'est peu ou pas présente, l'autre « épaisse » [18]. Nous verrons dans la sous-section 3.2.4 ce que cela implique pour l'analyse.

Pureté des cibles

Les cibles utilisées sont composées à au moins 97% de Pu. Le reste étant principalement de l'^{241}Am. Pour nos mesures, la contribution à la fission des isotopes autres que respectivement le ^{239}Pu et ^{241}Pu est négligeable.

Évolution de la cible au cours de l'expérience

Au fil de l'expérience, la quantité de matière fissile présente dans la cible diminue. La raison la plus évidente de cette diminution est le nombre important de réactions nucléaires (n_{th},f et n_{th},γ) ayant lieu sous le flux intense de l'ILL. Nous appellerons Burn-Up (BU) la quantité de matière fissile présente dans la cible et par extension, Burn-Up nucléaire (BU_n), la partie de son évolution due aux réactions nucléaires de capture. L'évolution du BU nucléaire, BU_n en fonction du temps t s'exprime simplement grâce aux sections efficaces de réactions σ et du flux de neutrons ϕ :

$$BU_n(t) = BU_n(0) \cdot \exp\left(-(\sigma_{n_{th},f} + \sigma_{n_{th},\gamma})\phi t\right) \tag{3.13}$$

Mais ce BU nucléaire n'est pas suffisant pour décrire la diminution du BU observée [3]. D'autres phénomènes entrent en jeu [104] :

- Le phénomène de sputtering : chaque fragment de fission en sortant de la cible peut expulser quelques atomes hors de la cible (self-sputtering). De la même manière, les émissions de particules α peuvent induire ce phénomène. Il est équivalent à un BU nucléaire accélérée et est réduit par la couverture de Ni.
- La diffusion d'actinide dans le support ou le diaphragme (backing) : à hautes températures les actinides peuvent diffuser dans le Ti[105]. Pour des temps de diffusion courts, cela implique que les produits de fission des noyaux d'actinides fissionnant dans le Ti perdront d'avantage d'énergie cinétique avant de sortir de la cible. Pour des temps de diffusion suffisamment longs, les produits de fission sont créés trop profondément dans le Ti pour pouvoir en sortir.
- La fragmentation de la cible : il peut arriver que la cible se fragmente à cause de la dilatation thermique et qu'un morceau entier se décroche et ne soit plus en face du canal d'entrée de LOHENGRIN. Dans ce cas, le BU chute brusquement. Le support en Ti accolé à la cible limite ce phénomène.

3. Pour de très fines cibles, le BU peut être proche du BU nucléaire attendu.

Lors de nos expériences, il est très important de prendre en compte l'évolution de la quantité de matière fissile dans la cible, afin de normaliser les taux de comptage mesurés. Ainsi, une masse de référence est régulièrement mesurée, en l'occurrence, la masse 136, car elle possède un rendement (et donc un taux de comptage) important et une séparation de masses optimale. Plus de détails seront donnés sur l'analyse de BU dans la sous-section 3.2.1.

Notons que le flux de neutrons dépend de la puissance du réacteur, les fluctuations de cette puissance entre deux points de BU pourraient induire des variations locales non mesurées. Mais nous faisons l'hypothèse que ces fluctuations sont négligeables au vu de l'amplitude des fluctuations de la puissance du réacteur de l'ILL en fonctionnement normal. La puissance du réacteur de l'ILL sur l'ensemble d'un cycle est montrée sur la figure 3.7 (à gauche) et un agrandissement sur la seizième journée, à droite, permet d'avoir l'ordre de grandeur des fluctuations de la puissance au cours d'une expérience.

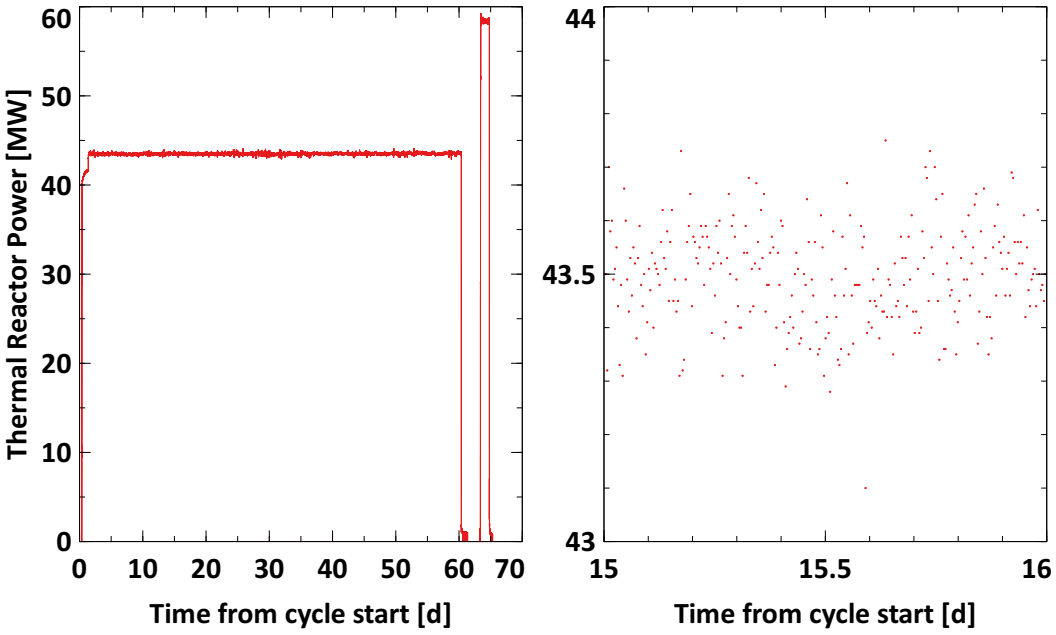


FIGURE 3.7: Évolution de la puissance thermique du réacteur de l'ILL au cours du cycle s'étalant du 13/10/2015 au 17/12/2015 (à gauche) et sur la seizième journée du même cycle (à droite). Tiré de [106].

Température de fonctionnement et densité de la cible

Un point qui nous sera utile pour estimer les pertes d'énergie cinétique des produits de fission dans la cible, est la température à laquelle se trouve la cible et son revêtement en Ni au cours des expériences.

D'après [104], la température maximale sur LOHENGRIN pour des cibles d'UO_2 d'épaisseurs fines d'environ 30 μg/cm^2 est aux alentours de 300°C. Pour des cibles de 100

TABLEAU 3.1: Les densités retenues pour le PuO_2 et le Ni [109] pour les différentes cibles des expériences de rendement en masse ou isotopique.

Expérience	Masse surfacique (μg/cm^2)	T (°C)	ρ_{PuO_2} (g/cm^3)	ρ_{Ni} (g/cm^3)
Masse Mai 2013	103	500	11,70	8,72
Isotopique Mai-Juin 2013	282	700		8,63
Masse Novembre 2014	103	500		8,72
Masse Novembre 2015	30	300		8,80
Isotopique Juillet 2016	208	600		8,68

μg/cm^2, cette température est proche de 500°C, 600°C pour des cibles de 200 μg/cm^2 et 700°C pour des cibles plus épaisses de 300 μg/cm^2. Ces épaisseurs sont similaires à celles des cibles utilisées pour cette thèse.

Le ^{239}Pu et ^{241}Pu ayant une section efficace de fission pour des neutrons thermiques [16] plus élevée que l'^{235}U, ces températures sont plus hautes pour nos expérience puisque la puissance dissipée par la fission sera environ d'autant plus importante :

$$\frac{\sigma_{Pu39}(n_{th}, f)}{\sigma_{U5}(n_{th}, f)} = \frac{749,3\ b}{584,5\ b} = 1,28 \ \text{ et } \ \frac{\sigma_{Pu41}(n_{th}, f)}{\sigma_{U5}(n_{th}, f)} = \frac{1012,3\ b}{584,5\ b} = 1,73 \tag{3.14}$$

Néanmoins nous faisons l'hypothèse que les températures de fonctionnement des cibles de PuO_2 aux épaisseurs données sont proches des valeurs indiquées et que ces températures sont constantes au cours de chaque expérience.

Avec cette hypothèse, nous pouvons définir les densités du Ni et du PuO_2 pour nos différentes expériences. Ces différences sont faibles car le Ni et le PuO_2 ont une bonne tenue en température. C'est d'ailleurs une des raisons pour laquelle le Ni est ici choisi et que le combustible en réacteur est sous forme d'oxyde. Pour le PuO_2, la densité à température ambiante est de 11,46 g/cm^3 [107] et entre 293 et 1000 K, $\frac{\Delta L}{L_0} = 0,7\%$ [104], ainsi :

$$\rho(T = 1000\ K) = \rho(T = 293\ K) \cdot (1 + 0,007)^3 = 11,70\ \text{g/cm}^3 \tag{3.15}$$

La variation de la densité de PuO_2 est donc faible sur une gamme de température élevée. Nous considérerons donc une densité constante pour le PuO_2. L'impact de cette densité sur le résultat final est faible et le biais induit n'est pas significatif puisque nous sommes bien en deçà des incertitudes du code SRIM [108], dans lequel cette densité sera utilisée. Nous verrons cela plus en détail dans la sous-section 3.3.2.

L'approximation faite sur les températures et donc sur les densités de Ni et de PuO_2 est bien en deçà des incertitudes de SRIM ou de l'incertitude sur l'épaisseur de la couche de Ni. Les densités retenues sont résumées dans le tableau 3.1.

3.1.2 Principe de détection de la chambre d'ionisation

Nous allons maintenant expliciter le principe de fonctionnement d'une chambre d'ionisation, qui est le détecteur utilisé au cours des différentes mesures de rendements en masse.

3.1.2.1 Principe de fonctionnement

La chambre d'ionisation est un détecteur de particules chargées, dont un schéma de principe est donné sur la figure 3.8.

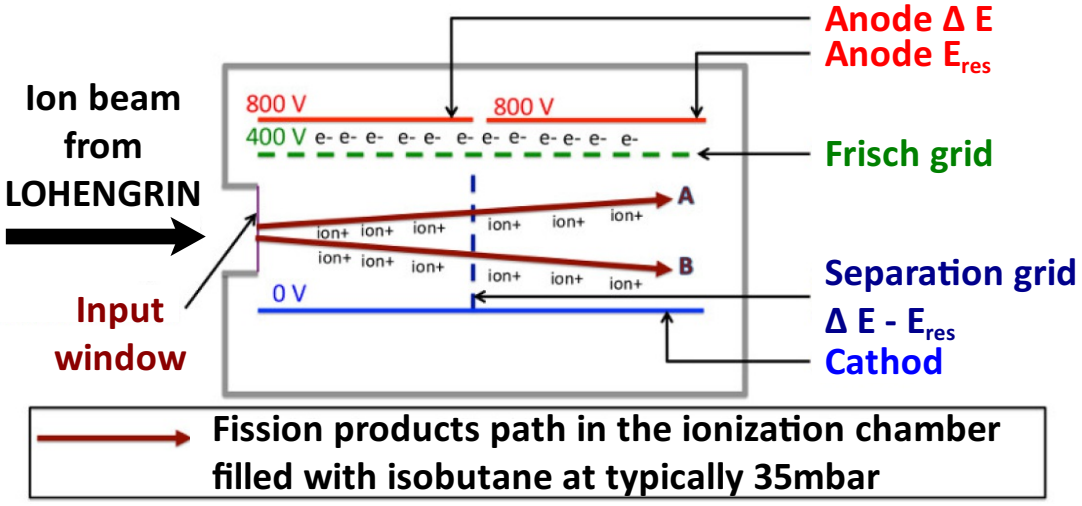


FIGURE 3.8: Schéma de principe d'une chambre d'ionisation avec grille de Frisch. Adapté de [19].

Lorsqu'une particule chargée pénètre dans la chambre d'ionisation, elle interagit avec le gaz s'y trouvant, dans notre cas, de l'isobutane C_4H_{10} à une pression typiquement de 35 mbar.

La particule incidente ionise le gaz et produit des paires d'électrons et d'ions. Sous l'effet d'un champ électrique, les électrons vont dériver vers l'anode, les ions vers la cathode et y être collectés. Comme la masse des ions est plusieurs milliers de fois plus grande que celle des électrons, leur vitesse va être bien plus faible et leur collecte ne présentera pas un signal pertinent. Les électrons récupérés sur l'anode vont produire un signal électrique proportionnel au nombre d'électrons et donc à l'énergie déposée dans la chambre.

La chambre d'ionisation utilisée pour nos expériences possède une grille de Frisch, qui permet de s'affranchir de la trace du produit de fission [110].

Elle possède aussi une grille séparatrice, permettant d'apporter une information sur l'endroit où le produit de fission dépose son énergie :

- Les électrons créés dans la première partie de la chambre sont collectés par la première anode ce qui permet de mesurer ΔE.
- Les électrons formés dans la deuxième partie et collectés par la deuxième anode donnent la mesure de l'énergie résiduelle E_{res}.

L'énergie cinétique totale déposée par le produit de fission dans la chambre d'ionisation est alors :

$$E_{tot} = \Delta E + E_{res} \tag{3.16}$$

3.1.2.2 Résultats types d'une mesure avec la chambre d'ionisation

Les mesures effectuées avec la chambre d'ionisation sont très rapides. Pour la majorité des masses, un point de mesure, *i.e.* la mesure du taux de comptage d'une masse à une énergie cinétique et une charge ionique donnée, se fait en trente secondes environ.

La perte d'énergie par unité de distance dans le gaz de la chambre d'ionisation est proportionnelle au carré de la charge de l'ion incident [111]. Pour les produits de fission légers, cette perte est assez discriminante pour pouvoir les séparer selon leur Z. Lorsque $Z > 40$ [112], la résolution en énergie n'est plus assez bonne pour discriminer les différentes charges nucléaires. La figure 3.9 montre le résultat type obtenu pour des données mesurées par la chambre d'ionisation. Chaque tache représente un triplet (A, E_k, q). Après calibration en énergie de la chambre d'ionisation, il est possible d'identifier quelle tache appartient à quel triplet (A, E_k, q) et compter le nombre de coups provenant du triplet souhaité. Le canal central de la tache correspond à l'énergie de l'ion détecté, la résolution en énergie est responsable de la couronne alentour. Bien évidemment il faut prendre l'ensemble de ces canaux correspondant à une même masse. Les quelques canaux périphériques entre deux masses présentent un taux de comptage négligeable qu'il n'est pas nécessaire de prendre en compte car inférieurs à l'incertitude statistique.

Le nombre de coups total mesuré, N_m, dépend de l'intervalle de temps de mesure, Δt_m, ainsi que de la résolution en énergie. Cette dernière dépend, comme nous l'avons vu dans l'équation 3.12, du nombre de shutters ouverts et de l'énergie cinétique, ainsi :

$$N_m \propto \Delta t_m \cdot N_{shutters} \cdot R_{sh} \cdot E_k \tag{3.17}$$

Comme nous nous rapportons toujours à un nombre constant de shutters ouverts, nous pouvons nous affranchir du produit $N_{shutters} \cdot R_{sh}$. En définitif, le taux de comptage indépendant de la durée Δt_m de la mesure et de la résolution en énergie cinétique, pour

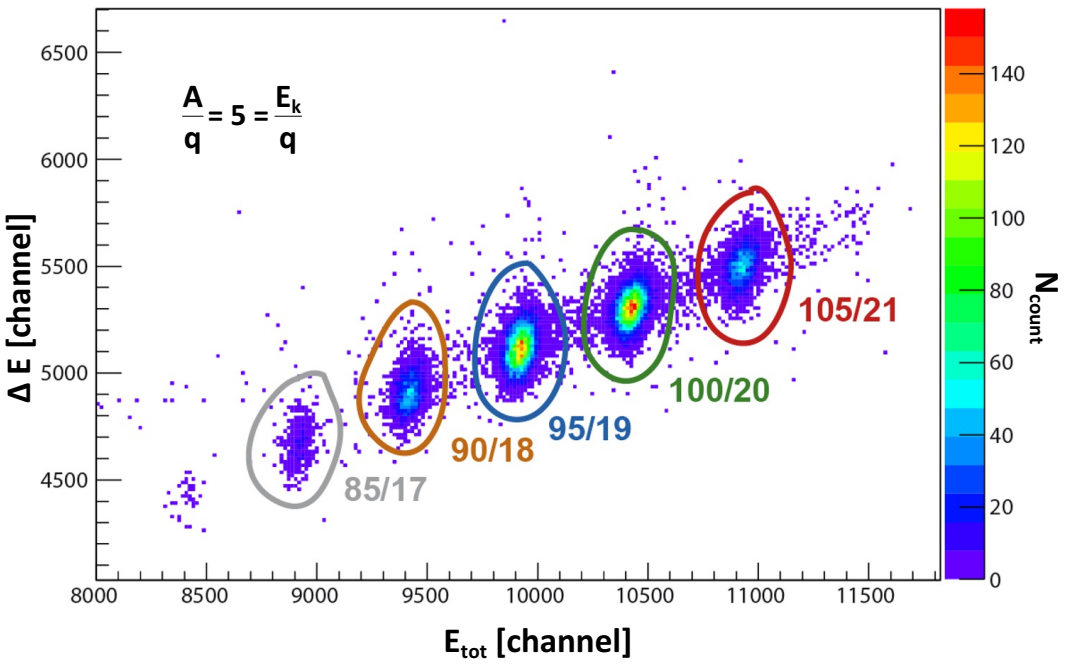


FIGURE 3.9: Exemple de mesure obtenue avec la chambre d'ionisation pour la masse $A = 100$ à $E_k = 100$ MeV et à la charge ionique $q = 20$. Chaque tache correspond à un triplet (A, E_k, q) satisfaisant les ratios A/q et E_k/q imposés par LOHENGRIN. Sur les axes, en nombre de canaux : l'énergie totale déposée dans la chambre, E_{tot} et l'énergie déposée avant la grille de séparation, ΔE. Le centre des taches correspond à l'énergie sélectionnée par LOHENGRIN, les bins alentours sont dus à la résolution de la chambre d'ionisation couplée à LOHENGRIN.

un triplet (A, E_k, q) mesuré au temps t de l'expérience, $N(A, t, E_k, q)$, est :

$$N(A, t, E_k, q) = \frac{N_m(A, t, E_k \pm \frac{\Delta E_k}{2}, q, \Delta t_m)}{\Delta t_m \cdot E_k} \tag{3.18}$$

Nous allons maintenant voir comment de la mesure d'un taux de comptage $N(A, t, E_k, q)$, nous pouvons obtenir un rendement en masse.

3.2 Analyse des rendements

En couplant à LOHENGRIN une chambre d'ionisation, nous pouvons mesurer à un temps t, un taux de comptage pour un triplet (A, E_k, q) : $N(A, t, E_k, q)$. Afin d'avoir le taux de comptage total pour une masse A, il faut mesurer l'intégralité de la distribution (E_k,q), en prenant soin de considérer l'évolution temporelle de la quantité de matière fissile dans la cible, $BU(t)$. Ainsi, le taux de comptage total pour une masse A, $N(A)$, s'écrit :

$$N(A) = \int_{E_k} \sum_q \frac{N(A, t, E_k, q)}{BU(t)} \, dE_k \tag{3.19}$$

Une image de la distribution $N(A, E_k, q)$ est donnée sur la figure 3.10 pour illustrer cette équation.

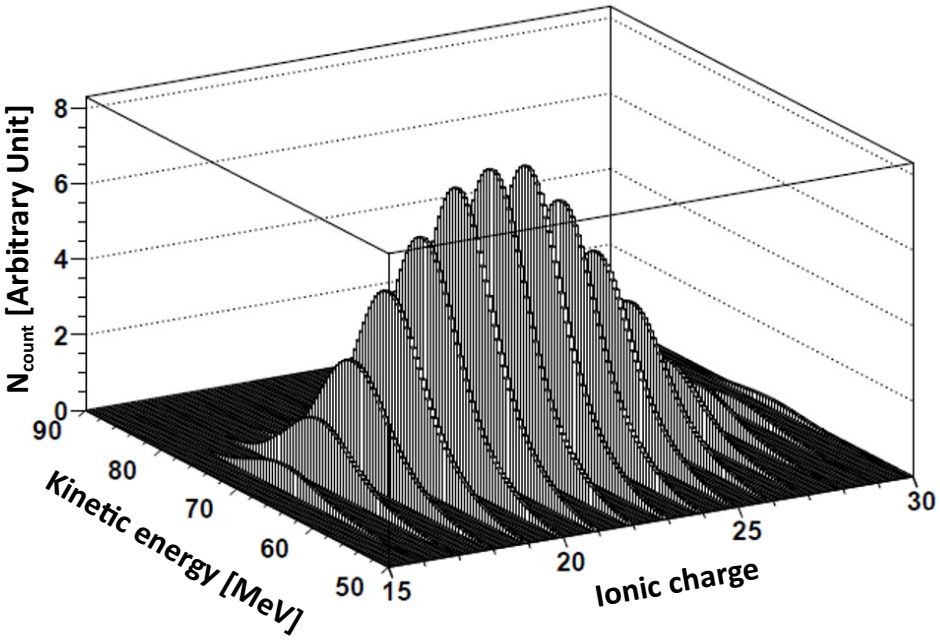


FIGURE 3.10: Représentation en 3-D de la distribution $N(A, E_k, q)$ lorsque charge ionique et énergie cinétique sont indépendantes. Nous verrons par la suite l'impact de cette hypothèse.

La résolution de LOHENGRIN implique, comme nous l'avons vu, un binning minimal en énergie cinétique. Nous transformerons donc l'intégrale continue en énergie par un échantillonnage avec un pas donné, de largeur de 3 ou 4 MeV selon l'expérience :

$$N(A) = \sum_{E_k} \sum_{q} \frac{N(A, t, E_k, q)}{BU(t)} \tag{3.20}$$

Avec LOHENGRIN, nous pouvons mesurer (entre autres) :

- Une distribution en énergie cinétique à une charge ionique donnée.
- Une distribution en charge ionique à une énergie cinétique donnée.

Afin de respecter l'équation 3.20, il nous faudrait mesurer une distribution en énergie cinétique pour chaque charge ionique possible.

Cependant, le temps de chaque expérience est limité par le temps de faisceau qui nous est attribué, typiquement de l'ordre d'une semaine. La durée de vie de la cible placée dans le réacteur est aussi un facteur limitant. Il est nécessaire de faire des compromis pour mesurer suffisamment de rendements différents. Nous n'allons donc pas mesurer une distribution en énergie cinétique pour chaque charge ionique, mais nous allons mesurer une distribution en énergie à une charge q_i donnée et diviser par la probabilité d'obtenir cette charge. Cette probabilité, $P(q)$, est déduite de la mesure de la distribution en

charge ionique à une énergie cinétique fixe, proche de l'énergie cinétique moyenne pour la masse considérée. Ainsi, en considérant les distributions en énergie cinétique et en charge indépendantes, la relation 3.20 se simplifie. Le taux de comptage total estimé à partir de la distribution en énergie de la masse q_i, devient :

$$N_{q_i}(A) = \frac{1}{P(q_i)} \sum_{E_k} \frac{N(A, t, E_k, q_i)}{BU(t)} \tag{3.21}$$

Si cette dernière relation a longtemps été utilisé nous verrons qu'elle peut induire des biais. Depuis les travaux de F. Martin [19], les données mesurées par la collaboration sont corrigées de ce biais.

3.2.1 Prise en compte du *BU*

Comme nous l'avons dit dans la sous-section 3.1.1.3, le BU est déterminé par la mesure de l'évolution du taux de comptage global de la masse 136 au cours du temps. Dans ce BU, nous intégrons aussi l'évolution de la fluctuation du faisceau de LOHENGRIN *i.e.* de l'acceptance du détecteur [4]. Les profils de BU des cibles utilisées pour les rendements en masse sont présentés sur la figure 3.11 pour le ^{241}Pu. Nous aborderons le cas du BU de l'expérience sur le ^{239}Pu dans la sous-section 3.2.4.

Lorsque le profil de BU est suffisamment régulier, comme c'est le cas pour l'expérience de Novembre 2015, une fonction choisie pour reproduire au mieux le comportement du BU est ajustée afin d'avoir une représentation analytique de son évolution. Ce choix se fait sans considération théorique, aux vues de la diversité et de la complexité des phénomènes pouvant entrer en jeu. Notons tout de même que l'évolution du BU est proche du BU_n pour cette cible très fine. Pour un flux thermique de $5,3 \cdot 10^{14}$ neutrons par cm^2/s, nous obtenons la courbe verte de la droite figure 3.11.

À l'inverse, lorsque celui-ci est plus irrégulier comme c'est le cas pour l'expérience de Mai 2013, nous sommes contraint de réaliser une extrapolation linéaire entre les deux points de BU les plus proches du temps de mesure. Les points bleus de la gauche de la figure 3.11 sont les résultats de ces extrapolations.

Pour les mesures en chambre d'ionisation qui sont courtes, une seule valeur de BU est associée à une distribution complète en énergie cinétique ou en charge ionique. En notant Σ_E la somme sur les différentes énergies mesurées, $\Sigma_E(A, t, q_i) = \sum_{E_k} N(A, t, E_k, q_i)$,

4. Régulièrement, une mesure du taux de comptage de la masse 136 à une charge de référence (typiquement 21) en fonction du paramètre géométrique χ est effectuée, afin de trouver le maximum du taux de comptage, qui correspond au maximum de l'acceptance.

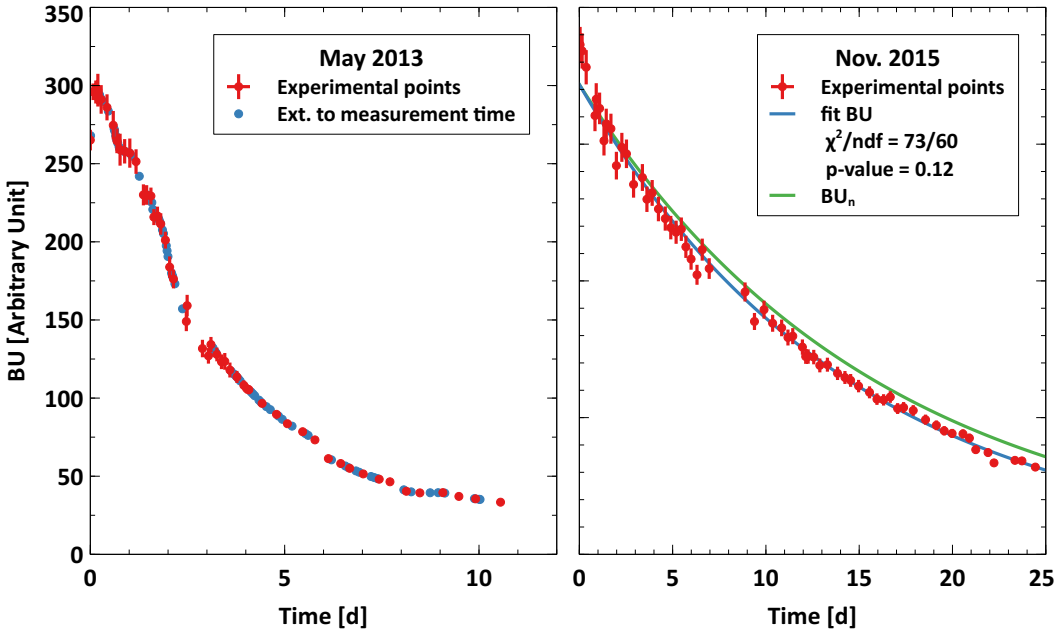


FIGURE 3.11: Évolution du BU pour les expériences de Mai 2013 (à gauche) et Novembre 2015 (à droite) sur le ^{241}Pu. Les points rouges sont les points de mesure du BU. À gauche, les points bleus correspondent à l'interpolation du BU aux temps de mesures. À droite, la courbe verte représente l'évolution du BU_n. Le profil régulier du BU de la mesure de 2015 permet un ajustement global, alors que le profil irrégulier de la cible de 2013 nécessite un ajustement local.

l'équation 3.21 devient :

$$N_{q_i}(A) \simeq \frac{\Sigma_E(A,t,q_i)}{P(q_i)\cdot BU(t)} \tag{3.22}$$

Nous verrons comment traiter le cas particulier de la mesure de masse au rendement faible, induisant de longs temps de mesure, dans la sous-section 3.2.6.

Ainsi, avec l'équation 3.22, nous pouvons avec une distribution en énergie cinétique à une charge donnée q_i estimer $\Sigma_E(A,t,q_i)$ et avec une distribution en charge ionique estimer $P(q_i)$. En connaissant le BU, nous avons une première valeur de $N(A)$. C'est un protocole qui a déjà été utilisé mais qui peut comporter un biais important, mis en évidence et pris en compte dans les thèses précédentes [19; 21]. En effet, il existe une dépendance entre charge ionique et énergie cinétique [113] qui n'est pas prise en compte dans l'équation 3.21.

3.2.2 Prise en compte des corrélations entre charge ionique et énergie cinétique

Afin de prendre en compte la dépendance entre énergie cinétique et charge ionique, pour chaque masse, au moins trois distributions en énergie cinétique sont mesurées à des

charges ioniques différentes, typiquement à la charge moyenne et à la charge moyenne plus ou moins l'écart-type.

Nous faisons l'hypothèse d'une dépendance linéaire de la moyenne $\overline{E}$ et de l'écart-type σ_{E_k} de la distribution en énergie cinétique en fonction de la charge ionique q. Pour chaque masse, nous avons donc :

$$\begin{aligned} \overline{E}_k(q) &= a_E\ q + b_E \\ \sigma_{E_k}(q) &= a_\sigma\ q + b_\sigma \end{aligned} \tag{3.23}$$

Ces corrélations sont fortement dépendantes de l'épaisseur et de l'homogénéité de la cible. Nous savons aussi qu'au fur et à mesure de la combustion de la cible dans le réacteur, les distributions en énergie cinétique se déforment. Afin d'estimer au mieux a_E, b_E, a_σ et b_σ, nous devons prendre en compte l'impact de l'évolution de la cible sur les $\overline{E}$ et σ_{E_k} mesurés.

3.2.2.1 Correction de l'évolution de la cible

Pour cette correction, nous prenons comme référence l'évolution de la distribution en énergie cinétique du *BU*. Celle-ci est représentée pour l'expérience de Mai 2013 sur la figure 3.12 sous la forme de sa moyenne et de son écart-type. Au fur et à mesure que la cible se consume, son épaisseur et sa densité changent. L'épaisseur moyenne traversée par les produits de fission avant de quitter la cible varie et les pertes d'énergie dans la cible sont donc différentes selon le temps de mesure. Cela donne lieu, pour l'exemple considéré, à une perte d'énergie plus importante et à un élargissement de la distribution au cours du temps. Ce profil est totalement différent d'une expérience à l'autre.

Il est donc nécessaire de prendre cette évolution en compte pour corriger la moyenne et l'écart-type des distributions en énergie cinétique mesurées :

$$\overline{E}_{corr} = \overline{E}_{mes} + \Delta\overline{E}_{BU} \tag{3.24}$$

$$\sigma_{corr} = \sigma_{mes} + \Delta\sigma_{BU} \tag{3.25}$$

Où $\Delta\overline{E}_{BU}$ et $\Delta\sigma_{BU}$ représentent l'évolution, respectivement de $\overline{E}_{BU}$ et σ_{BU}, entre la mesure de chaque distribution en énergie cinétique et la mesure de la distribution en charge ionique. C'est cette distribution en charge que nous corrigerons et qui est donc notre référence.

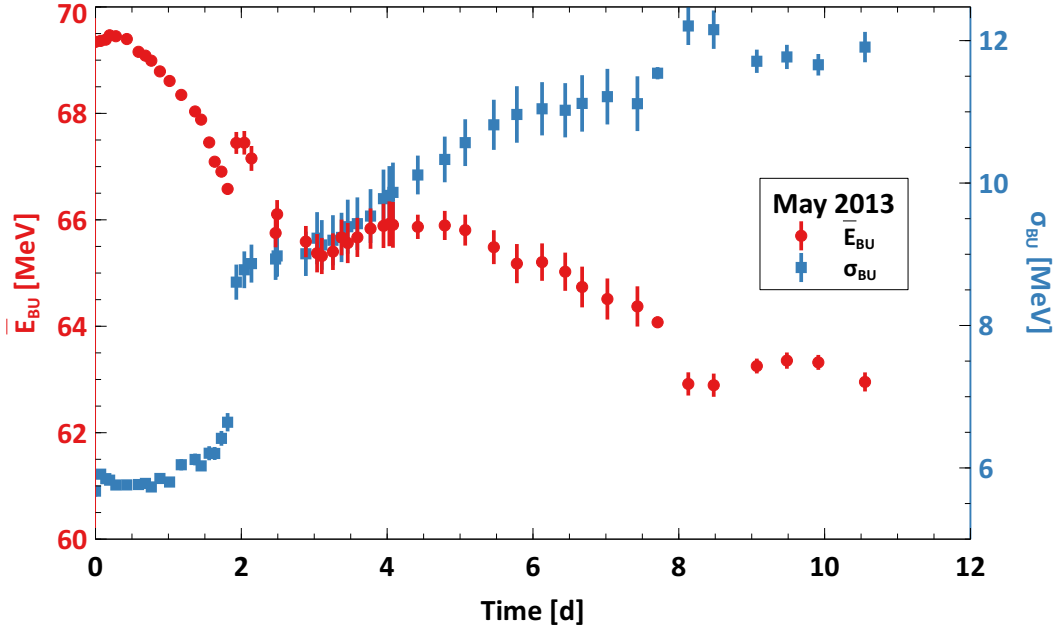


FIGURE 3.12: Évolution de la moyenne et de l'écart-type de la distribution en énergie cinétique du BU (masse 136) pour l'expérience de Mai 2013.

La figure 3.13 présente quelques résultats pour les expériences de Mai 2013 (à gauche) et Novembre 2015 (à droite) des énergies moyennes et écarts-types des distributions en énergie cinétique en fonction de la charge ionique. Avec ces corrections l'hypothèse linéaire est bien plus satisfaisante. Comme nous pouvons le voir, ce n'est pas une correction négligeable, puisque, les valeurs des paramètres de l'ajustement linéaire de l'équation 3.23 obtenues sont très différentes.

Les résultats de l'ajustement 3.23 sont dépendants de la cible et d'une expérience à l'autre peuvent changer radicalement. C'est ce qui est illustré dans la figure 3.14 où selon l'expérience, les valeurs des coefficients a_E et a_σ sont très variables.

3.2.2.2 Correction de la distribution en charge ionique

Nous voulons rendre compte du fait que la distribution en charge ionique dépend de l'énergie à laquelle elle est mesurée (et vice-versa). Lorsque nous mesurons une distribution en charge à une énergie cinétique donnée, nous nous plaçons à une énergie E_{ref} constante, mais pas à une probabilité d'obtenir cette énergie, $P(E_{ref})$, constante.

Cela est illustré schématiquement sur la figure 3.15. L'ellipse violette représente la distribution de $N(A, E, q)$ si les distributions en charge et en énergie sont indépendantes, c'est une projection en 2D de la figure 3.10. L'ellipse orange représente une distribution schématique plus réaliste de $N(A, E, q)$. Nous voyons que lorsque l'énergie de référence

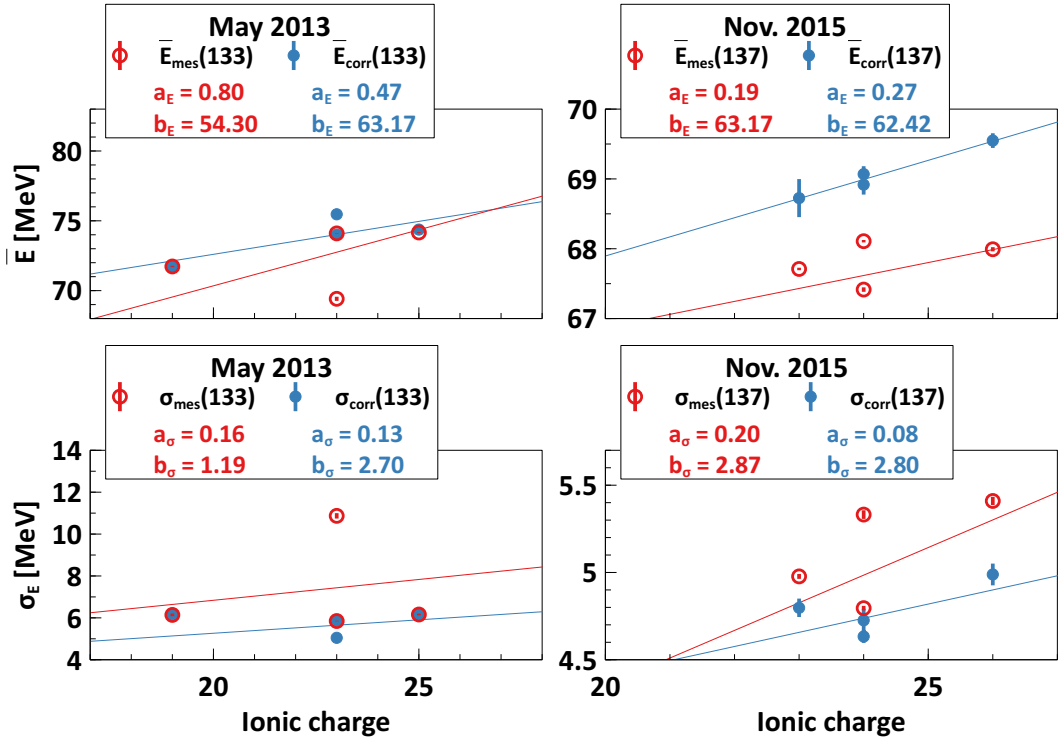


FIGURE 3.13: Ajustement linéaire de la moyenne (en haut) et de l'écart-type (en bas) des distribution en énergie cinétique en fonction de la charge ionique avant (en rouge) et après (en bleu) correction de l'évolution de la cible pour deux exemple : la masse 133 de l'expérience de Mai 2013 (à gauche) et la masse 137 de l'expérience de Novembre 2015 (à droite).

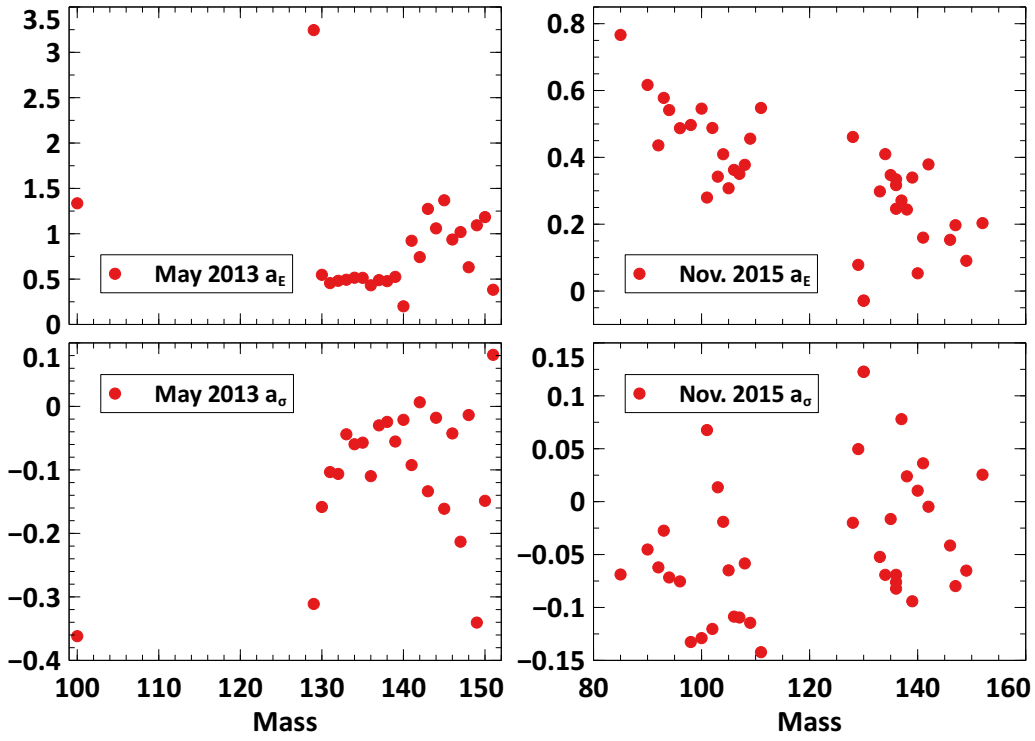


FIGURE 3.14: Résultats de l'ajustement linéaire en fonction de la masse et de la cible pour les expériences de Mai 2013 (à gauche) et Novembre 2015 (à droite).

est différente, la distribution en charge ionique n'est plus la même. Ainsi, en se plaçant à une énergie constante, nous mesurons une distribution en charge ionique déformée.

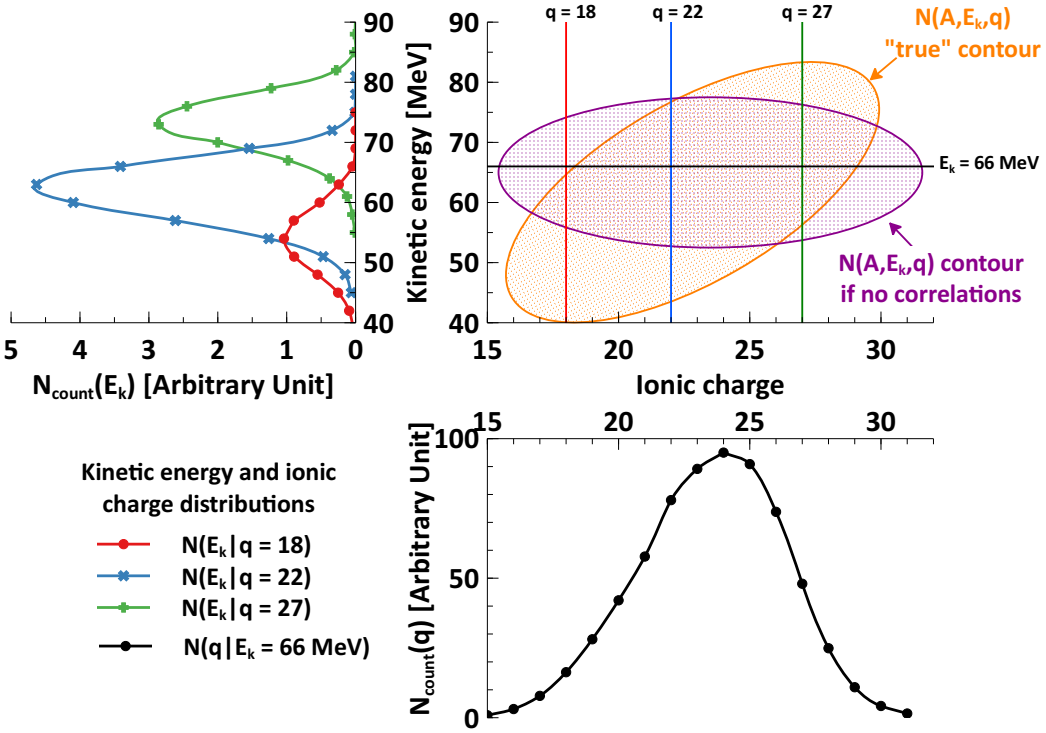


FIGURE 3.15: Représentation en 2-D de la distribution $N(A, E, q)$. Les 3 courbes de gauche sont trois distributions en énergie aux charges 18, 22 et 27 pour une masse A. Ces distributions ne sont pas normalisées à 1. La courbe du bas est la distribution en charge ionique à 66 MeV (E_{ref}). Le contour sans corrélation est la projection de la distribution présentée sur la figure 3.10. Le contour avec corrélations est une représentation exagérée de l'effet des corrélations (E_k, q).

Pour prendre en compte ce biais, une correction doit être appliquée pour chaque charge, la même portion de la distribution en énergie est considérée (*i.e.* un $P(E_{ref})$ constant). Maintenant que nous avons les valeurs des constantes a_E, b_E, a_σ et b_σ masse par masse, nous faisons l'hypothèse que la distribution en énergie cinétique pour chaque charge est gaussienne, de moyenne $\overline{E_k}(q)$ et d'écart-type $\sigma_E(q)$. Ainsi, pour chaque charge la probabilité d'être à E_{ref} est :

$$P(E_{ref}|q) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_E(q)} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{E_{ref} - \overline{E}(q)}{\sigma_E(q)}\right)^2\right) \tag{3.26}$$

Et la distribution en charge corrigée de ces corrélations, $P_c(q)$, s'écrit :

$$P_c(q) = \frac{1}{\sum_q \frac{P(q|E_{ref})}{P(E_{ref}|q)}} \cdot \frac{P(q|E_{ref})}{P(E_{ref}|q)} \tag{3.27}$$

Un exemple de cette correction est présenté sur la figure 3.16. Nous voyons notamment que, sans cette correction, la probabilité d'obtenir des basses charges est fortement sous-évaluée, à l'inverse, la probabilité des hautes charges est surévaluée. Cette nouvelle distribution en charge peut maintenant être utilisée dans l'équation 3.22.

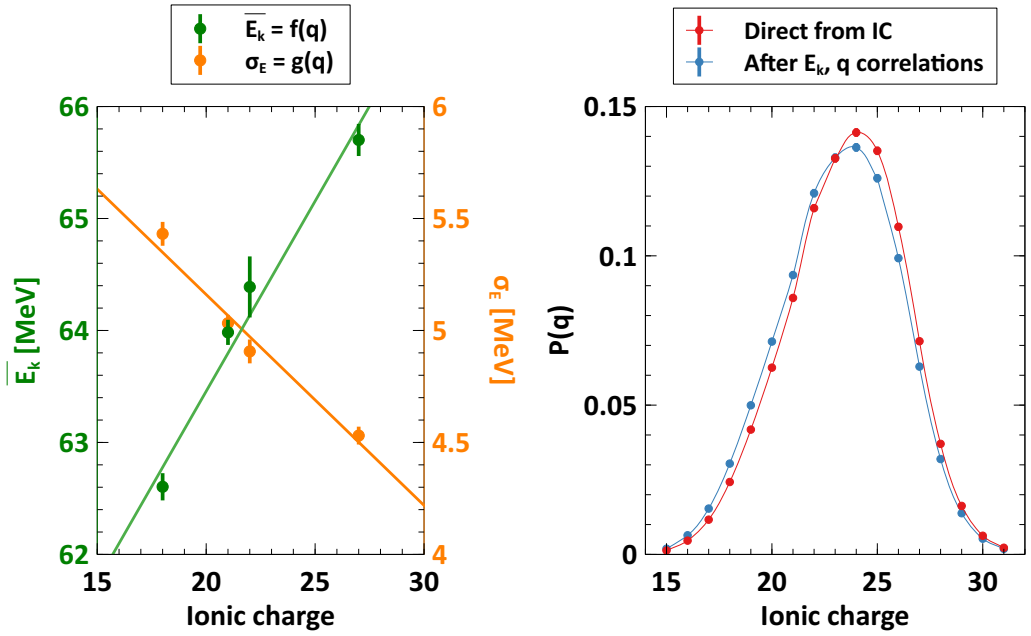


FIGURE 3.16: Exemple de l'évolution de $\overline{E}_k$ et σ_E en fonction de la charge ionique (à gauche) et distribution de la charge ionique, normalisée à 1, sans et avec la prise en compte des corrélations (E_k, q) (à droite), pour la masse 139 lors de l'expérience de Novembre 2015.

3.2.3 Moyenne des différentes estimations du taux de comptage total $\overline{N}(A)$

Nous avons, grâce à la procédure décrite jusqu'à maintenant, au moins trois estimations du taux de comptage total de la masse A, $N_{q_i}(A)$ avec $i = 1, 2, 3$. En plus de pouvoir prendre en compte les corrélations (E_k, q), nous pouvons tester la reproductibilité de nos mesures, ce qui est primordial pour vérifier d'éventuels biais expérimentaux non pris en compte.

Pour tester la compatibilité de nos différents $N_{q_i}(A)$, nous faisons un test statistique de χ^2 généralisé, χ^2_g. Des détails sur ce type de test sont donnés dans l'annexe A. Lorsque les différentes estimations de $N(A)$ sont incompatibles, *i.e.* que le χ^2_g est supérieur à une valeur limite définie par notre choix d'intervalle de confiance (CL), ou de *p-value*, nous ajoutons une incertitude supplémentaire à la diagonale de la matrice de covariance. Ainsi cette incertitude additionnelle est considérée indépendante (la covariance des différentes estimations est constante). Ceci est nécessaire pour réduire le χ^2_g, car si cette incertitude

est considérée comme systématique (donc partagée par chaque $N_{q_i}(A)$), la valeur de χ^2_g ne changera pas. Afin d'illustrer ce dernier propos, un exemple est donné dans l'annexe A.

Grâce à ce test statistique nous vérifions la reproductibilité de nos mesures dans le cadre de notre analyse. Cette incertitude additionnelle reflète les biais expérimentaux que nous n'avons pas pu corriger. En choisissant tout au long de ces travaux un intervalle de confiance à 90%, nous faisons un compromis entre l'utilité primordiale d'un test de cohérence et l'acceptation des limites des hypothèses de nos analyses. Avec une valeur plus grande de *p-value*, *i.e.* un CL plus faible, nous rendons ce test trop contraignant et notre analyse deviendrait uniquement sensible à ce test statistique. Nous avons aussi plus de chance de rejeter par erreur notre mesure. Avec une *p-value* plus faible, *i.e.* un CL plus élevé, le test est trop peu contraignant et cette étape n'a plus aucun sens ni effet. Nous accepterions donc de faire la moyenne de valeurs incompatibles, ce qui remet en cause la robustesse de notre démarche.

Le choix de la *p-value* est évidemment sujet à discussion et une valeur plus faible ou plus forte peut être envisagée. Il faut juste garder à l'esprit la signification de ce choix. Le but de notre choix d'un intervalle de confiance à 90% (*p-value* = 0.10) est principalement de rendre ce test contraignant sans pour autant dénaturer les corrélations expérimentales.

Afin d'éclaircir cette discussion et l'impact du choix de la *p-value*, la figure 3.17 présente les $N(A)$ obtenus et leur incertitude, en considérant notre choix et deux autres intervalles de confiance : à 50% et à 99.5%. La figure 3.18 présente les matrices de corrélation des trois différents cas. L'ajout d'incertitudes supplémentaires (indépendantes) pour assurer la compatibilité des $N_{q_i}(A)$ dénature la matrice de corrélation initiale, qui est visible pour un choix très peu contraignante (CL à 99.5%). Les corrélations inter-masses sont effacées par l'ajout de ces incertitudes. Cela s'explique facilement, masse par masse, le poids de l'incertitude indépendante sera plus important et, *de facto*, la corrélation, qui est une mesure de la part de l'incertitude commune sur l'incertitude totale, sera diminuée. Elle tend vers 0 pour un test très contraignant qui implique un ajout important d'incertitude additionnelle.

Lorsque la compatibilité des $N_{q_i}(A)$ atteint le critère statistique choisi, la valeur moyenne $\overline{N}(A)$ est calculée en prenant en compte les corrélations expérimentales calculées et propagées jusqu'à cette étape. En notant $\boldsymbol{C} \in \mathcal{M}_n(\mathbb{R})$, la matrice de covariance des $N_{q_i}(A)$ [114] :

$$\overline{N}(A) = \left(\sum_{i,j}^{n,n} (\boldsymbol{C}^{-1})_{i,j} \right)^{-1} \cdot \left(\sum_{i,j}^{n,n} (\boldsymbol{C}^{-1})_{i,j} \cdot N_{q_j}(A) \right) \tag{3.28}$$

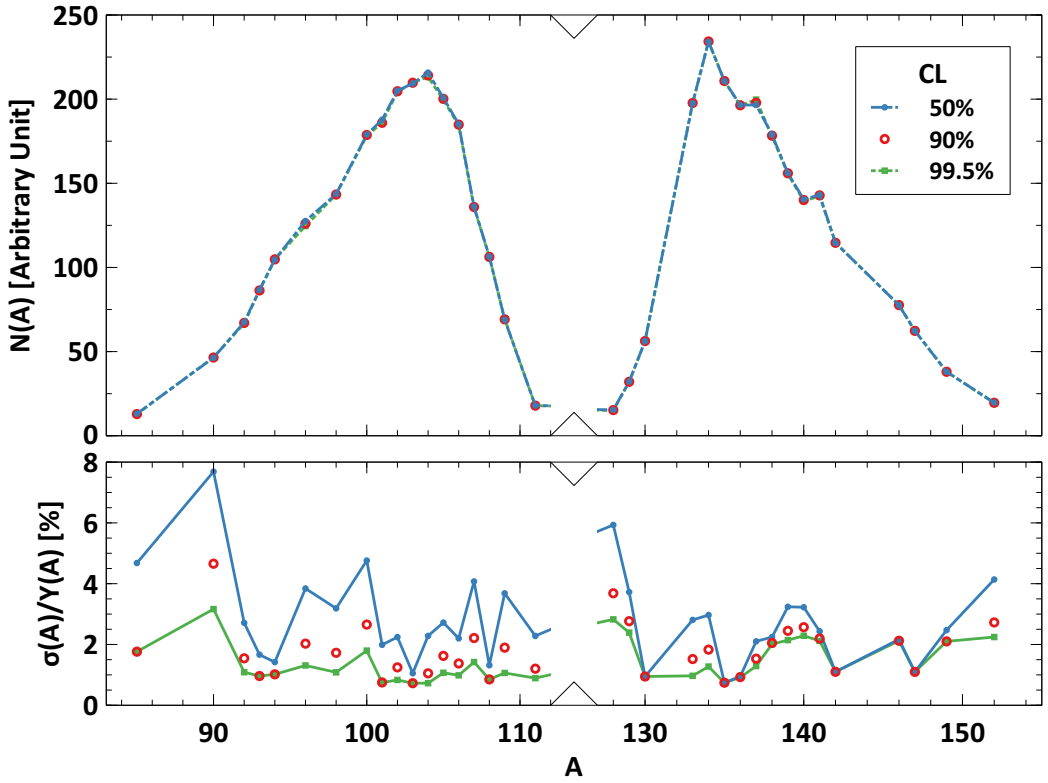


FIGURE 3.17: $\overline{N}(A)$ obtenus (en haut) et leur incertitude (en bas) pour une partie des masses (hauts rendements) de l'expérience de Novembre 2015 pour trois différents choix de CL.

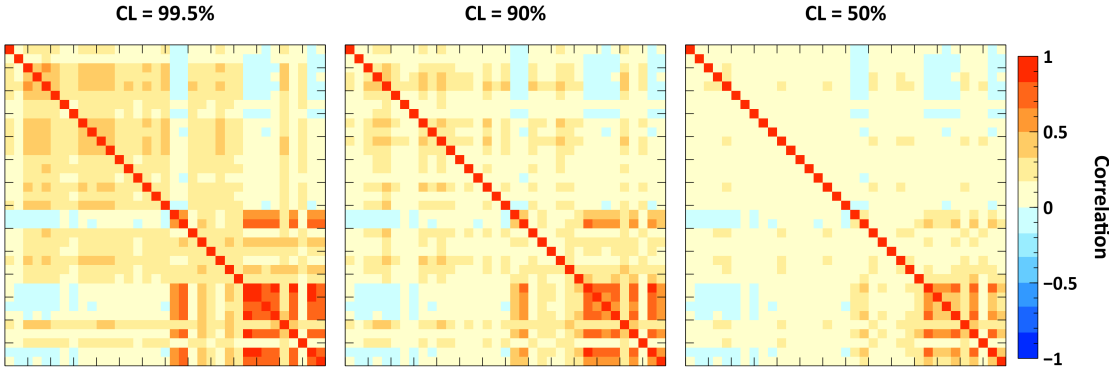


FIGURE 3.18: Matrice de corrélation des $\overline{N}(A)$ obtenus pour une partie des masses (hauts rendements) pour l'expérience de Novembre 2015 pour trois différents choix de CL.

Et la variance s'écrit :

$$\mathrm{Var}\left(\overline{N}(A)\right) = \left(\sum_{i,j}^{n,n} (\boldsymbol{C}^{-1})_{i,j}\right)^{-1} \tag{3.29}$$

Où n est le nombre de N_{q_i} pour la masse A, *i.e.*, le nombre de distributions en énergie cinétique mesurées.

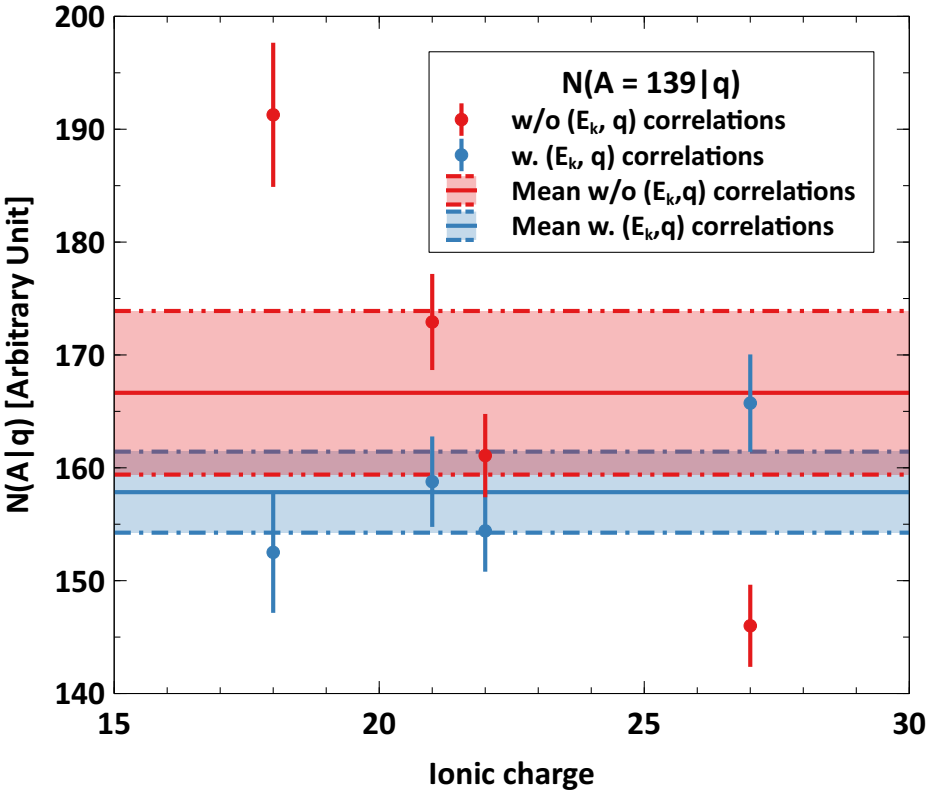


FIGURE 3.19: Les différentes évaluations de $N(A = 139)$: $N_{q=18}$, $N_{q=21}$, $N_{q=22}$ et $N_{q=27}$, obtenues à partir des mesures à différentes charges ioniques pour l'expérience de Novembre 2015 sans prise en compte des corrélations (E_k, q) (en rouge) et avec (en bleu). La valeur moyenne est aussi indiquée dans les deux cas, avec son incertitude.

La figure 3.19 illustre l'importance de la prise en compte des corrélations (E_k, q) dont nous avons discuté, pour la reproductibilité de nos mesures mais aussi sur la moyenne obtenue et son incertitude. Lorsque ces corrélations (E_k, q) sont prises en comptes, nous obtenons : $\overline{N}(A) = 157.8 \pm 3.6$ (2.3% d'incertitude relative), lorsqu'elles ne le sont pas : $\overline{N}(A) = 166.6 \pm 7.2$ (4.4% d'incertitude relative).

Nous avons ici décrit la procédure générale d'analyse des rendements en masse que nous suivons sur LOHENGRIN. Pour certaines expériences, cette procédure a dû être adaptée, ces détails sont l'objet des prochaines sous-sections.

3.2.4 Particularités de l'analyse des données du ^{239}Pu

Comme nous l'avons vu sur la figure 3.5, la cible de ^{239}Pu présentait un défaut. La présence de la couche résiduelle d'acrylique, d'épaisseur inhomogène, induit un biais important dans les mesures, notamment à faible charge ionique et à faible énergie cinétique. Sur une partie de la cible, les produits de fission vont parcourir en moyenne une distance plus importante avant de quitter la cible, ce qui aura pour conséquence de diminuer leur énergie cinétique moyenne, ainsi que leur charge ionique moyenne.

Sur la figure 3.20, nous pouvons voir les distributions en énergie cinétique mesurées pour la masse légère 98 et la masse lourde 136, à différentes charges ioniques.

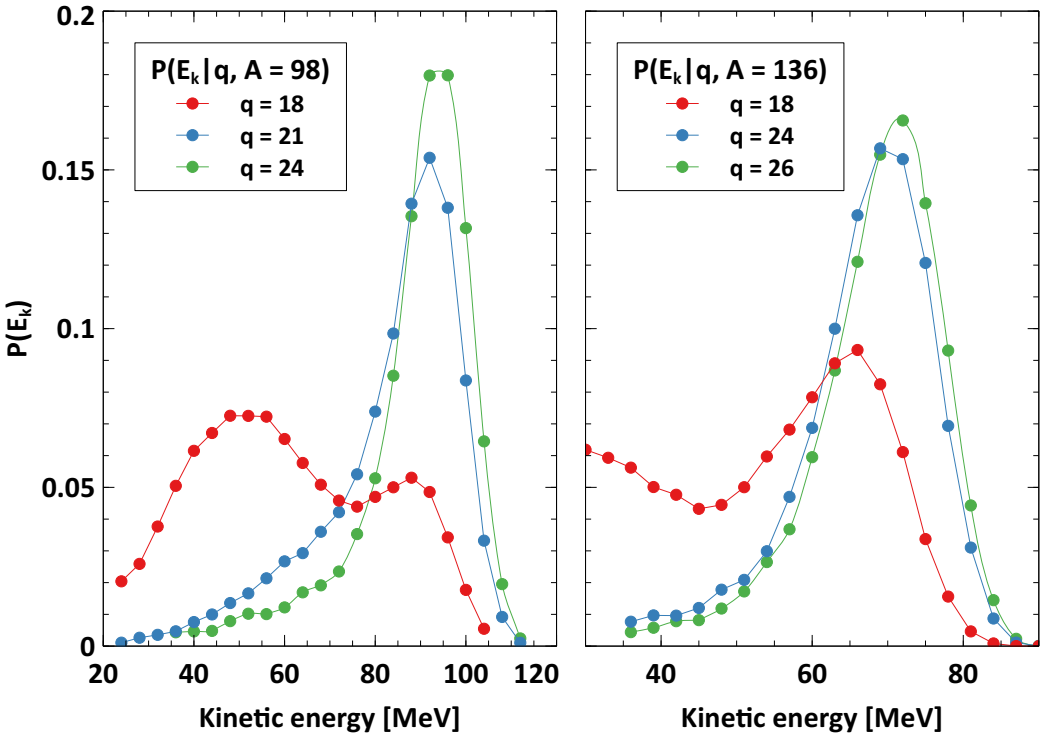


FIGURE 3.20: Distribution en énergie cinétique de la masse 98 (à gauche) aux charges ioniques 18, 21 et 24 et pour la masse 136 (à droite) pour les charges ioniques 18, 24 et 26. La cible « épaisse » déforme la distribution en énergie cinétique et fait apparaître une composante à basse énergie cinétique, notamment visible sur les distributions à basses charges.

Nous pouvons en particulier noter que :

- Les résultats que nous observons sont équivalents à la superposition de deux cibles (voir la figure 3.5 à droite), l'une « épaisse » qui donne naissance à une composante à basse énergie, notamment visible à basse charge ionique, l'autre « fine », qui donne la composante à haute énergie [5].

5. Des calculs de pertes d'énergie effectués lors de l'expérience indiquent que les pertes d'énergie sont compatibles avec une couche supplémentaire de composé carbonnée de quelques μm d'épaisseur

- Les distributions aux charges les plus basses sont décalées vers des énergies cinétiques plus faibles et elles sont incomplètes, ce qui est particulièrement flagrant pour la masse 136.

Nous ne pouvons pas nous baser sur des distributions aussi incomplètes pour estimer un rendement. La distribution à la charge la plus basse est donc systématiquement rejetée pour cette expérience. De même, lorsque plusieurs distributions en charge ont été mesurées, celle à la plus haute énergie (et donc correspondant à la cible « fine ») sera utilisée. Pour les distributions en énergie cinétique aux deux plus hautes charges, nous pouvons estimer la partie non mesurée aux basses énergies afin d'assurer la complétion des distributions. Nous faisons l'hypothèse qu'avec ce tri et cette correction, nos mesures sont représentatives de la cible « fine » uniquement. Cependant, nous n'avons plus que deux distributions en énergie cinétique pour évaluer les corrélations (E_k, q) et tester la reproductibilité de la mesure. La troisième distribution peut être corrigée pour amener un troisième point pour l'ajustement des coefficients de l'équation 3.23 mais le résultat n'est pas aussi satisfaisant que pour la figure 3.13.

D'autre part, le profil de BU pour la cible de ^{239}Pu, présenté sur la figure 3.21, est très chaotique. Il peut être découpé en trois zones distinctes.

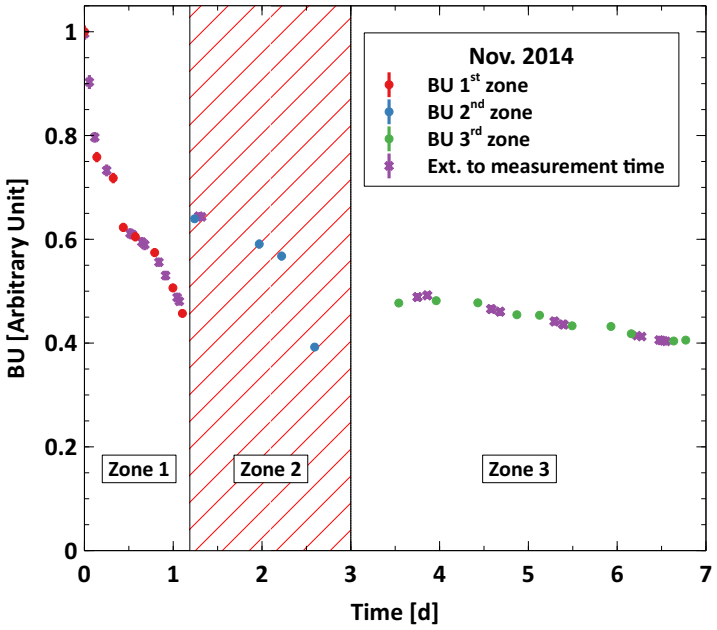


FIGURE 3.21: Évolution du BU pour l'expérience de Novembre 2014 sur le ^{239}Pu. Les points rouges, bleus et verts sont les points de mesure du BU. Les croix violettes correspondent à l'extrapolation du BU aux temps de mesures. Le profil irrégulier du BU nécessite un ajustement local, la seconde partie du BU ne sera pas étudiée.

Pour expliquer la brusque variation entre la première et la deuxième zone indiquées sur la figure 3.21, nous ne pouvons pas exclure l'hypothèse d'une déviation du faisceau

non contrôlée ou d'un autre problème expérimental. Nous avons décidé de ne pas exploiter les données accumulées dans cette seconde zone de BU, qui correspondent aux données sur la masse 139 et ne pourrons donc pas proposer de rendement pour cette masse. Pour les autres masses, le profil est jugé suffisamment stable pour exploiter les données.

Pour cette expérience, la cible est suffisamment épaisse pour justifier le choix d'un σ_{E_k} constant pour la prise en compte des corrélations (E_k, q). En comparant les résultats obtenus avec σ_{E_k} constant et σ_{E_k} dépendant de q, nous avons obtenu une meilleure cohérence des N_{q_i} finaux dans le cas où σ_{E_k} est constant. C'est donc avec σ_{E_k} constant que nous avons corrigé les distributions en charge ionique des corrélations (E_k, q) pour l'expérience de Novembre 2014.

3.2.5 Particularité de la réanalyse des données du ^{241}Pu de Mai 2013

Nous avons souhaité réanalyser les données obtenues en Mai 2013 avec une méthode d'analyse profitant des avancées des dernières thèses. Nous allons aborder les particularités notables de cette réanalyse par rapport à la précédente interprétation.

Correction du temps mort de la chambre d'ionisation

Le logiciel d'acquisition durant cette expérience ne prenait pas en compte le temps mort de manière assez précise. Des mesures de calibrations ont été effectuées afin de déterminer le temps mort, f_{DT}, de la chambre d'ionisation. En connaissant le taux de comptage mesuré, N_m pour chaque fichier de données de LOHENGRIN, nous pouvons corriger du temps mort de la chambre d'ionisation. Le taux de comptage corrigé, N_c s'écrit simplement :

$$N_c = \frac{N_m}{f_{DT}} \tag{3.30}$$

Sur la figure 3.22, sont présentés les résultats des mesures de calibration (à gauche) et les facteurs correctifs du temps mort, f_{DT}, pour chaque point de mesure (à droite).

L'impact de cette correction peut être visualisé sur le BU, figure 3.23. La correction du temps mort est importante au début de l'expérience où le taux de comptage est le plus haut. Nous pourrions penser que cette correction est de deuxième ordre puisque le BU vient de toute manière normaliser nos taux de comptage. Mais comme nous pouvons le voir sur la droite de la figure 3.23, les effets ne se compensent pas totalement et nous observons des écarts de quelques % sur les $\overline{N}(A)$.

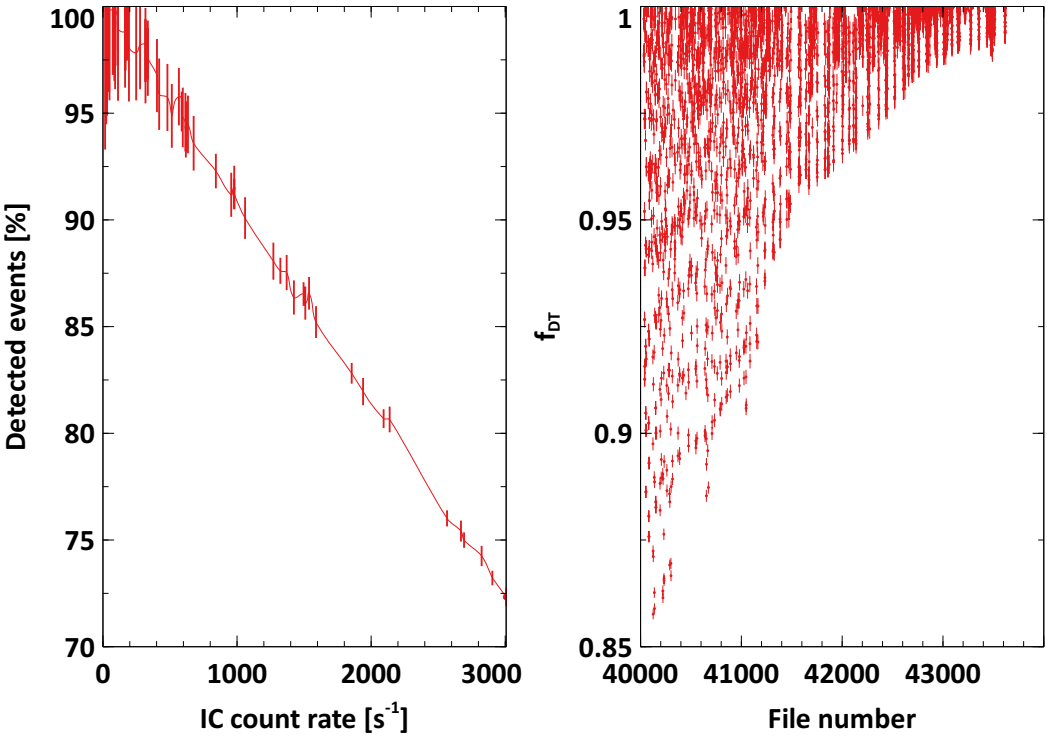


FIGURE 3.22: À gauche, les mesures de calibration du temps mort de la chambre d'ionisation en fonction du taux d'évènements mesuré, pour l'expérience de Mai 2013. À droite, le facteur correctif pour chaque point de mesure (numéro de fichier).

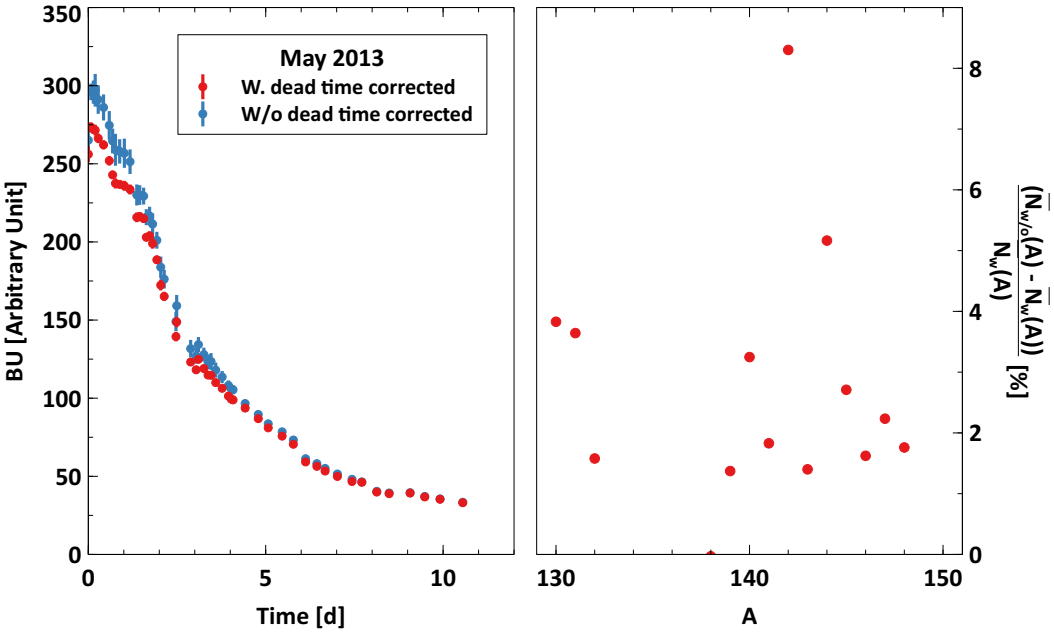


FIGURE 3.23: À gauche, le *BU* pour l'expérience de Mai 2013 avec la correction du temps mort (en rouge) et sans (en bleu). À droite, la différence relative des $\overline{N}(A)$ obtenus avec et sans la correction du temps mort (référence : avec la correction).

Les $\overline{N}(A)$ obtenus sont présentés sur la figure 3.24 et comparés aux résultats précédents. Nous observons des écarts plus importants que ceux indiqués sur la droite de la figure 3.23. Cela vient du fait qu'en plus de prendre en compte le temps mort de la chambre, une nouvelle manière de calculer la valeur moyenne, prenant en compte les covariances et les incompatibilités des différents N_{q_i} a été mise en place. De même, considérer l'évolution de la cible en temps rend la prise en compte des corrélations (E_k, q) plus juste, comme nous l'avons vu sur la figure 3.13.

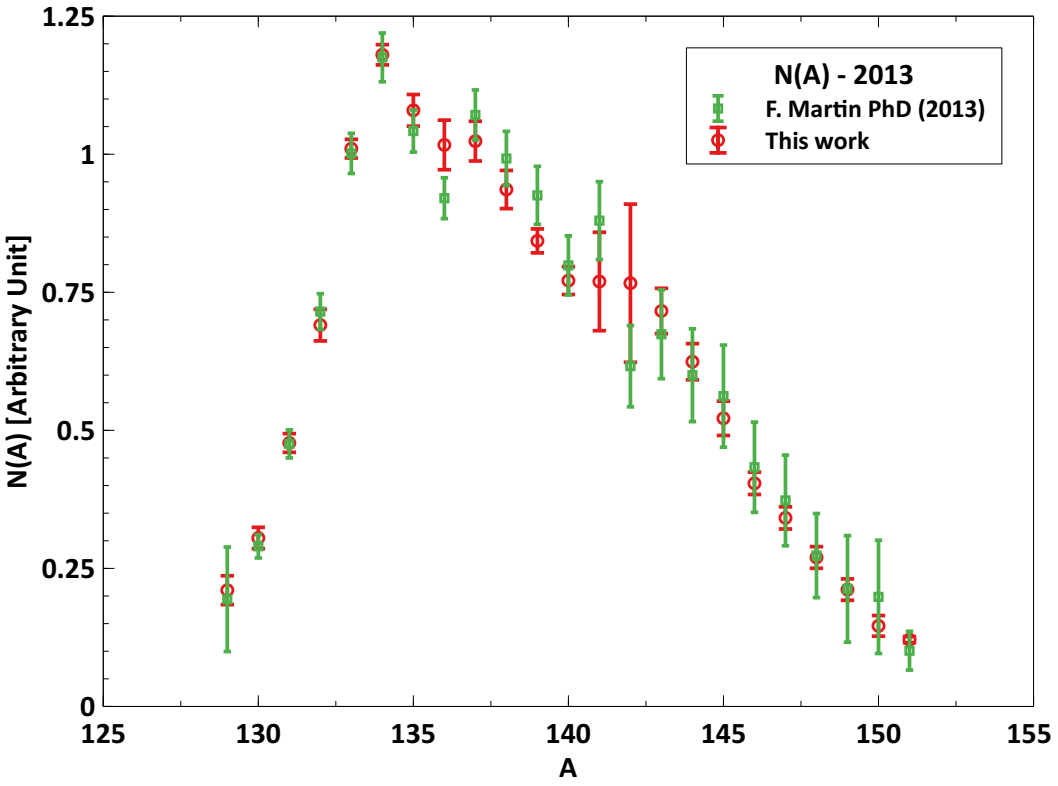


FIGURE 3.24: Résultats de la réanalyse (en rouge) de l'expérience de Mai 2013 comparés à l'analyse précédente (en vert) durant la thèse de F. Martin [19].

3.2.6 Décontamination des bas rendements

La méthodologie expliquée jusqu'ici est utilisée pour les masses à hauts rendements. Pour les masses de la fission symétrique $111 < A < 128$ et de la fission très asymétrique, $A > 152$, considérées comme des bas rendements (typiquement $Y(A) < 1\%$), une procédure différente est nécessaire.

Il a été montré lors de la thèse de A. Chebboubi [21] qu'il existe un phénomène de contamination sur LOHENGRIN. Nous utiliserons par la suite l'indice *ct* pour désigner les masses contaminantes. Par un changement de charge entre l'aimant principal et le condensateur, un triplet contaminant (A_{ct}, E_k, q') peut arriver sur le plan focal de

LOHENGRIN à une position x_{ct} proche de la position x_0 du triplet (A, E_k, q) voulu. Il peut ainsi entrer dans la chambre d'ionisation avec la même énergie cinétique et être confondu à (A, E_k, q). Si nous considérons que le faisceau de LOHENGRIN est centré sur la position x_0, en reprenant la figure 3.3, sur l'axe des masses uniquement, nous obtenons la figure 3.25 qui schématise ce phénomène.

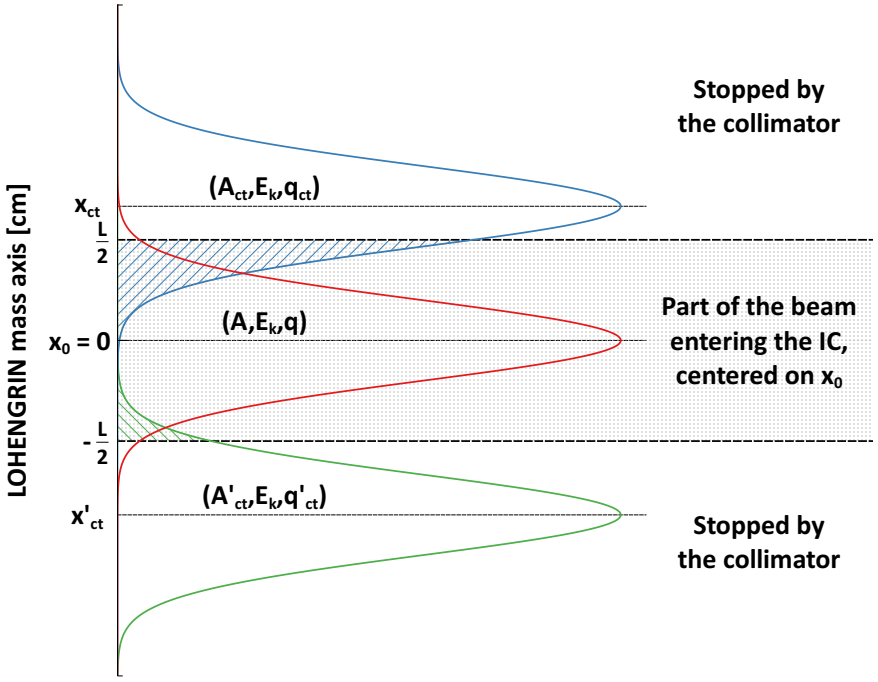


FIGURE 3.25: Image de la contamination des masses ayant changées de charge pour deux contaminants A_{ct} et A'_{ct}. Les parties hachurées représentent $P_{img}(A_{ct})$ et $P_{img}(A'_{ct})$.

Afin que la masse contaminante soit sélectionnée par l'aimant et le condensateur, elle doit respecter :

$$\frac{A}{q^2} = \frac{A_{ct}}{q'^2} \tag{3.31}$$

Où q' est la charge ionique du contaminant A_{ct} avant changement de charge. En fonction du changement de charge $q' - q$ ayant eu lieu, nous pouvons déterminer la masse A_{ct}. Cette masse n'est pas entière et correspond en fait à deux masses contaminantes, A_{ct} arrondi à l'inférieur ou au supérieur. La position de A_{ct}, x_{ct}, est calculée comme [21] :

$$x_{ct} = 324 \cdot \frac{\lfloor A_{ct} \rfloor - A_{ct}}{A_{ct}} \tag{3.32}$$

Où le facteur 324 reflète la dispersion en masse de LOHENGRIN (voir Eq. 3.10) et $\lfloor A_{ct} \rfloor$ désigne la partie entière de A_{ct} (au supérieur ou à l'inférieur). Dans la suite du texte nous continuerons d'utiliser A_{ct} pour désigner sans distinction les contaminants (arrondi à l'inférieur ou au supérieur).

En faisant l'hypothèse que l'image d'une masse est gaussienne, centrée sur $x_0 = 0$ pour la masse A mesurée et sur x_{ct} pour une masse contaminante A_{ct}, nous pouvons calculer la proportion de l'image d'une masse contaminante qui entre dans la chambre d'ionisation (voir la figure 3.25) :

$$P_{img}(A_{ct}) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{-L/2}^{L/2} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{x - x_{ct}}{\sigma_x}\right)^2\right) \mathrm{d}x \tag{3.33}$$

Où $L = 1$ cm est la largeur de l'entrée de la chambre d'ionisation dans la direction de l'axe des masses et σ_x la largeur de l'image de la cible. σ_x est déterminé expérimentalement par une mesure du taux de comptage d'une référence en fonction du paramètre géométrique χ. Ce $P_{img}(A_{ct})$ nous fournit un premier indicateur du niveau de contamination d'un triplet (A, E_k, q). Pour nos mesures, nous essayons au maximum de mesurer des distributions où cet indicateur est faible.

Le taux de comptage[6] mesuré pour le triplet (A, E_k, q) sélectionné, $N_m(A, E_k, q)$, est le taux de comptage dû à A, $N(A, q, E_k)$, plus les taux de comptages dus aux contaminants. En notant $P_{q'\to q}$ la probabilité de passer de la charge q' à la charge q entre la sortie de l'aimant et l'entrée du condensateur :

$$N_m(A, E_k, q) = N(A, E_k, q) + \sum_{ct} N(A_{ct}, E_k, q') \cdot P_{img}(A_{ct}) \cdot P_{q'\to q} \tag{3.34}$$

En pratique, les changements de charge de plus de 2 e, $P_{q'>q+2\to q}$ ou $P_{q'<q-2\to q}$, sont négligeables. Nous ne considérerons que les probabilités de changements de charges $q' - q = \pm 1$ et $q' - q = \pm 2$. Ces probabilités restent faibles (de l'ordre de 1% pour $q' - q = \pm 1$ et 1‰ pour $q' - q = \pm 2$) et rendent ce phénomène négligeable lors de la mesure de hauts rendements. En effet, ces derniers sont contaminés par des masses de rendements plus faibles ou du même ordre. En revanche, les masses à bas rendements des régions symétrique et très asymétrique peuvent être contaminées par des masses à hauts rendements. Le rapport pic sur vallée de la distribution en masse du ^{241}Pu étant de l'ordre de deux décades, le phénomène n'est plus négligeable.

Des mesures de $P_{q'\to q}$ ont été obtenues pour LOHENGRIN lors de la thèse d'A. Chebboubi [21] pour les changements de charges $q = q' \pm 1$ et $q = q' \pm 2$ de trois isotopes : le ^{136}Xe, le ^{132}Te et l'^{98}Y. Ces valeurs dépendent de la pression résiduelle dans LOHENGRIN, de la masse du contaminant, de l'énergie cinétique, de la charge initiale q' et de la charge finale q. Nous ne considérerons pas ces dépendances, faute d'informations suffisantes. Pour chaque changement de charge, ces probabilités sont moyennées, afin d'avoir un ordre de grandeur correct.

6. Dans ce qui suit le taux de comptage est déjà corrigé du *BU*.

L'incertitude de cette étape de décontamination est gouvernée par l'incertitude associée aux $P_{q'\to q}$, qui est prise comme étant l'écart-type des différentes mesures de [21] pour chaque changement de charge, de l'ordre de 10%.

Les distributions en charge ionique et en énergie cinétique sont décontaminées suivant le même principe. En notant P_m la probabilité mesurée (normalisée à 1) et $\tilde{P}$ le résultat de la contamination (qui n'est pas une probabilité puisque la distribution n'est plus normalisée à 1 s'il y a des contaminants), nous supposons que la décontamination d'une énergie cinétique (similaire pour les charges ioniques) s'écrit :

$$\tilde{P}(A, E_k|q) = P_m(A, E_k|q) - \sum_{ct} \frac{Y(A_{ct})}{Y(A)} \cdot P(A_{ct}, E_k|q') \cdot P_{img}(A_{ct}) \cdot P_{q'\to q} \tag{3.35}$$

En partant de cette équation, notre connaissance a priori de $Y(A)$ et de $Y(A_{ct})$ est primordiale, car ils interviennent dans la détermination de $\tilde{P}(A, E_k|q)$. Cette dernière nous servira par la suite à estimer la contamination totale et à déterminer le rendement $Y(A)$ de la masse symétrique ou très asymétrique voulue. Grâce à nos mesures, nous avons des valeurs de $Y(A_{ct})$ à proposer pour les masses contaminantes à haut rendement. En revanche, pour $Y(A)$ dans les zones de la fission symétrique et très asymétriques, nous n'avons pas de valeur a priori sur laquelle nous appuyer. Il est possible de prendre la valeur référencée par une base de données existante, mais, dans les régions de bas rendements pour le ^{241}Pu, les bases de données usuelles (JEFF-3.3, ENDF/B-VII.1 ...) présentent des valeurs très dispersées. Quelle valeur prendre devient dès lors un choix épineux. De plus, cela serait en contradiction avec notre volonté affichée d'indépendance envers les données existantes.

Nous pouvons en fait contourner ce problème, afin d'estimer le rendement $Y(A)$ sans prior. En effet, le taux de comptage total de la masse A estimé à partir de la charge q s'écrit (voir Eq. 3.22, à la différence qu'ici le BU est déjà pris en compte) :

$$N_q(A) = \frac{N(A|q)}{P_{cor}(q)} \tag{3.36}$$

Avec $P_{cor}(q)$ la probabilité de la charge ionique q pour la masse A, que nous expliciterons dans la suite et $N(A|q)$:

$$N(A|q) = N_m(A|q) \cdot \sum_{E_k} \tilde{P}(A, Ek|q) \tag{3.37}$$

Où $N_m(A|q)$ est la somme des taux de comptage sur les énergies mesurées :

$$N_m(A|q) = \sum_{E_k} N_m(A, E_k|q) \tag{3.38}$$

$N(A|q)$ représente la part de $N_m(A|q)$ que nous estimons due à la masse A.

Ainsi, en sommant l'équation 3.35 sur les énergies cinétiques mesurées :

$$\sum_{E_k} \tilde{P}(A, E_k|q) = \sum_{E_k} \left(P_m(A, E_k|q) - \sum_{ct} \frac{Y(A_{ct})}{Y(A)} \cdot P(A_{ct}, E_k|q') \cdot P_{img}(A_{ct}) \cdot P_{q' \to q} \right) \tag{3.39}$$

Avec, par définition :

$$\sum_{E_k} P_m(A, E_k|q) = 1 \tag{3.40}$$

Avec les notations que nous venons d'introduire, en multipliant l'équation 3.39 par $N_m(A|q)$, nous obtenons :

$$N(A|q) = N_m(A|q) \left(1 - \sum_{E_k} \sum_{ct} \frac{Y(A_{ct})}{Y(A)} \cdot P(A_{ct}, E_k|q') \cdot P_{img}(A_{ct}) \cdot P_{q' \to q} \right) \tag{3.41}$$

Le rapport des rendements peut se réécrire en fonction des taux de comptages totaux obtenus à l'équation 3.28, car entre les deux il n'y a qu'une étape de normalisation (voir section 3.2.8) :

$$\frac{Y(A_{ct})}{Y(A)} = \frac{\overline{N}(A_{ct})}{\overline{N}(A)} \tag{3.42}$$

Nous n'avons pour les masses symétriques qu'une seule distribution en énergie cinétique : $\overline{N}(A) = N_q(A)$. Ainsi :

$$N(A|q) = N_m(A|q) \left(1 - \sum_{E_k} \sum_{ct} \frac{\overline{N}(A_{ct})}{N_q(A)} \cdot P(A_{ct}, E_k|q') \cdot P_{img}(A_{ct}) \cdot P_{q' \to q} \right) \tag{3.43}$$

En divisant par $P_{cor}(q)$, il vient :

$$N_q(A) = \frac{N_m(A|q)}{P_{cor}(q)} \left(1 - \frac{1}{N_q(A)} \sum_{E_k} \sum_{ct} \overline{N}(A_{ct}) \cdot P(A_{ct}, E_k|q') \cdot P_{img}(A_{ct}) \cdot P_{q' \to q} \right) \tag{3.44}$$

En notant maintenant :

$$f_c = \sum_{E_k} \sum_{ct} \overline{N}(A_{ct}) \cdot P(A_{ct}, E_k|q') \cdot P_{img}(A_{ct}) \cdot P_{q' \to q} \tag{3.45}$$

Nous pouvons réécrire l'équation 3.44 :

$$N_q(A) = \frac{N_m(A|q)}{P_{cor}(q)} - \frac{f_c \cdot N_m(A|q)}{N_q(A) \cdot P_{cor}(q)} \tag{3.46}$$

Ce qui est équivalent à une équation du second degré :

$$N_q(A)^2 - N_q(A) \cdot \frac{N_m(A|q)}{P_{cor}(q)} + f_c \cdot \frac{N_m(A|q)}{P_{cor}(q)} = 0 \tag{3.47}$$

dont les solutions sont :

$$N_q(A) = \frac{N_m(A|q)}{2P_{cor}(q)} \pm \sqrt{\left(\frac{N_m(A|q)}{2P_{cor}(q)}\right)^2 - f_c \cdot \frac{N_m(A|q)}{P_{cor}(q)}} \tag{3.48}$$

Seule la solution avec le signe « + » a un sens physique, car sans contaminant, $f_c = 0$, c'est avec cette solution que nous retrouvons $N(A|q) = N_m(A|q)$.

Nous allons maintenant présenter comment obtenir la distribution en charge de la masse A, $P_{cor}(q)$, à partir de la distribution contaminée, pour lesquelles de très fortes structures peuvent apparaitre. C'est ce qui est présenté sur la figure 3.26, à travers l'exemple des distributions en charge de la masse 125, aux énergies 72 et 75 MeV. Pour chaque charge, nous estimons la fraction du taux de comptage due aux contaminants, en considérant une équation similaire à l'équation 3.39. Ici nous nous servons d'un prior en rendement pour construire un indicateur de contamination de la distribution en charge.

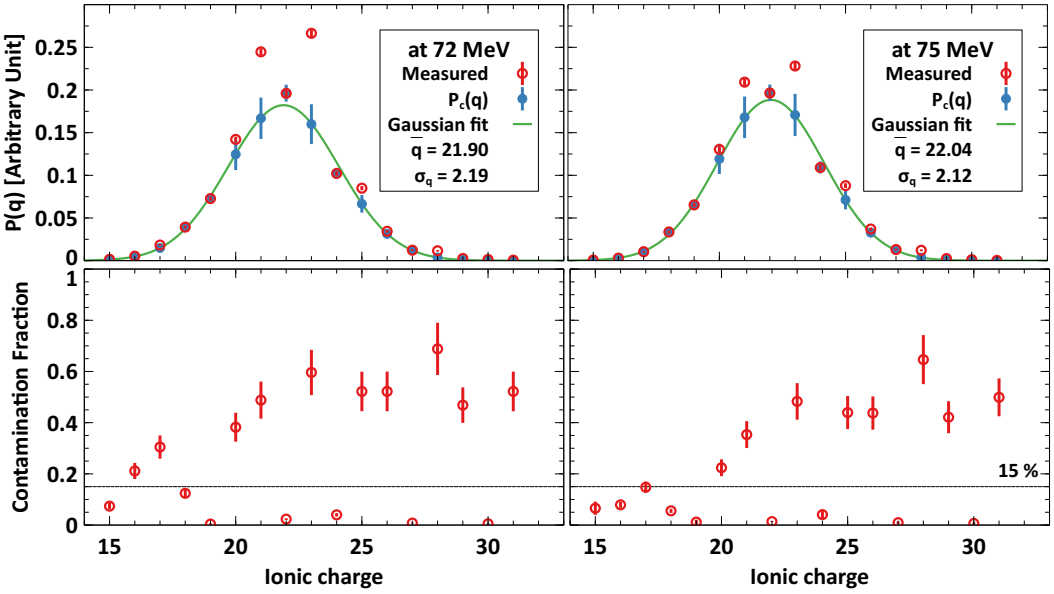


FIGURE 3.26: Pour l'expérience de Novembre 2015, en haut, les distributions en charge ionique pour la masse 125 à 72 MeV (à gauche) et à 75 MeV (à droite) avant (en rouge) et après correction de la contamination (en bleu). En vert l'ajustement gaussien permettant l'interpolation aux charges contaminées. La distribution bleue est normalisée à 1, la distribution rouge est normalisée à la bleu pour faciliter la comparaison. En bas la fraction due au contaminant, charge par charge.

Comme nous savons que cette estimation est d'une précision limitée, nous allons reconstruire la distribution en charge en ne nous appuyant que sur les charges très peu contaminées. Si pour une charge la fraction due aux contaminants est estimée plus

grande que 15%, nous ne la considérons pas pour estimer $P_{cor}(q)$. Nous faisons ensuite un ajustement gaussien[7] avec les points restants, afin d'interpoler le taux de comptage aux charges contaminées. Cette procédure est illustrée sur la figure 3.26, les résultats pour les autres masses sont présentés dans l'annexe C.

Une fois le taux de comptage total $N_q(A)$ estimé, nous pouvons nous en servir pour calculer le rendement de la masse A. En itérant une fois la procédure avec le rendement que nous venons de déterminer comme prior, nous vérifions que l'estimation de la distribution en charge ionique décontaminée n'est pas dépendante du prior. Nous pouvons alors réinjecter ce rendement dans l'équation 3.35 afin de décontaminer la distribution en énergie cinétique.

La masse 115 à la charge 22 est un bon test pour notre méthode, car c'est une distribution qui est attendue contaminée et où notre correction a des chances d'avoir un effet visible. Cette distribution étant contaminée par des masses légères, il est possible de discerner pour certaines énergies, avec suffisamment de précision, le contaminant de la masse voulue dans la chambre d'ionisation. Sa distribution en énergie cinétique est présentée sur la figure 3.27 ainsi que ses différents contaminants (la distribution de la masse contaminante l05 à la charge 21 n'a pas été mesurée et est supposée similaire à la distribution à la charge 22). Nous pouvons voir que la forme de la distribution de la masse 115 est très différente des distributions des hauts rendements (masses 95, 105 et 137 sur la même figure).

Pour la masse 115 à la charge 22, à partir des spectres $\Delta E; E_{tot}$ obtenus avec la chambre d'ionisation, nous pouvons distinguer deux taches, en particulier aux énergies de 81 à 93 MeV. Sur la figure 3.28, nous pouvons voir un zoom des résultats de la chambre d'ionisation pour la masse 115 à la charge 22 à 84 MeV (en haut à gauche) et à 87 MeV (en haut à droite). Contrairement à la figure 3.9 où les taches sont proches de cercles, ici la tache est très déformée, dû aux contaminants légers qui se trouvent plus bas sur le diagramme $\Delta E; E_{tot}$. En bas de cette même figure nous pouvons voir la distribution du nombre de coups mesurés en fonction de l'énergie cinétique lorsque l'ensemble de la tache est sélectionné (en noir) ou uniquement la partie correspondante à la masse 115 (en marron). En gris, nous avons le résultat de la décontamination telle qu'elle a été présentée. Nous pouvons voir que pour les énergies entre 81 et 93 MeV, où deux taches peuvent être distinguées, nous arrivons à bien corriger la contamination, puisque la correction « visuelle » directement sur les spectres $\Delta E; E_{tot}$ correspond bien à celle estimée par nos calculs. Les croix bleues, vertes et violettes représentent la contribution de chacun des contaminants dans la distribution totale.

7. Souvent avec deux gaussiennes pour les masses lourdes. Si le nombre de paramètres augmente ce n'est pas un problème car les masses très asymétriques sont peu contaminées. Il n'y a donc pas de problème de degré de liberté.

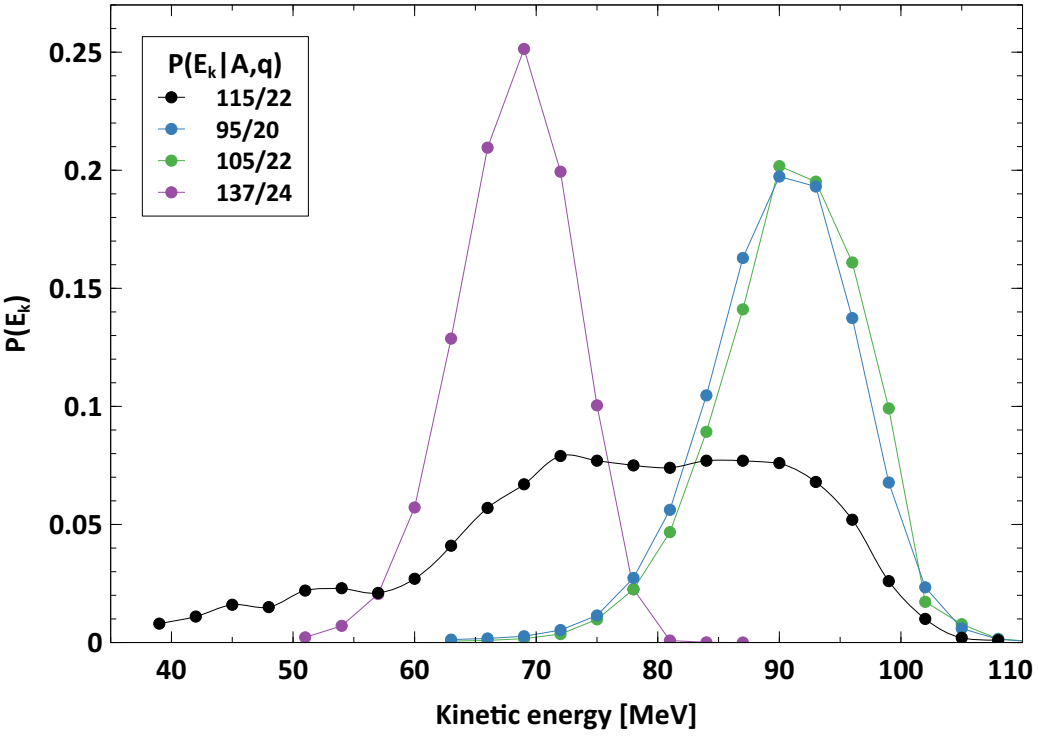


FIGURE 3.27: Pour l'expérience de Novembre 2015, les distributions en énergie cinétique (normalisées à 1) pour la masse 115 à la charge 22 et ses trois principaux contaminants : les masses 95 à la charge 20, 105 à la charge 21 et 137 à la charge 24. La distribution de la masse 105 à la charge 21, que nous n'avons pas mesuré, est supposée identique à la distribution de la masse 105 à la charge 22. Les lignes tracées ne sont que pour guider l'œil.

L'estimation du rendement par la résolution de l'équation du second degré 3.48 ou par la décontamination énergie par énergie de l'équation 3.39 convergent vers le même résultat, après une itération.

À la vue de cet exemple, nous sommes capable d'estimer la contamination d'une distribution, lorsque celle-ci est importante. En revanche pour des contaminations faibles, les hypothèses utilisées ne permettent pas de dégager un contaminant tout en gardant le sens physique du signal observé, le taux de comptage devenant négatif pour certaines énergies cinétiques (surestimation de la contamination). Lorsque c'est le cas, nous n'avons pas d'autres choix, pour la masse en question, que de diminuer $P_{q'\to q}$, que nous savons très approximé et soumis à de fortes hypothèses.

Conclusions sur la méthode de décontamination

Dans cette procédure de décontamination, nous sommes limités par notre méconnaissance de la probabilité de changement de charge. Une solution serait de simuler

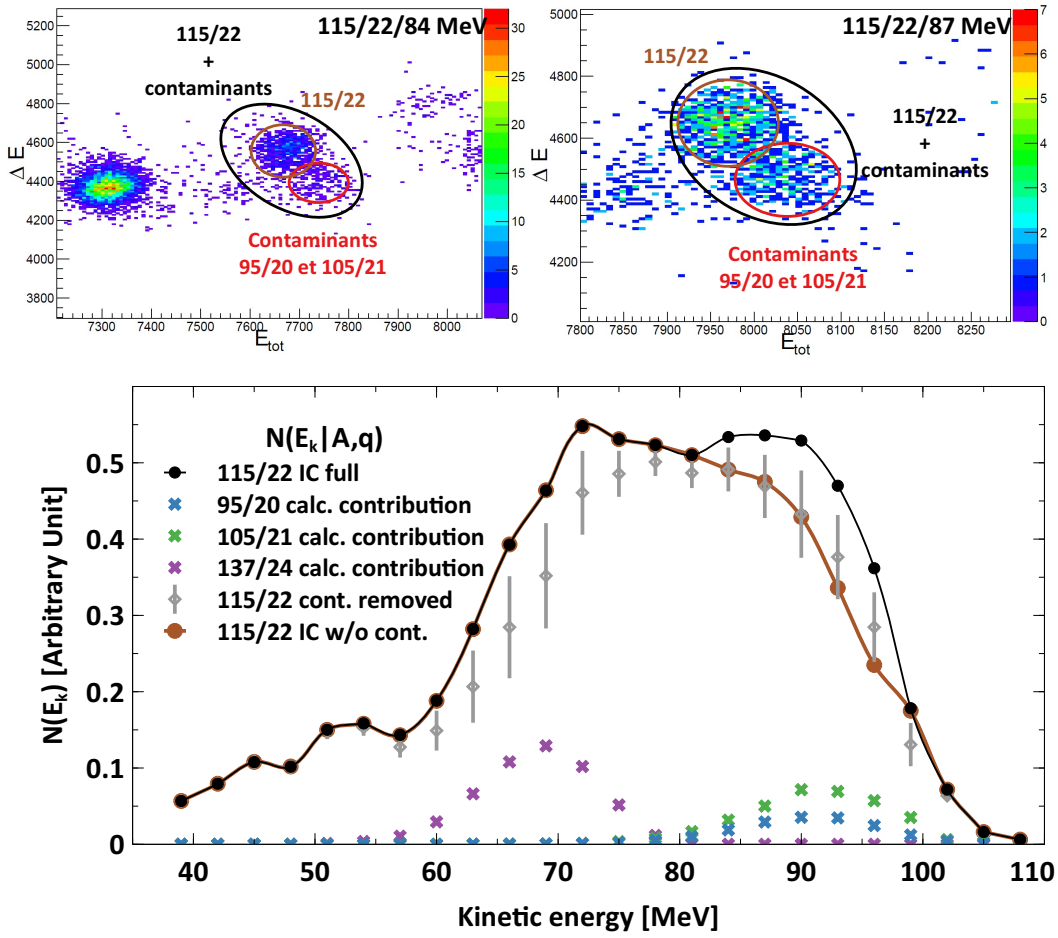


FIGURE 3.28: En haut, un zoom des résultats de la chambre d'ionisation pour la masse 115 à la charge 22 à 84 MeV (à gauche) et à 87 MeV (à droite). En bas, le taux de comptage obtenus pour la masse 115 à la charge 22 en considérant l'intégralité de la tache associée (en noir) ou uniquement la contribution de la masse 115 (en marron), pour les énergies où la distinction est suffisante. En gris, la distribution 115/22 corrigée, grâce à notre méthode, des contaminations et la contribution des trois principaux contaminants (croix de couleurs).

LOHENGRIN avec un outil comme GEANT4 [8] pour calculer les différentes probabilités en utilisant celles mesurées dans [21] comme référence pour la validation.

La technique présentée semble valide à la vue de la décontamination des distributions en énergie obtenues sur les masses 113 et 115, où la contamination est attendue importante. En revanche sur des contaminations attendues faibles, comme c'est le cas pour les distributions en énergie des autres masses, il s'agit d'effets trop fins pour qu'ils puissent être prédits avec précision.

Concernant la décontamination des distributions en charge ionique, nous sommes capables de bien comprendre et d'estimer la contamination à chaque charge. En nous

8. Le logiciel GEANT (GEometry ANd Tracking) est développé au CERN pour la simulation du passage de particules dans la matière.

basant sur les charges peu contaminées, nous arrivons à produire des distributions en charge ionique qui ont une allure satisfaisante.

Gestion du BU pour les mesures des bas rendements

Pour les mesures dans les régions de la fission symétrique ou très asymétrique, le taux de comptage est très réduit et le temps de mesure est particulièrement long. Contrairement aux masses à haut rendement, le BU peut évoluer de manière non négligeable durant la mesure d'une distribution en énergie cinétique ou en charge ionique. Le BU est donc corrigé énergie par énergie et charge par charge afin de prendre en compte cette évolution.

Estimation du biais pour les mesures des bas rendements

Notre procédure d'analyse décrite pour les hauts rendements nécessite un minimum de trois distributions en énergie cinétique. Pour les mesures des bas rendements nous n'en avons qu'une seule [9], puisque, encore une fois, nous sommes limité par les temps de mesure particulièrement longs pour ces zones de masses. Nous ne pouvons donc pas prendre en compte les corrélations (E_k, q), ni tester la reproductibilité de nos mesures. Nous avons un biais, comme nous l'avons déjà illustré sur la figure 3.19, qu'il est nécessaire de quantifier.

Pour une distribution en énergie mesurée à une charge q_i plus ou moins proche de la charge moyenne $\overline{q}$, nous devons estimer ce biais et son incertitude, en fonction de la différence $\Delta q = \lfloor q_i - \overline{q} \rfloor$ [10]. Pour ce faire, nous comparons pour les hauts rendements de l'expérience de Novembre 2015 [11] chaque $N_{q_i}(A)$ sans prise en compte des corrélations (E_k, q), que nous noterons $N^{nc}_{q_i}(A)$, au $\overline{N}(A)$ obtenu après la moyenne et en prenant en compte les corrélations (E_k, q). Nous avons ainsi une estimation du biais $B(\Delta q)$ (différence moyenne obtenue à Δq constant) et de son incertitude (écart-type des différences obtenues à Δq constant). En notant $Card(\Delta q)$ le cardinal de l'ensemble des q_i tel que

9. Au mieux deux pour les masses 125 et 127.
10. La notation $\lfloor x \rfloor$ dénote la partie entière de x.
11. Ces biais dépendent de la cible et nous devons donc nous restreindre aux résultats obtenus en Novembre 2015. C'est aussi la raison pour laquelle nous ne pourrons pas utiliser ces connaissances pour estimer les biais sur l'expérience de Novembre 2014.

Tableau 3.2: Pour la cible de Novembre 2015, biais estimé et incertitude associée en fonction de la différence entre la charge ionique à laquelle a été faite la distribution en énergie cinétique, q_i et la charge ionique moyenne, $\overline{q}$. Ces estimations ont été faites sur les $N_{q_i}(A)$ des 32 masses à haut rendement disponibles.

Δq	-4	-3	-2	-1	0	1	2	3	4
biais estimé [%]	9,22	0,93	0,42	-1,47	-1,84	-0,47	0,69	2,17	0,21
incertitude relative [%]	14,92	4,04	3,79	2,39	1,87	3,43	6,20	6,05	5,75

Δq est constant :

$$B(\Delta q) = \frac{1}{Card(\Delta q)} \sum_{q_i|\Delta q} \sum_{A} \left(N^{nc}_{q_i}(A) - \overline{N}(A) \right) \tag{3.49}$$

$$\text{var}_{B(\Delta q)} = \sigma^2_{B(\Delta q)} = \frac{1}{Card(\Delta q)} \left(\sum_{q_i|\Delta q} \sum_{A} \left(N^{nc}_{q_i}(A) - \overline{N}(A) \right)^2 \right) - B^2(\Delta q) \tag{3.50}$$

Ces résultats sont regroupés en fonction Δq dans le tableau 3.2. Remarquons que ce biais est relativement faible et constant, à l'exception de la différence $\Delta q = -4$. En revanche, l'incertitude associée est d'autant plus importante que la charge ionique à laquelle est mesurée la distribution en énergie cinétique est éloignée de la charge ionique moyenne.

Les masses 125 et 127 sont deux exceptions, car elles ont été mesurées avec deux distributions en énergie cinétique. Ce n'est pas assez pour estimer des corrélations (E_k, q) mais le biais est différent. Pour l'estimer, nous comparons pour les hauts rendements les $\overline{N}(A)$ avec ou sans prise en compte des corrélations (E_k, q). Pour ces deux masses, le biais est estimé à B =-0,43 % (avec une incertitude relative de 2,19 %).

Ainsi, pour chaque bas rendement, nous pouvons corriger les valeurs biaisées de $\overline{N}(A)$:

$$\overline{N}_{unb}(A) = \overline{N}(A) \cdot (1 - B(\Delta q)) \tag{3.51}$$

Où l'indice *unb* signifie non biaisé (unbiased). En considérant que les $\overline{N}(A_i)$ et $B(A_j)$ ne sont pas corrélés et sous l'hypothèse simplificatrice que les biais ne sont pas corrélés entre eux, la matrice de covariance s'écrit :

$$\text{cov}\left(\overline{N}_{unb}(A_i), \overline{N}_{unb}(A_j)\right) = (1 - B(\Delta q_i)) \cdot (1 - B(\Delta q_j)) \cdot \text{cov}\left(\overline{N}(A_i), \overline{N}(A_j)\right) \tag{3.52}$$

$$+ \overline{N}(A_i) \cdot \overline{N}(A_j) \cdot \delta_{i,j} \cdot \text{var}_{B(\Delta q_i)} \tag{3.53}$$

Où $\delta_{i,j}$ est le symbole de Kronecker égal à 1 lorsque $\Delta q(A_i) = \Delta q(A_j)$.

3.2.7 Moyenne des résultats de Mai 2013 et de Novembre 2015

Rappelons-le, un des buts de notre travail est de proposer des rendements indépendants des données existantes. Pour normaliser les rendements de fission du ^{241}Pu, nous avons besoin des $\overline{N}(A)$ de l'intégralité du pic lourd. Cette normalisation sera plus détaillée dans la sous-section 3.2.8. Or en une seule expérience, par manque de temps, nous ne pouvons pas faire l'ensemble de ces mesures. Nous devons donc regrouper les résultats de nos deux expériences de Mai 2013 et Novembre 2015. Les $\overline{N}(A)$ obtenus pour les expériences de Mai 2013 et Novembre 2015 sont présentés sur la figure 3.29.

Afin de combiner ces deux jeux de données en un unique vecteur : $\overline{N}_{mgd}(A)$, nous allons procéder à une normalisation relative de l'une par rapport à l'autre. Puisque les conditions expérimentales et les cibles utilisées sont différentes d'une expérience à l'autre, nous faisons l'hypothèse que ces deux jeux de $\overline{N}(A)$ sont indépendants.

Notons $\tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{3}}$ le vecteur des $\overline{N}(A)$ obtenu pour l'expérience de 2013 et $\tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{5}}$ pour l'expérience de 2015, pour les 14 masses communes aux deux expériences. Afin de normaliser l'expérience de 2013 à celle de 2015, nous devons minimiser le vecteur résiduel $\boldsymbol{\epsilon}$:

$$\boldsymbol{\epsilon} = \tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{5}} - \kappa \cdot \tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{3}} \tag{3.54}$$

Le meilleur estimateur du facteur de normalisation k de $\tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{3}}$ sur $\tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{5}}$ est obtenu par la méthode du χ^2 généralisé, afin de prendre en compte les covariances au sein de chaque expérience. Sous forme matricielle, ce dernier s'écrit [115] :

$$k = \left(\tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{3}}^T \cdot \boldsymbol{\Omega}^{-1} \cdot \tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{3}}\right)^{-1} \tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{3}}^T \cdot \boldsymbol{\Omega}^{-1} \cdot \tilde{\boldsymbol{N}}_{\mathbf{5}} \tag{3.55}$$

Où $\boldsymbol{\Omega}$ est la matrice de covariance regroupant la covariance des deux jeux de données :

$$\boldsymbol{\Omega} = \boldsymbol{\Omega}_{\mathbf{5}} + k \cdot \boldsymbol{\Omega}_{\mathbf{3}} \tag{3.56}$$

Une itération est nécessaire afin de bien calculer le facteur de normalisation k, qui intervient déjà dans la définition de $\boldsymbol{\Omega}$.

Pour les masses communes, la moyenne des deux expériences, $\overline{N}_{mgd}(A)$, est ensuite calculée de la même manière que pour l'équation 3.28 :

$$\overline{N}_{mgd}(A) = \left(\sum_{i,j}^{2,2} (\boldsymbol{C}^{-1})_{i,j}\right)^{-1} \cdot \left(\sum_{i,j}^{2,2} (\boldsymbol{C}^{-1})_{i,j} \cdot \overline{N}(A)\right) \tag{3.57}$$

Où $\boldsymbol{C}$ est la matrice de covariance entre les $\overline{N}(A)$ de la même masse pour les deux expériences. Cette covariance provient du facteur de normalisation k.

Les résultats de cette normalisation relative et de cette moyenne sont montrés sur la figure 3.29. La masse 142 en particulier présente une différence notable d'une expérience à l'autre, nous discuterons de ce cas particulier dans la sous-section 3.4.3. Pour le reste des masses, un très bon accord est visible.

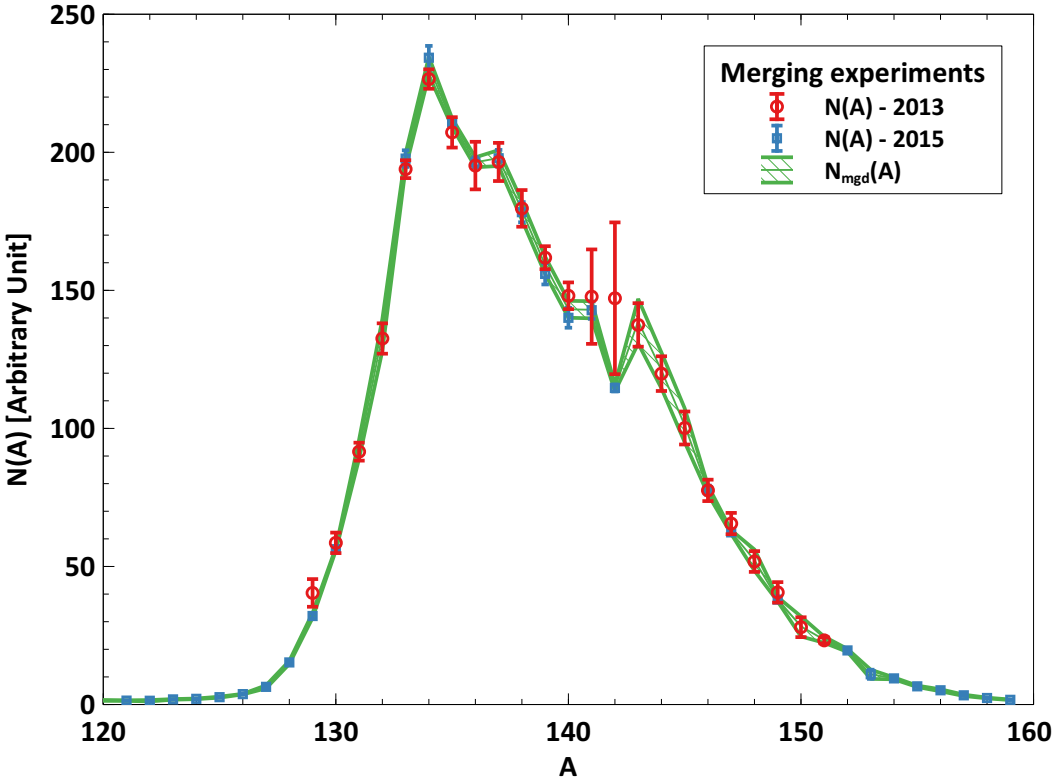


FIGURE 3.29: Résultats de la normalisation de l'expérience de Mai 2013 à l'expérience de Novembre 2015 pour le ^{241}Pu. Le bandeau vert indique la moyenne des deux jeux de données et son incertitude.

Le choix de l'expérience de référence [12] est un peu arbitraire. Nous avons un environnement expérimental et une cible de meilleure qualité pour l'expérience de 2015, c'est pourquoi nous l'avons choisi comme référence. La construction d'un indicateur plus impartial pour un bon choix de référence, est un sujet actif de recherche pour notre groupe [116].

Grâce à ce regroupement, nous avons maintenant un jeu de $\overline{N}(A)$ qui couvre la quasi intégralité du pic lourd. Nous pouvons procéder à la normalisation absolue des rendements.

12. Ici nous avons normaliser l'expérience de 2013 à celle de 2015.

3.2.8 Normalisation

Comme nous l'avons dit, pour la normalisation des données du ^{241}Pu, nous considérons que le rendement de l'ensemble du pic lourd est égal à 1. Cette normalisation n'est qu'une approximation. En effet, $P(A \geq 121) = 1$ n'est vrai que pour les rendements avant émission des neutrons prompts. De plus, comme nous n'avons pas les masses extrêmes, au-dessus de la masse 159 (masse maximale mesurée), notre étape de normalisation comporte un biais. Mais la part des masses supérieures à 159 n'est que de 0,03% pour ENDF-B/VII.1, 0,25% pour JEFF-3.1.1 et 0,26% pour JEFF-3.3. Ainsi, en se normalisant à $k = 99{,}82\% \pm 0{,}26\%$ (une incertitude négligeable bien que conservative) [13] pour le pic lourd (H) nous avons une mesure absolue du rendement, corrigé de ce faible biais :

$$Y(A) = \frac{k \cdot \overline{N}_{mgd}(A_i)}{\sum_{i \in H} \overline{N}_{mgd}(A_i)} \tag{3.58}$$

Pour les mesures sur le ^{239}Pu, nous faisons une normalisation relative à JEFF-3.1.1 sur la somme des rendements des masses que nous avons mesurées, puisque notre but est de comparer la forme de la distribution obtenue à celle de JEFF-3.1.1 et de ENDF/B-VII.1. Pour cette expérience, la normalisation s'écrit donc :

$$Y(A) = \overline{N}(A) \cdot \frac{\sum_i Y_{JEFF}(A_i)}{\sum_i \overline{N}(A_i)} \tag{3.59}$$

3.2.9 Résumé des étapes d'analyses

Un résumé des étapes d'analyse suivies pour l'obtention des rendements en masse, ainsi que les sources d'incertitudes est fourni dans le tableau 3.3.

13. 1 moins la moyenne de ce que représente les masses supérieures à 159 pour les trois bibliothèques considérées avec pour incertitude le maximum.

Tableau 3.3: Les différentes étapes d'analyse et les corrélations qu'elles induisent. Pour certaines étapes, entre parenthèses, l'incertitude typique de l'étape est indiquée.

Étape	Description	Corrélations induites
0	Correction du temps mort de la chambre d'ionisation (Mai 2013 uniquement)	Indépendants/pas de corrélation (<1%)
1	Somme des taux de comptages sur les énergies cinétiques : $\Sigma_E(A, t, q_i)$	Indépendants/pas de corrélation (<1%)
2	Estimation des corrélations (E_k, q) et correction de la distribution en charge ionique $P(q)$	Intra-masses (1 à 2%)
3	Correction du BU : $N_{q_i}(A) = \dfrac{\Sigma_E(A, t, q_i)}{P(q_i) \cdot BU(t)}$	Inter-masses et intra-masses (2 à 3%)
4	Moyenne par masse des $N_{q_i}(A)$ tout en vérifiant leurs compatibilité : $\overline{N}(A)$	Inter-masses (compatibilité : ajout d'incertitude 0 à 2%)
5	Normalisation relative et regroupement des expériences de 2013 et 2015 (^{241}Pu uniquement) : $\overline{N}_{mgd}(A)$	Inter-masses
6	Normalisation absolue $Y(A)$ pour ^{241}Pu, relative à JEFF-3.1.1 pour ^{239}Pu	Inter-masses

3.3 Extraction de la distribution d'énergie cinétique en fonction de la masse

Puisque nous avons des mesures complètes des distributions en énergie cinétique, nous pouvons aussi obtenir l'énergie cinétique moyenne en fonction de la masse du produit de fission. Ce travail a été fait pour les données sur le ^{241}Pu uniquement, car les distributions de la cible de ^{239}Pu sont trop altérées par les résidus d'acrylique.

3.3.1 Correction de l'évolution de la cible

Comme pour estimer les corrélations (E_k, q), explicitées dans la sous-section 3.2.2.1, nous devons tout d'abord prendre en compte l'évolution de la cible pour bien estimer l'énergie cinétique moyenne. Une fois cette correction faite, l'énergie moyenne d'une masse est définie comme la moyenne des différentes distributions en énergie cinétique :

$$\overline{KE}(A) = \frac{\sum_{q_i} P(q_i) \cdot \overline{KE}(A|q_i)}{\sum_{q_i} P(q_i)} \tag{3.60}$$

Les énergies moyennes par masse sont présentées sur la figure 3.30 et leurs écart-type sur la figure 3.31, avec pour les masses en bas rendements l'énergie moyenne des différentes composantes.

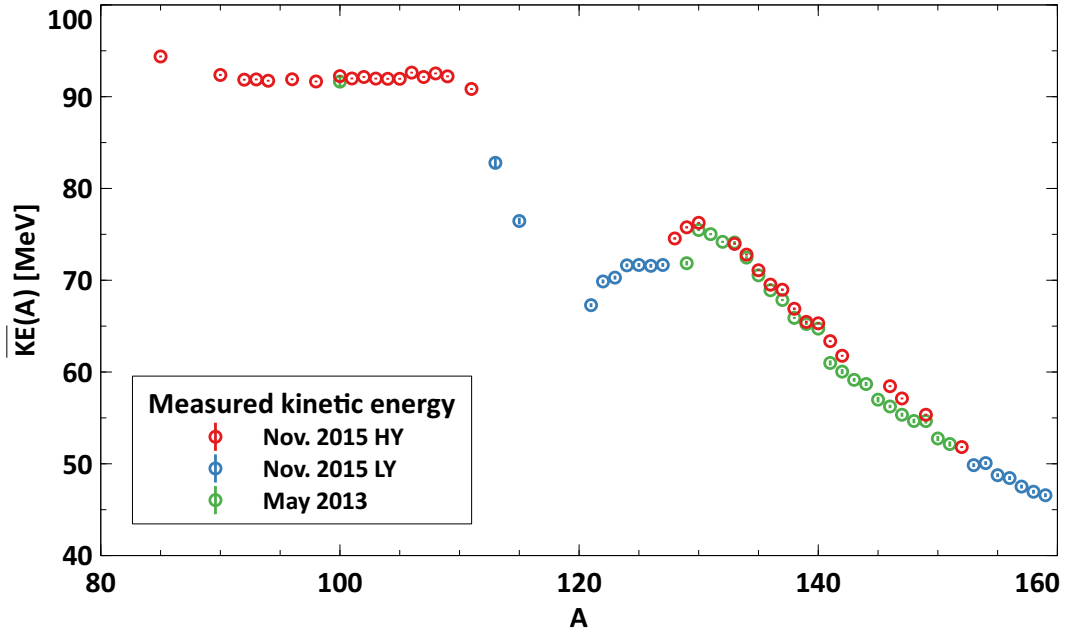


FIGURE 3.30: Distribution de l'énergie cinétique moyenne mesurée en fonction de la masse, pour le ^{241}Pu, corrigée de l'évolution de la cible.

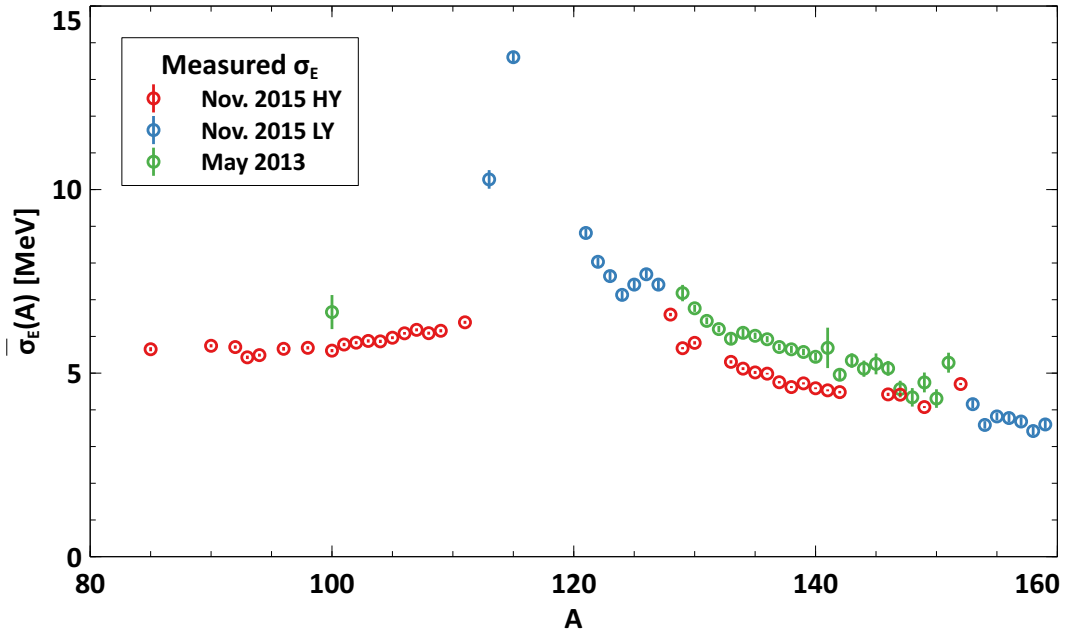


FIGURE 3.31: Écart-type de la distribution en énergie cinétique en fonction de la masse, pour le ^{241}Pu, corrigé de l'évolution de la cible.

3.3.2 Corrections des pertes d'énergie et estimation de l'énergie moyenne post et pré-émission neutrons

Nous pouvons aussi extraire les énergies cinétiques moyennes des produits de fission à leur création. Il nous faut pour cela considérer les pertes d'énergie ayant lieu dans la cible elle même et dans la couche de Ni. Au cours de l'expérience, la couche de Ni recouvrant la cible s'oxyde en NiO. L'épaisseur et la composition de la couche protectrice évoluent en fonction du temps, tout comme les pertes d'énergie des ions la traversant. En prenant comme référence l'énergie cinétique au début de l'expérience, ce problème est contourné puisque nous connaissons l'épaisseur initiale de la cible. Il faut cependant faire l'hypothèse que l'oxydation de la cible est négligeable dans les tous premiers moments de la mise en pile, puisque les mesures ne commencent pas exactement au moment la mise en pile. À la vue de l'incertitude sur la connaissance de l'épaisseur de la couche de Ni, de 20 %, cette hypothèse est justifiée.

Pour calculer les pertes d'énergie dans la couche Ni, nous utilisons les résultats de G. Knyazheva [117] :

$$\frac{\overline{dE}}{dx}(A) \cdot e \cdot \rho_{mat} = 3,07 \cdot 10^{-4} \cdot \frac{Z_{mat}\ Z_{eff}^2(A)}{A_{mat}\ \beta^2(A)} \cdot L(A) \tag{3.61}$$

Où Z_{eff} la charge nucléaire moyenne du produit de fission, β sa vitesse réduite, Z_{mat}, A_{mat} la charge nucléaire et la masse du matériau traversé, e son épaisseur et ρ_{mat}

sa densité. Enfin, L est un polynôme logarithmique d'ordre 2 en ξ, avec :

$$\xi = \frac{7,866 \cdot 10^{-7}\ [\text{eV}] \cdot \beta^3}{Z \cdot I\ [\text{eV}]} \tag{3.62}$$

Et I le potentiel d'excitation moyen de la matière traversée. Cette correction utilise les paramètres données dans [117]. Les incertitudes de ce modèle sont supposées négligeables devant l'incertitude de l'épaisseur de la couche de Ni.

Pour estimer les pertes d'énergie dans le PuO_2, nous utilisons le logiciel SRIM [108]. Nous faisons d'abord une comparaison entre SRIM et les calculs résultant de l'équation 3.62 pour les pertes dans le Ni, afin d'estimer l'incertitude des résultats de SRIM. De fortes différences sont observées, jusqu'à 50% pour les masses les plus lourdes. De ce fait, 50% d'incertitude est attribué à cette correction.

Enfin, les deux étapes de calcul de pertes d'énergie sont faites avec les énergies moyennes mesurées (corrigées de l'évolution de la cible) et non les énergies en sortie de cible comme ce devrait être le cas. Une itération des calculs de pertes d'énergie est faite, non pas avec l'énergie mesurée, E_m, mais avec l'énergie initiale obtenue $E_{ini} = E_m + \Delta E_{pertes}$ pour vérifier que la même valeur de ΔE_{pertes} est trouvée. La différence est négligeable.

Les pertes d'énergie totales sont variables d'une cible à l'autre, mais pour les deux, environ 95% de la perte d'énergie a lieu dans la couche de Ni, pour des pertes allant d'environ 6,5 MeV pour les masses les plus légères à 9,5 MeV pour les masses les plus lourdes.

Les énergies cinétiques moyennes après ces corrections de pertes d'énergie sont présentées sur la figure 3.32. Nous voyons aussi que les énergies que nous observons une fois corrigées des différentes pertes d'énergie sont très proches d'une expérience à l'autre, ce qui nous conforte dans la validité des calculs de pertes d'énergie et des hypothèses sous-jacentes.

Si nous nous intéressons maintenant à l'énergie moyenne sur l'ensemble du pic léger, $\overline{KE}_L$, ou lourd, $\overline{KE}_H$:

$$\overline{KE}_L = \frac{\sum_{i<121} Y(A_i) \cdot \overline{E_k}(A_i)}{\sum_{i<121} Y(A_i)} \qquad \text{et} \qquad \overline{KE}_H = \frac{\sum_{i\geq 121} Y(A_i) \cdot \overline{E_k}(A_i)}{\sum_{i\geq 121} Y(A_i)} \tag{3.63}$$

Si nous considérons que les covariances entre énergies cinétique moyennes et rendements sont nulles : $\text{cov}\left(Y(A_i), \overline{E_k}(A_j)\right) = 0$, l'expression de le variance (donnée pour

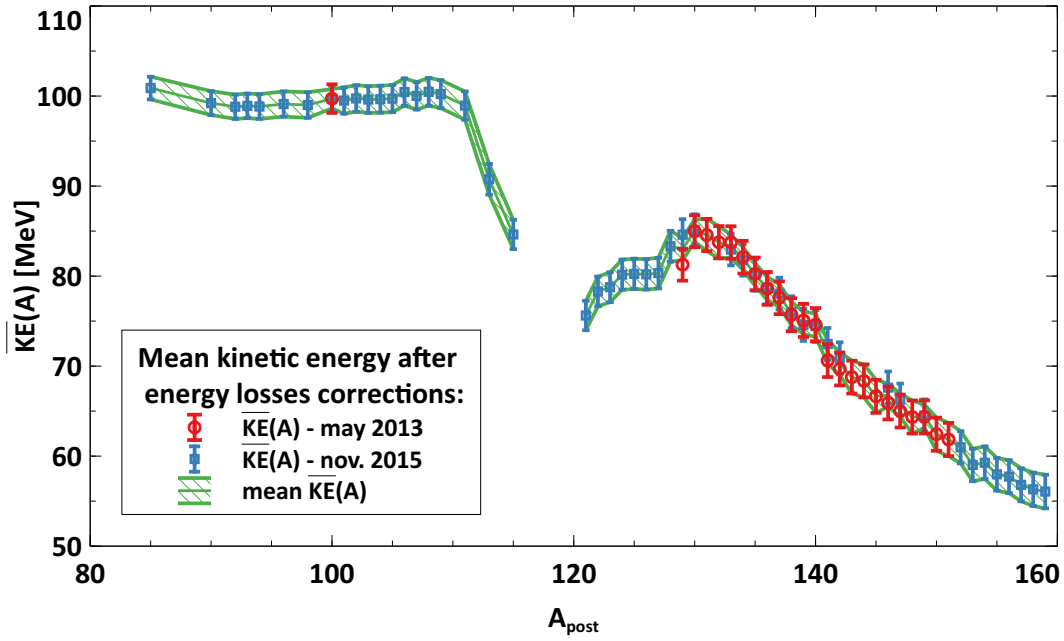


FIGURE 3.32: Énergie moyenne après correction des pertes d'énergie dans la cible en fonction de la masse du produit de fission, obtenue pour les expériences de Mai 2013 (en rouge) et Novembre 2015 (en bleu) pour le ^{241}Pu. En vert, la moyenne des deux.

les légers mais similaire pour les lourds avec ≥ 121) est :

$$\begin{aligned}\mathrm{var}\left(\overline{KE}_L\right) = \sum_{i<121}\sum_{j<121}\Bigg(&\frac{Y(A_i)\cdot Y(A_j)\cdot \mathrm{cov}\left(\overline{E_k}(A_i),\overline{E_k}(A_j)\right)}{\left(\sum_{i<121}Y(A_i)\right)^2}\\ &+\frac{\overline{E_k}(A_i)\cdot\overline{E_k}(A_j)\cdot\mathrm{cov}\left(Y(A_i),Y(A_j)\right)}{\left(\sum_{i<121}Y(A_i)\right)^4}\\ &\cdot\left(\sum_{p<121}Y(A_p)-Y(A_i)\right)\cdot\left(\sum_{q<121}Y(A_q)-Y(A_j)\right)\Bigg)\end{aligned} \tag{3.64}$$

L'estimation de $\overline{KE}_L$ est biaisée, du fait que nous n'avons pas l'ensemble des masses du pic léger. Cependant, comme nous avons la plupart des hauts rendements et que l'énergie cinétique moyenne des masses légères est relativement constante, comme nous le voyons sur la figure 3.32, nous pouvons envisager que ce biais n'est pas très important.

TABLEAU 3.4: Énergie cinétique moyenne post-émission neutron obtenues pour ce travail, comparé à Thierens et al. [118], JEFF3.1.1, JEFF-3.3 et FIFRELIN.

[MeV]	Ce travail	Thierens et al.	JEFF-3.1.1	JEFF-3.3 [14]	FIFRELIN
$\overline{TKE}_{post}$	175,11 ± 2,42	176,93 ± 0,06	175,37 ± 0,68	175,03	176,09 ± 0,01
$\overline{KE}_{post\ L}$	99,60 ± 1,82	-	-	-	101,40 ± 0,01
$\overline{KE}_{post\ H}$	75,51 ± 1,59	-	-	-	74,69 ± 0,01

La covariance entre $\overline{KE}_L$ et $\overline{KE}_H$ s'écrit :

$$\begin{aligned}\mathrm{var}\left(\overline{KE}_L\right) = \sum_{i<121}\sum_{j\geq 121}\Bigg(&\frac{Y(A_i)\cdot Y(A_j)\cdot \mathrm{cov}\left(\overline{E_k}(A_i),\overline{E_k}(A_j)\right)}{\left(\sum_{i<121}Y(A_i)\right)\cdot\left(\sum_{i\geq 121}Y(A_i)\right)}\\ &+\frac{\overline{E_k}(A_i)\cdot\overline{E_k}(A_j)\cdot \mathrm{cov}\left(Y(A_i),Y(A_j)\right)}{\left(\sum_{i<121}Y(A_i)\right)^2\cdot\left(\sum_{i\geq 121}Y(A_i)\right)^2}\\ &\cdot\left(\sum_{p<121}Y(A_p)-Y(A_i)\right)\cdot\left(\sum_{q\geq 121}Y(A_q)-Y(A_j)\right)\Bigg)\end{aligned} \tag{3.65}$$

Cette covariance va nous être utile pour calculer l'énergie cinétique totale :

$$\overline{TKE} = \overline{KE}_L + \overline{KE}_H \tag{3.66}$$

Dont la variance s'écrit :

$$\mathrm{var}\left(\overline{TKE}\right) = \mathrm{var}\left(\overline{KE}_L\right) + \mathrm{var}\left(\overline{KE}_H\right) + 2\cdot\mathrm{cov}\left(\overline{KE}_L,\overline{KE}_H\right) \tag{3.67}$$

Nous pouvons maintenant nous comparer à d'autres résultats, présentés dans le tableau 3.4. Nous trouvons un très bon accord pour la valeur moyenne. Nos incertitudes sont évidemment plus importantes, car cette grandeur est une observable secondaire, mais néanmoins intéressante, de notre expérience.

3.3.3 Estimation de l'énergie moyenne pré-émission neutrons prompts

Grâce à FIFRELIN, nous pouvons accéder à la multiplicité des neutrons émis par masses, $\overline{\nu}(A)$. Nous pouvons donc estimer l'énergie cinétique pré-émission neutrons, afin de nous comparer à d'autres mesures. La perte d'énergie par émission neutron est approximé à [119] :

$$\frac{\overline{KE}_{pre}-\overline{KE}_{post}}{\overline{KE}_{pre}} \simeq \frac{\overline{\nu}(A)}{A} \tag{3.68}$$

Les incertitudes sur cette estimation sont supposées négligeables devant les incertitudes des corrections de perte d'énergie. Le tableau 3.5 présente nos résultats comparés à

Tableau 3.5: Énergie cinétique moyenne pré-émission neutron obtenues pour ce travail, comparé à Neiler et al. [120] et FIFRELIN.

[MeV]	Ce travail	Neiler et al.	FIFRELIN
$\overline{TKE}_{pre}$	177,09 ± 2,43	179,6 ± 1,8	178,33 ± 0,01
$\overline{KE}_{pre\ L}$	101,29 ± 1,83	103,2 ± 1,0	103,00 ± 0,01
$\overline{KE}_{pre\ H}$	75,80 ± 1,59	76,3 ± 0,8	75,33 ± 0,01

d'autres données. Une fois encore, nous sommes proches des données expérimentales et de FIFRELIN. Notons que la différence avec Neiler se situe principalement dans les légers, ce qui s'explique peut-être par la rigueur de la moyenne évoquée précédemment.

3.4 Discussions des résultats et applications

3.4.1 Comparaison à une méthode Monte Carlo

La propagation d'incertitudes et de covariances comme nous l'avons présenté dans l'annexe A et utilisé au cours de ce travail, repose notamment sur l'hypothèse de linéarité des fonctions mises en jeu. Nous allons comparer nos résultats à une méthode MC afin de tester, en particulier, cette hypothèse. Ce travail a été fait en collaboration avec A. Chebboubi, qui a mis en place une méthode d'analyse MC lors de sa thèse [21] et des détails additionnels sur cette étude peuvent être trouvés dans [121].

En particulier, nous allons nous concentrer sur le calcul du BU, à travers l'exemple de l'expérience de Novembre 2015 (voir la partie droite de la figure 3.11). Pour l'exemple présenté ici, la fonction d'ajustement du BU en fonction du temps est :

$$BU(t) = a \cdot t + b + \exp(c \cdot t + d) \tag{3.69}$$

Les paramètres a, b, c et d sont obtenus grâce à ROOT [122] qui est un outil d'analyse optimisé pour ce genre d'ajustement. Dans la méthode MC, chacun des paramètres est échantillonné sur une distribution gaussienne. Les covariances des paramètres de l'ajustement sont bien évidemment prises en compte lors de cet échantillonnage, comme cela est présenté dans l'annexe B. Une méthode MC ne repose pas sur l'hypothèse de linéarité pour la détermination des covariances et incertitudes.

Sur la figure 3.33 est présenté un exemple de la densité de probabilité obtenue avec la propagation d'incertitude analytique, en rouge, qui est une gaussienne centrée sur la valeur du BU au temps donné et d'écart-type son incertitude. La courbe bleue représente le résultat de l'échantillonnage par MC.

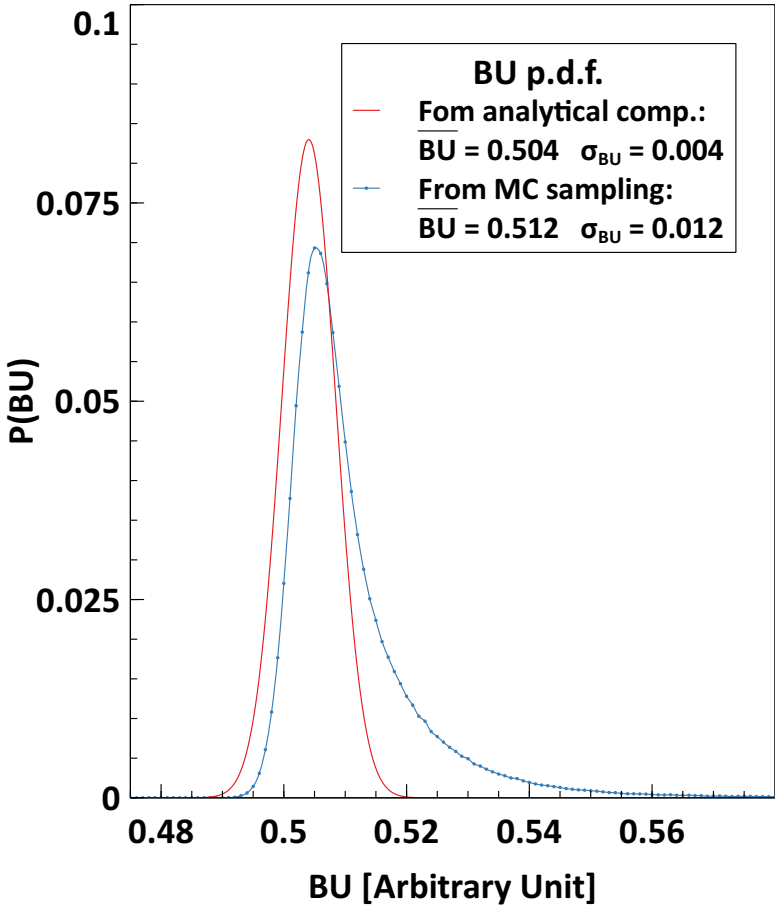


FIGURE 3.33: Exemple de la densité de probabilité (p.d.f.) obtenue analytiquement (en rouge), ou par un calcul MC (en bleu), pour l'expérience de Novembre 2015 à 18,13 jours, pour l'équation 3.69.

Nous voyons une différence notable entre ces deux distributions. Cet effet est d'autant plus important que l'incertitude des paramètres est élevée. En effet, nous sortons alors de l'hypothèse d'incertitudes faibles, qui est l'une des deux hypothèses fortes requise pour la propagation d'incertitude analytique. La forte asymétrie que nous observons sur le résultat du calcul MC vient de la convolution d'une loi exponentielle à une loi gaussienne qui suit une loi log-normale, de densité de probabilité :

$$f(x, \mu, \sigma) = \frac{1}{x\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(\ln x - \mu)^2}{2\sigma^2}\right) \tag{3.70}$$

Sur la figure 3.34, nous présentons les différences obtenues avec la fonction effectivement prise dans ce travail pour ajuster le BU de Novembre 2015 :

$$BU(t) = a \cdot \exp(b \cdot t) \tag{3.71}$$

Nous voyons que le biais obtenu est négligeable, aussi bien sur la valeur moyenne, que sur l'écart-type. Nous voyons aussi que ce biais dépend fortement du temps.

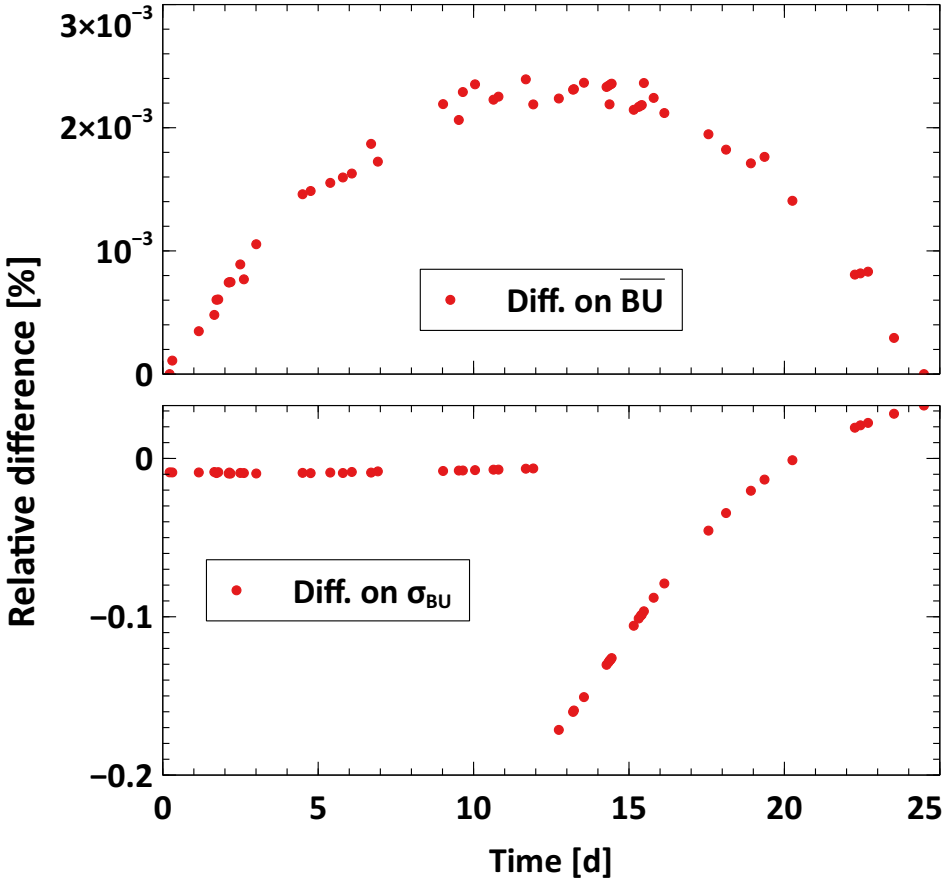


FIGURE 3.34: Différence relative obtenue entre le calucl MC et le calcul analytique (référence : MC) pour l'expérience de Novembre 2015, avec l'équation $a\exp(b \cdot t)$, sur la valeur moyenne (en haut) du BU et son écart-type (en bas) en fonction du temps. La structure de l'écart-type autour de 12,5 jours est liée au passage de 1 à 3 shutters, ce qui demande une normalisation supplémentaire.

Ainsi, la méthode analytique peut présenter un biais lors du calcul du BU, qu'il est primordial d'identifier et de quantifier. En revanche elle présente un avantage considérable en termes de temps de calcul. Le temps de calcul total avec l'outil analytique est de l'ordre de la dizaine de secondes à la minute. Pour un outil reposant en intégralité sur une méthode MC, un calcul de l'ordre d'une demi-journée est nécessaire pour une bonne convergence des résultats [15]. De plus, induire des incertitudes additionnelles pour prendre en compte l'incompatibilité de certaines données, telles que présentées dans la sous-section 3.2.3, n'est pas possible actuellement et il est nécessaire de passer sur un calcul analytique lors de cette étape. Lors du passage MC à analytique pour le calcul de $\overline{N}(A)$, l'hypothèse gaussienne est à nouveau suivie, induisant a priori une surestimation mineure de l'incertitude associée.

Dans l'outil d'analyse développé pour cette thèse, les deux options peuvent être choisies pour la prise en compte du BU, afin de vérifier que les deux approches mènent

15. Sur un ordinateur de bureau standard.

à des résultats identiques.

3.4.2 Interprétation des distributions en énergie cinétique par les modes de Brosa

Pour les distributions en énergie cinétique des bas rendements, deux composantes sont visibles, comme nous pouvons le voir sur la figure 3.35. La distinction entre ces composantes est très marquée sur la masse 159. En revanche pour la masse 121 les énergies moyennes des composantes sont trop proches pour permettre de les distinguer sans ambiguïté.

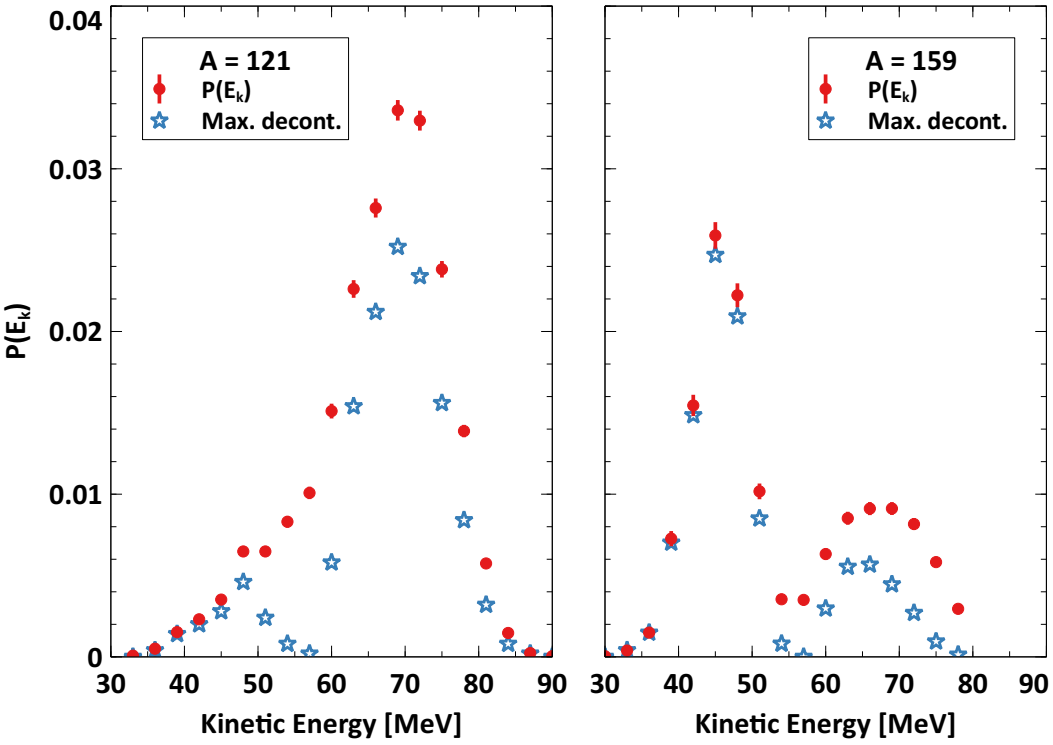


FIGURE 3.35: Distributions en énergie cinétique (normalisées à 1) obtenues par la méthode de décontamination (points rouges) pour la masse 121 à la charge 20 (à gauche) et la masse 159 à la charge 25 (à droite). Les étoiles bleues sont obtenus en soustrayant au maximum les contaminants (non normalisés).

Il est légitime de s'interroger sur l'origine de ces composantes. Nous devons nous assurer qu'une des composantes n'est pas dû à un contaminant que nous aurions mal corrigé. Pour cela, nous allons soustraire au maximum les différents contaminants identifiés. Dans une approche similaire à celle de l'équation 3.35, nous écrivons que :

$$\sum_{E_k} \tilde{P}(A, E_k|q) = 1 - \sum_{ct} \left(k_{ct} \cdot \sum_{E_k} P(A_{ct}, E_k|q') \right) \tag{3.72}$$

Et nous voulons minimiser $\sum_{E_k} \tilde{P}(A, E_k|q)$. Les paramètres k_{ct} sont obtenus en imposant que le signal observé reste physique, *i.e.* : $\forall E_k,\ \tilde{P}(A, E_k|q) \geq 0$. Si nous reprenons l'exemple des masses 121 et 159, sur la figure 3.35, nous voyons qu'en soustrayant au maximum les contaminants présumés (tout en conservant une valeur positive ou nulle des $\tilde{P}(A, E_k|q)$), nous ne pouvons faire disparaître aucune des composantes (en bleu).

En revanche, pour les masses asymétriques, l'énergie cinétique de la composante à haute énergie pose problème. En effet, considérons à nouveau la masse 159, pour laquelle l'énergie cinétique maximale mesurée est de 78 MeV. En faisant l'hypothèse qu'aucun neutron n'est émis, l'énergie cinétique totale est de :

$$TKE = \frac{242}{242 - 59} \cdot 78 = 227 \text{ MeV} \tag{3.73}$$

Or, la valeur de Q pour la réaction ^{241}Pu(n_{th},f) donnant comme fragments ^{53}As et ^{159}Pm est de $Q = 187$ MeV [123] et est moindre pour les autres combinaisons correspondant à une fragmentation 83 + 159. Il en découle que cette deuxième composante à haute énergie n'est pas due à la masse 159 mais à une contamination différente de celle prise en compte. Une première hypothèse, est que cette contamination vienne d'un changement de charge due aux décroissances convertis d'isomères microseconde ou nanoseconde d'une masse proche de la 132. Cette zone de masse, riches en isomères, a été mesurée à des énergies cinétiques moyennes correspondantes aux composantes à haute énergie des masses très asymétriques, voir la figure 3.30. L'analyse de cette nouvelle contamination n'a pas été abordée au cours de cette thèse et reste un sujet d'étude potentiel pour parfaire notre compréhension de LOHENGRIN. Heureusement, l'écart important entre les deux composantes pour les masses asymétriques nous permet de les distinguer facilement, comme nous pouvons le voir sur la figure 3.36. En particulier, les résultats des figures 3.31 et 3.30 présentés précédemment ont été obtenues en supprimant cette composante à haute énergie. De même, pour la détermination du rendement, la composante à haute énergie n'est pas prise en compte.

Nous allons donc maintenant nous focaliser sur les distributions en énergie cinétique des masses symétriques. Même si nous ne pouvons pas exclure qu'il y ait deux composantes dans ces distributions, il est difficile d'obtenir un ajustement systématique à deux gaussiennes satisfaisant. L'identification des composantes reste très incertaine. Néanmoins, les distributions en énergie cinétique des masses symétriques sont ajustées par deux gaussiennes [16], comme cela est illustré sur la figure 3.37, d'équation :

$$N_i \cdot \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{E_k - \overline{E_i}}{\sigma_i}\right)^2\right) \tag{3.74}$$

16. L'ajustement n'est pas justifié d'un point de vue statistique, mais nous voulons ici avoir la tendance générale.

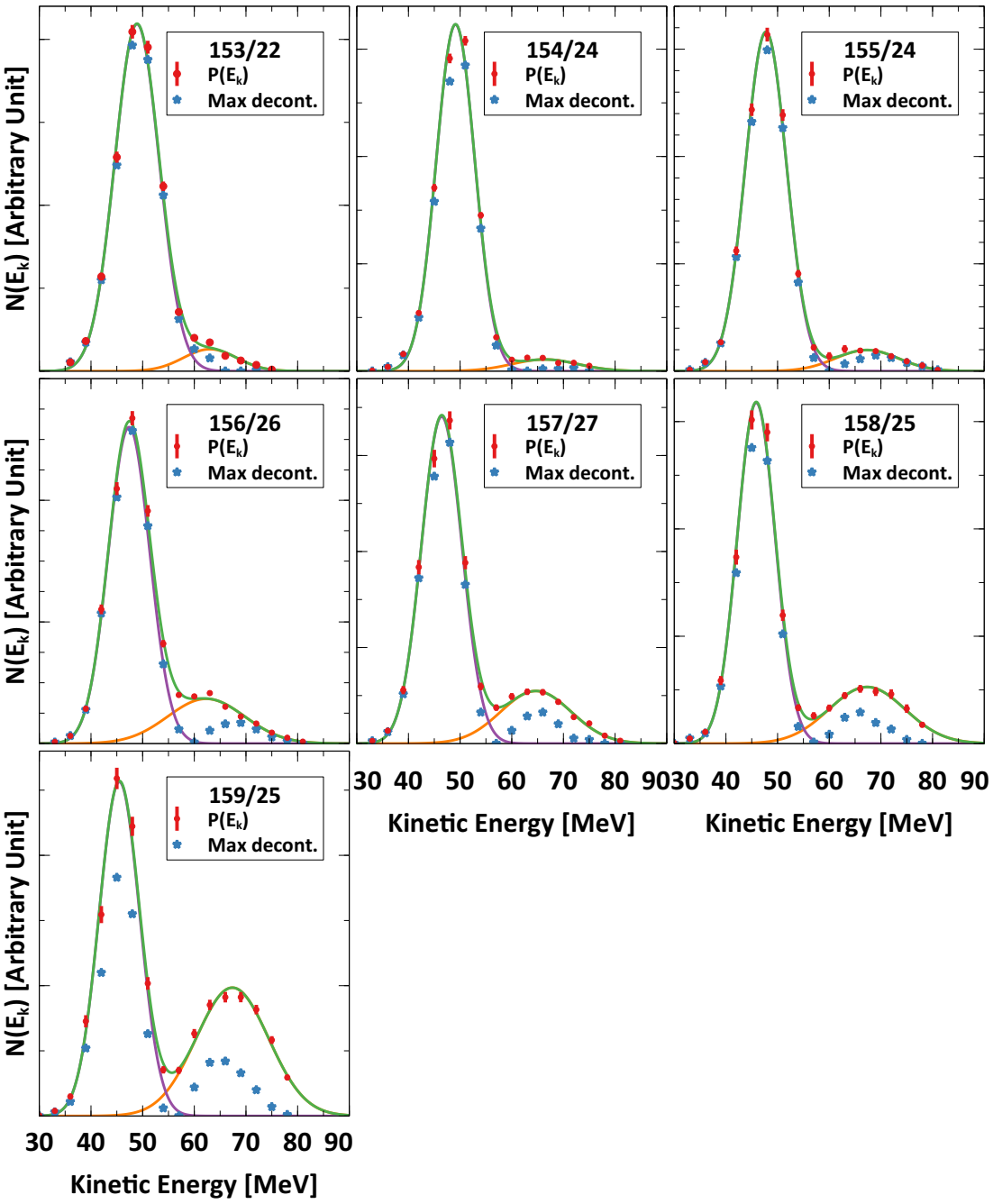


FIGURE 3.36: Distributions en énergie cinétique (normalisées à 1) obtenues par la méthode de décontamination (points rouges) pour les masses très asymétriques, ajustées par deux gaussiennes (en vert la somme des deux gaussiennes). Les étoiles bleues correspondent à la décontamination maximale possible avec les contaminants identifiés.

L'ensemble des ajustements des distributions est présenté dans l'annexe D.

Ces deux composantes peuvent être interprétées en termes de modes de fission. La signature de ces modes, qui sont produits avant l'émission des particules promptes, est atténuée sur nos mesures post-émissions, mais a priori toujours visibles. Plusieurs modes sont attendus [73], de la plus haute à la plus basse énergie cinétique totale :

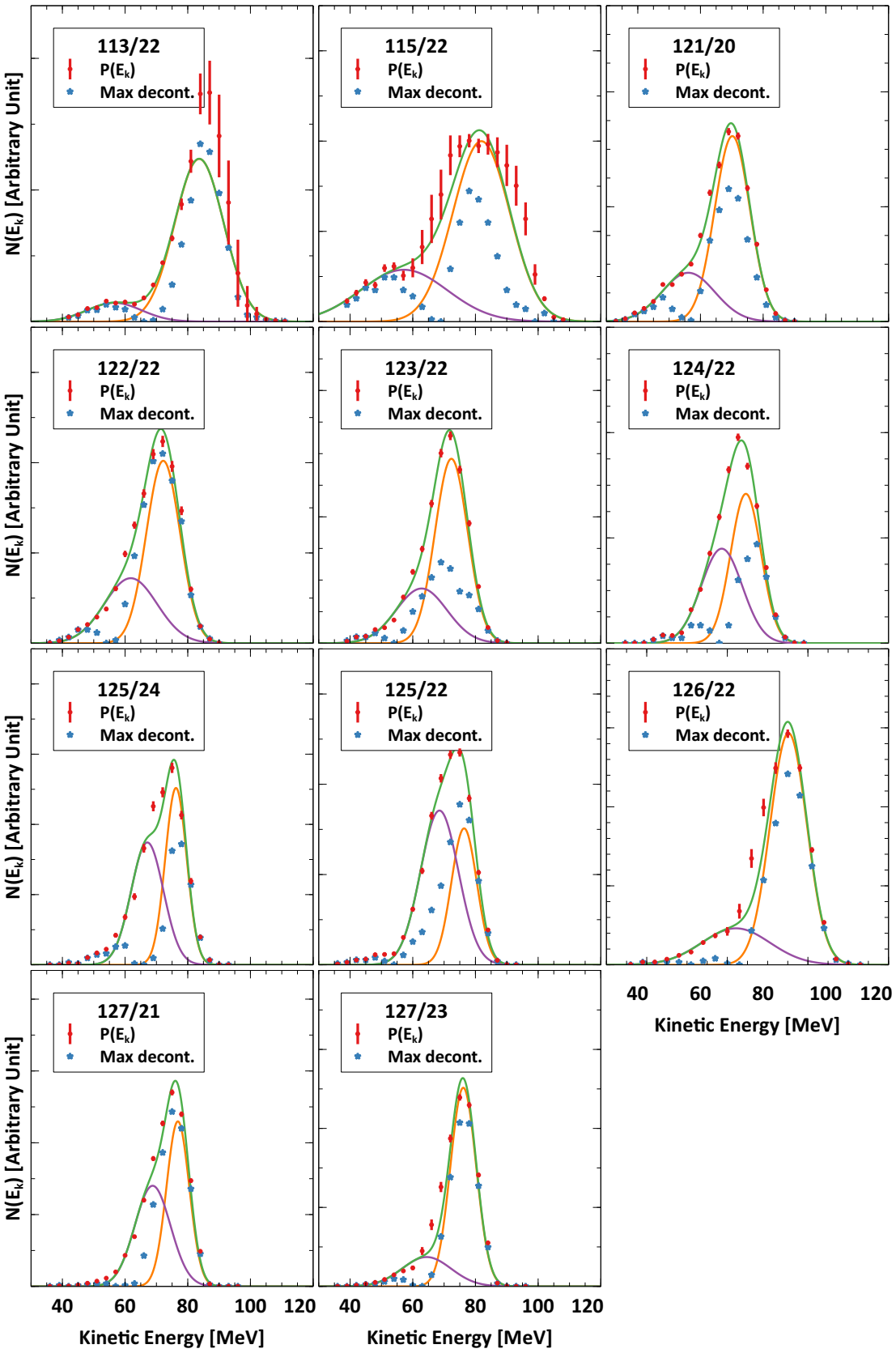


FIGURE 3.37: Distributions en énergie cinétique (normalisées à 1) obtenues par la méthode de décontamination (points rouges) pour les masses symétriques, ajustées par deux gaussiennes (en vert la somme des deux gaussiennes). Les étoiles bleues correspondent à la décontamination maximale possible avec les contaminants identifiés.

- Un mode dit Standard 1 (St1), correspondant à une fission asymétrique compacte, *i.e.*, avec une énergie cinétique totale élevée, centré autour des masses 136-137 et généralement associé à la fermeture de couche sphérique $N = 82$.
- Un mode dit Standard 2 (St2), correspondant à une fission asymétrique plus déformée et donc à une énergie cinétique totale plus faible, centré autour des masses 140-142 et généralement associé à la fermeture de couche déformé $N = 88$.
- Un mode dit Super Asymétrique (SA), correspondant à une fission très asymétrique, souvent assimilé au mode St3.
- Un mode dit Super Long (SL), correspondant à une fission symétrique ou quasi-symétrique, de basse énergie cinétique totale, car très déformé.

Pour les masses symétriques, nous pouvons identifier trois modes attendus, un mélange des modes St1 et St2 donnant lieu à la composante à haute énergie et le SL pour la composante à basse énergie.

Des ajustements obtenus sur la figure 3.37, nous pouvons approximativement déterminer l'énergie cinétique moyenne attribué à chaque mode, et à partir de cette dernière, estimer la distance moyenne, d, entre les deux fragments à la scission. En effet l'énergie cinétique totale peut s'approximer à :

$$\begin{aligned} TKE &\simeq KE_H(1 + \frac{A_H}{A_L}) \\ &= \frac{Z_L Z_H e^2}{4\pi\epsilon_0 d} + TKE_{pre-sci.} \end{aligned} \tag{3.75}$$

Où $TKE_{pre-sci.}$ est l'énergie cinétique de pré-scission, souvent estimée de l'ordre de 10 MeV. La figure 3.38 présente les résultats de l'estimation de d en fonction de la masse mesurée et du mode associé.

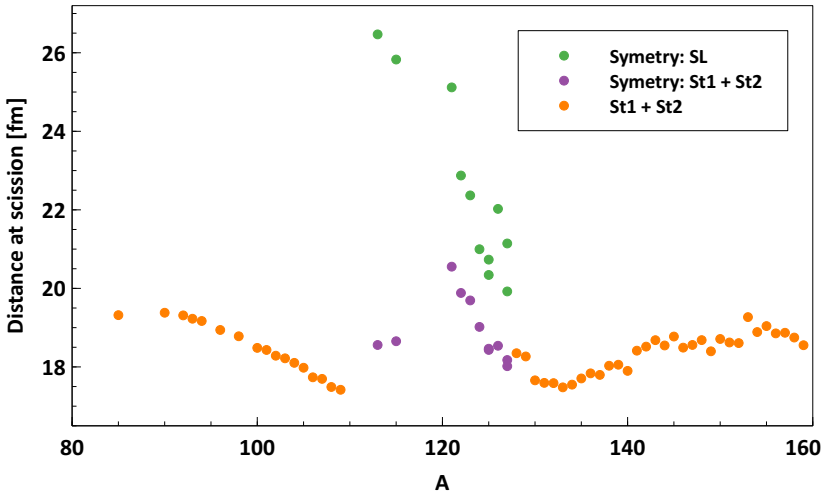


FIGURE 3.38: Distance estimée entre les deux fragments à la scission pour les différents modes (avec $TKE_{pre-sci.} = 0$ MeV) en fonction de la masse du produit de fission mesuré.

TABLEAU 3.6: Distances des deux fragments à la scission estimé à partir de nos mesures, comparés à des publications antérieures.

Mode [fm]	This work $TKE_{pre-sci} = 10$MeV	This work $TKE_{pre-sci} = 0$MeV	Brosa (^{240}Pu*) [73]	Hambsch (^{236}U*) [124]
d(SL)	24,2	22,5	21,4	19,4
d(St1)	18,5	17,5	15,8	16,0
d(St2)	19,8	18,6	16,6	17,5

La distance associée aux modes St1 et St2 présente une évolution régulière, hormis la région de la fission symétrique où nous pouvons attribuer l'évolution importante observée à une estimation approximative de l'énergie moyenne, due à la promiscuité des deux composantes dans les distributions en énergie cinétique. Nous pouvons aussi voir que la distance minimale associé au St1 et St2 se trouve pour les lourds autour des masses 133 et 134. Ceci correspond bien (en considérant l'émission neutrons) à une masse pré-émission proche des masses 136-137 sur lesquelles est centré le St1, qui est donc plus court que le St2. L'énergie associée au mode SL quant à elle, donne bien sûr lieu à une distance à la scission plus important.

Le tableau 3.6 regroupe les valeurs moyennes de d obtenues en les comparant à des travaux antérieurs sur d'autres systèmes fissionnant (de tels résultats pour le ^{242}Pu* n'existent pas dans la littérature). Afin d'illustrer l'impact de $TKE_{pre-sci.}$, deux cas ont été choisis, avec $TKE_{pre-sci.} = 0$ MeV et $TKE_{pre-sci.} = 10$ MeV. Nous pouvons apprécier le relatif bon accord entre nos mesures et les données expérimentales ou théoriques disponibles.

Il faut garder à l'esprit cependant que ces interprétations se font sur des distributions post-émission particules promptes, ce qui relativise nos résultats et permet peut-être d'expliquer les différences avec les travaux précédents.

3.4.3 Comparaison des résultats de LOHENGRIN aux données évaluées

Pour le ^{239}Pu, les résultats sont comparés à JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.1. Rappelons que notre intérêt pour cet actinide est en particulier le rendement de la masse 134, qui présente un fort désaccord entre les deux bibliothèques et qui est d'intérêt pour les applications. Ces résultats, présentés sur la figure 3.39, ont été publiés dans [125] avec d'autres résultats obtenus sur LOHENGRIN pour ^{239}Pu(n_{th},f). La matrice de covariance est visible sur la figure 3.40. Nous observons que les rendements sont différents de ceux de JEFF-3.1.1 ou ENDF/B-VII.1, du fait notamment de la structure importante que nous observons autour des masses 140 à 143 et qui change complètement la normalisation. Le

rendement de la masse 134 que nous obtenons est au même niveau que la masse 135, comme le propose ENDF/B-VII.1. Sur l'ensemble des masses, l'incertitude finale est en dessous de 5%, bien en deçà des incertitudes de JEFF-3.1.1 ou ENDF/B-VII.1.

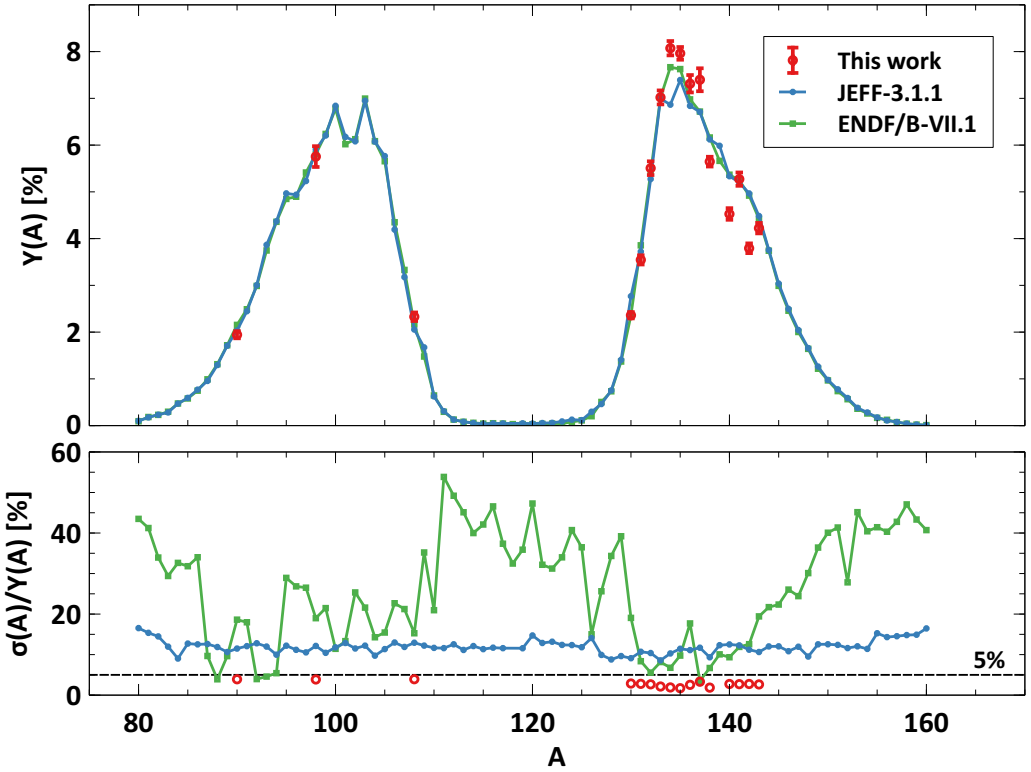


FIGURE 3.39: Rendements en masse de ^{239}Pu(n_{th},f), normalisés à la somme de JEFF-3.1.1 sur les masses mesurées (en haut) et leurs incertitudes relatives (en bas), comparés à JEFF-3.1.1 (en bleu) et ENDF/B-VII.1 (en vert).

Les rendements obtenus sur le ^{241}Pu sont présentés et comparés à JEFF-3.3 et ENDF/B-VII.1 sur la figure 3.41 avec un zoom sur les régions symétrique et très asymétrique sur la figure 3.42. La matrice de covariance est visible sur la figure 3.43. Pour les deux bibliothèques, nous obtenons des rendements plus importants sur le pic léger ainsi qu'une structure autour de la masse 140. Les incertitudes que nous produisons sont bien en deçà de celles présentes dans les évaluations, à de rares exceptions près et de manière générale, sous les 5%. Si nous nous concentrons sur les régions à bas rendements, figure 3.42, nous observons un bon accord à ENDF/B-VII.1 pour les masses très lourdes, là où JEFF-3.3 se trouve bien au-dessus. Nos résultats dans la région symétrique en revanche, se trouvent entre les deux évaluations, mais tout de même plus proche de ENDF/B-VII.1. Sur cette figure 3.42, nous faisons aussi apparaitre sous la forme d'un bandeau les résultats sans décontamination (valeur haute) et à la décontamination maximale (valeur basse) qui peuvent être obtenus avec nos données afin de donner une idée de la latitude de notre démarche de décontamination.

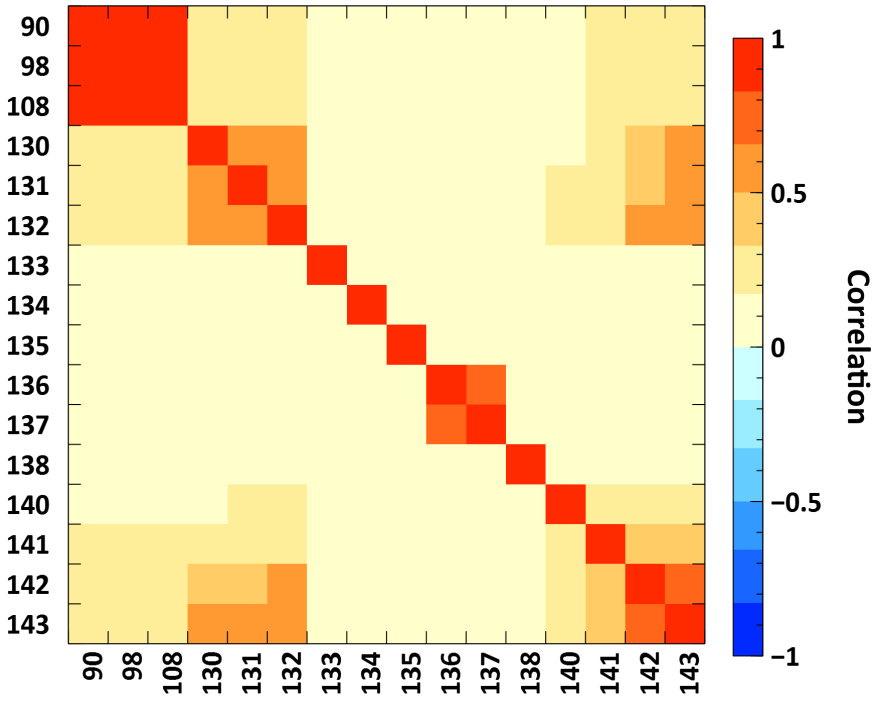


FIGURE 3.40: Matrice de corrélation pour les rendements de ^{239}Pu(n_{th},f).

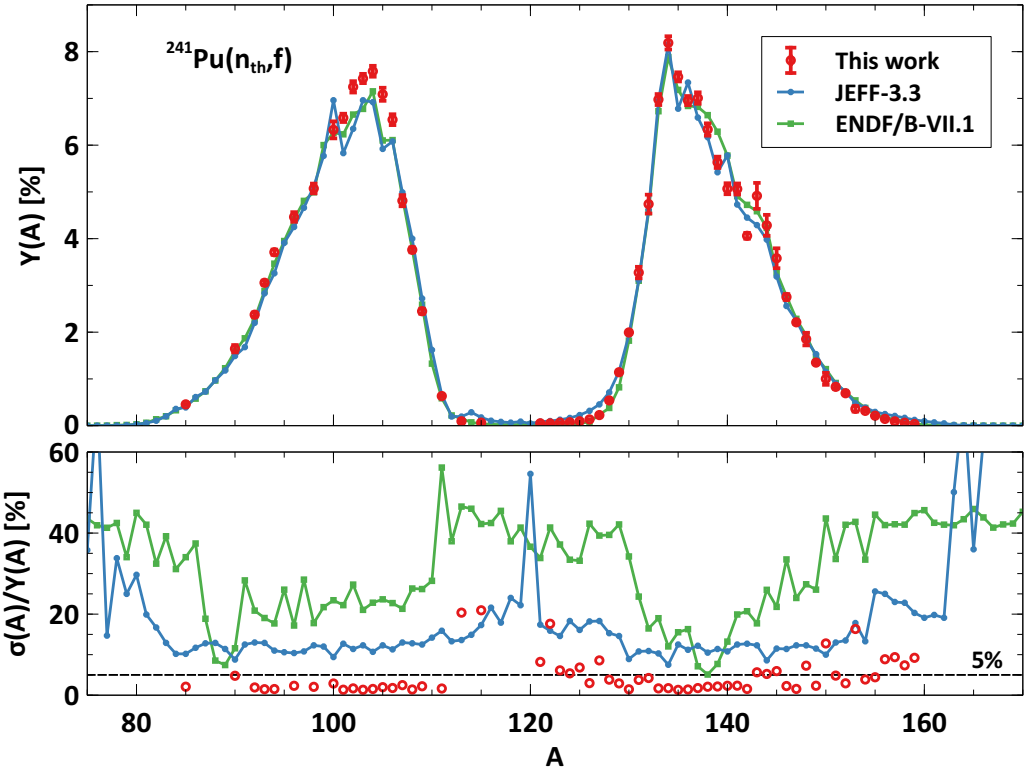


FIGURE 3.41: Rendements en masse de ^{241}Pu(n_{th},f) (en haut) et leurs incertitudes relatives (en bas), comparés à JEFF-3.3 (en bleu) et ENDF/B-VII (en vert).

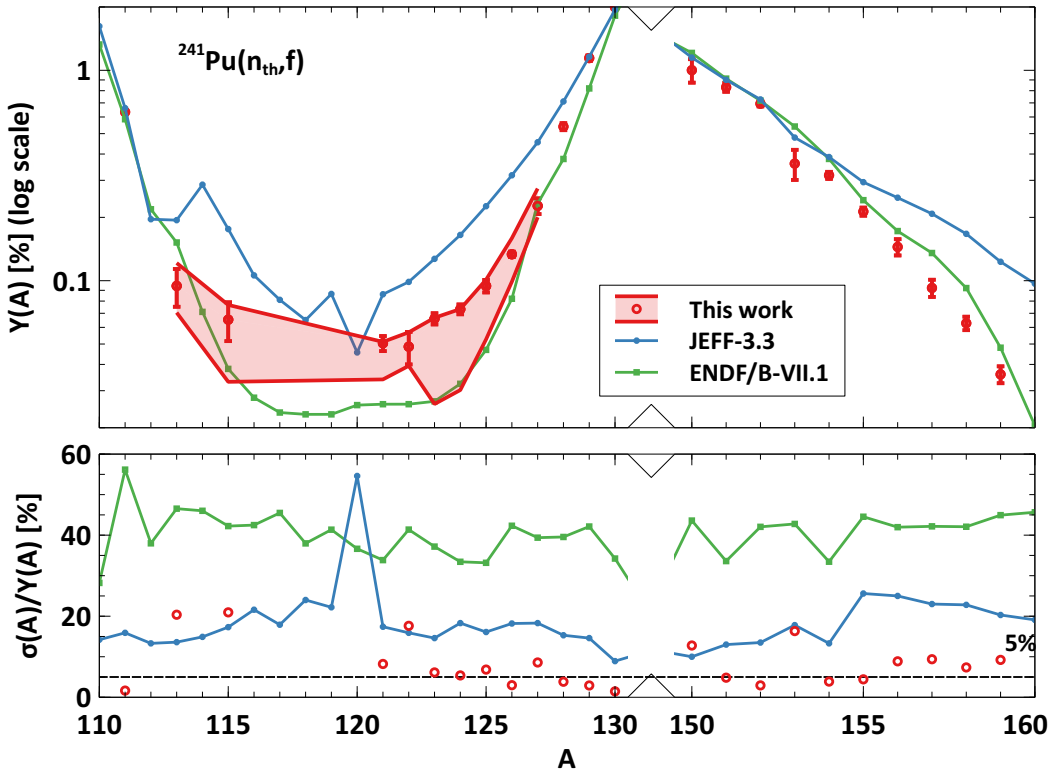


FIGURE 3.42: Zoom sur la région de la fission asymétrique et très asymétrique, pour les rendements en masse de ^{241}Pu(n_{th},f) (en haut) et leurs incertitudes relatives (en bas), comparés à ENDF/B-VII et JEFF-3.3. Le bas du bandeau rouge correspond au minimum de décontamination possible, le haut si aucune contamination n'est considérée.

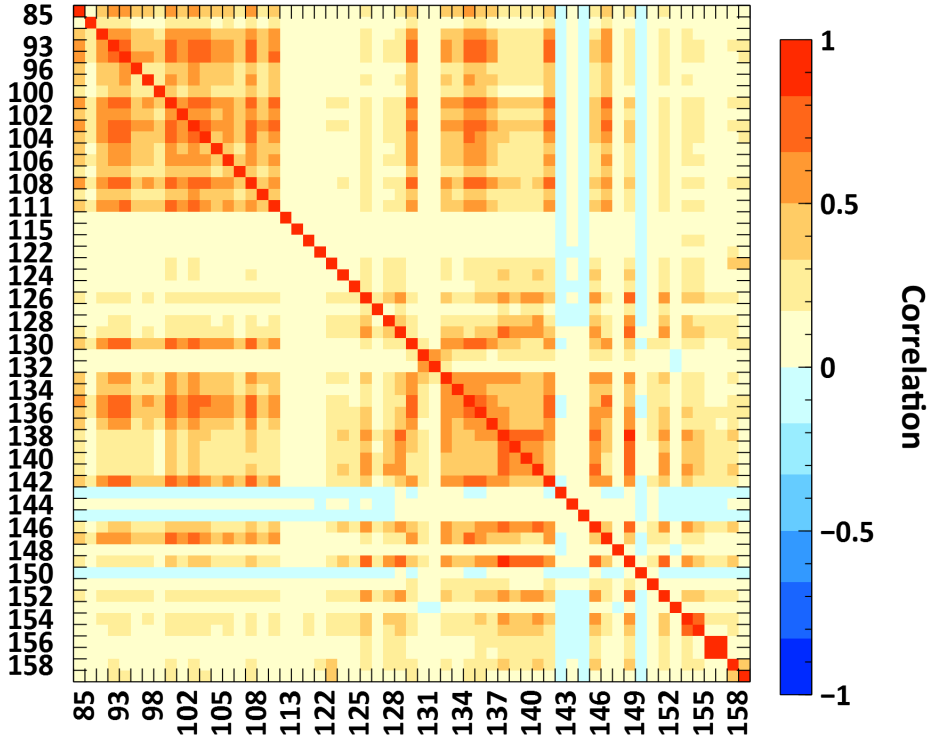


FIGURE 3.43: Matrice de corrélation pour les rendements de ^{241}Pu(n_{th},f).

Nous pouvons aussi nous comparer à GEF et à FIFRELIN, comme cela est présentée sur la figure 3.44. Si nous interprétons ces comparaisons en termes de modes de fission, nous pouvons voir que GEF présente un mode symétrique une décade plus faible que nos expérience. C'est ce que nous retrouvons dans les rendements de FIFRELIN, qui utilisent les rendements pré-émission neutrons de GEF.

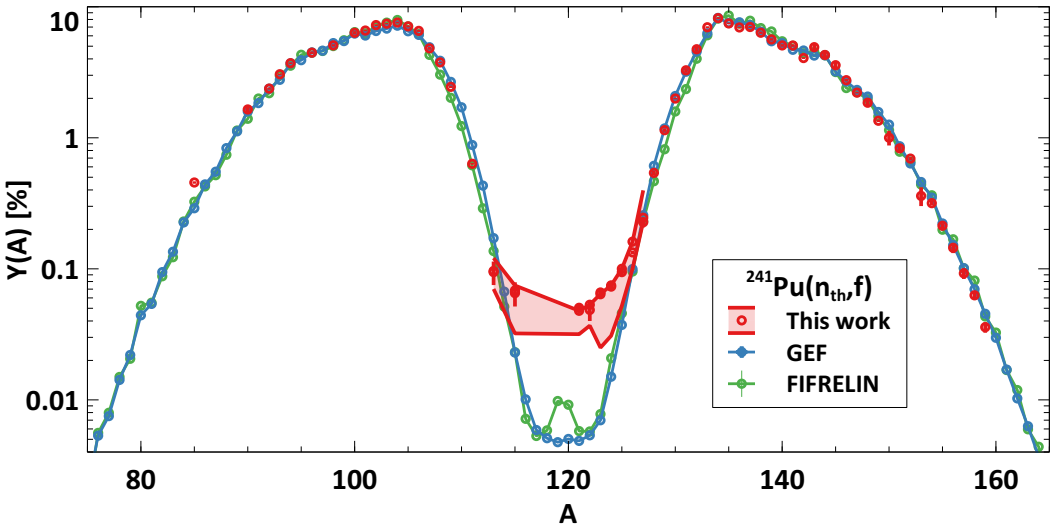


FIGURE 3.44: Rendements en masse de ^{241}Pu(n_{th},f), comparés à GEF et à FIFRELIN. Le bas du bandeau rouge correspond au minimum de décontamination possible, le haut si aucune contamination n'est considérée.

Si nous comparons la région des masses lourdes autour de la masse 140, nous voyons qu'à la fois sur le ^{239}Pu et le ^{241}Pu nous mesurons une structure qui n'est pas présente dans JEFF-3.1.1 ou JEFF-3.3 ni ENDF/B-VII.1. Est-ce une région de masse qui se confronte aux limites de notre méthode de mesure et d'analyse ?

Limite : le cas de la masse 142

En utilisant qu'une seule distribution en charge ionique au cours de notre analyse, nous faisons l'hypothèse que la forme de la distribution en charge change peu en fonction de l'énergie cinétique et qu'elle est suffisamment corrigée par la prise en compte des corrélations (E_k, q). Pourtant, si nous observons les distributions en charge ionique pour la masse 142 issue de la réaction ^{241}Pu(n_{th}, f) faites durant les expériences de Mai 2013 et Novembre 2015 nous pouvons voir une évolution très forte de la distribution en charge ionique, selon l'énergie cinétique sélectionnée par LOHENGRIN. Ces distributions sont montrées à gauche et au milieu de la figure 3.45 et sont comparées aux données de A. D. Belyaev [126], à droite, pour la même observable.

Les différences de mesures et de cibles rendent ces distributions difficilement comparables [17]. Mais, nous voyons pour les deux expériences au moins deux contributeurs qui semblent émerger, avec un poids dépendant de l'énergie cinétique.

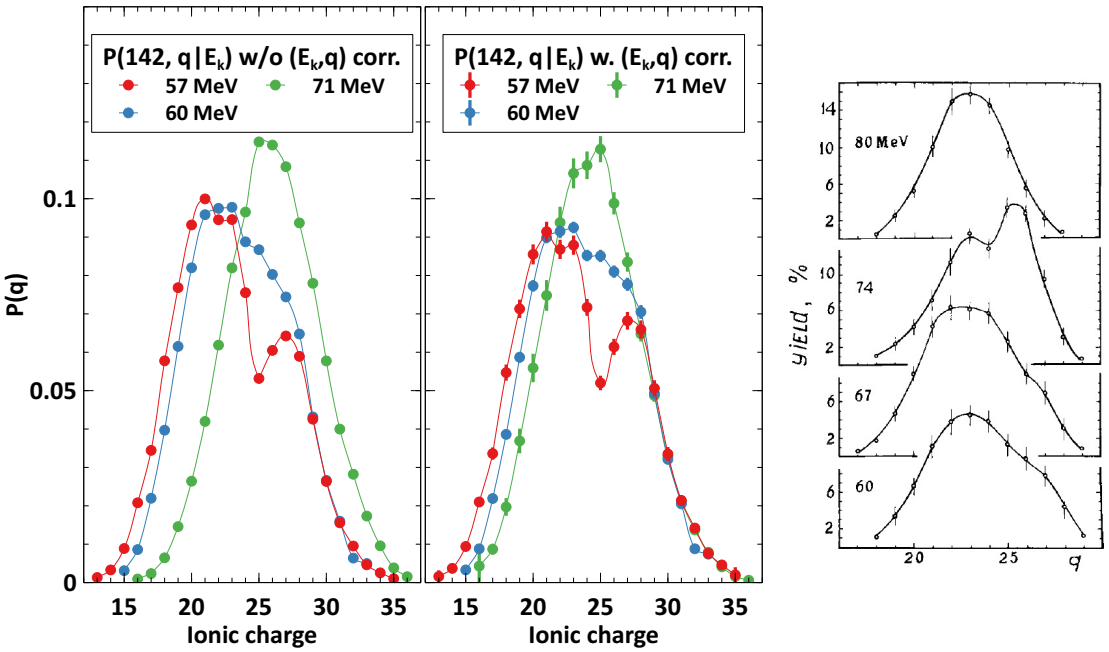


FIGURE 3.45: Distribution en charge ionique de la masse 142 du ^{241}Pu à 57 et 71 MeV pour l'expérience de Mai 2013 et à 60 MeV pour Novembre 2015, sans prise en compte des corrélations (E_k, q) (à gauche) et avec leur prise en compte (à droite), comparé à la même observable, obtenue par A. D. Belyaev [126] (à droite).

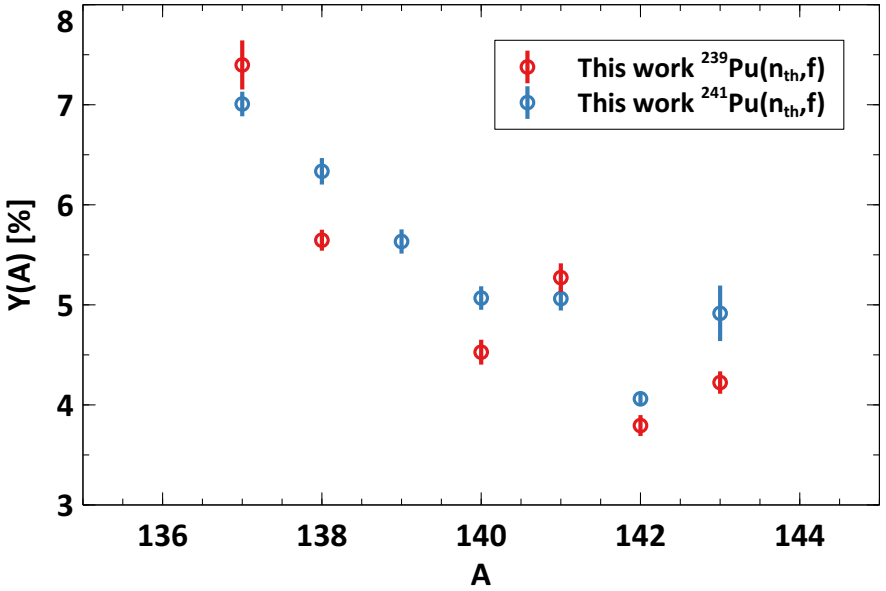


FIGURE 3.46: Rendements obtenus autour de la masse 140 pour le ^{239}Pu (en rouge) et le ^{241}Pu (en bleu).

17. Les pertes d'énergie sont différentes, ainsi, les valeurs des énergies sélectionnées ne sont pas comparables.

Sachant que nous voyons la même tendance des rendements autour de la masse 140 pour les résultats sur le ^{239}Pu et le ^{241}Pu (voir la figure 3.46), nous pouvons légitimement émettre un doute. Est-ce un biais de notre méthode d'analyse, qui ne prend pas en compte la dépendance des isomères nanosecondes en fonction de l'énergie cinétique, ou une structure qui n'a pas été vu sur les expériences précédentes et qui est découverte grâce aux améliorations apportées au cours des thèses récentes sur LOHENGRIN ? Comme nous le voyons pour la masse 142, les hypothèses faites pour corriger des corrélations (E_k, q) sont trop éloignées de la réalité et nous ne pouvons pas exclure la possibilité d'un biais conséquent pour cette zone de masses.

3.5 Conclusions

Nous avons présenté, au cours de ce chapitre, le spectromètre de masse LOHENGRIN et ses principales caractéristiques. Nous avons ensuite vu comment, à l'aide d'une chambre d'ionisation, les rendements en masse pour les réactions de ^{239}Pu(n$_{th}$,f) et ^{241}Pu(n$_{th}$,f) sont obtenus.

L'analyse menée sur la cible de ^{239}Pu illustre l'importance de la préparation des cibles sur la qualité des données récoltées. Des résultats ont pu en être tirés mais au prix d'hypothèses importantes et d'un travail plus fastidieux. Néanmoins, nous avons pu proposer de nouvelles valeurs expérimentales avec des incertitudes plus basses que les évaluations.

Grâce à la combinaison de deux expériences sur l'étude de ^{241}Pu(n_{th}, f), nous avons pu proposer une mesure absolue des rendements du pic lourd et d'une partie non négligeable du pic léger. Là encore les incertitudes obtenues sont bien en deçà de celles présentes dans les évaluations.

Pour la décontamination des bas rendements, nous avons vu que de fortes hypothèses ont été nécessaires. Sans une meilleure estimation de la probabilité de changement de charge, les décontaminations ne peuvent se faire plus précisément. Malgré ces hypothèses, nous avons vu que pour les masses asymétriques, deux contributions parfaitement séparées sont observées sur les distributions en énergie cinétique, qui ne proviennent pas de contaminations. Ces contributions présentent une évolution en fonction de la masse intéressante, qui peut être interprété en termes de modes de fission. Une expérience similaire faisant intervenir en plus un dispositif de mesure de temps de vol permettrait de confirmer ou d'infirmer ces interprétations.

Enfin, la structure des distributions en charge ionique observée sur la masse 142 est intéressante et pourrait faire l'objet d'une expérience dédiée à la mesure étendue des

distributions en charge et en énergie cinétique pour quelques masses autour de la masse 142. Au vu des incertitudes que nous pouvons atteindre avec LOHENGRIN, nous devons nous assurer qu'aucun biais de mesure ne subsiste.

CHAPITRE 4

ÉTUDE DES RENDEMENTS ISOTOPIQUES ET ISOMÉRIQUES DU ^{241}PU

Sommaire

4.1 Mesure des rendements isotopiques et isomériques auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN 117

4.1.1 Principe de détection des détecteurs Ge et mesure de rendements isotopiques ou isomériques 118

4.1.2 Cibles utilisées 129

4.1.3 Choix des raies γ 129

4.1.4 Principe d'analyse 131

4.2 Normalisation 150

4.2.1 Normalisation relative 150

4.2.2 Normalisation absolue 150

4.2.3 Résumé des étapes d'analyse et des sources de corrélation. . . . 152

4.3 Détermination du rendement résiduel 156

4.4 Extraction de la polarisation de charge 157

4.5 Mesure de la dépendance en énergie cinétique des rendements isotopiques 161

4.5.1 Comparaison à FIFRELIN 163

4.5.2 Discussion sur l'effet pair-impair en fonction de l'énergie cinétique 169

4.6 Discussions et comparaison 173

4.6.1 Comparaison des résultats à JEFF-3.3 173

4.6.2 Ré-analyse des données de ^{233}U 177

4.7 Conclusions 178

La mesure de rendements isotopiques avec une chambre d'ionisation similaire à celle présentée dans le chapitre précédent est faisable avec LOHENGRIN pour les masses légères. Plusieurs publications présentent des rendements isotopiques obtenues pour des masses légères auprès de LOHENGRIN pour différents noyaux fissiles [127; 128]. Cette méthode n'est faisable que pour les masses légères car la différence de perte d'énergie pour les différents isotopes d'une même masse devient inférieure à la résolution de la chambre ($FWHM \simeq 250$ keV) avec des charges nucléaires trop élevées, $Z > 40$. L'utilisation d'absorbeurs passifs permet de monter jusqu'à $Z \simeq 42$ [112].

Si une chambre d'ionisation couplée au spectromètre LOHENGRIN ne permet pas une identification en fonction de la charge nucléaire pour les masses lourdes, il n'est pas pour autant impossible de mesurer des rendements de fission isotopiques avec cet instrument. À travers les rayonnements émis lors de la désexcitation d'un radionucléide, nous avons l'observable discriminante permettant d'identifier un isotope précis.

Pour certains isotopes, il existe des états d'énergie d'une durée de vie suffisante (par rapport au temps de vol dans LOHENGRIN : $TOF_{LOH} \simeq 1 - 2\mu$s) pour être détectés par notre dispositif. Ces états d'énergie métastables sont appelés isomères de l'isotope $^{A}_{Z}X$ notés $^{Am}_{Z}X$, de rendement $Y(A, Z, m)$.

Dans ce chapitre, nous allons présenter les travaux réalisés sur la mesure des rendements de fission isotopiques et isomériques pour certaines masses du pic lourd pour la réaction ^{241}Pu(n$_{th}$,f). En particulier, nous allons voir sur quels principes de détection s'appuient nos mesures et quelles sont les caractéristiques des détecteurs utilisés. Puis, nous exposerons le chemin d'analyse permettant de passer des données brutes aux rendements de fission. Nous décrirons ensuite l'analyse portant sur la dépendance des rendements isotopiques à l'énergie cinétique du produit de fission et la comparaison à FIFRELIN que nous avons mise en place. Enfin, les résultats finaux seront présentés et discutés en fin de chapitre.

4.1 Mesure des rendements isotopiques et isomériques auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN

Nous avons vu dans le chapitre précédent 3 comment est sélectionné un faisceau d'ions avec LOHENGRIN correspondant à un ratio A/q et E_k/q donné. Alors que les rendements en masse sont mesurés en plaçant une chambre d'ionisation sur la position expérimentale 1 dans laquelle entre directement le faisceau ; pour les rendements isotopiques, le faisceau est refocalisé et envoyé vers la position expérimentale 2. C'est à l'aide de détecteurs germanium (Ge) que nous allons mesurer des rendements de fission

isotopiques et isomériques. Cette section vise à expliquer le principe de détection et les étapes d'analyses pour obtenir les rendements de fission.

4.1.1 Principe de détection des détecteurs Ge et mesure de rendements isotopiques ou isomériques

Le faisceau d'ions provenant de LOHENGRIN est tout d'abord refocalisé par l'aimant « RED » [101] (**R**everse **E**nergy **D**ispersion) et les ions sont implantés sur une bande déroulante sous vide, dont l'épaisseur de quelques microns est largement suffisante pour les arrêter en totalité. Cet aimant supplémentaire permet de concentrer le faisceau d'ions et ainsi d'augmenter jusqu'à un facteur 7 le flux d'ions se déposant sur la bande.

La majeure partie des produits de fission sont radioactifs. Riches en neutrons, ils vont décroître par β^-, $(\beta^- n)$ ou transition interne (IT) en peuplant un noyau fils à une certaine énergie d'excitation. Ces décroissances vont être suivies par une cascade de γ dont les énergies sont caractéristiques du schéma de niveaux du noyau fils. Chaque nouveau noyau créé décroitra à son tour jusqu'à atteindre la vallée de stabilité. Ces suites de décroissances sont appelées chaîne de désintégration.

Deux détecteurs germanium à haute pureté (HPGe) sont placés autour de la bande, afin de mesurer les γ de désintégrations, cela est présenté sur la figure 4.1. Nous disposons de deux détecteurs comportant chacun 4 cristaux de Ge disposés en trèfles, ce qui sera à l'origine du nom donnée au détecteur : « clover ». Sur l'un des deux détecteurs, uniquement 2 cristaux sont actifs, ce qui nous laisse au total 6 cristaux Ge et non 8. La détection se fait en même temps que les ions sont déposés sur la bande. Contrairement à d'autres systèmes de détection, la bande déroulante utilisée ici n'a pas pour but d'acheminer les produits de fission devant les détecteurs mais au contraire, comme nous le verrons dans la sous-section 4.1.4.4, d'enlever les ions restants de l'environnement de détection lorsque la mesure est terminée.

En détectant ces raies γ, il est possible de signer la désexcitation du noyau fils et donc la présence sur la bande d'un isotope en particulier (le noyau père). Pour illustrer cela, prenons l'exemple de la masse 140 à travers une partie du schéma de niveaux du ^{140}Cs, présentée sur la figure 4.2. Le schéma de niveaux complet est bien plus fourni [129] mais quelques transitions γ suffiront ici.

Les quatre transitions γ : γ_1, γ_2, γ_3 et γ_4, ont une énergie égale à la différence d'énergie du niveau initial au niveau final. Ces raies sont identifiables sur les spectres obtenus

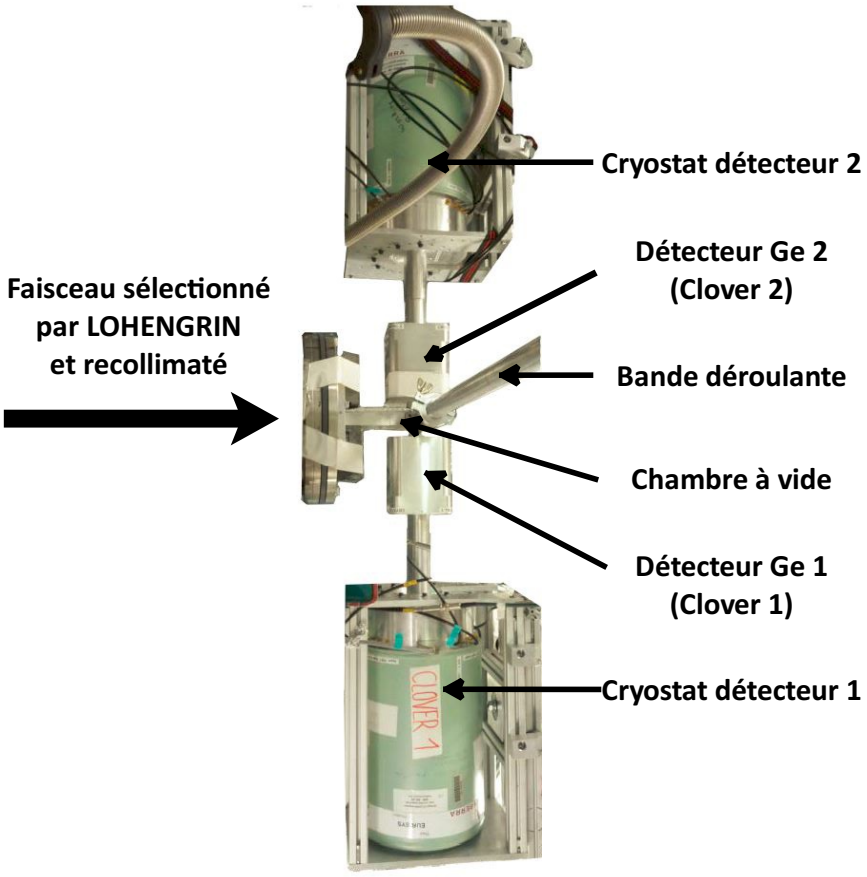


FIGURE 4.1: Présentation de l'agencement des détecteurs germanium : les deux clovers (groupement de 4 cristaux Ge) sont disposés de part et d'autre de la bande sur laquelle sont déposés les produits de fission. La position de chaque détecteur (angle, distance à la bande) peut varier d'une expérience à l'autre. Adapté de [19].

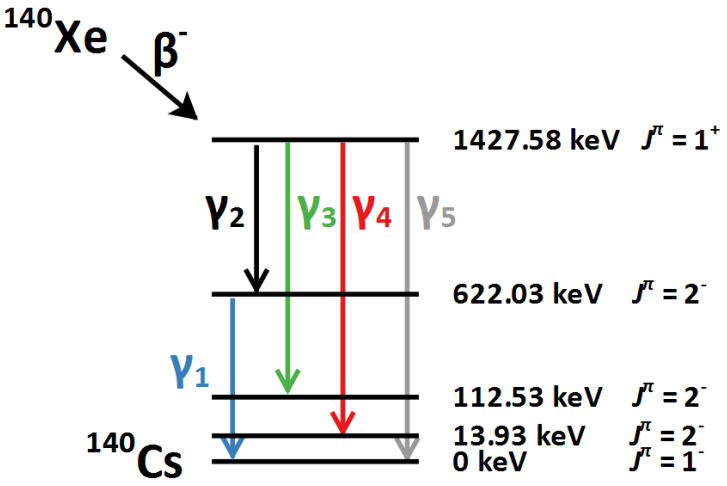


FIGURE 4.2: Quelques niveaux choisis du schéma de niveaux du ^{140}Cs après décroissance du ^{140}Xe par β^- (100%).

par les détecteurs. En utilisant les mêmes couleurs que la figure 4.2, nous observons sur la figure 4.3 ces quatre raies γ.

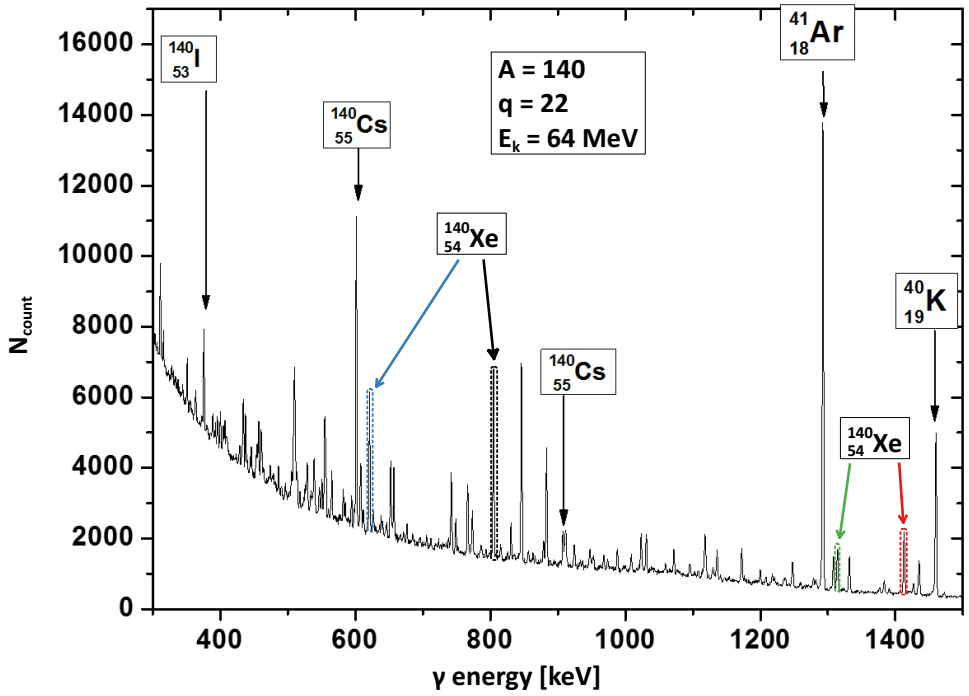


FIGURE 4.3: Visualisation sur un spectre obtenu pour la masse 140 des raies caractéristiques de la décroissance du ^{140}Xe par β^-. Les couleurs des contours de chaque raie sont en accord avec la figure 4.2. Des raies caractéristiques des autres isotopes (^{140}I, ^{140}Cs) de cette masse sont aussi visibles, ainsi que deux raies de l'^{41}Ar et du ^{40}K qui peuvent être utilisées pour la calibration en énergie.

Il est improbable que les schémas de deux isotopes différents présentent les mêmes niveaux d'énergie. Ainsi, même avec un bruit de fond ambiant conséquent (aux alentours de 200 Hz) et si plusieurs masses sont sélectionnées par LOHENGRIN (satisfaisant les ratios A/q et E_k/q), chacune comprenant plusieurs isotopes, connaître certaines énergies caractéristiques d'un isotope nous permet de signer sa décroissance, en principe, sans ambiguïté. Exception faite pour les chaînes présentant des états métastables, mais nous reviendrons sur ce point dans la section 4.1.4.3.

Tout isotope n'est malheureusement pas détectable avec un tel principe. Si sa demi-vie est faible devant le temps de vol dans LOHENGRIN, de l'ordre de 2 μs, il aura décru avant d'arriver devant nos détecteurs. Si elle est trop longue devant le temps de mesure (typiquement quelques dizaines de minutes), trop peu d'évènements se produiront pour obtenir un signal exploitable. Même si ces mesures sont plus longues qu'avec la chambre d'ionisation, des isotopes ayant une durée de vie supérieure à quelques heures ne sont pas mesurables. De même, les isotopes trop peu produits par la fission ne donnent pas lieu à un signal exploitable.

Nous verrons qu'à certaines occasions, la connaissance partielle du schéma de structure nucléaire des noyaux qui nous intéressent est une restriction supplémentaire.

4.1.1.1 Les détecteurs Ge

Une partie des raies γ produites vont interagir avec les cristaux Ge par effet photoélectrique, diffusion Compton ou production de paires e^+/e^-. Lors de ces interactions, le photon incident va déposer de l'énergie dans le Ge et créer des paires électron-trou (e^- h^+), qui, comme pour les paires électrons-ions de la chambre d'ionisation, vont être collectées. Il y a deux moyens pour la raie γ incidente de déposer son énergie totale : par effet photoélectrique ou par l'enchaînement de plusieurs diffusions Compton suivit d'un effet photoélectrique (les cristaux Ge étant suffisamment grands). Dans le reste de ce travail le terme de photoélectrique désignera l'énergie totale, englobant le multi-Compton suivit d'un effet photoélectrique (notamment lorsque nous discuterons de l'efficacité).

Le Ge est un semi-conducteur, il possède une bande de conduction et une bande de valence espacées de quelques dixièmes d'eV (« gap »). Pour le Ge pur, $E_{gap} = 0,67$ eV à 302 K [130]. L'énergie déposée par la raie γ lors de son interaction avec un e^- (électron primaire) va permettre la transition d'électrons de la bande de valence à la bande de conduction et créer des paires de porteurs de charges libres (e^- h^+ secondaires), voir le schéma de principe sur la figure 4.4. Ces porteurs de charge libres peuvent alors être collectés sous l'action d'un champ électrique. Le signal électrique produit par les électrons collectés à l'anode et les trous collectés à la cathode, sera proportionnel à l'énergie du gamma incident. Dans toute cette approche, l'énergie de liaison de l'électron primaire (quelques eV) est négligée.

Afin de favoriser la collection de charge, une zone de déplétion de charges (ou zone de charges d'espace) est créée au contact entre une zone dopée P et N (jonction PN) afin d'éviter les recombinaisons. En introduisant des impuretés riches (éléments pentavalents) ou pauvres (éléments trivalents) en électrons, le semi-conducteur se voit enrichi de porteurs de charges libres (électron ou trou) et en ions de charge opposée. Lorsque ces porteurs de charges sont des électrons, le dopage est dit N et P lorsqu'il s'agit de trou (lacune d'électron). A la jonction PN, les charges libres diffusent d'une zone vers l'autre et un champ électrique apparait. Ces deux phénomènes s'équilibrent et une zone sans porteurs de charge est créée.

Pour ne pas perturber le signal, il est aussi nécessaire que l'énergie d'agitation thermique ne soit pas suffisante pour permettre à un électron de passer dans la bande de conduction. Pour limiter ce phénomène, les détecteurs sont refroidis à l'azote liquide à une température de 77 K.

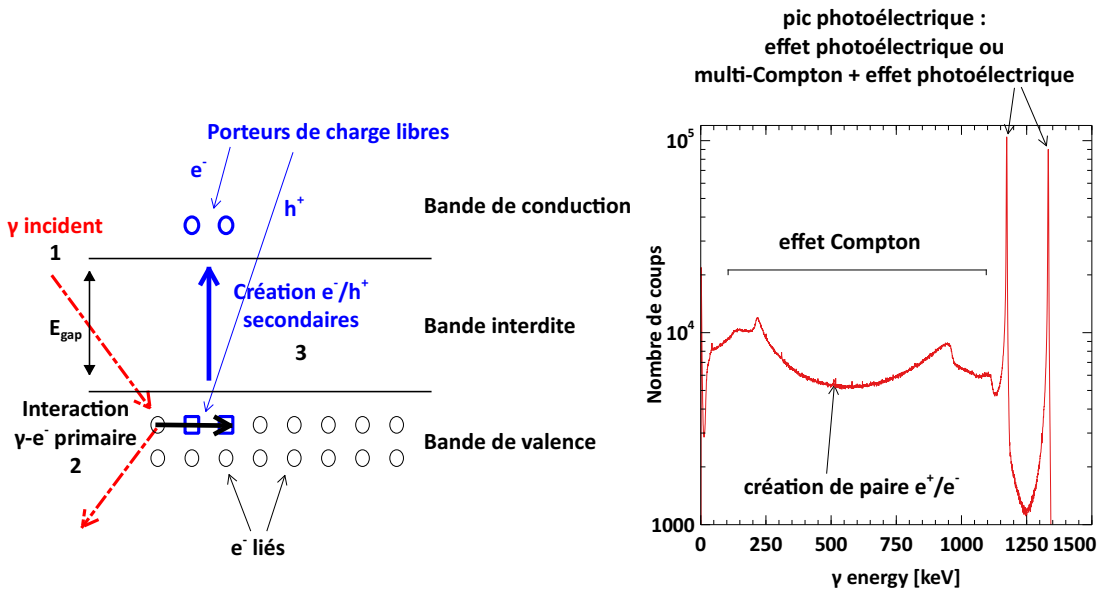


FIGURE 4.4: Schéma de principe de la détection d'une raie γ avec un détecteur à semi-conducteur (à gauche). Un spectre typique obtenu pour une source de ^{60}Co (à droite).

Le nombre de porteurs de charge libre créés pour un détecteur à semi-conducteur est bien plus important que pour une chambre d'ionisation, où l'énergie nécessaire pour créer une paire de porteurs de charge est l'énergie d'ionisation d'un gaz, typiquement de l'ordre de la dizaine d'eV. Pour l'isobutane, C_4H_{10}, l'énergie de première ionisation est de $E_i^1 = 10,6$ eV [131]. En créant plus de porteurs de charge, une meilleure résolution de l'énergie mesurée est atteinte, à condition cependant que la collection de charge se fasse correctement. La résolution d'un détecteur peut se définir de plusieurs manières, une manière courante est la résolution à mi-hauteur. Pour un pic à l'énergie E d'écart-type σ_E elle s'écrit :

$$R_{FWHM} = 2\sqrt{2\ln 2} \cdot \frac{\sigma_E}{E} \tag{4.1}$$

Suivant cette définition, pour une source de ^{60}Co à 840 Bq, la résolution obtenue sur une demi-heure d'acquisition pour l'ensemble des cristaux Ge [1] est de 0,46% à 1173,3 keV ($\sigma_E = 2,3$ keV) et de 0,42% à 1332,5 keV ($\sigma_E = 2,4$ keV). Cette résolution est parfois limitante sur l'extraction des taux de comptage mais est suffisante pour la majorité des raies γ exploitées.

1. Lorsque les spectres de tous les cristaux sont regroupés en un seul spectre.

4.1.1.2 Efficacité des détecteurs

L'efficacité d'un détecteur est le rapport entre le nombre d'événements détectés et le nombre d'événements ayant réellement lieu. L'efficacité totale est la somme des trois interactions possibles :

$$\epsilon_{\gamma}^{tot} = \epsilon_{\gamma}^{ph} + \epsilon_{\gamma}^{Compton} + \epsilon_{\gamma}^{e^+/e^-} \tag{4.2}$$

En particulier, nous nous intéressons pour nos mesures à l'efficacité photoélectrique, c'est à dire le rapport entre le nombre d'évènement détectés par effet photoélectrique et le nombre d'événements ayant réellement lieu. Dans nos analyses, nous extrayons le nombre de coups total apparaissant à l'énergie du γ considéré, comme cela sera illustré dans la sous-section 4.1.4.1. Dans le reste du document, sauf contre-indication, lorsqu'est utilisé le terme « efficacité », nous nous referons à l'efficacité photoélectrique.

L'efficacité de chaque cristal Ge est le produit de son efficacité géométrique, dépendant de l'agencement des cristaux à l'intérieur du détecteur et des détecteurs autour de la bande et de son efficacité intrinsèque, découlant des sections efficaces d'interaction. Nous avons tout d'abord recours à une simulation Monte Carlo obtenue avec MCNP [132] qui nous fournit l'efficacité relative des détecteurs. Ce travail a été fait par F. Martin au cours de sa thèse [19].

Cependant, la géométrie utilisée pour la simulation n'est pas exactement reproduite lors des mesures expérimentales. Chaque cristal ne « verra » pas la bande sur laquelle est déposé le faisceau de la même manière, l'angle solide sera différent. Il faut aussi considérer l'anisotropie de l'émission des raies γ [133].

Ces deux phénomènes géométriques sont pris en compte en analysant, cristal par cristal, les raies γ d'une mesure de calibration avec une source de ^{60}Co. Les paramètres géométriques (distance entre chaque détecteur et la bande déroulante, distance entre les détecteurs, angle entre l'axe de chaque détecteur et la bande, etc) sont testés afin de reproduire au mieux les efficacités relatives obtenues à partir des 6 spectres du ^{60}Co (un pour chaque cristal). Nous connaissons ainsi les distances des détecteurs par rapport à la bande déroulante, qui sont difficilement mesurables lors de l'expérience et connues qu'approximativement. Grâce à cela, l'angle solide de chaque cristal peut être calculé, selon la disposition des détecteurs Ge. La prise en compte de ces deux effets nous permet d'obtenir l'efficacité absolue du détecteur pour les raies du ^{60}Co qui vont nous permettre de normaliser l'efficacité des détecteurs obtenues avec MCNP. L'efficacité absolue nous sera utile pour calculer l'effet de somme que nous aborderons plus loin.

L'efficacité à basse énergie obtenue par MCNP est particulièrement sensible aux dimensions du détecteur. Notamment à l'épaisseur du capot d'aluminium qui protège

les cristaux de Ge et atténue fortement les raies de faibles énergies et à la disposition des cristaux à l'intérieur du détecteur. Cependant, comme c'est une région où se mêlent un bruit de fond important et un rayonnement X fourni, nous ne considérons généralement pas les raies γ en dessous d'une centaine de keV.

De manière générale, les efficacités aux différentes énergies sont principalement déterminées par une poignée de paramètres géométriques (épaisseur du capot d'aluminium, distance entre le capot et les cristaux, etc). Cela a pour effet de corréler fortement les efficacités entre elles. Si un paramètre comme la distance entre le capot du détecteur et le cristal est changé, cela changera l'efficacité géométrique de manière quasi identique pour chaque énergie. Cet effet a notamment été mis en évidence lors du stage de Master 2 de Franco Quinteros qui portait sur l'efficacité de détecteurs Ge à large spectre d'énergie (BeGe pour Broad Energy Germanium Detector). Ce travail a montré que la matrice de corrélation des efficacités était très proche d'une matrice unitaire. Pour l'efficacité des Ge utilisée au cours de cette thèse, c'est l'hypothèse qui a été retenue.

Pour estimer les incertitudes de cette efficacité simulée, la simulation est comparée aux résultats expérimentaux sur des sources de calibrations : ^{133}Ba et ^{207}Bi, ainsi que sur des isotopes de référence : ^{134}Te, l'^{96}Y (obtenus avec le faisceau de LOHENGRIN). Avec 2% d'incertitudes sur la simulation (en plus de l'incertitude statistique de MCNP qui est faible devant 2%), nous obtenons un χ^2 satisfaisant à 90% lorsque nous comparons les valeurs expérimentales à la simulation pour chaque isotope. Cette comparaison est présentée sur la figure 4.5.

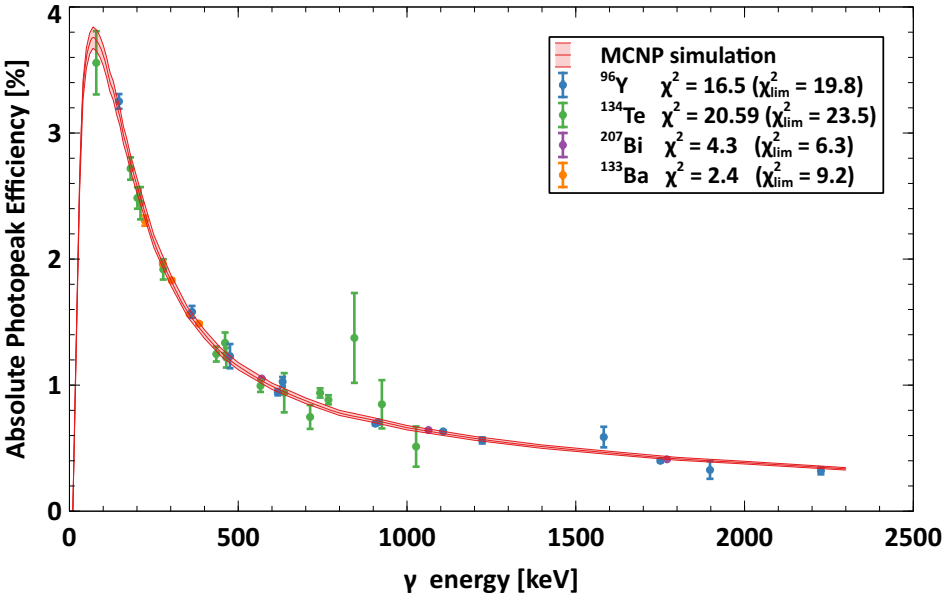


FIGURE 4.5: Courbe de l'efficacité photoélectrique absolue des détecteurs germanium en fonction de l'énergie du γ incident. En rouge, la simulation, en bleu, vert, orange et violet, les valeurs expérimentales, normalisées à la simulation. Les incertitudes pour la simulation sont de 2%.

Enfin, l'efficacité du détecteur aux énergies des γ que nous considérons est calculée par extrapolation linéaire entre les points Monte Carlo en prenant une incertitude de 2%, avec une matrice de corrélation unitaire comme nous venons de le voir.

4.1.1.3 Effet de somme

Maintenant que l'efficacité est définie, il est important de considérer l'effet de somme pour chaque raie γ étudiée. L'effet de somme est la prise en compte d'une possible coïncidence entre deux raies γ d'un même isotope que le détecteur ne pourrait pas distinguer. Ce phénomène peut avoir deux effets :

- Surévaluer la production d'un pic, si des niveaux d'énergie existent entre les deux niveaux du γ souhaité. Dans ce cas, la somme de γ des niveaux intermédiaires peut-être égale à l'énergie du γ considéré. S'ils sont détectés en même temps, un événement sera alors compté en trop à l'énergie considérée, voir l'exemple sur la figure 4.2, $E_{\gamma_5} = E_{\gamma_1} + E_{\gamma_2}$, γ_5 est surévalué.
- Sous-évaluer la production d'un pic, si le γ que nous souhaitons mesurer arrive en coïncidence avec un autre γ, l'énergie enregistrée par le détecteur sera la somme des deux γ et un évènement sera perdu (pour le même exemple, γ_1 et γ_2 sont sous-évalués).

Le facteur correctif sera supérieur à 1 si le premier effet est dominant et inférieur à 1 sinon.

La fréquence de désintégration étant faible comparée au temps de réponse du détecteur, l'empilement (pile-up) des raies entre deux isotopes différents est négligeable. Il en va de même pour les coïncidences avec le bruit de fond.

Un exemple très classique de l'effet de somme est visible sur le spectre du ^{60}Co présenté sur la figure 4.6. Pour cet isotope, deux raies très intenses sont attendues à 1332,5 et 1173,2 keV, mais une troisième raie est visible à 2505,7 keV, alors que cette transition est très peu probable ($I_\gamma = 2,0 \cdot 10^{-6}\%$). La grande majorité des évènements de ce pic sont en fait des coïncidences des deux raies à 1332,5 et 1173,2 keV. Nous voyons que pour une source de haute activité, le pic à 2505,7 keV est bien visible mais les pics à 1332,5 et 1173,2 keV sont très élargis et asymétriques. Cette situation ne correspond pas aux conditions expérimentales, plus proches du cas d'une source de basse activité, où les pics sont bien définis. Dans ce cas, les pics sont proches d'une gaussienne et le pic à 2505,7 keV est très faible [2].

2. C'est pour cette raison que les spectres de Co de calibration sont faits avec une source à haute activité, l'intégrale du pic de coïncidence nous permet de vérifier la géométrie des détecteurs.

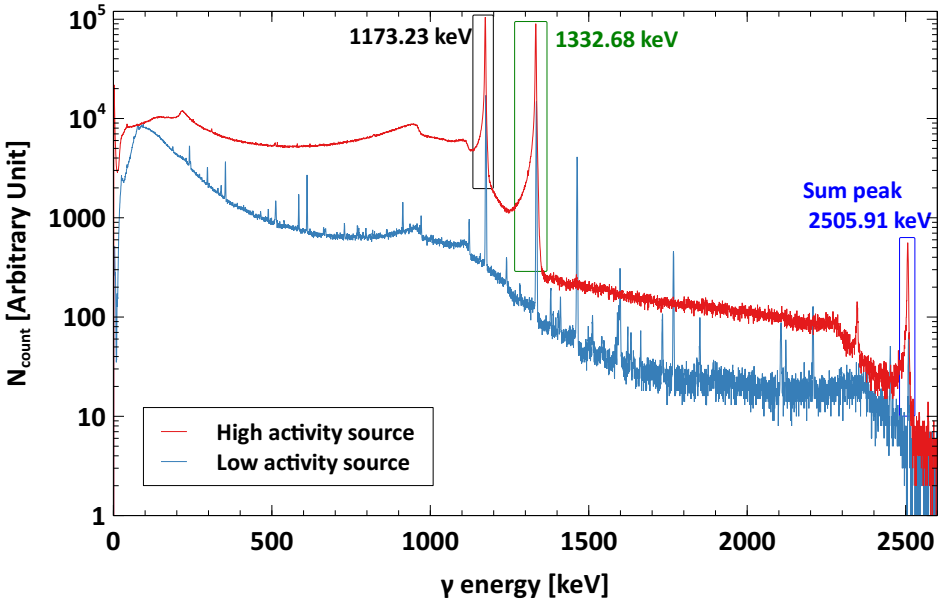


FIGURE 4.6: L'effet de somme à travers l'exemple d'un spectre du ^{60}Co obtenu durant l'expérience de 2013 avec une source de Co de haute activité (en rouge) et de basse activité (en bleu).

Le logiciel TrueCoinc [134] est utilisé pour calculer pour chaque isotope et énergie γ le facteur de correction f_γ. Cet effet dépend de l'efficacité absolue du détecteur : l'efficacité photoélectrique et l'efficacité totale.

- L'efficacité photoélectrique, ϵ_γ^{ph}, est la probabilité de détecter la raie γ incidente par son interaction par effet photoélectrique (et multi-Compton).
- L'efficacité totale, ϵ_γ^{tot}, est la probabilité de détecter le γ incident par son interaction par effet photoélectrique, effet Compton ou création de paires.

TrueCoinc a aussi besoin du schéma de niveaux de l'isotope pour connaître les différents γ émis et leurs intensités. Ces données sont prises dans les fichiers évalués de structure nucléaire ENSDF [3] [135].

Pour donner une idée de comment est calculé f_γ, reprenons l'exemple de ^{60}Co dont les deux pics à 1173,23 et 1332,5 keV sont sous-évalués à cause de l'effet de somme ($f_\gamma < 1$) et dont le pic à 2505,7 keV est surévalué ($f_\gamma > 1$). Pour une source de ^{60}Co d'activité A_{60} mesurée pendant un temps t, si aucune coïncidence n'est possible (si la source est très loin du détecteur ou que l'activité est très faible), le nombre de γ mesurés dans le pic à 1173,2 keV, d'intensité I_{1773}, est :

$$N_{1173} = A_{60} \cdot t \cdot \epsilon_{1173}^{ph} \cdot I_{1173} \tag{4.3}$$

3. Evaluated Nuclear Structure Data File

Mais cette raie γ détectée par effet photoélectrique peut être en coïncidence avec une raie de 1332,5 keV, d'intensité I_{1332}. Cet évènement a une probabilité $\epsilon^{ph}_{1173} \cdot \epsilon^{tot}_{1332}$. Le nombre de γ mesuré dans le pic à 1173,2 keV devient :

$$N_{1173} = A_{60} \cdot t \cdot \epsilon^{ph}_{1173} \cdot I_{1173} \cdot (1 - \epsilon^{tot}_{1332}) \cdot I_{1332} \tag{4.4}$$

Nous touchons du doigt le principe de ce type de calcul, assez direct dans un cas simple où seulement trois raies sont étudiées. Mais pour un schéma de niveaux plus compliqué mettant en jeux de nombreuses raies, ces phénomènes se complexifient. Des détails sur comment est calculé le facteur de correction d'effet de somme (en gain ou perte) pour des schéma de niveaux plus complexes sont donnés dans [134].

Calculer pour chaque cristal le facteur correctif de chaque raie γ étudiée s'avère lourd. Nous allons donc vérifier que l'effet de somme n'est pas dépendant du cristal Ge pour n'avoir à le calculer qu'une seule fois. Prenons comme exemple les raies γ étudiées pour la masse 139. Pour chaque raie, cinq calculs de f_γ sont effectués :

- Pour l'ensemble des cristaux.
- Pour les cristaux proches de la bande déroulante et ayant une forte efficacité.
- Pour les cristaux loin de la bande déroulante et ayant une faible efficacité.
- Pour les cristaux proches avec une efficacité augmentée de son écart-type σ_ϵ (2%).
- Pour les cristaux proches avec une efficacité diminuée de son écart-type σ_ϵ (2%).

Les résultats des trois premiers calculs sont résumés sur la figure 4.7.

Nous pouvons voir que la correction de l'effet de somme tend vers 1 pour les cristaux dont l'efficacité est très faible. Cela est facilement compréhensible puisque, le nombre de γ atteignant le détecteur étant très réduit, il y a peu de chance d'avoir des coïncidences. Bien que cet effet de somme soit différent des cristaux à haute efficacité, cela n'a que très peu d'impact puisque les cristaux les plus loin de la bande ne participent presque pas à l'efficacité totale. Comme nous pouvons le constater, l'effet de somme de l'ensemble des détecteurs est quasiment égal à l'effet de somme pour les cristaux à haute efficacité.

De plus, en comparant l'effet de somme obtenue à $\pm 1\sigma$, nous pouvons calculer la sensibilité de l'effet de somme à l'efficacité :

$$S_{f_\gamma,\epsilon^{ph}_\gamma} = \frac{\partial f_\gamma}{\partial \epsilon^{ph}_\gamma} \frac{\epsilon^{ph}_\gamma}{f_\gamma} \quad \text{est en moyenne} \quad \left\langle S_{f_\gamma,\epsilon^{ph}_\gamma} \right\rangle = \left\langle \frac{\Delta f_\gamma}{f_\gamma} \frac{\epsilon^{ph}_\gamma}{\Delta \epsilon^{ph}_\gamma} \right\rangle = 0.046\ \%/\% \tag{4.5}$$

L'effet de somme est peu sensible à une faible variation de l'efficacité. Cela nous indique que le facteur de correction de l'effet de somme calculé pour des expériences différentes

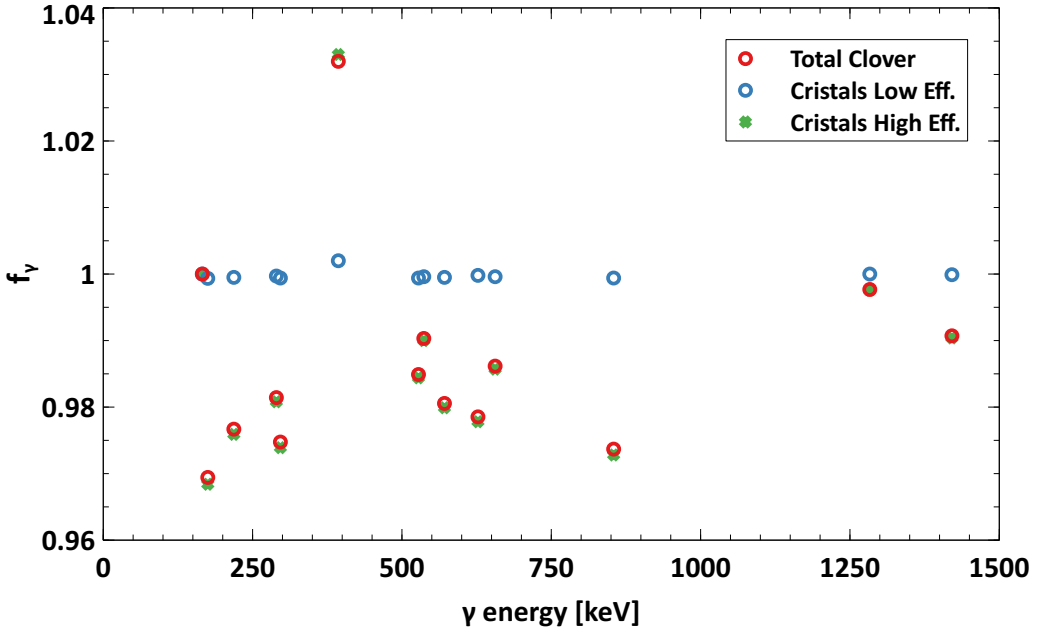


FIGURE 4.7: Facteur correctif de l'effet de somme pour les raies γ utilisées dans l'analyse de la masse 139 pour l'ensemble des deux détecteurs (en rouge), pour les cristaux de faible efficacité (en bleu) et pour les cristaux de forte efficacité (en vert).

est sensiblement le même, tant que les détecteurs restent dans une géométrie similaire d'une expérience à l'autre.

Finalement, les différents cristaux peuvent être considérés ensemble même si leurs efficacités diffèrent, notamment à cause de leur disposition autour de la bande déroulante. Nous pouvons donc, après calibration en énergie des spectres de chaque cristal, considérer l'ensemble des évènements et étudier le spectre venant de la sommation des 6 cristaux. De plus, l'effet de somme n'étant que peu sensible à de faibles variations de l'efficacité, les f_γ sont considérés comme étant identiques pour les différentes expériences abordées dans ce chapitre, où la géométrie est similaire.

L'effet de somme n'est pas du tout accessoire, les valeurs observées pour l'ensemble des raies varient de 0,92 à 1,04 [4] ce qui implique une correction importante des taux de comptage au regard de la précision attendue. Notons qu'afin de ne pas augmenter cet effet, le mode « add-back » entre différents cristaux d'un clover n'est pas exploité. Ce mode permet d'augmenter l'efficacité à haute énergie et le rapport signal sur bruit en considérant, lorsque deux signaux sont détectés simultanément dans deux cristaux adjacents, qu'il s'agit d'un seul évènement ayant fait une diffusion Compton dans l'un et un effet photoélectrique dans l'autre. Les deux énergies sont alors sommées pour reconstruire un évènement. Ici, nous avons simplement sommé les 6 spectres individuels sans tenir compte de la corrélation temporelle des événements.

4. Pour les mesures de calibration en efficacité, les valeurs de f_γ varient de 0,93 à 1,16.

4.1.2 Cibles utilisées

Deux campagnes de mesures ont été dédiées aux rendements isotopiques, toutes deux avec des cibles de ^{241}Pu de haute pureté, tel que la contribution au taux de fissions des autres isotopes, notamment ^{239}Pu et ^{241}Am, est négligeable. La première campagne, faîte au préalable de ma thèse, en Mai-Juin 2013, avait pour but la mesure de rendements isotopiques. La seconde, au cours de ma thèse, en Juillet 2016, visait à étudier l'évolution en fonction de l'énergie cinétique des rendements isotopiques.

Le tableau 4.1 résume les caractéristiques des cibles utilisées, déjà évoquée dans le tableau 3.1.

Tableau 4.1: Caractéristiques des cibles utilisées pour les campagnes de mesures isotopiques de 2013 et 2016.

Mise en pile	Dimensions (cm^2)	Masse surfacique (μg/cm^2)	Couverture Ni (μm)
25/06/2013	7 x 0,5	282	0,25
01/07/2016	7 x 0,5	208	0,25

Comme pour les mesures de rendements isobariques décrites dans la section 3.2.1 du chapitre précédent, l'évolution de la quantité de matière fissile dans la cible, le BU, est suivie à travers les mesures répétées de la masse référence A =136. Une fonction choisie pour reproduire au mieux le comportement du BU est ajustée afin d'avoir une représentation analytique de son évolution. Les courbes de BU pour les deux expériences sont exposées sur la figure 4.8 et présentent une évolution régulière au cours du temps.

Pour l'expérience de 2013, un arrêt du réacteur explique le manque de points de BU entre le dixième et le treizième jour. Dans le même temps, le collimateur d'entrée de LOHENGRIN, définissant son angle solide, a été changé. C'est pourquoi, nous observons une légère augmentation du BU.

4.1.3 Choix des raies γ

Toutes les énergies des raies γ produites par les isotopes de la masse A ne sont évidemment pas considérées. Pour déterminer quels γ sont intéressants, il faut tout d'abord regarder leur intensité. L'intensité d'une raie γ d'énergie E_γ, I_γ, est la probabilité de production du γ en question par désintégration du noyau père, ainsi, $0 < I_\gamma < 1$. L'intensité est séparé en deux termes, une intensité relative I_γ^{rel} et une intensité de normalisation I_γ^{norm} tel que : $I_\gamma = I_\gamma^{rel} \cdot I_\gamma^{norm}$. Nous allons considérer cette distinction afin de faciliter la propagation d'incertitudes. Nous faisons l'hypothèse que les intensités

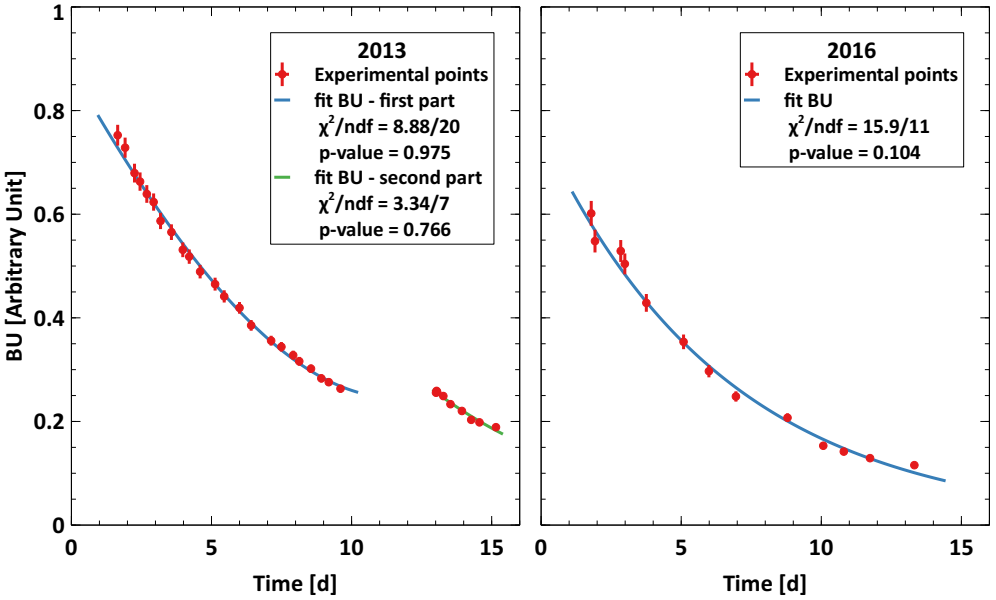


FIGURE 4.8: Les courbes de BU pour les expériences de 2013 (à gauche) et 2016 (à droite). L'arrêt du réacteur au cours de l'expérience de 2013 explique le saut du BU en temps.

relatives sont indépendantes les unes des autres alors que les intensités de normalisation sont communes à chaque I_γ et vont donc corréler ces dernières.

De manière générale, les γ de plus forte intensité sont retenus afin de maximiser le taux de comptage. Cependant, si deux γ de la chaîne de désintégration ont une énergie très proche (moins de 1 keV de différence), il sera très difficile de les discerner compte tenu de la résolution en énergie (typiquement 2 keV). Ils seront donc, autant que possible, exclus de l'analyse.

Exception faite pour les masses contenant au moins un isomère dans la chaîne de décroissance, plusieurs décroissances peuvent alors mener sur les mêmes états d'énergie. Ainsi, une raie γ n'est plus caractéristique de la décroissance d'un seul isotope ou d'un état isomérique mais de deux ou plus. Lorsque c'est le cas, la contribution de l'état fondamental et de l'état métastable ne peuvent pas être distingués. Ce problème est illustré sur la figure 4.9. Pour autant, l'information est importante, car bien souvent, toutes les raies caractéristiques d'un état isomérique se confondent avec celle de son état fondamental, comme illustré sur la figure 4.9. Dans ce cas, nous devons considérer ces raies communes et nous verrons dans la sous-section 4.1.4.3 comment les déconvoluer.

L'énergie de la raie γ émise est aussi un facteur limitant. Si l'énergie est trop faible (<120 keV), l'efficacité est mal maîtrisée et le rayonnement X ainsi que le bruit de fond est conséquent. Si l'énergie est trop importante (>2300 keV), l'efficacité devient très faible et même pour de fortes intensités, le pic correspondant n'est que peu, voir pas,

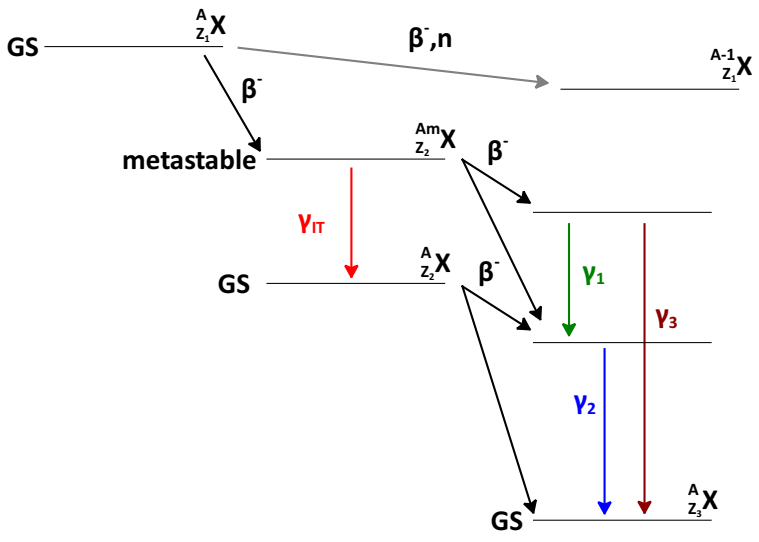


FIGURE 4.9: Exemple d'une configuration de schéma de niveaux avec un état métastable. Les raies γ_1 et γ_3 signent la décroissance de $^{Am}_{Z}$X alors que la raie γ_2 signe la décroissance de $^{Am}_{Z}$X ou de son état fondamental, $^{Ags}_{Z}$X.

visible. Par expérience, nous préférons ne pas utiliser de raies γ hors de ces bornes, de manière à minimiser les sources de biais et d'incertitudes.

Enfin, pour certains isotopes ou isomères, les données des schémas de niveaux et des intensités I_γ sont éparses ou donnent des résultats incohérents. Par exemple, les incertitudes sur les I_γ peuvent être données uniquement à titre indicatif.

Toute l'analyse décrite dans ce chapitre est dépendante de ces informations de structure nucléaire. Les résultats de l'analyse pourront être modifiés ultérieurement pour prendre en compte d'éventuelles nouvelles données de structure.

4.1.4 Principe d'analyse

Nous avons vu les différentes caractéristiques de nos détecteurs, notamment leurs efficacités et l'effet de somme susceptibles de perturber nos calculs. Nous allons maintenant aborder les étapes de calculs nous permettant d'obtenir les rendements isotopiques ou isomériques.

Lors des mesures avec les détecteurs Ge nous nous intéressons à la distribution en charge ionique des isotopes au sein d'une masse. Nous mesurons au préalable à l'aide de la chambre d'ionisation la distribution en énergie cinétique de la masse choisie pour une charge ionique moyenne. Ceci est nécessaire afin de se placer pour la détection γ à une énergie E_k ayant une probabilité maximale pour améliorer le taux de comptage et limiter

les biais (Cf sous-section 3.2.2). Pour chaque masse, le spectromètre LOHENGRIN est réglé afin de fournir un faisceau contenant la masse A, à l'énergie cinétique E_k et les charges ioniques q sont mesurées une à une. La distribution en charge est couverte jusqu'à ce que la probabilité des extrémités soit au moins en dessous de 2%.

4.1.4.1 Extraction du nombre de coups avec le logiciel TV

Chaque spectre γ est analysé grâce au logiciel TV [136]. Les pics des énergies choisies sont ajustés par une gaussienne et TV renvoie les informations relatives au meilleur ajustement, notamment :

- L'intégrale de la gaussienne qui sera notre nombre de coups mesuré.
- Sa largeur à mi-hauteur qui est un garde-fou lors de l'extraction du nombre de coups. Cette dernière est dépendante de l'énergie, $\sigma_{E_\gamma} = f(E_\gamma)$, mais indépendante de la charge ionique. Cela nous permet parfois de rejeter des ajustements qui donnent une valeur trop différente des autres, indiquant une pollution du pic par d'autres raies.
- Le χ^2 de l'ajustement qui nous renseigne sur sa qualité.

Afin de vérifier l'hypothèse gaussienne, lorsque le pic n'est pas pollué, l'intégrale sur l'ensemble des canaux du pic est relevée et comparée au résultat de l'ajustement. Toutes ces données sont consignées sous forme de tableau, permettant un suivi simple en cas de doute. Le tableau 4.2 donne un exemple concret des valeurs extraites grâce à TV. Pour les charges paires 20 et 22, une légère contamination implique une surestimation du pic du Xe avec l'intégrale.

Tableau 4.2: Exemple des données extraites avec TV pour la raie à 218,59 keV du ^{139}Xe à quatre charges ioniques différentes, lorsque le faisceau est ouvert.

q	19	20	21	22
$E_{\gamma fit}$	219,2	219,4	219,2	219,0
σ_{E_γ}	1,74	1,76	1,74	1,70
N_γ	51747	76048	109915	132002
σ_{N_γ}	265	350	364	652
χ^2_{fit}	1,92	2,05	3,00	2,68
$N_{\gamma int}$	51917	77620	110753	135354
$\sigma_{N_{\gamma int}}$	288	346	387	418
Diff. fit/int	0,3%	2,1%	0,8%	2,5%

Il est malheureusement impossible d'automatiser cette étape en raison de la présence de contaminants différents pour chaque charge. L'analyste définit les plages de bruits de fond et désigne le nombre et l'emplacement (approximatif) des pics à ajuster. Pour

chaque spectre obtenu, chaque raie γ doit être analysée à la main, ce qui rend la spectroscopie γ très demandant en temps. De plus, le résultat de l'analyse de ces spectres est dans une certaine mesure dépendant de l'analyste. Il est important de vérifier sur certaines raies que les résultats obtenus avec TV par deux analystes indépendants sont identiques, afin de ne pas biaiser l'extraction des données expérimentales.

Quelques images du processus d'ajustement avec le logiciel TV sont présentées sur la figure 4.10. Un extrait d'un spectre γ obtenu pour la masse 139 proche d'un pic du ^{139}Xe est présenté en haut de la figure 4.10. Les zones retenues pour ajuster le bruit de fond (par un polynôme d'ordre 1 ou 2 selon les régions d'énergies) sont tout d'abord définies (voir au centre de la figure 4.10). Enfin TV propose le meilleur ajustement gaussien pour le nombre de pics sélectionné (voir en bas de la figure 4.10).

4.1.4.2 Calcul du nombre de coups corrigés

Maintenant que nous avons extrait le nombre de coups pour la raie γ de l'isotope i, $N_{\gamma i}$, nous allons corriger de l'efficacité du détecteur ϵ_γ, de l'intensité relative $I^{rel}_{\gamma i}$ et du facteur correctif de l'effet de somme $f_{\gamma i}$:

$$J_{\gamma i}(Z,q|E_k) = \frac{N_{\gamma i}(Z,q|E_k)}{\epsilon_\gamma \cdot I^{rel}_{\gamma i} \cdot f_{\gamma i}} \tag{4.6}$$

A ce stade, en négligeant les incertitudes des f_γ et en considérant que les $N_{\gamma i}$ n'ont qu'une incertitude statistique (indépendante), les covariances s'écrivent :

$$\frac{\mathrm{cov}\left(J_{\gamma_k i}, J_{\gamma_l j}\right)}{J_{\gamma_k i} J_{\gamma_l j}} = \frac{\delta_{i,j} \cdot \mathrm{var}\left(N_{\gamma_k i}\right)}{N_{\gamma_k i} N_{\gamma_l j}} + \frac{\mathrm{cov}\left(\epsilon_{\gamma_k}, \epsilon_{\gamma_l}\right)}{\epsilon_{\gamma_k} \epsilon_{\gamma_l}} + \frac{\mathrm{cov}\left(I^{rel}_{\gamma_k i}, I^{rel}_{\gamma_l j}\right)}{I^{rel}_{\gamma_k i} I^{rel}_{\gamma_l j}} \tag{4.7}$$

Nous avons déjà remarqué que la matrice de corrélation de l'efficacité est une matrice unitaire :

$$\mathrm{cov}\left(\epsilon_{\gamma_k i}, \epsilon_{\gamma_l j}\right) = \sigma_{\epsilon_{\gamma_k i}} \sigma_{\epsilon_{\gamma_l j}} \tag{4.8}$$

L'équation 4.7 se simplifie pour des raies γ différentes en :

$$\frac{\mathrm{cov}\left(J_{\gamma_k i}, J_{\gamma_l j}\right)}{J_{\gamma_k i} J_{\gamma_l j}} = \frac{\sigma_{\epsilon_{\gamma_k i}} \sigma_{\epsilon_{\gamma_l j}}}{\epsilon_{\gamma_k i} \epsilon_{\gamma_l j}} \tag{4.9}$$

Il est très important de vérifier l'accord des intégrales corrigées J_γ pour les différents γ d'un même isotope ou isomère i, car elles représentent la même grandeur physique, à savoir le nombre de décroissance de i pendant la durée de la mesure. C'est un garde-fou essentiel quant à la présence d'erreurs lors de l'extraction des pics (mauvaise estimation du bruit de fond, contamination non prise en compte) ou d'incohérences des données de schéma de structure.

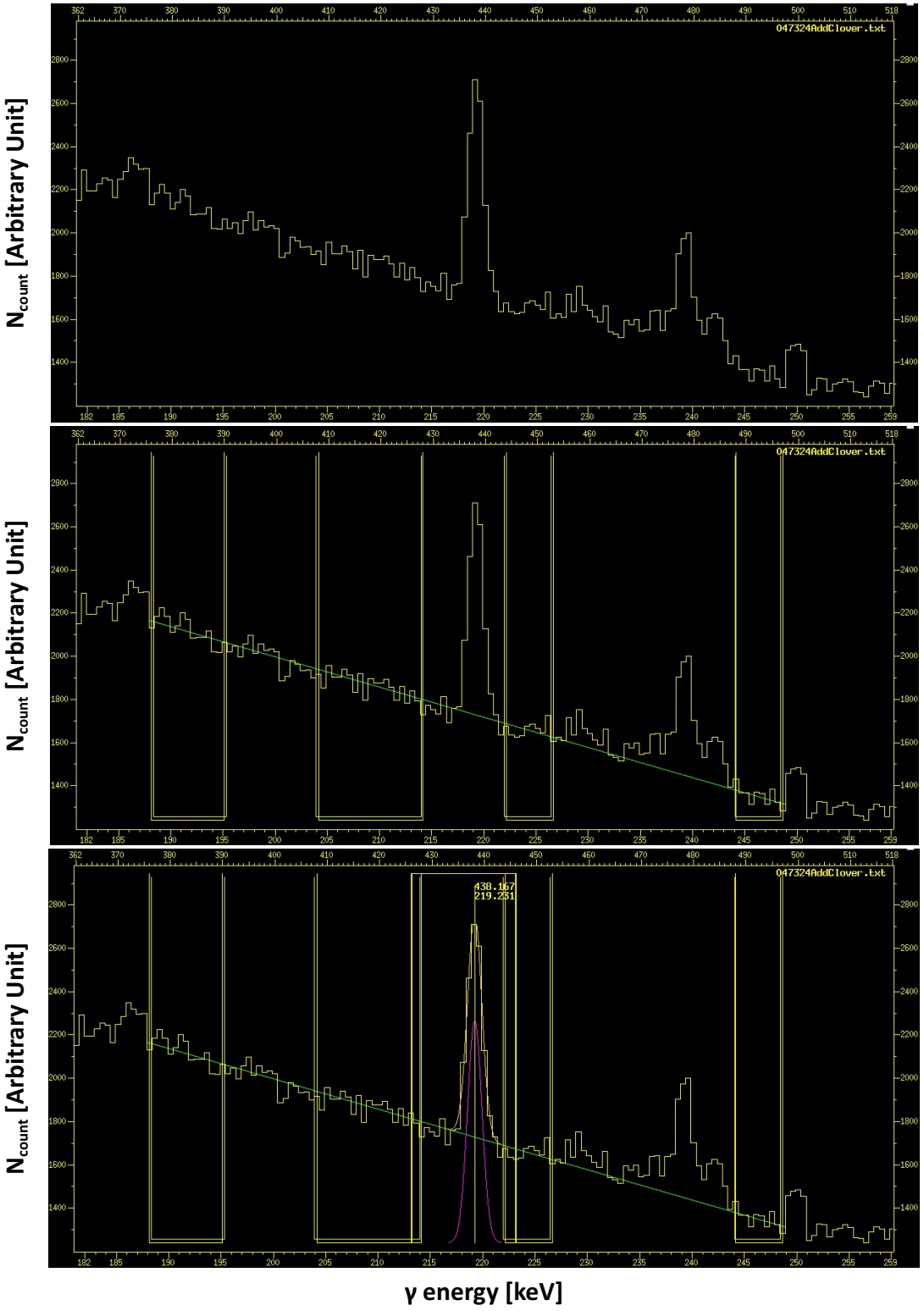


FIGURE 4.10: En haut, un extrait du spectre γ aux alentours du pic du ^{139}Xe à 218,59 keV pour la masse 139 à la charge $q = 15$ et à l'énergie $E_k = 64$ MeV. Au milieu, les zones utilisées pour ajuster le bruit de fond et le bruit de fond obtenu (en vert). En bas, l'ajustement gaussien obtenu pour le pic du ^{139}Xe à 218,59 keV (en violet).

Le ^{136}Te est un exemple flagrant de cette utilité, la distribution en charge ionique des J_γ est montrée sur la figure 4.11. Nous pouvons voir à ce stade que deux jeux de raies sont incompatibles, vraisemblablement venant de la connaissance imparfaite des I_γ^{rel}. Nous avons donc pour cet isotope deux solutions possibles, qu'il nous faudra garder ou éliminer grâce à des considérations physiques.

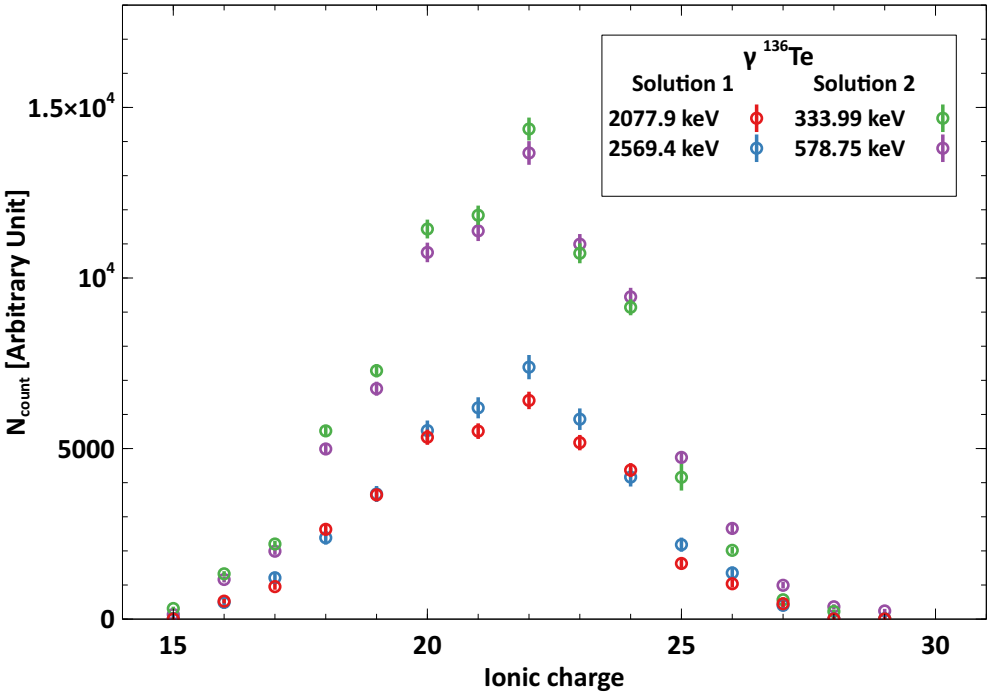


FIGURE 4.11: Un exemple de la distribution du nombre de coups mesurés en fonction de q, corrigés de l'intensité de la raie γ, de l'efficacité du détecteur et de l'effet de somme pour les différentes raies du ^{136}Te, deux lots de raies γ sont clairement incompatibles entre-eux.

Pour rendre compte de l'impact de l'effet de somme, nous pouvons regarder à travers l'exemple du ^{139}Xe, la grandeur J_γ avec ou sans la correction de l'effet de somme (figure 4.12). Nous pouvons voir, que la prise en compte de l'effet de somme donne une meilleure compatibilité des distributions provenant des différentes raies notamment en ce qui concerne la raie à 393,5 keV.

De manière systématique, la compatibilité entre les différentes raies d'un même isotope est vérifiée à travers un test statistique de χ^2. Cette compatibilité est vérifiée charge par charge mais aussi sur l'ensemble de la distribution.

De la même manière que pour les rendements en masse, la moyenne est obtenue pour chaque charge ionique en minimisant le χ^2 généralisé, χ_g^2, *i.e.* en prenant en compte la

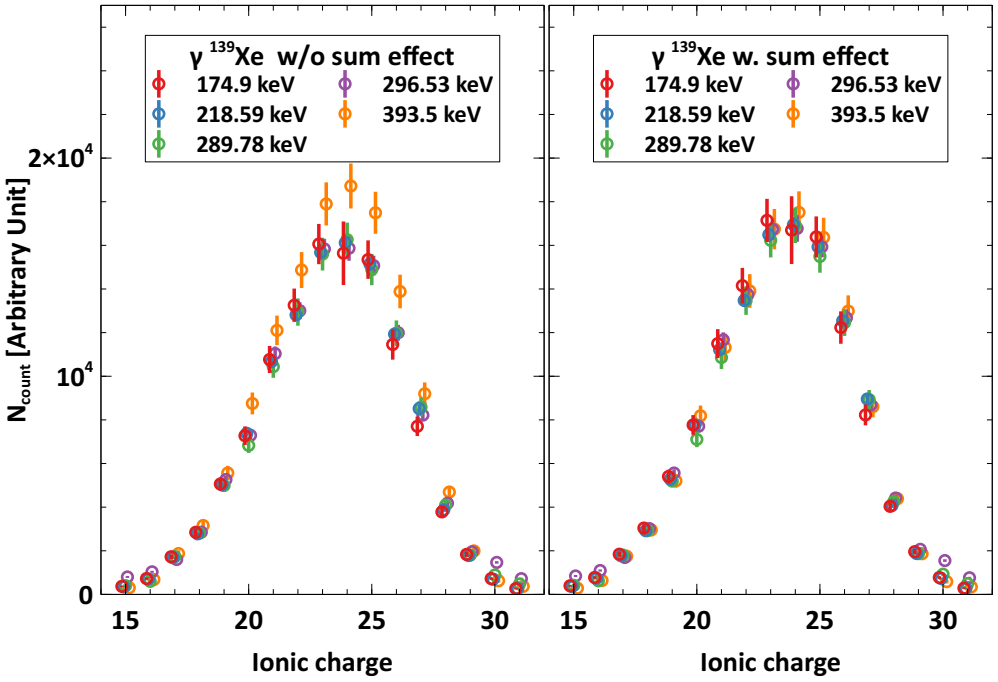


FIGURE 4.12: Un exemple de la distribution du nombre de coups mesurés en fonction de q, corrigés de l'intensité de la raie γ, de l'efficacité du détecteur (à gauche) ainsi que du facteur correctif d'effet de somme (à droite) pour les différentes raies du^{139}Xe. Par soucis de lisibilité, les distributions sont légèrement décalées les unes des autres.

matrice de covariance $\boldsymbol{C}$ des $J_\gamma(Z,q|E_k)$ [114] :

$$\overline{J}(Z,q|E_k) = \left(\sum_{i,j}^{n,n}(C^{-1})_{i,j}\right)^{-1} \left(\sum_{i,j}^{n,n}(C^{-1})_{i,j} \cdot J_{\gamma_j}(Z,q|E_k)\right) \tag{4.10}$$

Et χ^2_g est calculé a posteriori afin de vérifier que les raies sont cohérentes entre elles :

$$\chi^2_g(Z,q|E_k) = \sum_{i,j}^{n,n}\left(J_{\gamma_i}(Z,q|E_k) - \overline{J}(Z,q|E_k)\right)^T \cdot (C^{-1})_{i,j}\left(J_{\gamma_j}(Z,q|E_k) - \overline{J}(Z,q|E_k)\right) \tag{4.11}$$

Lorsque ce n'est pas le cas, une incertitude est ajoutée sur la diagonale de la matrice de covariance et le calcul de la valeur moyenne et du χ^2_g est recommencé jusqu'à ce qu'un χ^2_g acceptable (CL à 90%) soit atteint. Cette étape est similaire à celle décrite dans le chapitre des rendements en masse, sous-section 3.2.3. Cette incertitude traduit nos biais expérimentaux (contrôle de LOHENGRIN et de nos détecteurs, biais de l'extraction du taux de comptage) ainsi que la connaissance imparfaite des schémas de niveaux.

Nous pouvons maintenant diviser par I_γ^{norm} afin d'avoir un taux de comptage normalisé :

$$\overline{J}_{norm}(Z,q|E_k) = \frac{\overline{J}(Z,q|E_k)}{I_\gamma^{norm}} \tag{4.12}$$

4.1.4.3 Cas des raies communes à plusieurs isotopes ou isomères

Lorsqu'au moins un isomère est présent dans la chaîne considérée, plusieurs décroissances peuvent mener sur les mêmes niveaux du noyau fils. Alors, une raie γ n'est plus caractéristique de la décroissance d'un seul état (fondamental ou isomérique) mais d'au moins deux (voir la figure 4.9). Lorsqu'un tel problème est rencontré les raies sont déconvoluées à partir de la moyenne, $\overline{J}$, estimée sur les raies indépendantes de l'état fondamental ou de l'état isomérique. Penchons-nous sur la masse 138 dont le Cs possède un isomère à 79,9 keV ($T_{1/2} = 174,6$ s) dont toutes les raies γ visibles sont confondues avec celles de l'état fondamental, comme explicité dans le tableau 4.3.

Tableau 4.3: Les raies γ visibles pour le ^{138}Cs et son état métastable. Les raies communes deux à deux sont marquées de la même couleur.

	E_γ (keV)	I_γ^{rel}	I_γ^{norm}	$T_{1/2}$ (s)
^{138m}Cs	1436	100	0,19	174,6
	463	99		
	191,7	80		
^{138gs}Cs	1435,77	1000	0,0763	1950
	462,785	403		
	1009,78	391		
	2218	199		
	546,99	141		
	191,96	6,6		

Les raies à 546,99, 1009,78 et 2218 keV en revanche signent la décroissance de l'état fondamental uniquement. Nous pouvons donc calculer $\overline{J}$ pour l'état fondamental, $\overline{J}(Z,gs,q|E_k)$, à partir de ces trois raies. Le nombre de coups venant de la décroissance de l'état métastable sera :

$$N_\gamma^m(Z,m,q|E_k) = N_\gamma^{m+gs} - \epsilon_\gamma \cdot f_\gamma^{gs} \cdot I_\gamma^{rel\ gs} \cdot \overline{J}(Z,gs,q|E_k) \tag{4.13}$$

Où N_γ^{m+gs} est le nombre de coups total dans les raies communes (1436 et 1435,77, 463 et 462,785 ainsi que 191,7 et 191,96 keV) et $\overline{J}_{gs}(Z,q|E_k)$ est la moyenne obtenue à partir des raies indépendantes de l'état fondamental (1009,78, 2218 et 546,99 keV). Il reste alors à retrancher ce nombre de coups au nombre de coups total pour extraire le nombre de coups signant la décroissance de ^{138gs}Cs. Ce nombre doit évidemment donner des résultats pour chaque raie commune compatibles aux raies indépendantes à 546,99,

1009,78 et 2218 keV. Pour obtenir le nombre de coups dû à l'isotope ou isomère i, s'il y a plus de deux isotopes ou isomères, l'équation précédente se généralise à :

$$N_{\gamma i}(Z, gs/m, q|E_k) = N_\gamma^{tot} - \sum_{j \neq i} \epsilon_\gamma \cdot f_{\gamma j} \cdot I_{\gamma j}^{rel} \cdot \overline{J}(Z_j, gs/m, q|E_k) \tag{4.14}$$

4.1.4.4 Résolution des équations de Bateman

Les équations de Bateman représentent l'évolution de la population d'un noyau dans une chaîne de décroissance donnée. Cette évolution fut mise en équation par E. Rutherford en 1905 [137] et une solution analytique a été apporté par H. Bateman cinq années plus tard [138]. C'est un bilan de l'évolution en temps de cette population, prenant en compte les termes de production et de disparition. Dans notre schéma d'analyse, ces équations vont apparaître à trois étapes.

Pour la correction du bruit de fond

Lorsqu'une mesure pour une charge ionique est terminée, le faisceau d'ions est coupé et la bande sur laquelle se trouvent les produits de fission et les produits issus de leurs désintégrations est déroulée. Une nouvelle partie « propre » de la bande est prête pour la mesure suivante. Cependant, lorsque le faisceau est ouvert, des isotopes peuvent être déposés sur le cadre support de la bande, dû à l'imparfaite focalisation du faisceau par le RED. Les isotopes ainsi déposés ne sont pas enlevés lorsque la bande est déroulée et vont être une source de bruit de fond importante lorsqu'ils décroitront au cours des mesures futures (voir la figure 4.13). C'est en particulier vrai pour les isotopes dont la durée de vie est importante devant le laps de temps limité entre deux mesures à faisceau ouvert. Pour des isotopes dont la durée de vie est environ 10 fois inférieure au temps entre deux mesures à faisceau ouvert, ce type de bruit de fond est négligeable.

Afin de pouvoir estimer ce bruit de fond, une mesure est effectuée faisceau fermé (mesure BdF), avant chaque mesure à faisceau ouvert (mesure Rdt). De cette mesure BdF [5] nous mesurons les décroissances des isotopes présents sur le cadre. Il est alors possible, à l'aide des équations de Bateman, de calculer la contribution de ces isotopes sur la mesure Rdt qui suit. Les détails des calculs sont fournis dans l'annexe F.

Aux résultats $\overline{J}_{norm}(Z, q|E_k)$ de l'étape précédente (eq. 4.10) il faut soustraire la part provenant du bruit de fond du cadre, $\overline{J}_{BdF}(Z, q|E_k)$. Cette dernière est l'intégrale (partie hachurée rouge de la figure 4.13) du nombre de décroissance des isotopes du cadre, corrigée de ϵ_γ, I_γ et f_γ et moyennée sur les différentes raies γ. Nous utiliserons dans la suite

5. Le spectre γ obtenu lors de la mesure BdF est analysé de la même manière que les mesures Rdt.

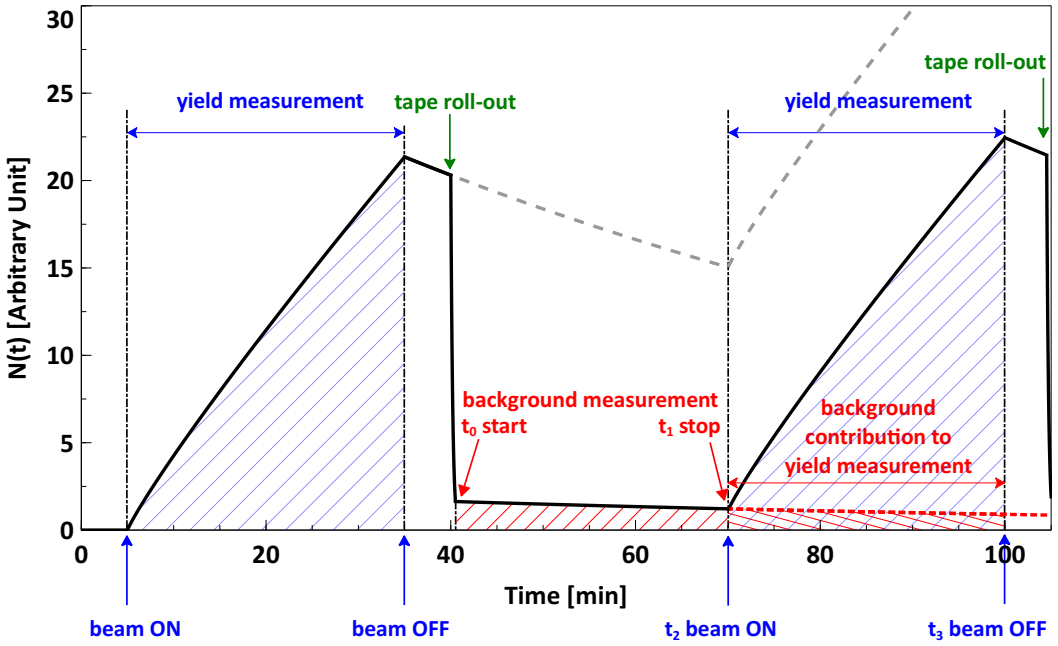


FIGURE 4.13: Illustration de l'évolution d'une population isotopique $N(t)$ susceptible d'être mesurée par les détecteurs Ge en fonction du temps (trait pleins). En pointillé, lorsque la bande n'est pas déroulée.

une notation vectorielle (incluant tout les isotopes et les isomères d'une même chaîne de décroissance) des $\overline{J}_{norm}(Z, q|E_k)$ et $\overline{J}_{BdF}(Z, q|E_k)$, respectivement $\boldsymbol{\overline{J}_{norm}(q|E_k)}$ et $\boldsymbol{\overline{J}_{BdF}(q|E_k)}$.

La contribution du bruit de fond du cadre soustraite, nous obtenons le vecteur $\boldsymbol{J_{Rdt}}(q|E_k)$:

$$\boldsymbol{J_{Rdt}}(q|E_k) = \boldsymbol{\overline{J}_{norm}}(q|E_k) - \boldsymbol{\overline{J}_{BdF}}(q|E_k) \tag{4.15}$$

La figure 4.14 illustre l'impact de cette étape sur les taux de comptage. Pour les deux isotopes présentés, ^{138}Cs à gauche et le ^{139}Ba à droite, d'une distribution a priori très structurée, nous obtenons une forme plus lisse. Pour le ^{139}Ba c'est une distribution qui s'apparente à une gaussienne, ce qui est attendu pour une distribution en charge ionique, comme nous l'avons vu dans le chapitre 3, pour le ^{138}Cs, nous pouvons observer une longue queue de distribution à hautes charges, qui est la signature d'états nanosecondes isomères [139; 140; 21].

Pour la détermination des taux de productions indépendants

Pour notre étude il y a deux termes de production lorsque le faisceau est ouvert : la production par fission et la production suite à la désintégration des noyaux en amont dans la chaîne de désintégration.

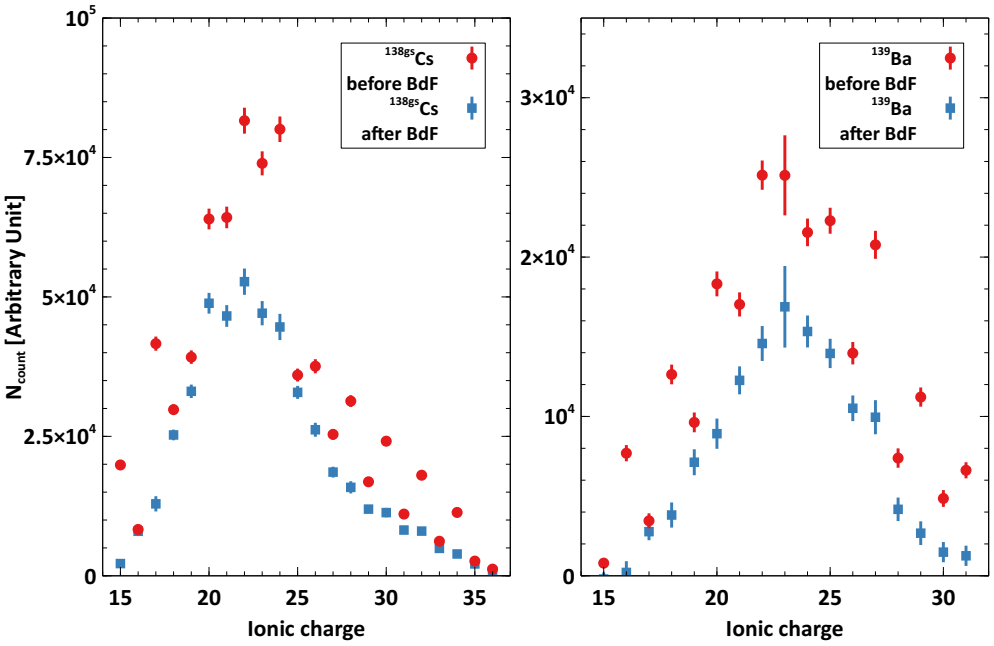


FIGURE 4.14: Illustration de l'impact de la correction du bruit de fond du cadre pour le ^{138gs}Cs (à gauche, $T_{1/2} = 32,5$ min) et le ^{139}Ba (à droite, $T_{1/2} = 83,06$ min).

Lors de nos mesures, c'est le cumul de ces deux termes de production qui est détecté. Afin d'obtenir le terme de production par fission uniquement, nous devons résoudre le système d'équations de Bateman de la chaîne radioactive considérée.

Pour résoudre ce système, une résolution matricielle est adoptée, les détails des calculs sont fournis dans l'annexe E, nous donnerons néanmoins ici quelques éléments clés.

À travers cette procédure nous obtenons par une matrice $\boldsymbol{Q}$ une relation entre le vecteur production par fission $\boldsymbol{P_{Bat}}$ que nous souhaitons obtenir et le vecteur cumulé que nous obtenons par la mesure :

$$\boldsymbol{P_{Bat}}(q|E_k) = \boldsymbol{Q}\boldsymbol{J_{Rdt}}(q|E_k) \tag{4.16}$$

La production par fission est ainsi atteignable pour chaque noyau i de la chaîne de désintégration de la masse A à partir des mesures et d'une matrice $\boldsymbol{Q}$ à calculer pour chaque chaîne de désintégration. Passer d'une mesure cumulée à des productions indépendantes induit de très fortes corrélations entre les différents isotopes, notamment entre un isotope et le précédent dans la chaîne.

Les valeurs de la matrice $\boldsymbol{Q}$ dépendent de la durée Δt de la mesure, mais aussi des

périodes radioactives des éléments de la chaîne radioactive et des rapports d'embranchement d'un isotope à l'autre[6].

Si le temps de mesure est maîtrisé et que les périodes des éléments que nous mesurons sont bien connues, les rapports d'embranchements quant à eux peuvent être une source d'incertitude non négligeable.

A cette étape, la soustraction de la composante des isotopes en amont de la chaîne peut entraîner des taux de comptage négatifs, ce qui n'est physiquement pas envisageable. Un test de χ^2 généralisé est effectué pour tester la compatibilité à 0 des charges aux taux de comptages négatifs. L'utilisation du χ^2 généralisé (*i.e.* faisant intervenir les covariances) et non d'un χ^2 classique est particulièrement importante puisque pour beaucoup de noyaux, les différentes charges sont fortement corrélées par I_γ^{norm} dont l'incertitude est souvent de l'ordre de 10 à 15%. Sans prise en compte de ces corrélations, le test est moins contraignant et peut amener à conserver des jeux de données non physique.

Comme nous voulons tester l'hypothèse de compatibilité des taux de comptages négatifs à 0, il faut calculer la probabilité d'obtenir par fluctuations statistiques un χ^2 supérieur au χ^2 calculé, même pour un modèle juste. Cette probabilité est nommée *p-value* (voir l'annexe A pour plus de détails). Si la *p-value* est très faible, alors il y a peu de chance que la valeur de χ^2 obtenue soit due à des fluctuations statistiques et l'hypothèse est rejetée. Là encore, nous choisissons un intervalle de confiance à CL à 90%.

Pour le ^{139}Cs ou le ^{139}Ba, présentés sur la figure 4.15, la compatibilité à 0 est suffisante pour que l'hypothèse d'une fluctuation statistique amenant à un taux de comptage négatif à cette étape soit acceptée avec le critère ci-dessus.

Maintenant, reprenons le cas de la masse 136, où deux solutions de jeux de raies γ étaient possibles pour le ^{136}Te, qui décroit sur l'^{136}I. La figure 4.16 présente les résultats obtenus pour le taux de comptage indépendant de l'^{136}I avec les deux jeux de raies. À cette étape et grâce à ce test statistique nous pouvons rejeter la solution 1.

Pour la correction du temps de vol (TOF)

Les produits de fission mettent quelques μs pour parcourir les 23 m de LOHENGRIN depuis leur création jusqu'à la bande déroulante. Si la période radioactive d'un isomère est comparable à ce temps de vol, une partie non-négligeable aura décru avant d'atteindre

6. C'est à dire la proportion de désintégrations d'un isotope menant aux isotopes suivants dans la chaîne.

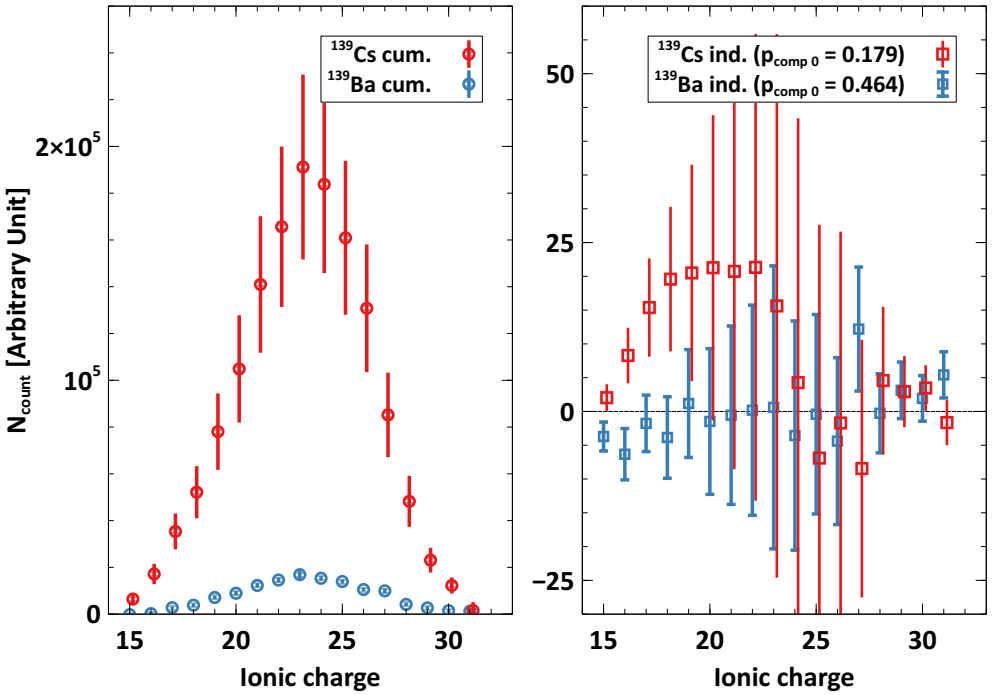


FIGURE 4.15: Les distributions en charge ionique du ^{139}Cs et du ^{139}Ba en cumulé, à gauche et en indépendant, à droite. Les valeurs de p obtenues indique que l'hypothèse de compatibilité à 0 est acceptable pour les taux de comptage négatifs. Par soucis de lisibilité, les distributions sont légèrement décalées les unes des autres.

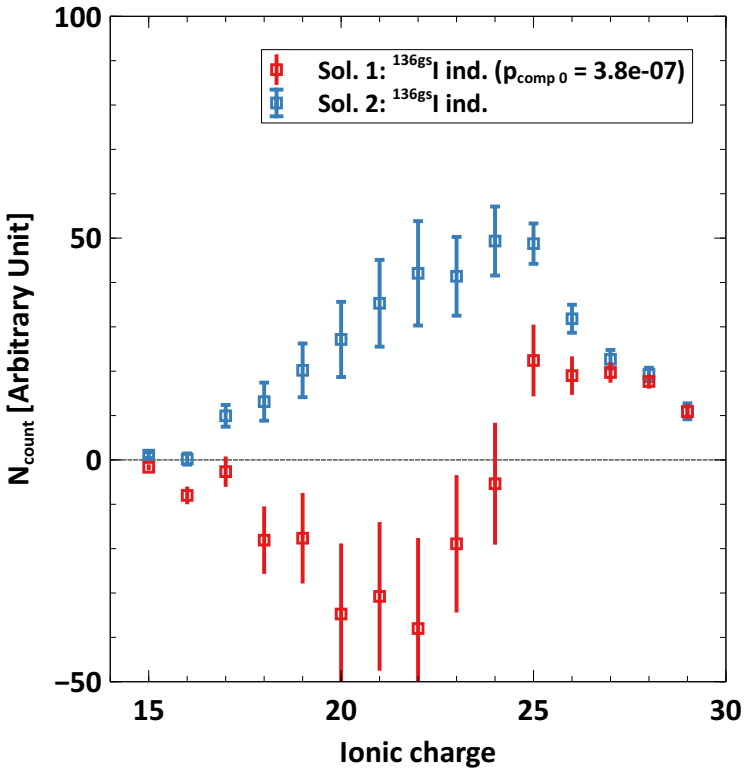


FIGURE 4.16: La distribution en charge ionique du taux de comptage indépendant pour l'^{136gs}I selon le jeu de raies choisi pour le ^{136}Te. La solution une est incompatible avec 0 et est donc rejetée.

la bande. Afin de remonter au taux de production à la sortie de la cible, $\boldsymbol{P_{TOF}}$, il nous faut à nouveau utiliser les équations de Bateman.

En effet, cette situation est similaire au paragraphe précédent : une partie des isotopes a décru en alimentant leurs descendants. La mesure que nous faisons n'est donc pas la production de la fission directement mais d'un état ayant évolué durant $t = TOF$.

Ainsi, il nous faut utiliser la même démarche mais pour un temps de mesure fictif négatif et égal au temps de vol $\Delta t' = -TOF$. Nous obtenons une matrice $\boldsymbol{Q_{TOF}}$ et le taux de production corrigé des décroissances durant le temps de vol, $\boldsymbol{P_{TOF}}$, est alors :

$$\boldsymbol{P_{TOF}}(q|E_k) = \boldsymbol{Q_{TOF}}\boldsymbol{P_{Bat}}(q|E_k) \tag{4.17}$$

Un bon exemple de la nécessité de la correction du temps de vol est montré pour l'état isomérique et l'état fondamental du ^{132}Sn sur la figure 4.17. L'incidence sur ^{132m}Sn est directe, car celui-ci a une période radioactive de 2,03 μs qui est quasiment identique au temps de vol. Ainsi environ la moitié du ^{132m}Sn aura décru avant d'arriver à la bande, c'est pourquoi le taux de production est multiplié par 2 environ. La production du ^{132gs}Sn est aussi impacté, indirectement. Sa demi-vie de 39,7 s le rend insensible aux quelques μs de temps de vol mais puisque l'état isomérique a été corrigé et qu'il décroit sur l'état fondamental, cela signifie qu'avant correction du temps de vol le taux de production de l'état fondamental était surévalué. C'est pourquoi une diminution équivalente à l'augmentation de l'état isomérique est observée.

Notons que cette correction est une première approximation de la correction du temps de vol. En effet, si la décroissance d'un isomère induit l'émission d'un électron de conversion, elle conduit a une modification de l'état de charge ionique d'au moins une unité, mais souvent de plusieurs unités dû aux électrons Auger. Dans le cas d'un isomère nanoseconde, la décroissance se fait avant d'entrer dans l'aimant principal et aura pour effet de surestimer la production à haute charge ionique. C'est pour cela que la distribution en charge ionique de certains isotopes comme le ^{138gs}Cs, voir la gauche de la figure 4.14, présente une deuxième composante vers les hautes charges. Cet effet a déjà été mise en évidence durant la thèse d'A. Bail [18]. En revanche, un isomère microseconde peut décroître tout au long du parcours et induire des changements de charge menant à la perte de certains événements car les ions n'arrivent plus au point focal de LOHENGRIN. La prise en compte de ces corrections plus complexes est une perspective de ce travail.

Remarques sur l'utilisation des équations de Bateman :

Ces trois dernières étapes impliquant les équations de Bateman vont fortement corréler

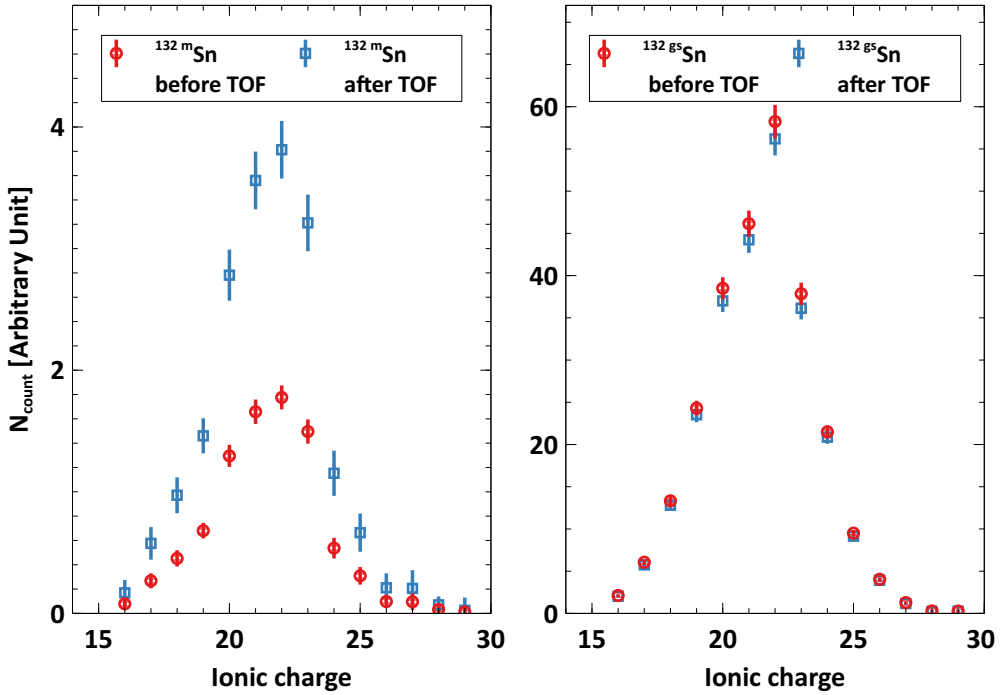


FIGURE 4.17: Distribution en charge ionique à $E_k = 72$ MeV du taux de production par fission de l'état isomérique du ^{132}Sn (à gauche) et de son état fondamental (à droite), avant (en rouge) et après (en bleu) l'étape de correction du temps de vol.

les mesures inter-isotopes. Jusqu'à maintenant, les corrélations entre isotopes ne viennent que de l'efficacité (eq. 4.7 et 4.9). Mais les équations 4.15, 4.16 et 4.17 vont complètement réorganiser ces corrélations. La soustraction du bruit de fond n'aura qu'un impact léger, car elle est souvent significative uniquement sur le dernier isotope de la chaîne (ayant une demi-vie plus longue), indépendamment des précédents. De la même manière, la correction du temps vol n'aura d'impact significatif que sur les isomères d'une durée de vie proche de la μs.

En revanche, passer du taux de comptage cumulé à la production de chaque isotope indépendant par fission entraine une forte corrélation entre un isotope et ses ascendants. La complexité du système d'équations mises en jeu, nous a poussé à utiliser une approche MC, voir l'annexe B, pour le calcul des incertitudes des calculs de $\overline{\boldsymbol{J}}_{\boldsymbol{BdF}}(q|E_k)$ (Eq. 4.15), $\boldsymbol{Q}$ (Eq. 4.16) et $\boldsymbol{Q_{TOF}}$ (Eq. 4.17).

4.1.4.5 Correction du Burn-Up

Comme pour les rendements en masse, il convient de corriger le taux de comptage de la quantité de matière présente dans la cible à l'instant de la mesure. Pour cela, les courbes de BU expérimentales sont ajustées et le BU est calculé aux temps de chaque mesure. Les fonctions utilisées pour l'ajustement sont choisies afin de reproduire au

mieux le comportement du BU. Si la charge q a été mesurée au temps t, le taux de production à la charge q est :

$$P_{BU}(Z, q|E_k) = \frac{P_{TOF}(Z, q|E_k)}{BU(t)} \tag{4.18}$$

Pour les rendements en masse utilisant la chambre d'ionisation les mesures sont relativement rapides et un seul temps de mesure est alloué à une distribution en énergie cinétique. Nous supposons que le BU est constant pour l'ensemble de la distribution. Pour les mesures isotopiques, une distribution en charge ionique est mesurée généralement en une dizaine d'heures. Ici, chaque charge est corrigé individuellement, car l'évolution du BU entre la première et la dernière charge n'est pas négligeable. Nous supposons que le BU est constant sur le temps de mesure d'une charge ionique. Sans cela, la distribution en charge ionique serait déformée, typiquement, de l'ordre de quelques pourcents. Pour la masse 139 par exemple, la différence de la distribution en charge ionique (normalisée) entre un BU unique[7] et un BU par charge ionique varie de -6 à 3% selon la charge.

4.1.4.6 Correction de la dépendance en énergie cinétique

Jusqu'à maintenant, les grandeurs obtenues le sont pour une énergie cinétique bien précise, celle sélectionnée par LOHENGRIN pour mesurer la distribution en charge ionique. Nous avons déjà vu dans la sous-section 3.2.2 que les distributions en charge ionique et en énergie cinétique sont corrélées. Lors des travaux précédents sur les rendements isotopiques [19], la perte d'énergie dans la cible, alors plus épaisse, permettait de négliger ces corrélations et de considérer un $P(E_k)$ unique et commun pour toutes les charges ioniques.

Dans le cadre de cette thèse, il n'est pas possible de définir un $P(E_k)$ unique. Les mesures en chambre d'ionisation des distributions en énergie cinétique montrent une forte différence en fonction de la charge ionique. $P(E_k)$ est dépendant de q. Les distributions en énergie cinétique obtenues avec la chambre d'ionisation pour les charges ioniques 18, 22 et 26 pour la masse 137 sont présentées sur la figure 4.18. Les distributions ont été mesurées les unes à la suite des autres de sorte que la cible n'évolue pas significativement. Les différences entre les deux distributions faites à la charge 18 et les deux faites à la charge 22 donnent une idée de l'évolution de la cible pendant le temps nécessaire à la mesure de ces cinq distributions. Nous voyons que cette évolution ne peut expliquer les différences entre les distributions faites à des charges ioniques différentes.

7. Où le temps utilisé est le temps moyen $\bar{t}$ de la mesure de la distribution complète.

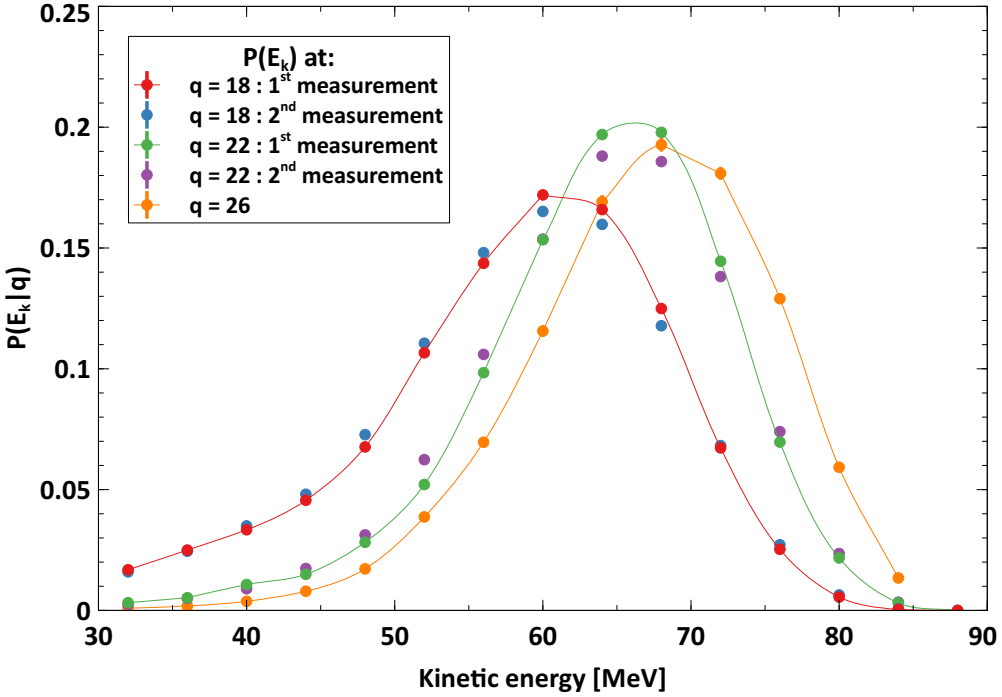


FIGURE 4.18: Les distributions en énergie cinétique obtenues avec la chambre d'ionisation pour les charges ioniques 18, 22 et 26 pour la masse 137. Afin de guider l'œil les points ont été reliés pour une des distributions à chaque charge ionique.

Ainsi, en réglant LOHENGRIN à une énergie constante, nous mesurons une distribution en charge ionique déformée, en particulier dans les ailes de la distribution. Afin de mesurer des rendements isotopiques, il faut s'affranchir du biais induit par la dépendance en énergie cinétique. Le tableau 4.4 indique les énergies cinétiques sélectionnées par LOHENGRIN pour ces mesures.

TABLEAU 4.4: Les énergies cinétiques auxquelles ont été faîtes les mesures isotopiques de 2013.

A	E_k (MeV)	A	E_k (MeV)
130	76	138	64
132	72	139	64
136	68	140	64
137	67	141	60
137 *bis*	$1,1 \cdot q + 38,6$		

Il faut noter une exception : la masse 137 a été faite de deux manières différentes. L'une, « classique », où l'énergie sélectionnée est constante, l'autre, « variable », où l'énergie sélectionnée suit l'énergie la plus probable en fonction de la charge ionique.

Le taux de comptage pour la charge ionique q de l'isotope (A, Z), $N_q(q|A, Z)$, doit-être corrigé de la probabilité d'avoir un produit de fission à E_k, en prenant en compte

la résolution de LOHENGRIN à l'énergie E_k :

$$N_q(q|A,Z) = \frac{P_{BU}\left(q|A,Z,E_k \pm \frac{\Delta E_k}{2}\right)}{P\left(E_k \pm \frac{\Delta E_k}{2}|A,Z,q\right)} \tag{4.19}$$

Afin de corriger de la dépendance en énergie cinétique pour la méthode « classique », nous allons mettre à profit nos mesures des distributions en énergie cinétique obtenues avec la chambre d'ionisation. Les distributions mesurées avec la chambre d'ionisation sont tout isotopes confondus. Nous faisons l'hypothèse que les pertes d'énergie dans la cible homogénéisent les distributions en énergie et que la distribution en énergie cinétique de chaque isotope est similaire à celle de la masse complète. Cette hypothèse s'appuie sur des mesures effectuées durant la thèse de A. Bail [18] de la distribution en énergie cinétique des différents isotopes d'une même masse (obtenues par spectroscopie γ). Les distributions étaient similaires d'un isotope à l'autre. Ainsi :

$$P\left(E_k \pm \frac{\Delta E_k}{2}|A,Z,q\right) = P\left(E_k \pm \frac{\Delta E_k}{2}|A,q\right) \quad \forall Z \text{ de la masse } A \tag{4.20}$$

Où ΔE_k est la résolution en énergie de LOHENGRIN pour chaque mesure et dépend du nombre de shutters ouverts pendant la mesure et de l'énergie cinétique sélectionnée (voir Eq. 3.12). La résolution en énergie est supposée parfaitement connue et son incertitude est négligée.

Cette méthode s'inspire de celle utilisée pour prendre en compte les corrélations entre distributions en charge ionique et en énergie cinétique lors de la détermination des rendements en masse, décrite dans la sous-section 3.2.2. Les énergies moyennes et les écarts-types de chaque distribution en énergie cinétique obtenus avec la chambre d'ionisation sont ajustés linéairement en fonction de la charge ionique (voir la figure 4.19) :

$$\overline{E}(q) = a_E \cdot q + b_E \qquad \text{et} \qquad \sigma_E(q) = a_\sigma \cdot q + b_\sigma \tag{4.21}$$

La distribution en énergie cinétique à la charge q est alors approximée à une gaussienne d'énergie moyenne $\overline{E}(q)$ et d'écart-type $\sigma_E(q)$.

Avec ces considérations, la densité de probabilité de l'énergie E_k est :

$$\rho(E_k) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_E(q)} \exp\left(-\frac{\left(E_k - \overline{E}(q)\right)^2}{2\sigma_E(q)^2}\right) \tag{4.22}$$

Il suffit d'intégrer cette densité sur la résolution ΔE_k pour obtenir la probabilité de l'énergie E_k à la charge q, $P\left(E_k \pm \frac{\Delta E_k}{2}\right)$. Ainsi, le taux de comptage corrigé de la

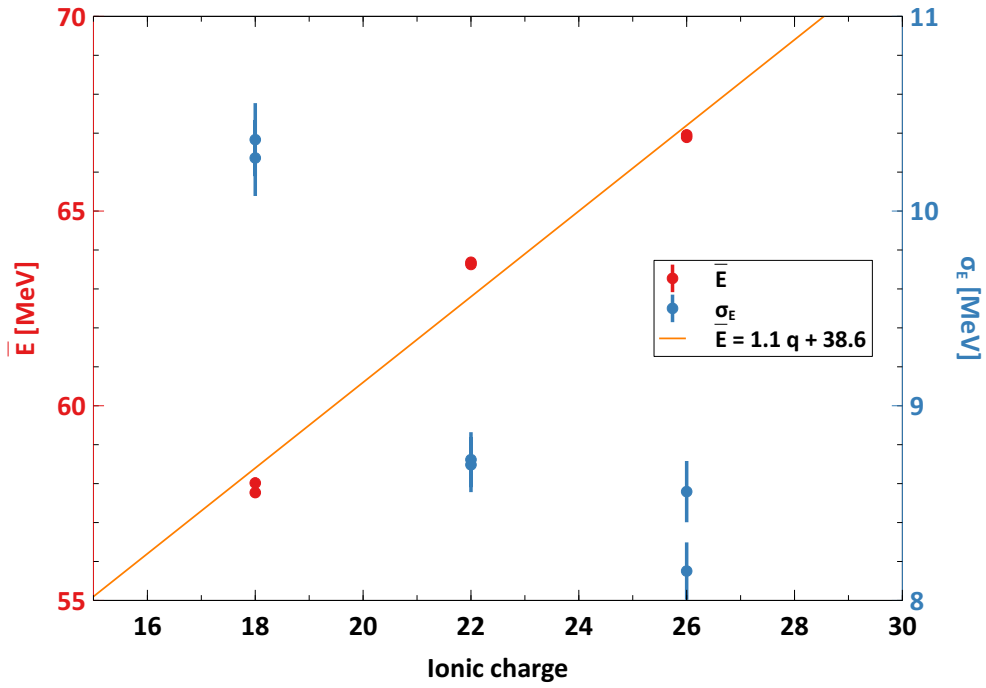


FIGURE 4.19: L'évolution en fonction de la charge ionique de la moyenne (en rouge) et de l'écart-type (en bleu) des distributions en énergie cinétique obtenues avec la chambre d'ionisation pour l'expérience de 2013 pour la masse 137. En orange la droite $1,1 \cdot q + 38,6$, suivie pour le cas « variable » de la masse 137.

dépendance en énergie cinétique s'écrit :

$$N_q(Z,q) = \frac{P_{BU}(Z,q|E_k)}{P\left(E_k \pm \frac{\Delta E_k}{2}\right)} \tag{4.23}$$

Pour la méthode « variable », nous faisons l'hypothèse que l'énergie la plus probable dérive de la même manière que l'énergie moyenne en fonction de la charge ionique. C'est à dire que la forme de la distribution en énergie cinétique ne change pas de manière significative.De cette manière, nous faisons l'hypothèse dans la méthode « variable » que $P(E_k(q))$ est constant.

Nous pouvons voir sur la figure 4.20 la distribution en charge ionique normalisée obtenue pour la méthode « classique » avant et après correction de la dépendance en énergie cinétique, ainsi que la distribution de la méthode « variable ».

Nous observons que les distributions obtenues par les deux mesures de la masse 137 avec les méthodes « classique » et « variable » sont proches. La prise en compte de la dépendance en énergie cinétique pour la méthode « classique » améliore leurs compatibilité (ce qui est vérifié par un test de χ^2). De plus, les distributions obtenues depuis les détecteurs Ge et la chambre d'ionisation sont très comparables (voir à droite de la figure 4.20), cette reproductibilité est primordiale pour la cohérence de nos mesures.

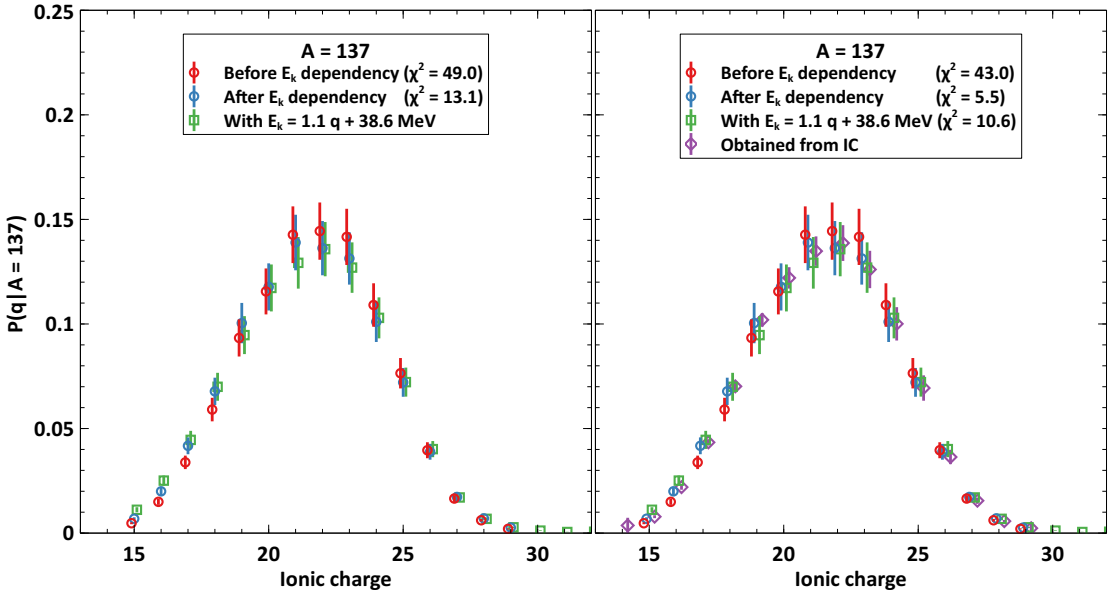


FIGURE 4.20: Distributions normalisées de la charge ionique pour la méthode « classique » avant et après correction de la dépendance en énergie cinétique, comparées à la distribution obtenue par la méthode « variable » (à gauche). Les mêmes distributions comparées à celle obtenue auprès de la chambre d'ionisation (à droite). Les valeurs de χ^2 sont un indicateur de la pertinence des comparaisons ($\chi^2_{lim} = 22,3$ pour un CL de 90%). Par soucis de lisibilité, les différentes distributions sont légèrement décalées les unes des autres.

Nous pouvons noter que l'hypothèse de σ_E constant faite pour la méthode « variable » est justifiée (compatibilité avec la mesure en chambre). La prise en compte de l'évolution de σ_E améliore cependant encore cette compatibilité.

Sur la figure 4.21, la même comparaison entre les deux méthodes est faite isotope par isotope et une très bonne cohérence est à nouveau observée.

Ces comparaisons montrent que lorsque l'énergie cinétique la plus probable pour chaque charge ionique est sélectionnée, les résultats sont similaires à ceux obtenus avec une énergie constante et égale à l'énergie la plus probable de la masse A et que nous corrigeons de la dépendance en énergie cinétique. Ceci permet de donner confiance à la correction proposée, malgré les hypothèses fortes sous-jacentes.

La comparaison de ces corrections isotope par isotope nous permet de justifier l'utilisation des distributions en énergie cinétique de la masse pour corriger chaque isotope, autrement dit, l'hypothèse forte faite à l'équation 4.20 est justifiée.

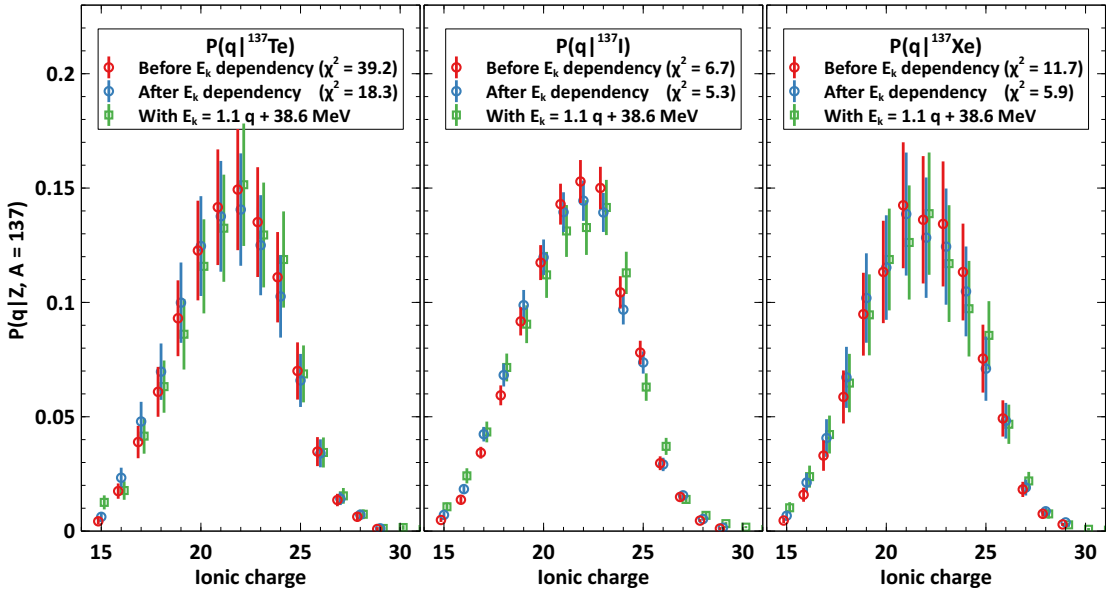


FIGURE 4.21: Pour chaque isotope de la masse 137, Te, I et Xe, la distribution en charge ionique de la méthode « classique », avant et après correction de la dépendance en énergie cinétique, comparée à la méthode « variable ». Les valeurs de χ^2 sont un indicateur de la pertinence des comparaisons ($\chi^2_{lim} = 22,3$ pour un CL de 90%). Par soucis de lisibilité, les différentes distributions sont légèrement décalées les unes des autres.

4.2 Normalisation

4.2.1 Normalisation relative

Nous avons maintenant isotope par isotope le taux relatif de production par fission. En sommant sur la distribution en charge ionique, nous pouvons définir le rendement relatif de la charge nucléaire Z, autrement dit, la distribution en charge nucléaire pour la masse A :

$$P(Z_i|A) = \frac{\sum_j N_q(q_j|Z_i)}{\sum_{j,l} N_q(q_j|Z_l)} \tag{4.24}$$

C'est une étape intéressante car nous pouvons nous comparer à d'autres données sans prendre en compte la normalisation absolue qui, fait intervenir de nouvelles hypothèses et notre connaissance des rendements en masse (voir Sous-Sec. 4.2.2). Grâce à cette normalisation relative nous pouvons comparer la distribution en charge nucléaire sans les incertitudes et biais induits par la normalisation absolue.

4.2.2 Normalisation absolue

Afin d'obtenir les rendements isotopiques il nous faut une équivalence entre les grandeurs obtenues et les rendements de fission. Pour cela nous nous appuyons sur les

résultats de la masse 139, où quatre isotopes sont visibles, l'I, le Xe, le Cs et le Ba, respectivement de charge nucléaire 53 à 56. Pour cette masse, la distribution isotopique susceptible d'être obtenue est très complète, comme le montre la figure 4.22.

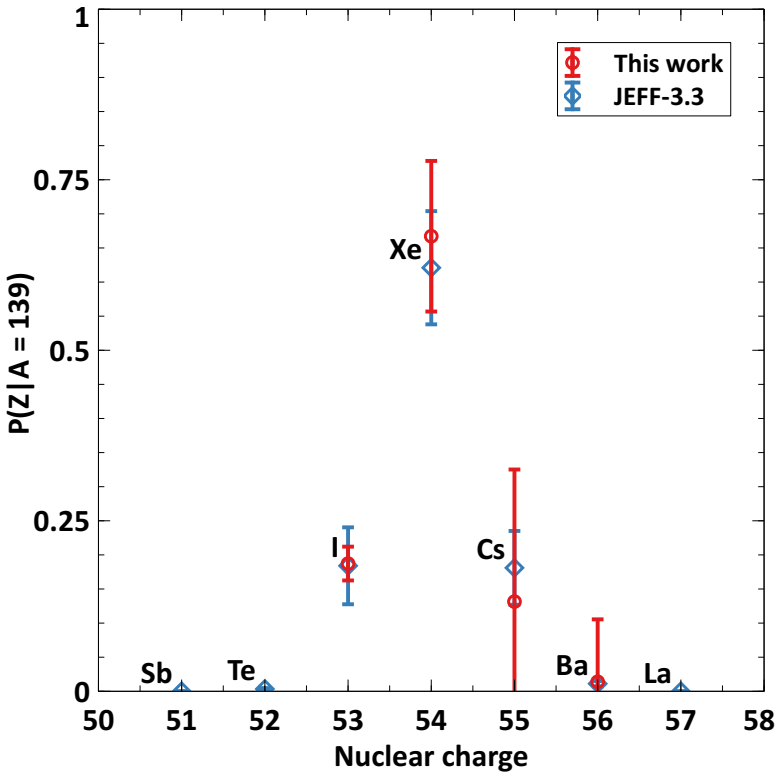


FIGURE 4.22: La distribution en charge nucléaire obtenue pour la masse 139, comparée à JEFF-3.3. Pour cette masse, le rendement des isotopes non mesurés est supposé négligeable.

Aucun état isomérique n'est connu pour cette masse et les rendements des charges nucléaires inférieures à $Z = 53$ et supérieures à $Z = 56$ sont supposées négligeables. Dans JEFF-3.3, le rendement cumulé des charges 53 à 56 représente 99,66% du rendement en masse total, dans ENDF-B/VII.1, il s'élève à 99,70%. En étant conservatif, cette hypothèse induit un biais de 0,5%, négligeable comparée aux autres sources d'incertitude.

Nous connaissons le rendement en masse de la masse 139 puisque nous l'avons mesuré avec la chambre d'ionisation, voir chapitre 3. Il est alors possible d'écrire une équivalence entre les rendements obtenus depuis les détecteurs Ge et celui obtenu avec la chambre (CI) :

$$\sum_{Z=53}^{56} Y_{Ge}(139, Z) = Y_{CI}(139) \tag{4.25}$$

et $\forall Z$:

$$Y_{Ge}(139, Z) = k_{139} \cdot \sum_{q} N_q(q|139, Z) = k_{139} \cdot N_{Ge}(139, Z) \tag{4.26}$$

Avec k_{139} un facteur de normalisation constant. Afin de respecter l'équation 4.25, k_{139} est tel que :

$$k_{139} = \frac{Y_{CI}(139)}{\sum_Z N_{Ge}(139, Z)} = \frac{Y_{CI}(139)}{N_{Ge}^{tot}(139)} \tag{4.27}$$

Les mesures utilisant la chambre et les Ge sont indépendantes, puisqu'elles correspondent à deux campagnes expérimentales et deux analyses différentes.

L'importance des corrélations prend ici tout son sens. Si le facteur k_{139} est calculé sans corrélation, nous obtenons une incertitude relative de 24,6%, alors qu'en propageant les corrélations des N_q, elle n'est plus que de 11,1%. L'incertitude obtenue sans les covariances est largement surestimée et aura un impact direct sur les rendements de fission normalisés.

Maintenant que le facteur de normalisation k_{139}, reliant les mesures en chambre d'ionisation et avec les détecteurs Ge, est défini, nous pouvons l'utiliser pour normaliser les rendements isotopiques pour chacune des masses mesurées :

$$Y(A, Z) = k_{139} \cdot N_{Ge}(A, Z) \tag{4.28}$$

4.2.3 Résumé des étapes d'analyse et des sources de corrélation.

Le schéma d'analyse est résumé par étape dans le tableau 4.5 et les sources de corrélation sont indiquées. Tout au long de l'analyse les corrélations, qui comme nous venons de le voir ont un impact majeur, sont propagées afin d'estimer au mieux les incertitudes de nos résultats.

Pour bien illustrer le travail accompli sur les corrélations et leurs propagations, la figure 4.23 présente l'évolution de la matrice de corrélation à travers différente étapes de l'analyse l'influençant particulièrement.

La première matrice, en haut à gauche, correspond à la fin de l'étape 3, la moyenne des J_γ, pour chaque charge ionique et isotope. Les corrélations représentent alors la part de l'incertitude statistique et des I_γ^{rel} dans l'incertitude totale, qui intègre aussi à cette étape l'incertitude sur l'efficacité. Pour le Xe notamment une structure très forte apparaît, il émet des raies γ bien visibles, avec une très bonne statistique et a des I_γ^{rel} bien connus. Ainsi, l'incertitude ne vient quasiment que de l'efficacité, dont la matrice de corrélation est unitaire. Les corrélations entre les charges ioniques du Xe [8] sont alors proches de 1. Les corrélations faibles à l'intérieur du Xe proviennent des faibles taux de comptage obtenus aux charges extrêmes.

8. Nous parlerons dans la suite de corrélation intra-isotope pour les corrélations entre les différentes charges ioniques d'un même isotope.

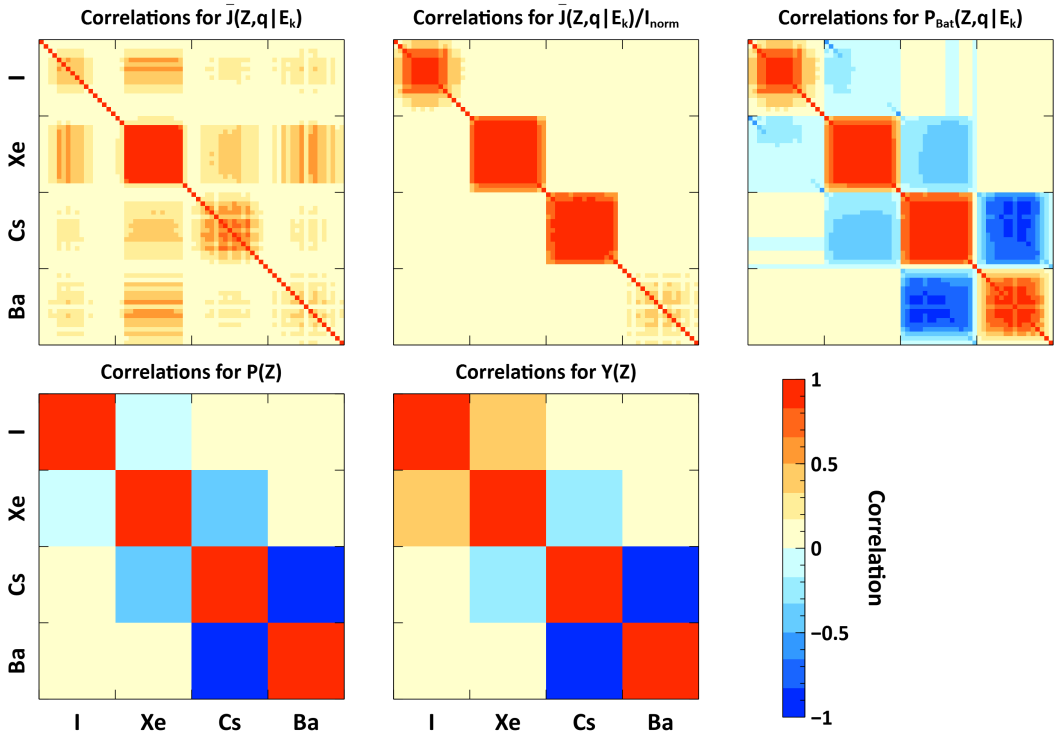


FIGURE 4.23: La matrice de corrélation pour la masse 139 aux étapes clés de son évolution. En haut : après la moyenne sur les raies γ (étape 3), à gauche, après la division par I_γ^{norm} (étape 4), au milieu et après le calcul du taux de production indépendant (étape 6), à droite. En bas : après la correction en énergie cinétique, sommé sur les charges ioniques (étape 9), à gauche et après la normalisation absolue (étape 11), à droite.

La division par I_γ^{norm}, dont l'incertitude est importante devant celle de l'efficacité, va réduire les corrélations entre isotopes [9] car le poids de l'incertitude commune devient négligeable, comme nous pouvons le voir sur la matrice en haut au milieu, correspondant à la fin de l'étape 4. A l'inverse, comme I_γ^{norm} est commun à chaque charge ionique au sein d'un isotope, les corrélations intra-isotope augmentent sensiblement. Le Ba est une exception, pour lui qui a une incertitude statistique importante, l'incertitude de $I_\gamma^{norm} = 0,00261 \pm 0,00003$ n'a qu'un impact faible.

Après le système d'équations de Bateman, voir la matrice en haut à droite de la fin de l'étape 6, des corrélations négatives apparaissent. Pour chaque isotope, la composante venant des isotopes précédents est soustraite. Nous pouvons d'ailleurs observer que l'impact de l'isotope père est important, mais qu'il n'y a que peu d'effet des grands-parents.

Lorsque les taux de production sont sommés sur les charges ioniques à la fin de l'étape 9, nous obtenons la matrice en bas à gauche, qui est en quelque sorte la matrice

9. Nous parlerons dans la suite de corrélation inter-isotopes pour les corrélations entre deux isotopes (GS ou isomère) différents.

précédente à une résolution réduite. Entre ces deux étapes la matrice évolue peu car les incertitudes induites entre ces deux étapes sont faibles devant celles déjà existantes.

Enfin, lorsque la normalisation absolue est effectuée, de nouvelles corrélations apparaissent. Notamment sur la covariance entre l'I et le Xe, car l'incertitude de l'I jusqu'ici relativement faible sera affectée significativement par cette étape, contrairement aux autres isotopes.

Un caractère important de ce travail est qu'il est facile à mettre à jour lorsque de nouvelles données de structure nucléaire (intensité des désintégrations, rapports d'embranchement et demi-vie) sont disponibles. Toute la procédure est automatisée et ne nécessite que quelques minutes de calculs.

Tableau 4.5: Les différentes étapes d'analyse et les corrélations qu'elles induisent. Pour certaines étapes, entre parenthèses, l'incertitude typique de l'étape est indiquée. L'étape 10 n'est pas nécessaire pour l'obtention des rendements.

Étape	Description	Corrélations induites
1	Extraction du nombre de coup par raie γ de chaque isotope (A, Z), pour chaque charge ionique q : $N_{\gamma i}(Z, q\|E_k)$	Indépendants/pas de corrélation (<1 à 10%)
2	Division par ϵ_γ, $I_{\gamma i}^{rel}$ et $f_{\gamma i}$: $J_{\gamma i}(Z, q\|E_k) = \dfrac{N_{\gamma i}(Z, q\|E_k)}{\epsilon_\gamma \cdot I_{\gamma i}^{rel} \cdot f_{\gamma i}}$	Intra-isotope (ϵ_γ, $I_{\gamma i}^{rel}$, $f_{\gamma i}$) et inter-isotopes (ϵ_γ) (<2 à 10%)
3	Moyenne par isotope des $J_{\gamma i}$ tout en vérifiant leurs compatibilité : $\overline{J}(Z, q\|E_k)$	$\searrow$ inter-isotopes (compatibilité : ajout d'incertitudes 0 à 2%)
4	Division par $I_{\gamma i}^{norm}$: $\overline{J}_{norm}(Z, q\|E_k)$	$\searrow$ inter-isotopes et $\nearrow$ intra-isotope (0 à 10%)
5	Soustraction du bruit de fond : $\boldsymbol{J_{Rdt}}(Z, q\|E_k)$	Inter-isotopes
6	Calcul du taux de production indépendant : $\boldsymbol{P_{Bat}}(q\|E_k)$	Inter-isotopes
7	Correction du temps de vol : $\boldsymbol{P_{TOF}}(q\|E_k)$	Inter-isotopes
8	Correction du BU : $P_{BU}(Z, q\|E_k)$	Intra-isotopes et inter-isotopes (2 à 3%)
9	Correction de la dépendance en énergie cinétique : $N_q(Z, q)$	Intra-isotopes et inter-isotopes (2 à 3%)
(10)	Normalisation relative : $P(Z\|A)$	Inter-isotopes
11	Normalisation absolue $Y(A, Z)$	Inter-isotopes (>10%)

4.3 Détermination du rendement résiduel

Maintenant que cette normalisation absolue est terminée, nous pouvons comparer la somme des rendements isotopiques obtenues, aux rendements en masse $Y(A)$ déterminés dans le chapitre précédent. Ces résultats sont indiqués dans le tableau 4.6. Nous indiquons aussi dans ce tableau, le rendement résiduel $Y(A)_{res} = \sum_Z Y(A,Z) - Y(A)$.

Tableau 4.6: La somme des rendements isotopique pour chaque masse obtenue (mesures isotopiques de 2013) comparés au rendement en masse (mesures isobariques de 2013 et 2015) et la différence des deux.

A	$Y(A)$ (%)	$\sum_Z Y(A,Z)$ (%)	$Y(A)_{res}$ (%)
130	2,021 ± 0,052	1,922 ± 0,221	0,099 ± 0,227
132	4,381 ± 0,356	2,682 ± 0,317	1,699 ± 0,477
136	7,035 ± 0,175	4,497 ± 0,514	2,538 ± 0,543
137	7,123 ± 0,192	8,171 ± 1,194	-1,048 ± 1,209
138	6,525 ± 0,193	5,763 ± 0,749	0,762 ± 0,773
139	5,718 ± 0,176	5,718 ± 0,877	0,000 ± 0,894
140	5,020 ± 0,166	4,860 ± 0,584	0,160 ± 0,607
141	5,291 ± 0,159	5,979 ± 0,709	-0,688 ± 0,727

Nous pouvons voir d'après le tableau 4.6, que la somme des rendements isotopiques pour les masses 137 et 141 est supérieure aux rendements en masse, les rendements résiduels sont négatifs. Aux vues des incertitudes, ces valeurs négatives sont compatibles avec 0, ce n'est donc pas un problème pour la cohérence de nos résultats. Pour les autres masses, ce $Y(A)_{res}$ représente la somme des rendements isotopiques que nous n'avons pas pu mesurer, dû notamment à leurs durées de vie trop importantes ou trop faibles, ou à un rendement trop faible. Pour les masses 130 et 140, les rendements des éléments non mesurés en début de chaîne sont attendus négligeables, le rendement résiduel est ainsi associé à l'isotope en bout de chaîne, dont la durée de vie ne permet pas la mesure. Pour la masse 138, le rendement résiduel peut être associé à l'isotope en début de chaîne, le ^{138}Te ($T_{1/2}$=1,4 s) ou à l'isotope en bout de chaine, le ^{138}Ba (stable). La demi-vie du ^{138}Te est compatible avec notre dispositif expérimental mais aucune donnée γ n'est disponible [141]. Afin de choisir à qui attribuer ce rendement résiduel nous nous basons sur les évaluations existantes. Au vue des rendements proposés, nous faisons l'hypothèse que le rendement du ^{138}Ba est négligeable et que le rendement résiduel de la masse 138 peut être attribué au ^{138}Te. Pour les masses 132 et 136 enfin, le rendement résiduel est particulièrement important. Nous faisons l'hypothèse que le rendement résiduel correspond au rendement de plusieurs isotopes au delà du dernier mesuré.

Un résumé masse par masse est présenté dans le tableau 4.7.

Tableau 4.7: Le rendement estimé des isotopes non mesurables obtenu à partir de $Y(A)_{res}$ pour la campagne de 2013 et leurs période radioactive.

A	Isotope	Y(A,Z) estimé	$T_{1/2}$
130	Te	0,099 ± 0,227	stable
132	$\geq {}^{gs}$Te	1,699 ± 0,477	3,2 d (^{gs}Te)
136	$\geq {}^{gs}$Xe	2,538 ± 0,543	stable (^{gs}Xe)
138	Te	0,762 ± 0,773	0,4 s
140	Ba	0,160 ± 0,607	12,7 d

4.4 Extraction de la polarisation de charge

Chaque distribution isotopique peut-être ajustée par une distribution gaussienne afin d'en extraire la charge nucléaire moyenne $\overline{Z}$ et son écart-type σ_Z. Cet ajustement, proposée en 1962 par Wahl [63], est illustré pour les masses 140, 132 et 136, sur la figure 4.25. Pour les masses 132 et 136, le rendement résiduel associé au dernier isotope est important, l'hypothèse gaussienne n'est pas justifiée car elle prévoit des rendements non négligeables aux charges élevées que nous n'avons pas mesurées. Comme nous venons de le voir, il faut plutôt présenter ce rendement résiduel comme la somme des rendements que nous ne pouvons pas mesurer. Il est le rendement cumulé des isotopes respectivement après le ^{132}Te et le ^{136}Xe. Il ne faut donc pas l'inclure dans un ajustement du rendement indépendant, mais, dans l'ajustement du rendement cumulé[10]. Nous avons plusieurs choix, quant à la contrainte de la convergence à 1 du rendement cumulé (normalisé à 1 lorsque nous effectuons l'ajustement). Le tableau 4.8 présente les résultats sur $\overline{Z}_{fit}$ et $\sigma_{Z\ fit}$ selon la valeur de Z_{max} choisi. Un exemple est présenté sur la figure 4.24 et le résultat de cet ajustement est reporté sur la figure 4.25. Nous savons que Z_{max} ne peut pas être trop éloigné de la charge maximale que nous mesurons. Afin de rester conservatif, nous choisissons la moyenne des cas à +1 et +2 en considérant en plus de l'incertitude de l'ajustement, leurs dispersions.

Tableau 4.8: Les $\overline{Z}$ et σ_Z obtenus par ajustement du rendement cumulé pour les masses 132 et 136, en fonction de la contrainte sur la charge maximale.

132				136			
Z_{max}	$\overline{Z}_{fit}$	$\sigma_{Z\ fit}$	χ_{fit}	Z_{max}	$\overline{Z}_{fit}$	$\sigma_{Z\ fit}$	χ_{fit}
52	51,30 ± 0,07	1,08 ± 0,05	1,91	54	53,42 ± 0,08	0,88 ± 0,04	3,44
53	51,43 ± 0,08	1,18 ± 0,07	8,87	55	53,69 ± 0,10	0,99 ± 0,04	24,4
54	51,40 ± 0,08	1,16 ± 0,07	15,3	56	53,53 ± 0,09	0,93 ± 0,04	43,8
55	51,31 ± 0,07	1,10 ± 0,05	16,7	57	53,46 ± 0,08	0,90 ± 0,04	45,5
56	51,30 ± 0,07	1,08 ± 0,05	16,8	58	53,46 ± 0,08	0,90 ± 0,04	45,5

10. Pour les autres masses, l'ajustement sur le rendement indépendant ou sur le rendement cumulé amènent au même résultats.

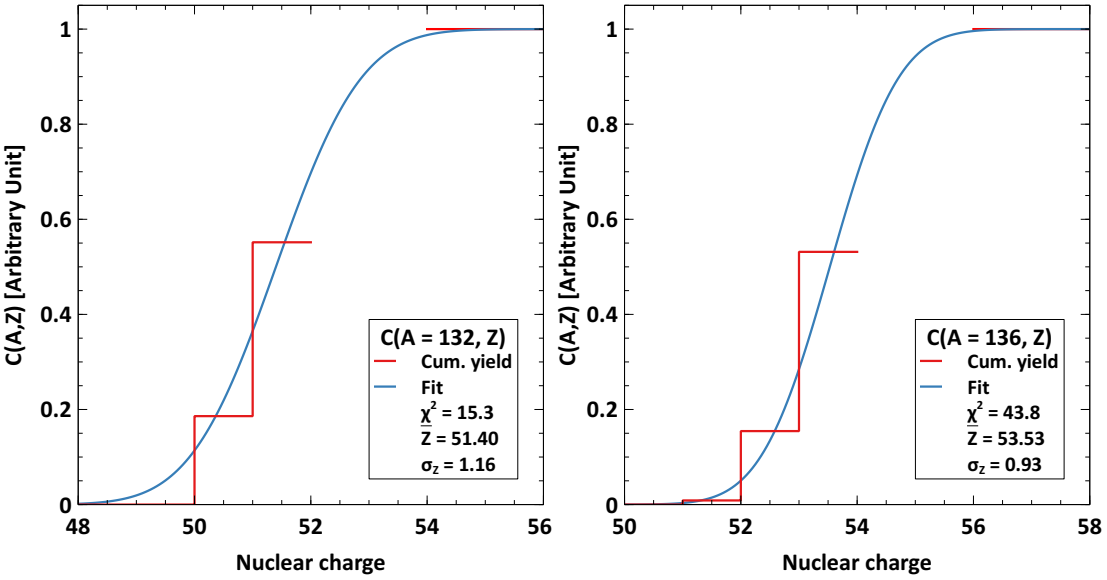


FIGURE 4.24: Le rendement cumulé (normalisé à 1 pour une masse) en fonction de la charge nucléaire (en rouge) pour les masses 132 (à gauche) et 136 (à droite) ajusté par la fonction de répartition d'une gaussienne (en bleu). La contrainte $C(A, Z) = 1$ est attribuée à la charge maximale mesurée +2 (respectivement 54 et 56).

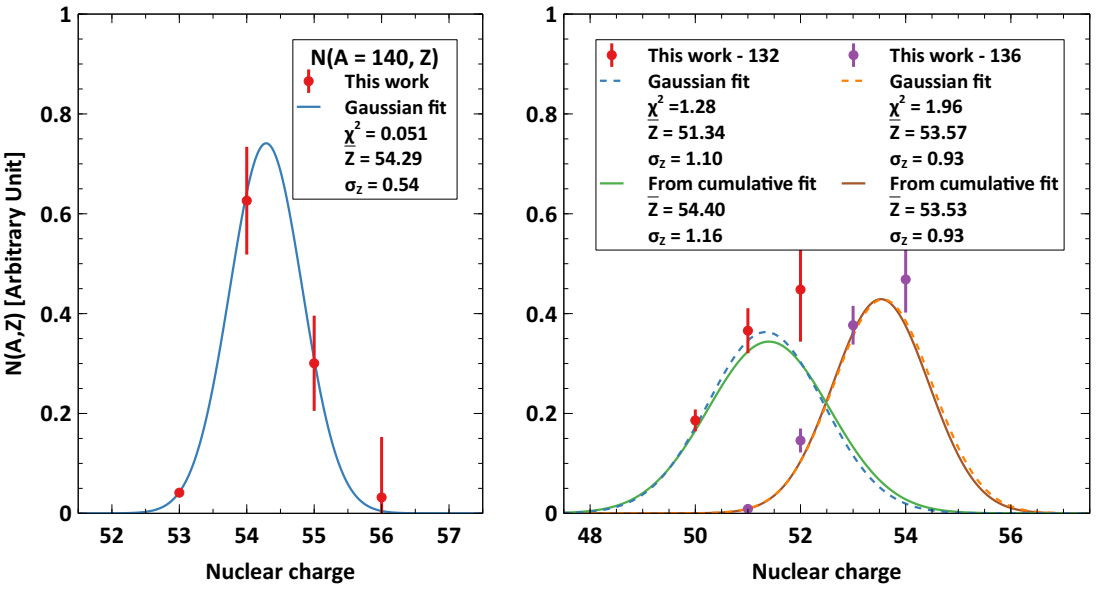


FIGURE 4.25: Les distributions en charge nucléaire (incluant le rendement résiduel) de la masse 140 (à gauche), 132 et 136 (à droite) obtenues, ajustées par une distribution gaussienne, ainsi que par la cumulative d'une gaussienne pour les masses 132 et 136.

Ces $\overline{Z}$ sont utiles comme données d'entrée au modèle Z_p de Wahl, décrit dans la sous-section 2.2.1, car il est possible d'en déduire la polarisation de charge ΔZ.

La polarisation de charge, comme nous l'avons déjà vu, est définie comme la différence entre la charge la plus probable de la masse pré-neutrons A_{pre} et la charge obtenue avec l'hypothèse d'une densité de charge nucléaire constante entre le noyau composé et les deux fragments de fission (hypothèse UCD) :

$$\Delta Z(A_{pre}) = \overline{Z}(A_{pre}) - Z_{UCD}(A_{pre}) \tag{4.29}$$

$$Z_{UCD}(A_{pre}) = A_{pre}\frac{Z_{CN}}{A_{CN}} \tag{4.30}$$

Avec $Z_{CN} = 94$ et $A_{CN} = 242$. La masse A_{pre} est ici une masse pré-neutrons, or, nos données sont obtenues après émission des particules promptes.

En utilisant la distribution de neutron prompts émis par chaque masse pré-neutrons, $\nu(A_{pre})$, fournie par FIFRELIN, ainsi que les rendements pré-neutrons de GEF, nous pouvons estimer une masse pré-neutrons moyenne, $\overline{A}_{pre}$, correspondant à la masse post-neutron A mesurée. Nous définissons cette masse comme la moyenne des masses pré-neutrons pouvant aboutir à la masse post-neutron A :

$$\overline{A}_{pre} = \frac{\sum_{A_{pre}} A_{pre} Y(A_{pre}) P(\nu)}{\sum_{A_{pre}} Y(A_{pre}) P(\nu)} \tag{4.31}$$

Où $P(\nu)$ est la probabilité d'émettre ν neutrons prompts, tel que : $A_{pre} - \nu = A$, également fournie par FIFRELIN. Cette définition implique que $\overline{A}_{pre}$ n'est pas un entier. Comme la charge nucléaire ne change pas lors de l'émission de neutron prompts, $\overline{Z}(A) = \overline{Z}(\overline{A}_{pre})$, nous pouvons calculer $\Delta Z(\overline{A}_{pre})$ pour chaque masse A post-neutron.

Le tableau 4.9 regroupe les résultats des ajustements et des calculs de polarisation de charge. Les résultats de cette procédure pour nos données sont montrés sur la figure 4.27 et sont comparés aux données de Schillebeeckx et al. [142], obtenues sur Cosi-fan-Tutte et à JEFF-3.3. Lorsque cette valeur n'a pas été mesurée, il est classique dans le modèle de Wahl de choisir $\Delta Z = +0,5$ pour les fragments légers et $\Delta Z = -0,5$, pour les lourds, ce qui est bien loin des valeurs que nous obtenons.

Nous pouvons déjà observer un très bon accord vis à vis de JEFF-3.3 sur les masses post-neutrons 138 à 141 mais un écart fort pour les autres masses, à la fois en termes de valeurs que de structure. Les différentes solutions envisagées dans le tableau 4.8 pour les masses 132 et 136 ne modifient pas la structure observée sur nos résultats (même si les valeurs de ΔZ seraient différentes). Les données de Schillebeeckx et al., obtenues sur des masses légères, L, peuvent simplement être rapportées aux masses lourdes, H,

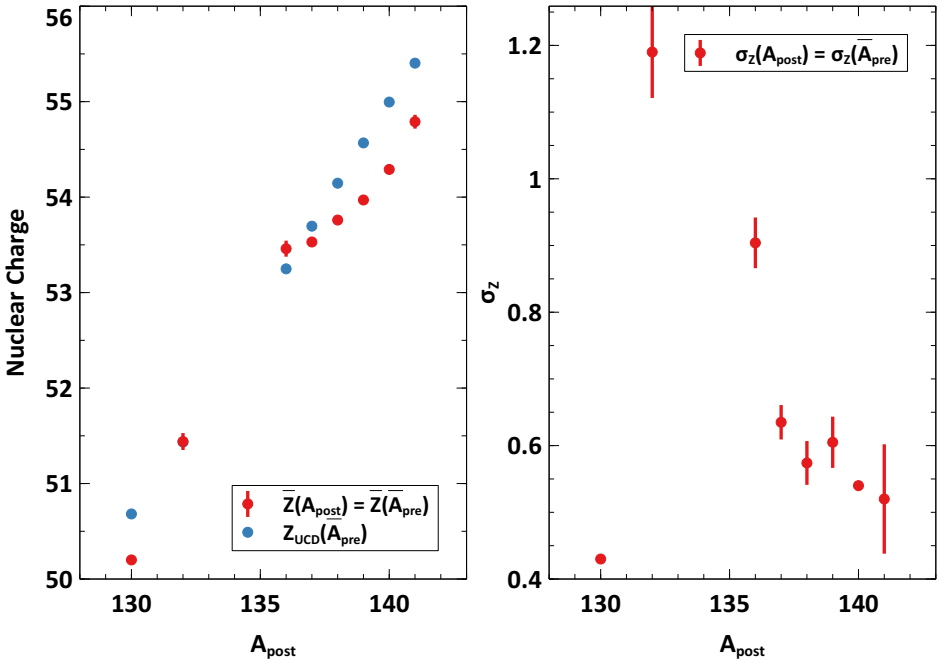


FIGURE 4.26: La charge moyenne mesurée en fonction de la masse post-émission neutron A_{post} comparée à la charge de l'hypothèse UCD (à gauche) et l'écart-type de la distribution (à droite).

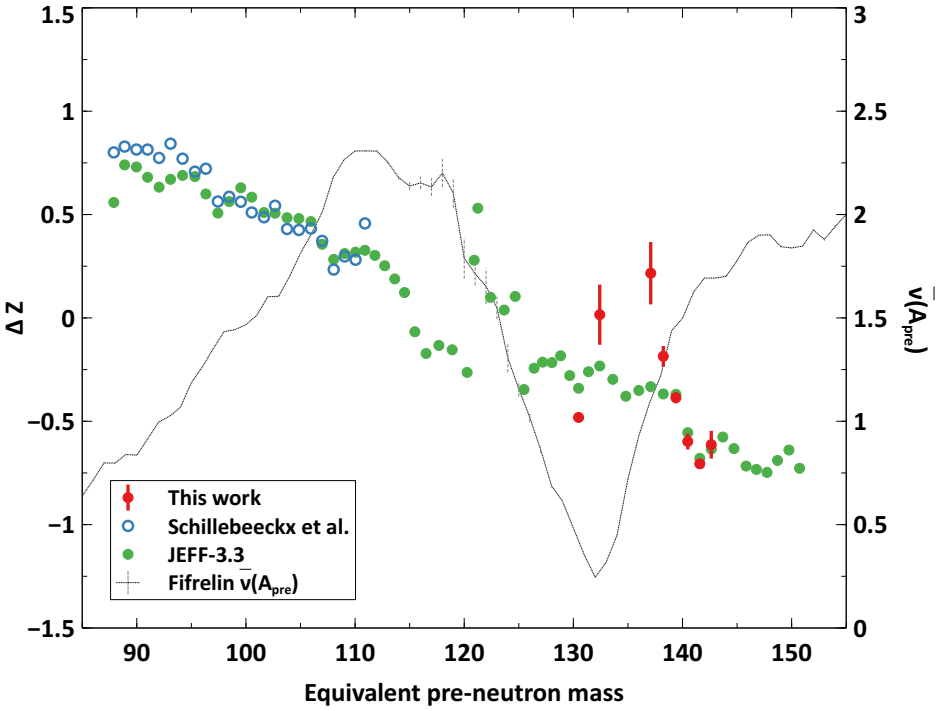


FIGURE 4.27: La polarisation de charge (axe de gauche) obtenue à partir des équations 4.30 et 4.31 pour nos données expérimentales (en rouge) comparée aux données de Schillebeeckx et al. (en bleu) et à JEFF-3.3 (en vert). La multiplicité moyenne des neutrons prompts en fonction de la masse, prédite par FIFRELIN, est aussi indiquée (en gris, sur l'axe de droite).

TABLEAU 4.9: Les $\overline{Z}$ et σ_Z obtenus par ajustement d'une gaussienne aux rendements indépendants et pour les masses 132 et 136 obtenus par ajustement du rendement cumulé pour les masses 132 et 136, avec les masses pré-neutrons estimées et la polarisation de charge calculée

A	$\overline{Z}_{fit}$	σ_{Zfit}	$\overline{A}_{pre}$	ΔZ
130	50,20	0,43	130,48	-0,48
132	51,42	1,17	132,42	0,01
136	53,53	0,96	137,09	0,21
137	53,53	0,64	138,24	-0,17
138	53,76	0,58	139,40	-0,39
139	53,97	0,61	140,5	-0,60
140	54,29	0,54	141,6	-0,71
141	54,79	0,52	142,6	-0,61

complémentaires :

$$\overline{Z}(A^H_{pre}) = -\overline{Z}(A^L_{pre}) \quad \text{avec} \quad A^H_{pre} = 242 - A^L_{pre} \tag{4.32}$$

Un zoom sur la zone des masses lourdes mesurées, avec l'extrapolation des données de Schillebeeckx et al. est proposé sur la figure 4.28. Nous obtenons pour toutes les masses mesurées un écart important. La résolution en masse de Cosi-fan-Tutte ($\equiv 0,8\%$ [142]) est moindre que celle de LOHENGRIN, ce qui pourrait donner un début d'explication à ces écarts. Néanmoins, cette figure est une incitation à de nouvelles mesures entre les masses 132 et 136 ainsi que sur des masses plus lourdes pour comprendre si cette structure est locale ou non. De nouvelles mesures sur les masses complémentaires légères seraient aussi nécessaire afin de vérifier que les mêmes structures sont observées et que les présents résultats ne sont pas dû à un biais non compris dans notre procédure d'analyse.

4.5 Mesure de la dépendance en énergie cinétique des rendements isotopiques

Pour les masses 92, 138 et 139, des mesures des distributions en charge ionique ont été faites à différentes énergies cinétiques lors de la campagne de mesure de Juillet 2016. Idéalement ce type de mesure se fait avec une cible très fine afin de limiter les pertes d'énergie et la déformation de la distribution en énergie cinétique dans la cible. Mais une cible si fine implique un faible taux de comptage et le temps de mesure avec les détecteurs Ge déjà élevé, est encore rallongé. Pour une première prospection, nous nous sommes tournés vers une cible d'épaisseur moyenne (voir Tab. 4.1) au risque de mesurer des effets moins marqués.

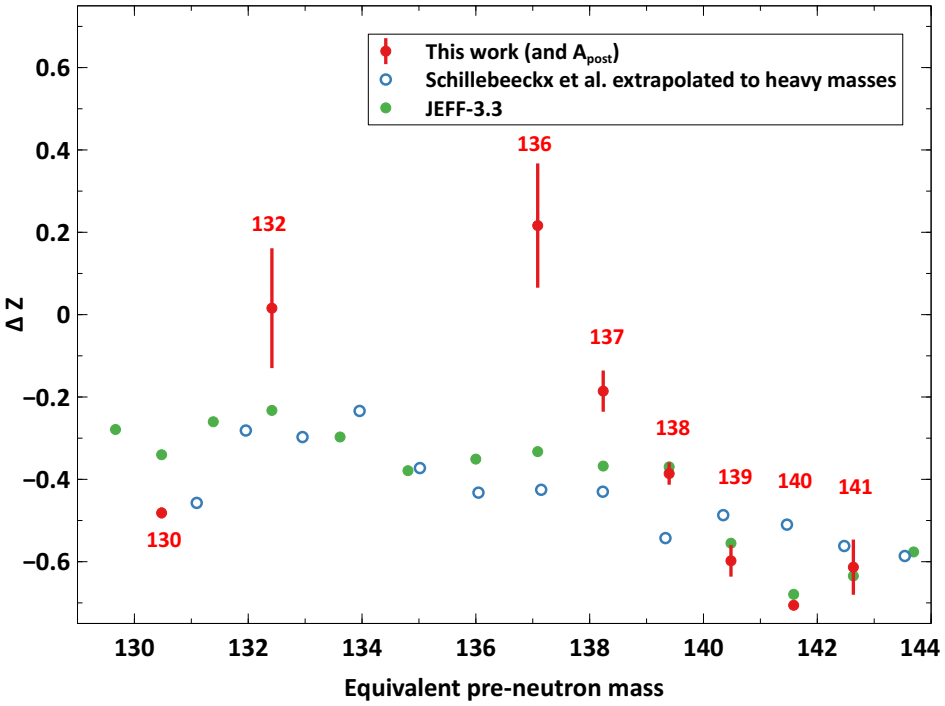


FIGURE 4.28: La polarisation de charge obtenue pour nos données expérimentales (en rouge) comparée aux données de Schillebeeckx et al. extrapolées aux masses lourdes (en bleu) et à JEFF-3.3 (en vert).

Trois énergies ont été mesurées pour les masses 92 et 138 et cinq pour la masse 139. Nous n'aborderons que cette dernière, car c'est sur celle-ci que nous avons pu explorer le mieux la distribution en énergie cinétique.

Pour des énergies cinétiques faiblement produites, le rapport signal sur bruit est très faible et les taux de comptages obtenus ont une incertitude statistique importante. Au cours de la résolution des équations de Bateman, l'incertitude de chaque élément en amont de la chaîne se répercute sur chaque isotope. Comme nous l'avons déjà vu sur les résultats des expériences de 2013, où l'incertitude statistique était souvent négligeable, l'incertitude finale atteint facilement quelques dizaines de pourcents. Ici, comme nous pouvons le voir sur la figure 4.29, aucune évolution claire de $P(Z|A)$ en fonction de l'énergie cinétique ne se dégage du fait des incertitudes importantes, à part pour l'I, le premier isotope de la chaîne. Nous obtenons un très bon accord entre les expériences de Mai-Juin 2013 et Juillet 2016.

Afin de pouvoir conserver des incertitudes raisonnables nous faisons le choix de ne travailler qu'avec les rendements cumulés : les étapes 6, 7 et 9 de l'analyse (voir Tab. 4.5) sont ignorées. En revanche, raisonner sur des rendements cumulés est plus délicat car leur signification physique est moins directe que les rendements indépendants. Afin d'interpréter au mieux ces résultats nous allons utiliser FIFRELIN, pour profiter

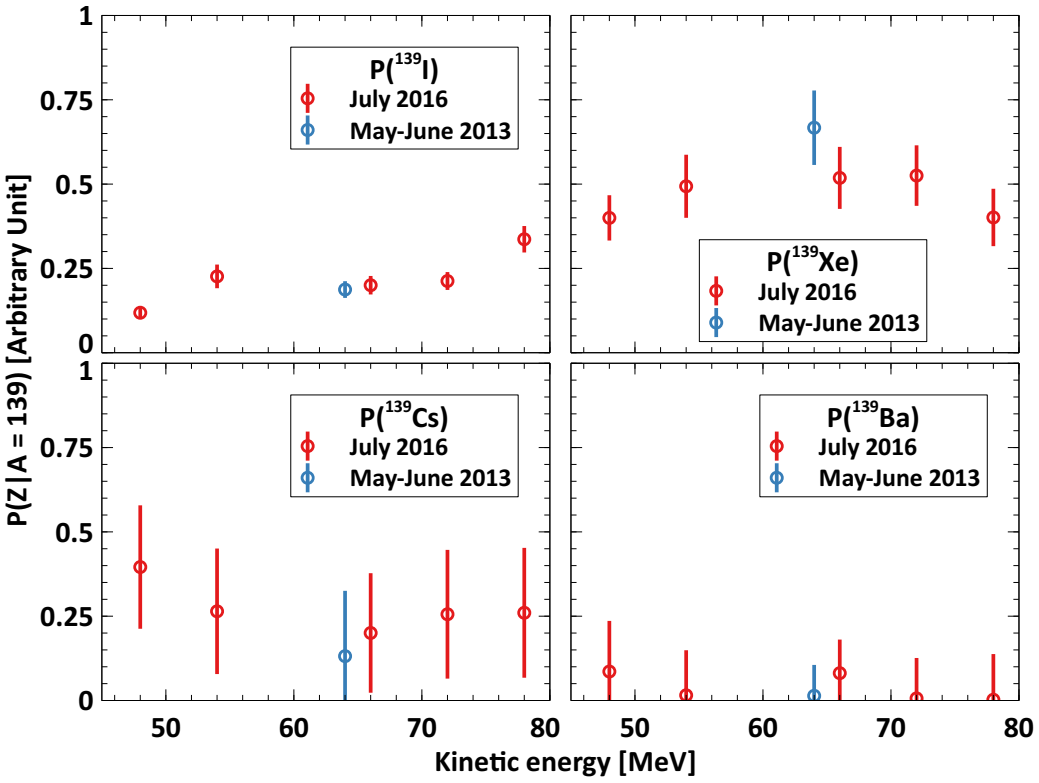


FIGURE 4.29: La probabilité d'obtenir par la fission l'^{139}I, en haut à gauche, le ^{139}Xe (en haut à droite), le ^{139}Cs (en bas à gauche) et le ^{139}Ba (en bas à droite) en fonction de l'énergie cinétique du produit de fission. En rouge pour l'expérience de Juillet 2016 et en bleu pour Mai-Juin 2013 à 64 MeV, à titre de comparaison.

de ses faibles incertitudes statistiques. Mais il faut dans un premier temps s'assurer que FIFRELIN est capable de reproduire nos mesures.

4.5.1 Comparaison à FIFRELIN

Avec FIFRELIN nous avons accès à la distribution en énergie cinétique de chaque isotope, $P(Z, E_k|A)$, qu'il va nous falloir traduire en observables comparables à nos observables expérimentales.

Il faut tout d'abord prendre en compte les pertes d'énergie qui s'opèrent dans la cible. Pour cela, nous allons convoluer la distribution de FIFRELIN par une distribution de Landau, du physicien éponyme. Celui-ci a montré [143] que la perte d'énergie de particules chargées à travers une couche mince suit une loi de Landau. Sa fonction caractéristique peut être paramétrisée en fonction de deux paramètres ξ et μ et nous utiliserons la fonction proposée dans ROOT [122], pour l'échantillonner. Dans cette paramétrisation, ξ est un paramètre d'échelle qui influera sur la largeur de la distribution et μ est approximativement la valeur la plus probable [11]. Ces paramètres sont ajustés

11. L'espérance et l'écart-type d'une loi de Landau ne sont pas définis.

afin de reproduire au mieux la distribution en énergie cinétique du point de BU le plus proche (correspondant à la distribution de la masse 136 à la charge 23), deux exemples sont proposés sur la figure 4.30.

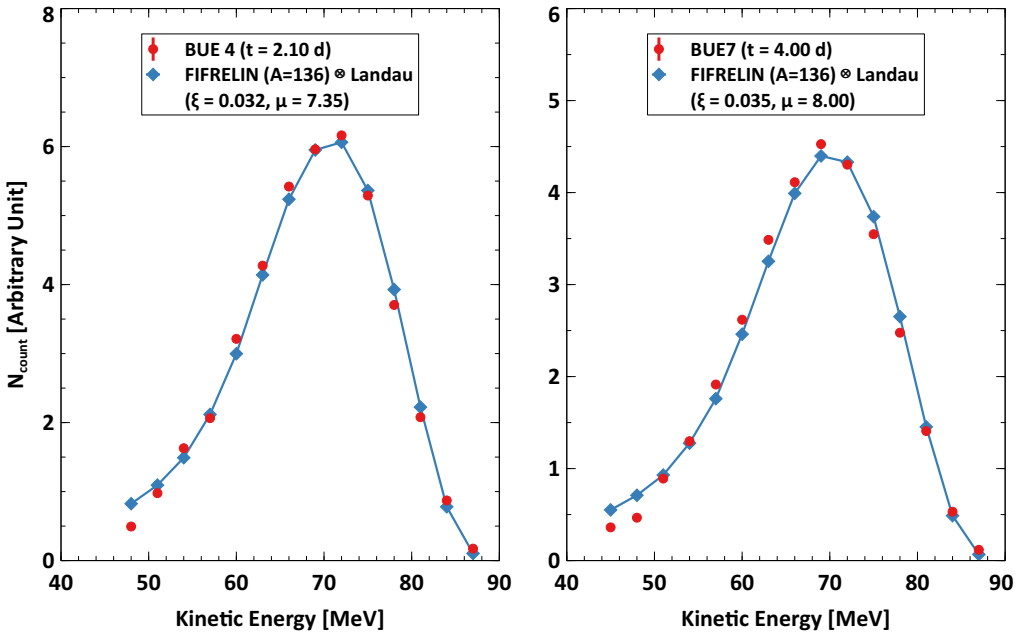


FIGURE 4.30: Résultats de la convolution de la distribution en énergie cinétique de la masse 136 de FIFRELIN à une loi de Landau ajustée pour reproduire les distributions expérimentales, pour la masse 136 à la charge 23 (BU) à deux temps différents.

La figure 4.31 présente un exemple sur la masse 139 des résultats de cette convolution. Nous pouvons voir que les structures de la distribution initiale sont complètement lavées par la perte d'énergie. En comparant la distribution obtenue par convolution à une mesure en chambre d'ionisation, faite à la charge ionique 22, proche de la charge moyenne, un très bon accord est observé, en dehors de la queue de distribution. Celle-ci est très accentuée avec la convolution et représente 6% de la distribution totale, pour les énergies en dessous de 39 MeV (le dernier point de la distribution expérimentale).

Il nous faut aussi prendre en compte la résolution en énergie cinétique de LOHENGRIN. En intégrant sur une porte en énergie, centrée sur l'énergie cinétique E_k souhaitée et de largeur égale à la résolution en énergie de LOHENGRIN à E_k, nous pouvons obtenir pour FIFRELIN, $P^{FIF}(Z|A, E_k)$, qu'il est possible de comparer à nos données expérimentales $P(Z|A, E_k)$.

Pour raisonner sur les rendements cumulés, il nous faut maintenant passer des rendements indépendants de FIFRELIN, aux rendements cumulés sur le temps t_m qu'a duré la mesure. Pour cela, il suffit d'inverser la matrice $\boldsymbol{Q}$ de Bateman (voir Eq. 4.16) obtenue pour un temps de mesure t_m. En effet, replongeons nous dans l'équation E.17

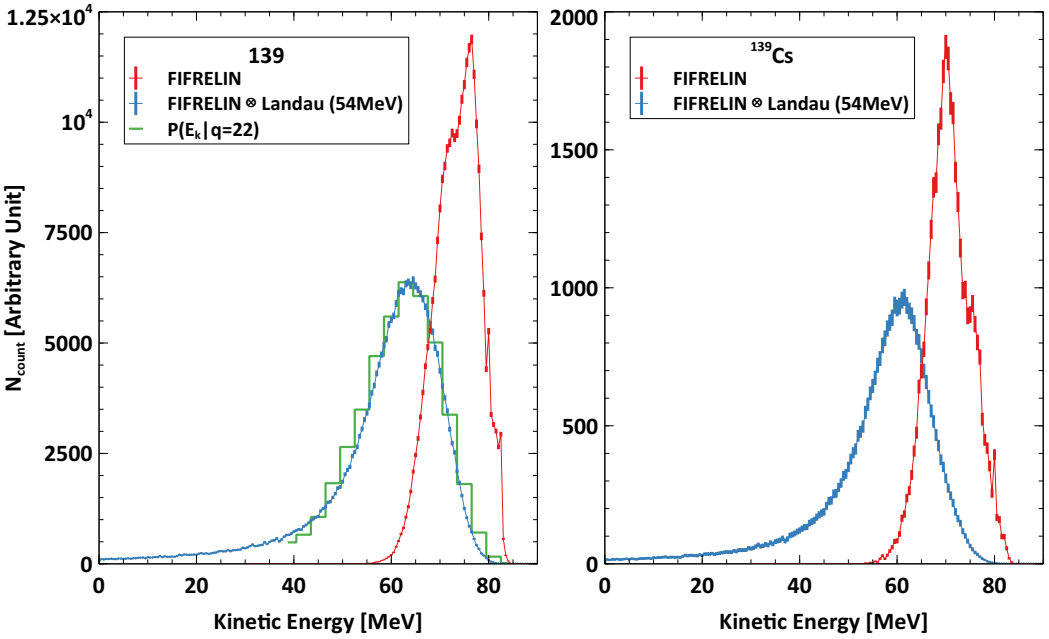


FIGURE 4.31: Résultats de la convolution des distributions de FIFRELIN à une loi de Landau pour les paramètres obtenus pour les mesures à 54 MeV. À gauche, la distribution de la masse 139, qui est aussi comparée à une mesure dans la chambre d'ionisation, à droite, la distribution du ^{139}Cs uniquement.

de l'annexe E et multiplions par $\boldsymbol{Q^{-1}}$ par la gauche, nous obtenons :

$$\boldsymbol{Q^{-1}P^{FIF}} = \boldsymbol{J^{FIF}_{Rdt}} \tag{4.33}$$

$\boldsymbol{P^{FIF}}$ étant fourni par FIFRELIN, pour trouver $\boldsymbol{J^{FIF}_{Rdt}}$ il nous faut la matrice $\boldsymbol{Q}^{-1}$.

Cette étape passée, nous n'en avons pour autant pas terminé. Car si nous avons reproduit la perte d'énergie tous isotopes confondus, pour une masse donnée, en ajustant ξ et μ pour reproduire la distribution en énergie cinétique du point de BU le plus proche, il faut s'assurer que les pertes sont indépendantes de la charge nucléaire. Afin de vérifier cela, des calculs de pertes d'énergie cinétique sont fait de la même manière que dans la sous-section 3.3.2, en prenant : soit la charge nucléaire moyenne de la masse, soit la charge nucléaire de chaque isotope. Ces valeurs sont indiquées pour la masse 139 dans le tableau suivant 4.10 et indiquent des pertes d'énergie très similaires pour les différentes charges nucléaires considérées. Ce test a aussi été fait avec une énergie cinétique initiale augmentée de 10 MeV (Tab. 4.10) et nous observons que la sensibilité des pertes d'énergie à l'énergie initiale est très faible devant l'ordre de grandeur des pertes d'énergie.

Ce deuxième test est rassurant, car même si les distributions en énergie cinétique de chaque isotope sont différentes, la perte d'énergie, elle, change peu. Ces calculs justifient l'ajustement des paramètres de la loi de Landau à une distribution en masse, tous isotopes confondus et l'application des mêmes paramètres à chaque isotope.

Tableau 4.10: Pertes d'énergie calculées pour la masse 139 en fonction de la charge nucléaire et de l'énergie cinétique initiale.

Z	ΔE_{pertes} [MeV] avec $E_i = 75$ MeV	ΔE_{pertes} [MeV] avec $E_i = 85$ MeV
$\overline{Z}$	9,92	10,15
53	9,65	9,83
54	9,93	10,10
55	9,86	10,04
56	9,98	10,16

De plus, si nous considérons les mesures faites avec la chambre d'ionisation lors de cette expérience, nous obtenons une énergie moyenne pour la masse 139 de 62,88±0,12 MeV. Or, pour cette énergie finale mesurée, nous calculons une perte d'énergie de 10,70±2,10 MeV. Ainsi, l'énergie cinétique moyenne initiale obtenue $\overline{E}_i(139) = 73,58 \pm 2,10$ MeV avec les pertes d'énergie calculées pour la masse 139 est parfaitement en accord avec l'énergie moyenne de FIFRELIN (sans pertes d'énergie) : $\overline{E}_{Fif}(139) = 73,50$ MeV.

Pour résumer, nous pouvons transformer la distribution $P(A, Z, E_k)$ de FIFRELIN en une observable similaire à nos mesures :

1. En convoluant une distribution de Landau à FIFRELIN afin de reproduire les pertes d'énergie ayant lieu dans la cible
2. En intégrant autour de l'énergie moyenne de FIFRELIN en considérant une plage d'énergie de quelques MeV, égale à la résolution de LOHENGRIN
3. En résolvant les équations de Bateman pour passer du rendement indépendant de FIFRELIN à un rendement cumulé sur le temps de mesure

Les intervalles d'intégrations, ainsi que les paramètres de la distribution de Landau utilisés, sont indiqués ci-après, dans le tableau 4.11.

Tableau 4.11: Paramètres de la distribution de Landau et intervalles d'intégrations de la distribution $P(A, Z, E_k)$ de FIFRELIN pour la comparaison aux données expérimentales.

A	E_k (MeV)	ξ	μ	$\Delta_{int}(E_k)$ (MeV)
139	48	0,032	7,4	2,12
	54	0,035	8,00	2,38
	66	0,034	8,00	2,91
	72	0,036	8,25	3,18
	78	0,032	7,35	3,44

Les résultats de la comparaison entre FIFRELIN et nos expériences sont montrés sur la figure 4.32 pour les rendements indépendants et sur la figure 4.33 pour les rendements cumulés. Ces résultats sont très satisfaisants. Si nous avions des tendances difficiles à

extraire pour les rendements indépendants, nous avons avec les rendements cumulés une très bonne adéquation entre FIFRELIN et nos mesures et des évolutions très marquées.

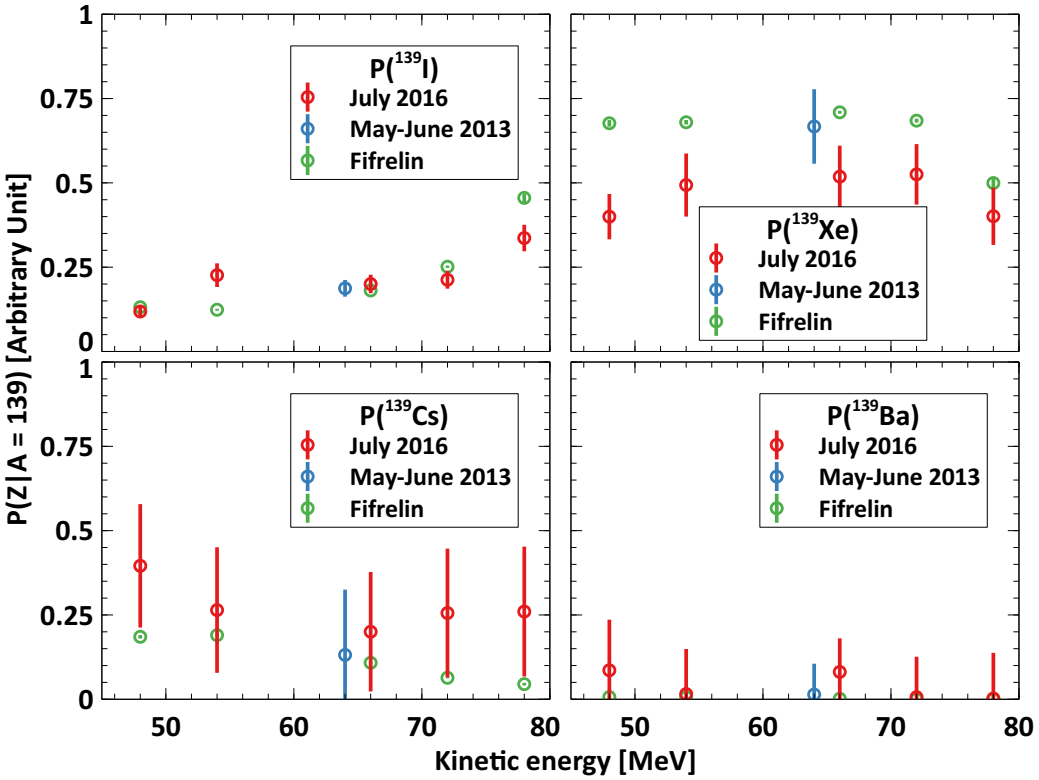


FIGURE 4.32: La probabilité d'obtenir par la fission l'^{139}I (en haut à gauche), le ^{139}Xe (en haut à droite), le ^{139}Cs (en bas à gauche) et le ^{139}Ba (en bas à droite) en fonction de l'énergie cinétique du produit de fission. En rouge pour l'expérience de Juillet 2016 et en bleu pour Mai-Juin 2013 à 64 MeV à titre de comparaison. En vert les rendements obtenues avec FIFRELIN.

Sur les figures 4.34 et 4.35, ces résultats sont exposés sous forme de ratios entre les rendements cumulés des isotopes de la masse 139. De cette manière, les structures sont plus visibles et nous nous affranchissons d'une quelconque normalisation.

Nous reproduisons bien les résultats expérimentaux avec cette procédure, en retrouvant les mêmes évolutions des productions isotopiques cumulées en fonction de l'énergie cinétique. D'un point de vue statistique (toujours avec un CL à 90%), uniquement l'I à l'énergie cinétique 54 MeV engendre un χ^2 préoccupant pour la figure 4.33. Ceci est visible sur la figure 4.34, où chaque ratio à 54 MeV est très au-dessus de ce que propose FIFRELIN.

Néanmoins, nous allons considérer ces comparaisons suffisamment satisfaisantes pour valider FIFRELIN sur l'évolution des rendements cumulés. Nous pouvons désormais utiliser les rendements indépendants de FIFRELIN pour discuter de nos mesures et essayer de comprendre ces structures.

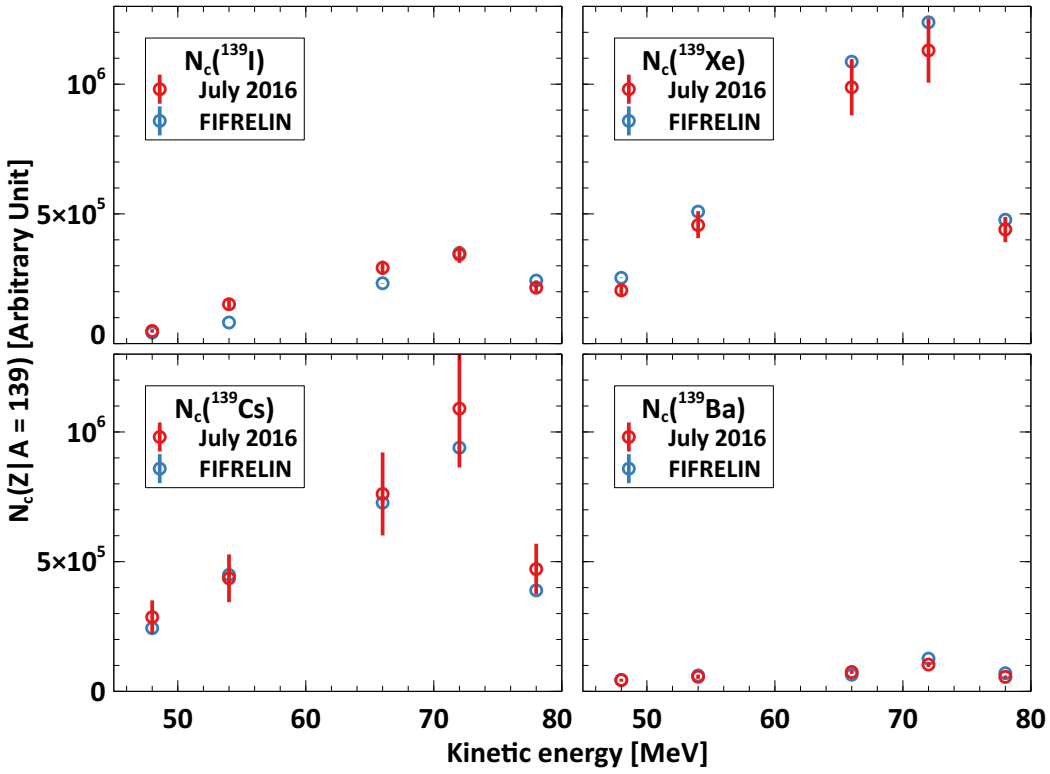


FIGURE 4.33: L'évolution en fonction de l'énergie cinétique du rendement cumulé, sommé sur les charges ioniques, N_c, pour l'^{139}I (en haut à gauche), le ^{139}Xe (en haut à droite), le ^{139}Cs (en bas à gauche) et le ^{139}Ba (en bas à droite) pour notre expérience (en rouge) et comparé à FIFRELIN (en bleu).

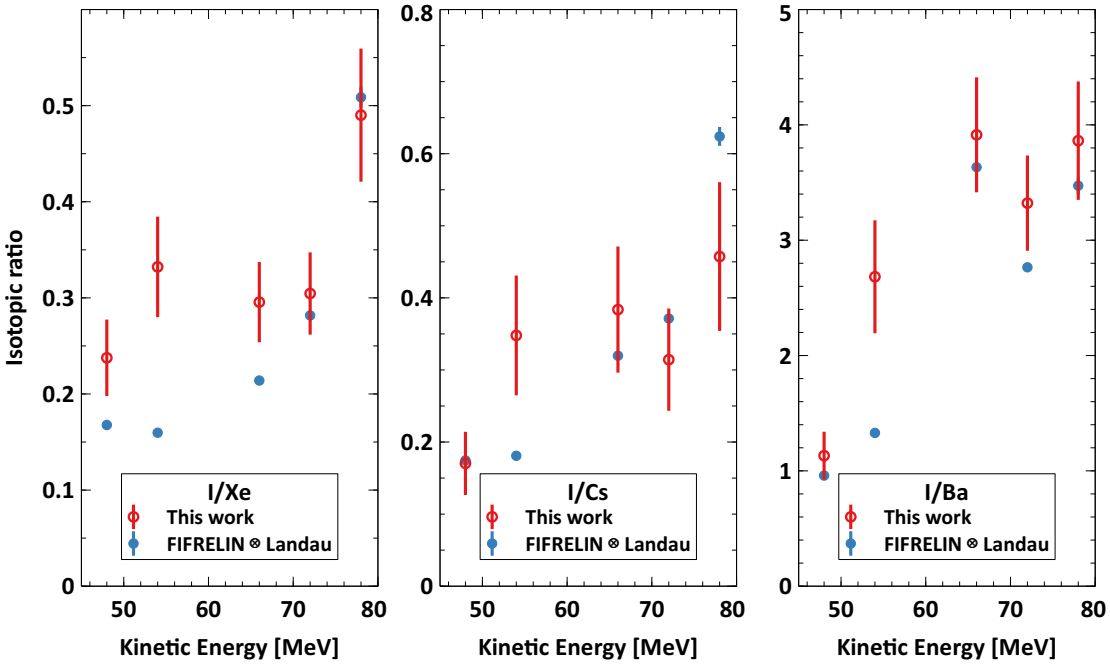


FIGURE 4.34: Les ratios I/Xe, I/Cs et I/Ba des rendements cumulés mesurés (en rouge) et comparés à FIFRELIN (en bleu) pour la masse 139.

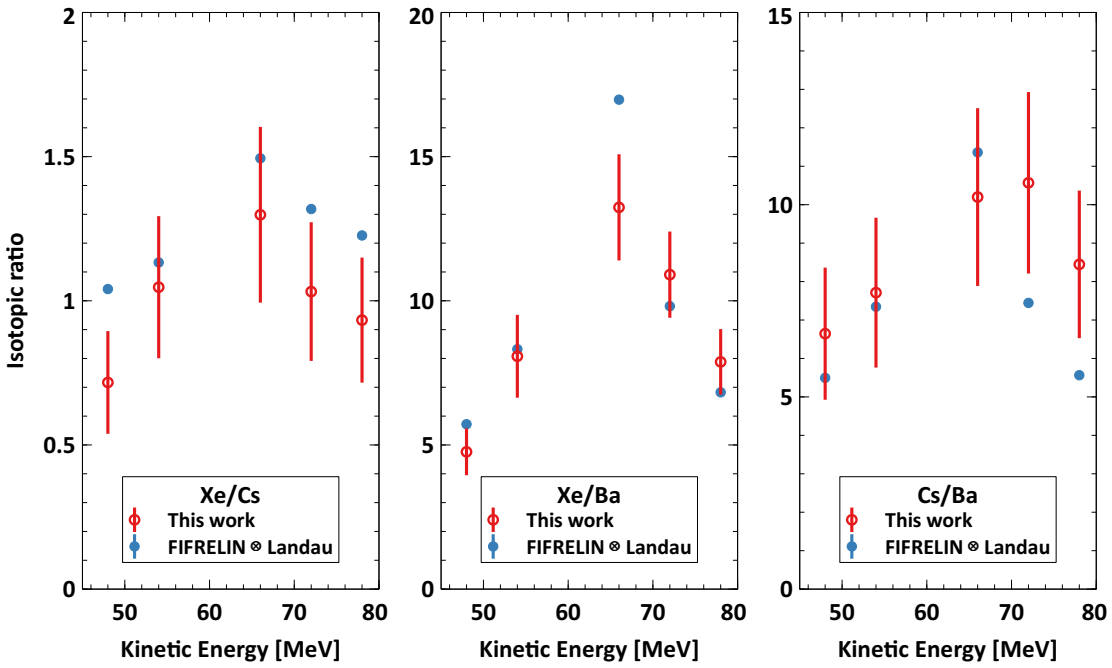


FIGURE 4.35: Les ratios Xe/Cs, Xe/Ba et Cs/Ba des rendements cumulés mesurés (en rouge) et comparés à FIFRELIN (en bleu) pour la masse 139.

4.5.2 Discussion sur l'effet pair-impair en fonction de l'énergie cinétique

Pour cela, nous allons calculer, à chaque énergie, l'effet pair-impair en charge nucléaire, δ_Z, défini [144] à partir des rendements isotopiques des charges nucléaires paires (indice e pour even) et impaires (indice o pour odd), comme :

$$\delta_Z(A) = \frac{\sum_e Y(A, Z_e) - \sum_o Y(A, Z_o)}{\sum_e Y(A, Z_e) + \sum_o Y(A, Z_o)} = \frac{\sum_e Y(A, Z_e) - \sum_o Y(A, Z_o)}{Y(A)} \tag{4.34}$$

Cet effet pair-impair est très marqué sur la distribution des rendements en charge nucléaire (voir par exemple [128]). Il est dépendant du noyau fissionnant et de la réaction ayant lieu.

Nos résultats expérimentaux sont comparés aux résultats obtenus avec FIFRELIN sur la figure 4.36. Pour nos expériences (points bleus et violets), aucun effet de l'énergie cinétique n'est visible car, comme nous l'avons déjà vu sur la figure 4.29, les incertitudes sont trop importantes pour avoir une observable discriminante. Puisque nous avons validé FIFRELIN, nous allons maintenant raisonner sur ses résultats, aux incertitudes largement réduites.

Lorsque FIFRELIN est convolué à une loi de Landau (points verts de la figure 4.36), nous observons déjà une structure importante, malgré les pertes d'énergie dans la cible, reproduite par la convolution. C'est la structure que nous pourrions observer avec notre

expérience avec une statistique accrue et une connaissance parfaite des structures nucléaires des noyaux. L'évolution est notamment marquée à haute énergie cinétique, où l'I devient prédominant et δ_Z est négatif. Nous pouvons aussi regarder les résultats de FIFRELIN sans perte d'énergie (points rouges), où une évolution plus structurée est visible, avec des changements de sens de variation bien définis.

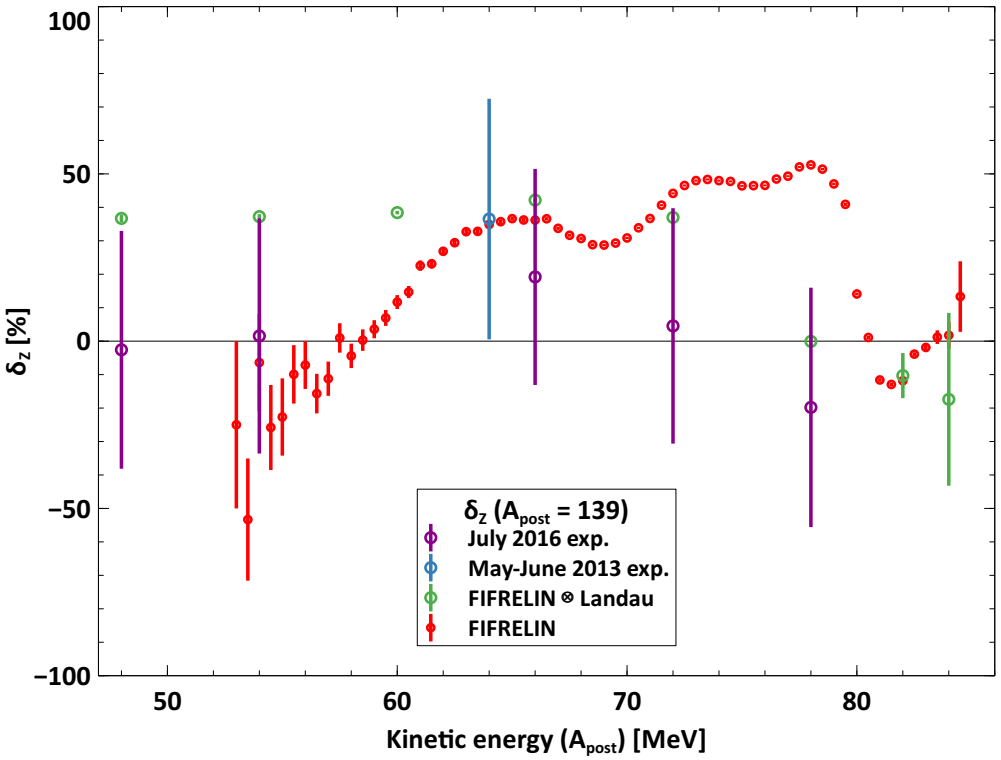


FIGURE 4.36: L'effet pair-impair des produits de fission pour la masse 139 en fonction de l'énergie cinétique post-neutron sélectionnée par LOHENGRIN, obtenu lors de nos expérience (en violet et en bleu), comparé aux résultats de FIFRELIN convolué à une distribution de Landau (en vert). L'effet pair-impair directement obtenu avec FIFRELIN est aussi tracé (en rouge).

Afin de faciliter la compréhension de cette figure, nous pouvons tracer la même observable en fonction de l'énergie d'excitation, ce qui est présenté sur la figure 4.37.

Nous observons en quelques sorte un miroir de la figure 4.36. En effet, l'énergie disponible dans la réaction de fission induite du ^{241}Pu par un neutron thermique est :

$$Q = M_{Pu} + M_{neutron} + E_{neutron} - (M_L + M_H) \tag{4.35}$$

Où M représente les masses (en uma) du ^{241}Pu, du neutron incident et des fragments léger (indice L) et lourd (indice H) et $E_{neutron}$, l'énergie cinétique du neutron thermique (négligeable).

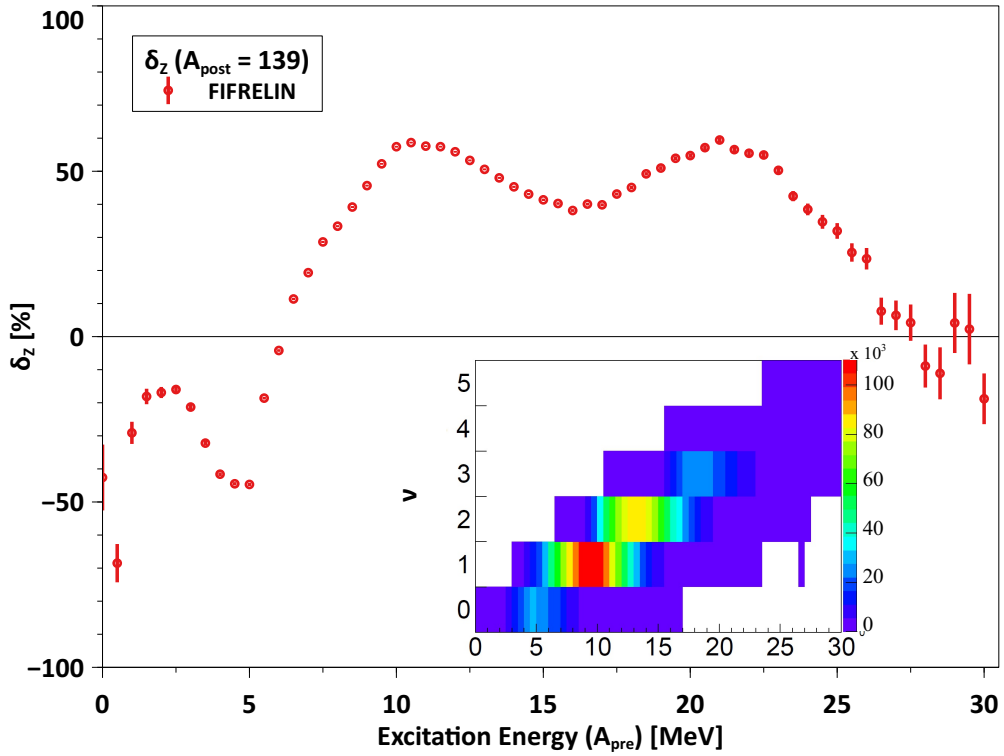


FIGURE 4.37: L'effet pair-impair de FIFRELIN pour la masse 139 post émission neutrons en fonction de l'énergie d'excitation du fragment lourd. Le nombre ν de neutrons émis par le fragment lourd en fonction de son énergie d'excitation est également tracé.

L'énergie disponible est répartie entre les deux fragments sous forme d'énergie cinétique totale, TKE et énergie d'excitation totale, TXE, tel que :

$$Q = TKE + TXE \tag{4.36}$$

Avec

$$TKE = KE_L + KE_H \quad \text{et} \quad TXE = E_L^* + E_H^* \tag{4.37}$$

Ces équations sont vraies avant l'émission des particules promptes. L'émission neutron et le fait que nous ne nous intéressons qu'au fragment lourd, rend la symétrie de ces deux observables partiellement caduque.

Regarder l'effet pair-impair en fonction de l'énergie d'excitation nous permet de facilement mettre en exergue chaque composante de cette courbe. En effet, la masse 139 post-émission neutron peut être produite par la masse pré-neutrons 139 n'ayant émis aucun neutron, 140 ayant émis un neutron etc ... Or, nous voyons sur la figure 4.37 que chaque changement de pente, correspond à l'émission d'un neutron prompt supplémentaire.

Grâce à FIFRELIN nous pouvons tracer directement chacune de ces composantes, ce qui est fait sur la figure 4.38.

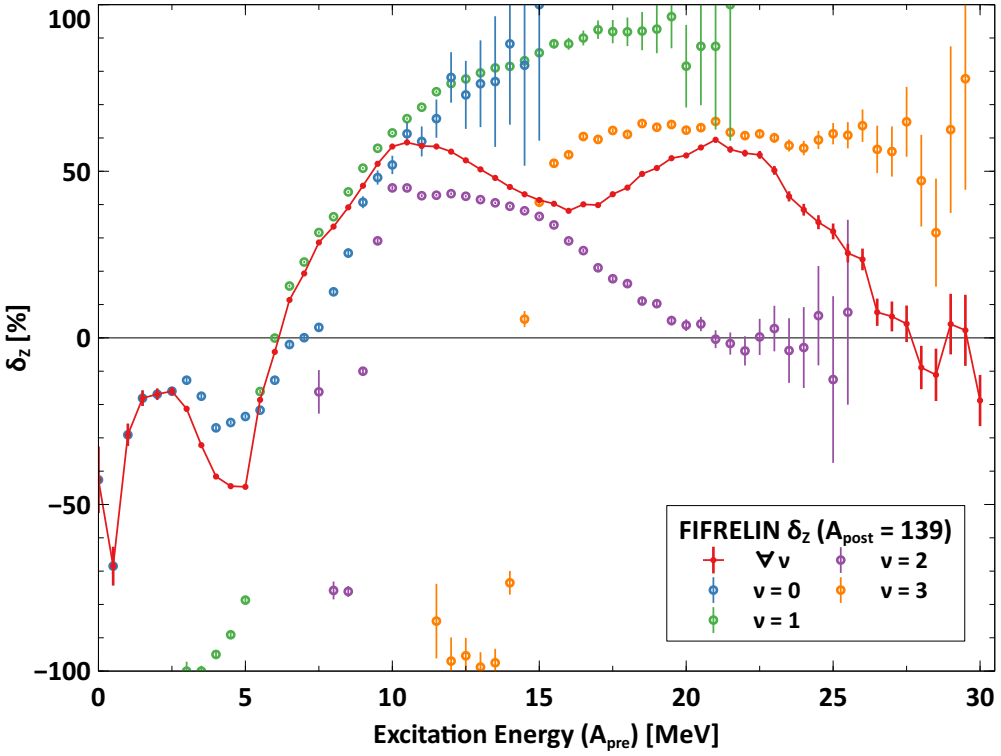


FIGURE 4.38: L'effet pair-impair de FIFRELIN pour la masse 139 post émission neutrons en fonction de l'énergie d'excitation du fragment lourd. Chaque composante pré-émission neutron est présentée indépendamment.

Une explication similaire peut-être donnée pour la figure 4.36 en fonction de l'énergie cinétique. Là encore, chaque composante est tracée sur la figure 4.39.

Pour ces deux figures 4.38 et 4.39, la courbe totale (en rouge) est découpée en différentes zones, où chaque masse pré-neutrons donnant la masse 139 après émission neutron devient la composante majoritaire, selon l'énergie.

La structure si forte de l'effet pair-impair en fonction de l'énergie cinétique, sondée grâce à FIFRELIN est directement celle des masses pré-neutrons. Nous pouvons d'ailleurs observer qu'en fonction de la parité de la masse pré-neutrons, le minimum de l'effet pair-impair alterne entre 0 pour les masses paires (140 et 142) et -1 ou -0,5 pour les masses impaires (139 et 141).

En conclusion, nous voyons que le couplage des rendements pré-neutrons de GEF au modèle de désexcitation de FIFRELIN permet de bien reproduire les observables expérimentales qui sont à notre disposition et de les interpréter à l'aide de l'émission neutron.

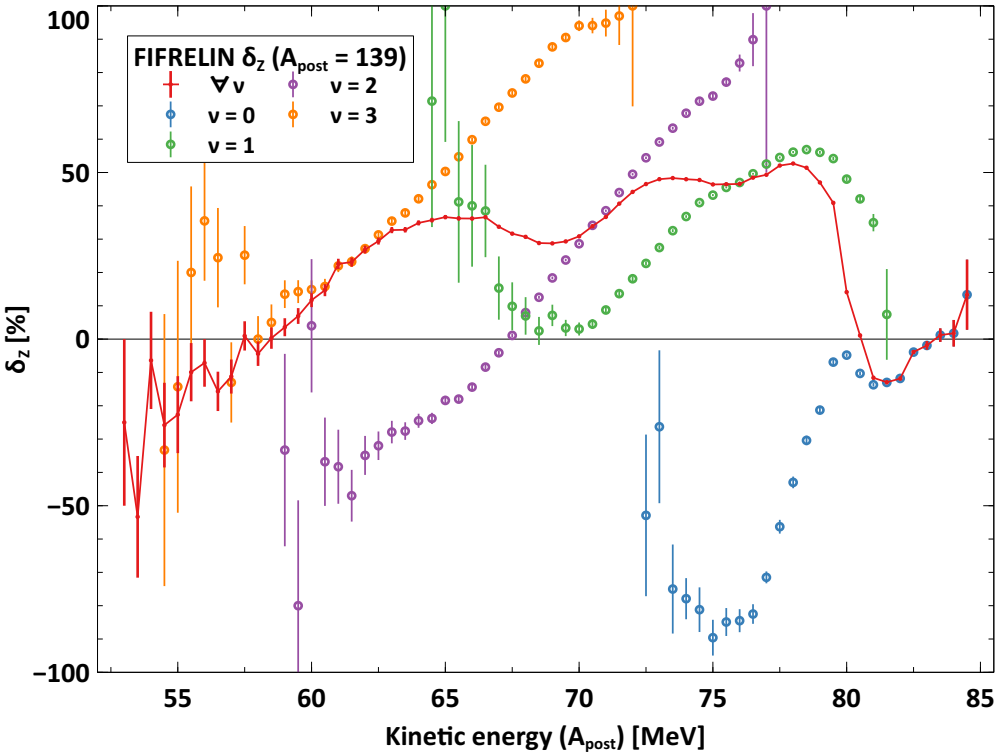


FIGURE 4.39: L'effet pair-impair de FIFRELIN pour la masse 139 post émission neutrons en fonction de l'énergie cinétique du fragment lourd. Chaque composante pré-émission neutron est présentée indépendamment.

4.6 Discussions et comparaison

4.6.1 Comparaison des résultats à JEFF-3.3

Les résultats de ces travaux sont montrés sur les figures 4.40, 4.41, 4.42, 4.43, 4.44 et 4.45. Pour chaque masse, les rendements isotopiques indépendants obtenus par spectrométrie γ et leur matrice de corrélation sont donnés. La partie hachurée en vert représente le rendement obtenu à partir du rendement résiduel introduit dans la section 4.3. Lorsqu'un isomère a été mesuré, la définition choisie pour le rapport isomérique de l'isomère m du noyau $^{A}_{Z}X$ est :

$$IR(A,Z,m) = \frac{Y(A,Z,m)}{Y(A,Z,m) + Y(A,Z,gs)} \tag{4.38}$$

Les rapports isomériques obtenus sont comparés aux résultats de Naik [145], à FIFRELIN, ainsi qu'à JEFF-3.3 lorsque l'isomère est dans la bibliothèque. Lorsque ce n'est pas le cas, le modèle de Madland-England, décrit dans la sous-section 2.2.2, est

utilisé. C'est sur ce modèle que se base JEFF-3.3 lorsqu'aucune donnée expérimentale n'existe, avec $J_{rms} = 7,5$ [12].

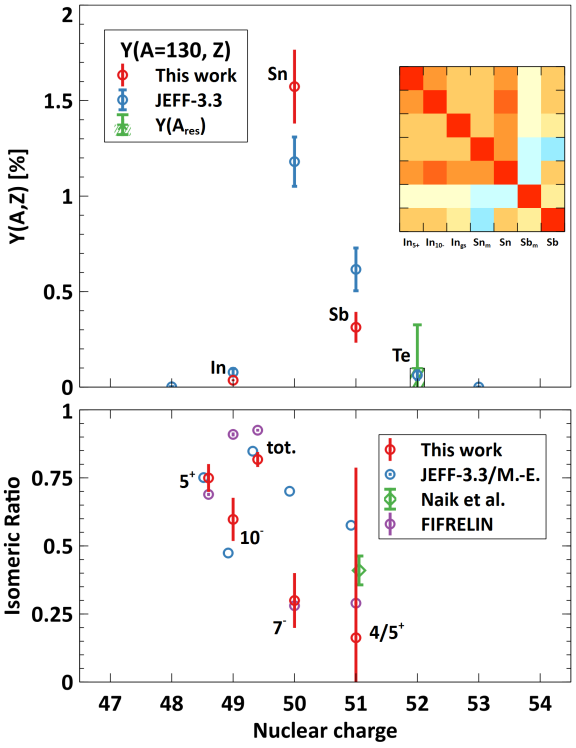


FIGURE 4.40: En haut, les rendements isotopiques obtenus pour les masses 130, comparés à JEFF-3.3 (en bleu). En bas, les rapports isomériques obtenus, comparées à JEFF-3.3/Madland-England (en bleu), aux mesures de Naik et al. (en vert) et à FIFRELIN (en violet).

La forme des distributions des isotopiques pour les masses 132 et 136 sont très différentes de JEFF-3.3, notamment par l'estimation du rendement résiduel. Le rendement du ^{141}Cs est aussi particulièrement plus important que ce que propose JEFF-3.3. Pour les masses 138, 139 et 140, l'accord entre nos résultats et JEFF-3.3 est particulièrement bon en ce qui concerne la forme de la distribution isotopique. Les incertitudes que nous obtenons sont du même ordre de grandeur que celles de JEFF-3.3, avec des incertitudes réduites pour les isotopes en début de chaîne, à l'exception du ^{132}Te et du ^{136}Xe qui sont évalués à partir du rendement en masse.

FIFRELIN présente un accord raisonnable pour les rapports isomériques mesurés et nous avons un très bon accord avec les mesures de Naik et al. Le modèle de Madland-England en revanche est fortement mis en défaut, notamment pour le rapport isomérique de ^{132}Sn.

L'incertitude finale et la matrice de corrélation de nos résultats sont en majeure partie gouvernées par l'incertitude des données de structure nucléaire utilisées. Pour

12. Lorsque plusieurs états isomériques existent, une petite adaptation est nécessaire, voir dans [15; 146]. Il faut calculer à la chaine les rapports de production du spin le plus élevé sur le suivant.

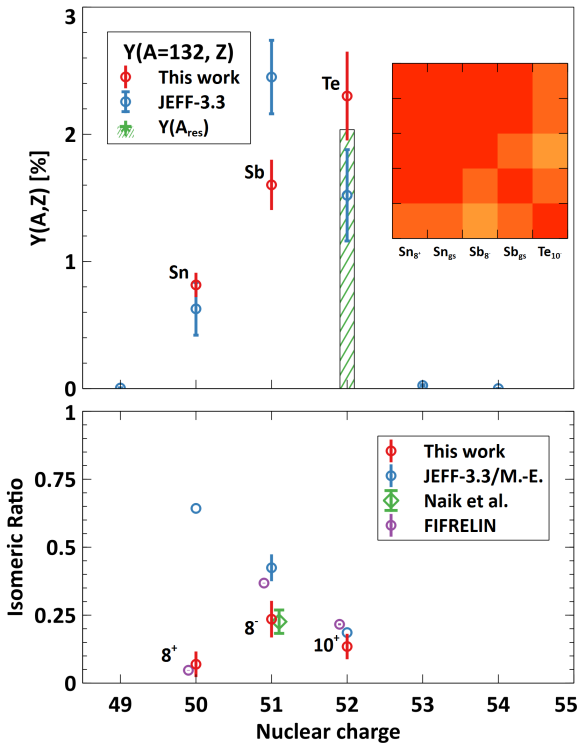


FIGURE 4.41: En haut, les rendements isotopiques obtenus pour les masses 132, comparés à JEFF-3.3 (en bleu). En bas, les rapports isomériques obtenus, comparées à JEFF-3.3/Madland-England (en bleu), aux mesures de Naik et al. (en vert) et à FIFRELIN (en violet).

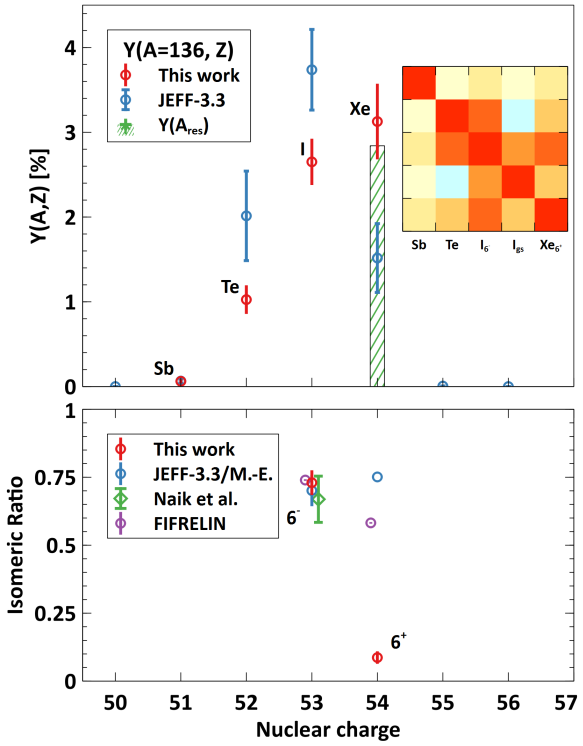


FIGURE 4.42: En haut, les rendements isotopiques obtenus pour les masses 136, comparés à JEFF-3.3 (en bleu). En bas, les rapports isomériques obtenus, comparées à JEFF-3.3/Madland-England (en bleu), aux mesures de Naik et al. (en vert) et à FIFRELIN (en violet).

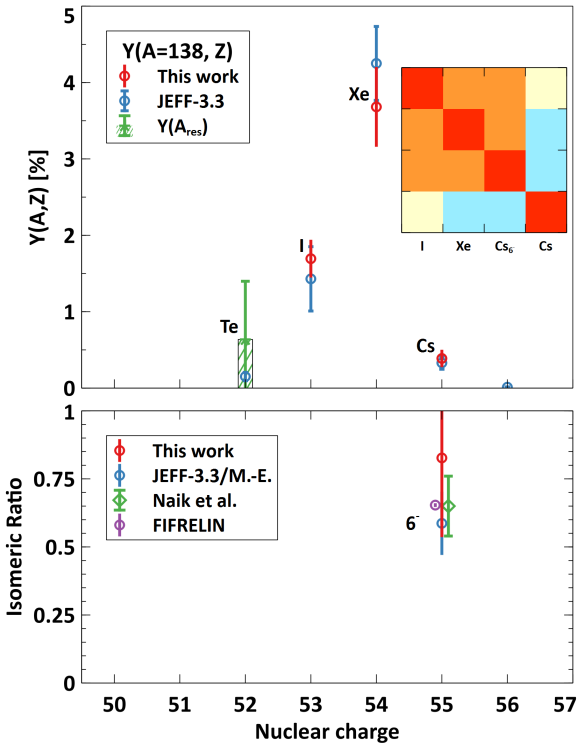


FIGURE 4.43: En haut, les rendements isotopiques obtenus pour les masses 138, comparés à JEFF-3.3 (en bleu). En bas, les rapports isomériques obtenus, comparées à JEFF-3.3/Madland-England (en bleu), aux mesures de Naik et al. (en vert) et à FIFRELIN (en violet).

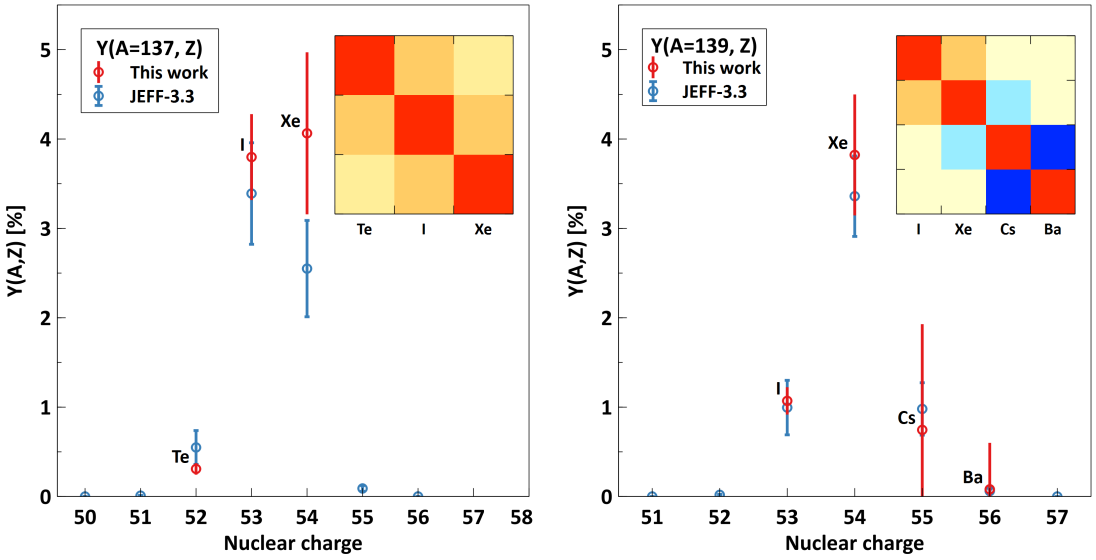


FIGURE 4.44: Rendements isotopiques obtenus pour les masses 137 (à gauche) et 139 (à droite), comparés à JEFF-3.3 (en bleu).

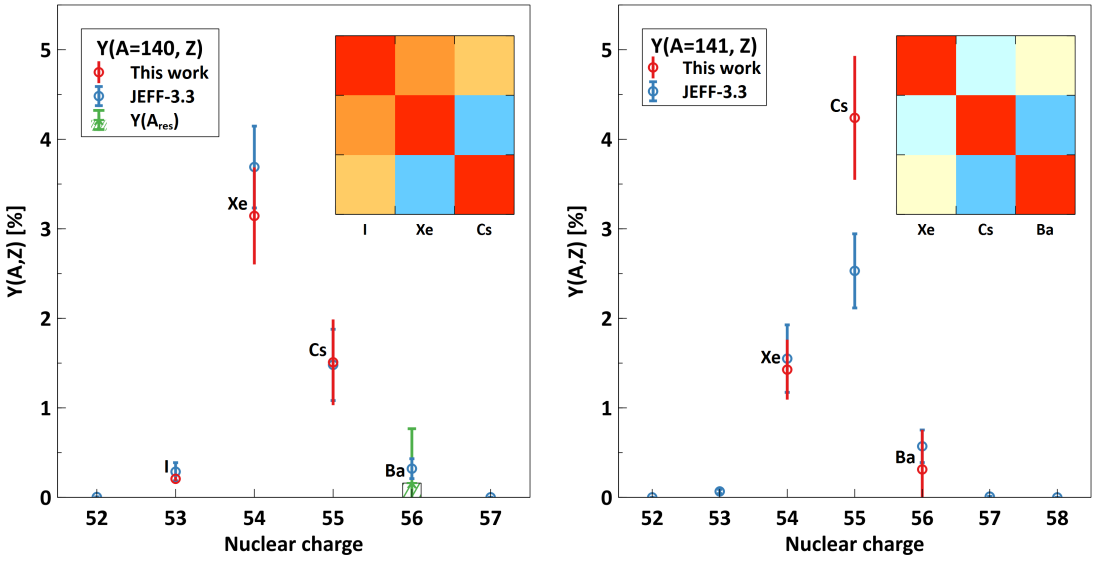


FIGURE 4.45: Rendements isotopiques obtenus pour les masses 140 (à gauche) et 141 (à droite), comparés à JEFF-3.3 (en bleu).

s'en convaincre, la distribution en charge nucléaire de ce travail pour la masse 139 est présentée sur la figure 4.46 lorsque les incertitudes sont propagées complètement (à gauche) et lorsque l'incertitude sur les I_γ^{norm} ne sont pas prises en compte (à droite). Pour cet exemple, l'incertitude finale est en moyenne 4 fois plus faible lorsque les incertitudes sur I_γ^{norm} ne sont pas propagées.

Les matrices de corrélation obtenues sont une vraie avancée par rapport aux données évaluées. Comme nous l'avons déjà vu, leurs prises en compte est essentielle pour estimer justement les incertitudes.

Que ce soit pour la compréhension des biais (raies incompatibles, taux de comptages négatifs) et la réduction des incertitudes, la limite de cette méthode de détection réside essentiellement dans la connaissance des données nucléaires. Ces travaux peuvent être un test de la cohérence des données de structure, que ce soit sur les I_γ^{rel} ou sur les rapports d'embranchements.

4.6.2 Ré-analyse des données de ^{233}U

Comme nous l'avons vu pour les rendements isobariques, l'un des objectifs forts du travail de cette thèse et des précédentes est de fournir des données et outils d'analyses pouvant être actualiser et réutiliser. Cette pérennisation est un atout important car de nouvelles données sur les I_γ peuvent changer considérablement les résultats présentés ici. L'outil d'analyse développé pour le calcul des rendements isotopiques est adapté à l'analyse d'autres expériences faites sur LOHENGRIN. Une expérience de mesure isotopique menée en Novembre 2011 sur l'^{233}U est en cours de réanalyse.

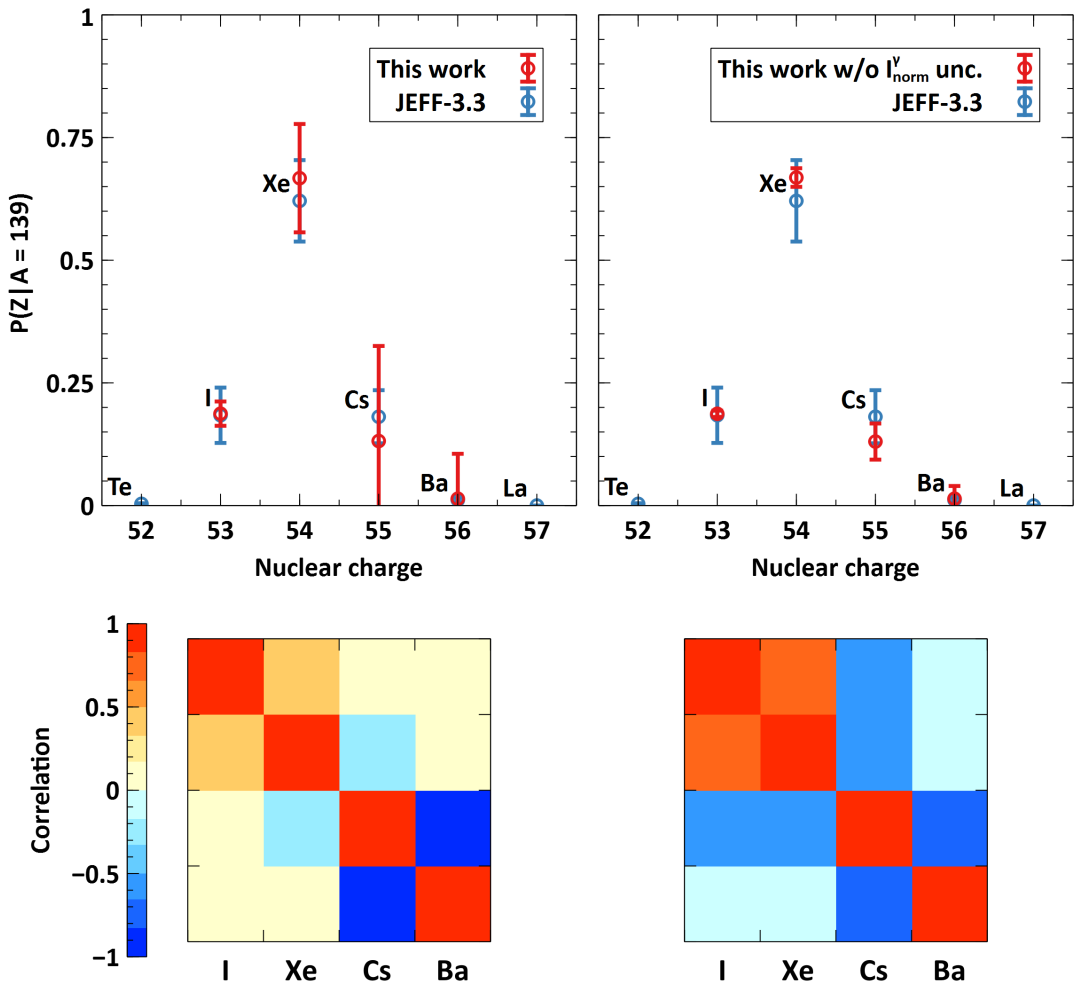


FIGURE 4.46: La distribution en charge nucléaire de la masse 139 (en rouge) et sa matrice de corrélation comparée à JEFF-3.3 (en bleu) : à gauche lorsque les incertitudes sur I_{γ}^{norm} sont propagées, à droite lorsqu'elles ne le sont pas.

4.7 Conclusions

Nous avons exposé, au cours de ce chapitre, le dispositif expérimental et le schéma d'analyse suivi pour mesurer des rendements isotopiques et isomériques indépendants avec LOHENGRIN par spectroscopie γ. En couplant ces mesures aux rendements en masse obtenus dans le chapitre 3, nous nous assurons de la complétude de la distribution isotopique pour chaque masse mesurée.

Les expériences sur LOHENGRIN ne pourront jamais proposer des résultats aussi vastes que ceux du spectromètre VAMOS [147; 148] au GANIL ou de l'expérience SOFIA [149; 150] au GSI, dont des résultats récents sont présentés sur les figures 4.47 et 4.48. Les distributions isotopiques des produits de fission sont atteignables pour quantité d'isotopes et pour des énergies d'excitation différentes.

Cependant, VAMOS et SOFIA s'appuient sur une méthode de cinématique inverse et proposent des rendements isotopiques intégrés sur une plage d'énergie d'excitation [13]. De plus, leurs résolutions en énergie et en masses ne sont pas aussi fines que celles de LOHENGRIN.

Tant que les données de structures nucléaires présentent des incertitudes importantes, LOHENGRIN n'aura pas la précision des mesures directes de la charge nucléaire. Mais son atout majeur est dans la mesure de rendement dans un état d'énergie d'excitation parfaitement défini, répondant à la problématique des données nécessaires pour les réacteurs actuels. Si l'étude des rendements de fission isotopiques sur LOHENGRIN est fastidieuse, pour des résultats aux incertitude élevées, d'autres grandeurs sont néanmoins intéressantes et accessibles grâce à la très bonne résolution en masse et en énergie de LOHENGRIN.

Nous sommes capables de proposer des observables d'utilité pour l'évaluation ou le test de modèles. En particulier dans la caractérisation de la polarisation de charge, où des structures inattendues sont observées, qui nécessitent une validation par de nouvelles expériences. Nous pouvons aussi investiguer des effets fins en fonction de l'énergie cinétique des produits de fission, comme nous l'avons vu dans la section 4.5 pour l'évolution des rendements isotopiques (ce qui est très délicat en cinématique inverse).

La dépendance de la mesure des rendements isotopiques sur le pic lourd aux données de structure est et restera, une faiblesse de LOHENGRIN. Mais nous avons vu que cette dépendance nous permet de mettre en évidence les incohérences potentielles des schémas de niveaux et ainsi proposer des retours sur les données de structure nucléaires. De plus, de nouvelles informations sur ces données de structure permettront de mettre à jour ces rendements.

Une perspective de ce travail, déjà développé dans le travail de A. Chebboubi [21], est d'estimer la quantité d'isomères nanosecondes à partir de la forme de la distribution en charge ionique obtenue pour un isotope. Ce travail a été l'objet du stage de L. Thombasen [151] et donne lieu à des résultats préliminaires satisfaisants qui sont exposés sur la figure 4.49. Il sera continué par la collaboration.

13. L'intervalle d'énergie d'excitation est particulièrement large pour SOFIA. En revanche, SOFIA a l'avantage de mesurer les deux produits de fission, là où VAMOS, ou LOHENGRIN, n'en mesurent qu'un seul.

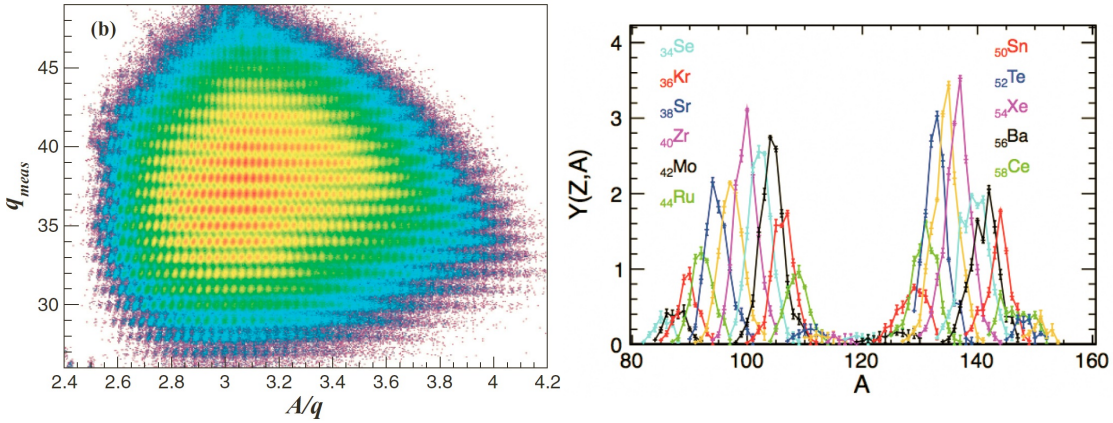


FIGURE 4.47: Exemple de résultats du spectromètre VAMOS. À gauche, l'identification des produits de fission en fonction la masse et de la charge ionique afin d'illustrer la résolution obtenue. À droite, les rendements isotopiques de la fission induite par réaction de transfert du ^{240}Pu, chaque numéro atomique est représenté par une couleur différente. Tiré de [147] et [148].

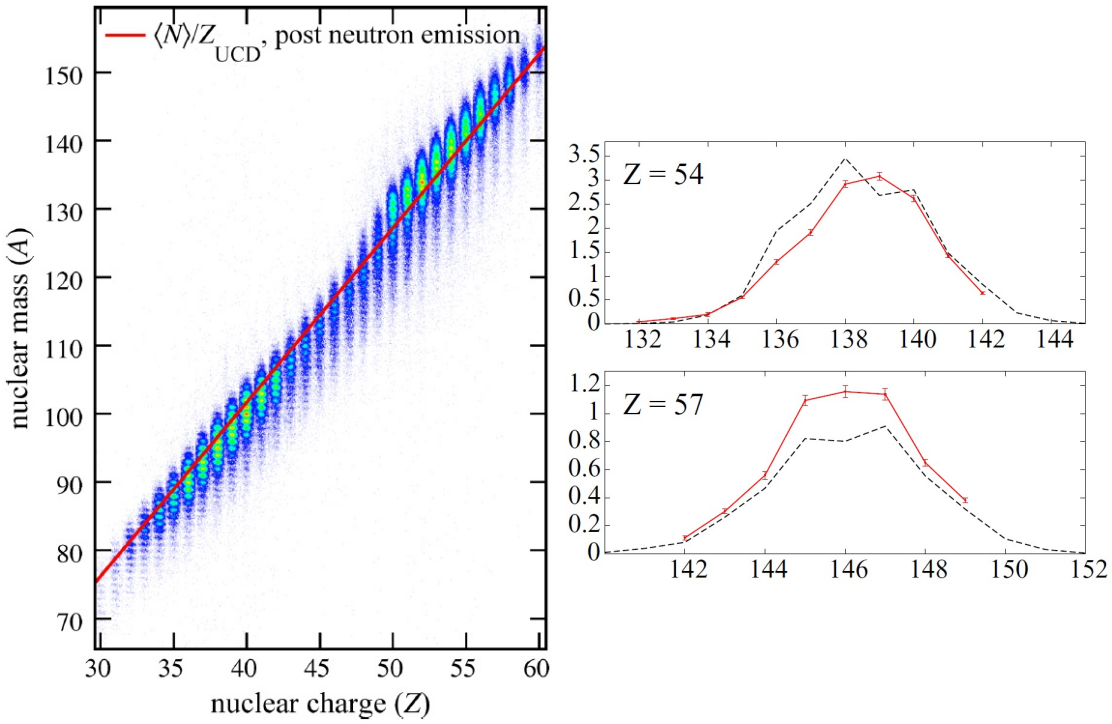


FIGURE 4.48: Exemple de résultats de la collaboration SOFIA. À gauche, la distribution isotopique pour des produits de fission du ^{238}U qui illustre la résolution atteinte. À droite, les rendements isotopiques obtenus pour la même réaction, en rouge, comparé à GEF, en noir. Tiré de [150].

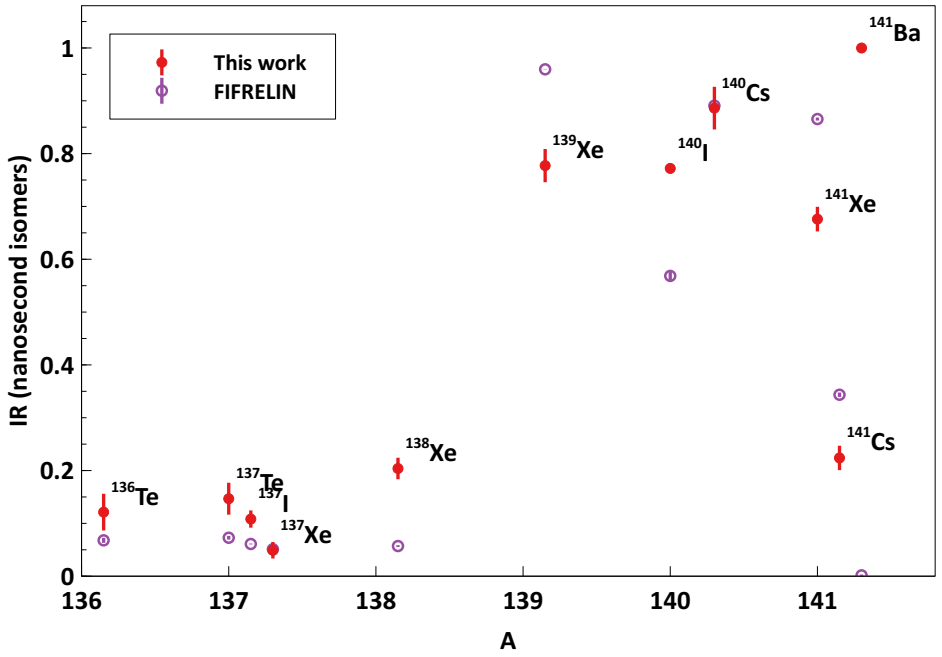


FIGURE 4.49: Résultats préliminaires des rapports isomériques pour les isomères nanosecondes, obtenus à partir des distributions en charge ionique et comparés à FIFRELIN. Tiré de [151].

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

La démarche scientifique est lente et fastidieuse, pleine de remises en question, d'avancées inespérées et parfois de guerres de chapelle. La communauté scientifique ne devrait pas dicter les décisions sociétales, mais elle se doit d'apporter des preuves solides et impartiales. La reproductibilité des résultats est la clé de voûte de la science. Un résultat non reproductible ne vaut pas mieux que l'absence de résultat. La rigueur, la transparence et l'objectivité sont donc les maîtres mots de la recherche.

À cet égard, cette thèse propose une approche statistique testant la reproductibilité des observables. L'impartialité qu'elle induit permet de mettre en évidence les biais expérimentaux ou analytiques qu'il faut alors comprendre et corriger. En ce sens, cette thèse a largement profité des travaux des thèses précédentes et de l'expérience de la collaboration dans la rigueur de mesure et d'analyse, qui a pu être perfectionnée pour offrir aujourd'hui, un optimal. LOHENGRIN est un instrument qui a fait ses preuves au cours de son demi-siècle d'existence, mais qu'il est nécessaire de maîtriser. Une campagne de mesures sur l'évolution en énergie cinétique des distributions en charge ionique autour de la masse 142 serait une bonne opportunité pour s'assurer de la compréhension des limites de la méthode d'analyse, comme nous l'avons vu sur l'exemple du ^{241}Pu.

Grâce à la méthodologie la plus rigoureuse qu'il nous est permis de mettre en place aujourd'hui, compte tenu des limitations (temps de faisceau, durée de vie des cibles), les rendements en masse de la fission induite par neutron thermique du ^{239}Pu et du ^{241}Pu ont pu être mesurés précisément, avec l'évaluation de leurs matrices de covariance expérimentales. Ces matrices sont un apport majeur de la collaboration à la communauté de l'évaluation des données nucléaires. Les nouveaux résultats obtenus pour le ^{239}Pu présentent une forme de distribution en masse compatible à celle proposée par ENDF/B-VII.1 autour de la masse 134, en désaccord avec JEFF-3.1.1. Grâce à un balayage très

complet de l'ensemble des masses du pic lourd, nous avons pu proposer des données auto-normalisées pour le ^{241}Pu, rendant les rendements proposés indépendants des données existantes.

Les mesures de rendements isotopiques et isomériques obtenus pour les masses 130, 132 et 136 à 141 pour le ^{241}Pu se basent sur les données existantes de structure nucléaire et ne peuvent, de ce fait, présenter des incertitudes plus faibles que ces dernières. Si l'extraction des données brutes est fastidieuse pour une incertitude finale importante, nous avons pu proposer des observables intéressantes pour les modèles utiles à l'évaluation, notamment la polarisation de charge en fonction de la masse du produit de fission et l'effet pair-impair en fonction de l'énergie cinétique. La structure observée pour la polarisation de charge est en désaccord avec les évaluations actuelles ainsi que les précédents résultats expérimentaux et nécessite de nouvelles mesures sur des masses voisines de la zone étudiée et sur les masses légères complémentaires.

De plus, en étudiant l'évolution de la production isotopique en fonction de l'énergie cinétique du produit de fission, nous avons pu montrer que LOHENGRIN a une forte valeur ajoutée comparé à ses « concurrents » sur ce type d'expérience. C'est vers ce type de mesure que LOHENGRIN doit s'orienter, là où sa résolution en énergie et en masse sont mises en avant. Les comparaisons des résultats expérimentaux à FIFRELIN, couplé à GEF, ont montré un bon accord et laissent à penser qu'un code pouvant décrire l'ensemble des observables de fission soit un jour accessible.

Les données proposées dans cette thèse se veulent être de référence pour tester certains modèles utiles à l'évaluation des données nucléaires. En particulier, les formes des distributions en énergie cinétique observées pour les masses très asymétriques peuvent être très bien interprétées en considérant des modes de Brosa, avec une distinction sans ambiguïté de la contribution de chacun des modes.

C'est dans ces résultats que la collaboration scientifique entre expérimentateurs et théoriciens prend tout son sens. C'est sur cette dernière idée que je souhaite clôturer ce manuscrit, en citant le physicien théoricien D. Kaplan : « Without us (the theorists), the experimentalists are in the dark, but without them, we'll never know the truth. ».

ANNEXE A

TESTS STATISTIQUES

Nous aborderons dans cette annexe quelques définitions et concepts de statistiques utiles dans ce travail. Tout d'abord nous introduirons le concept d'espérance mathématique et de moments d'une distribution de probabilité. Nous expliquerons ensuite comment la propagation d'incertitude est faite dans nos analyses. Enfin, nous nous concentrerons sur les tests de χ^2 et χ^2 généralisé et la notion de *p-value*.

A.1 Espérance mathématique et moments d'une distribution

Considérons une variable aléatoire réelle X définie sur un intervalle I, de densité de probabilité p (lorsqu'il s'agit d'une variable discrète, p est une distribution de probabilité et non une densité de probabilité). L'espérance $\mathbb{E}$ de X est :

$$\begin{aligned}\mathbb{E}[X] &= \int_{x\in I} x \cdot p(x)\ \mathrm{d}x \quad \text{pour une variable continue} \\ &= \sum_{x\in I} x \cdot p(x) \quad \text{pour une variable discrète}\end{aligned} \tag{A.1}$$

Le moment d'ordre $r \in \mathbb{N}$ de X est un indicateur caractéristique de sa distribution et est défini relativement à son espérance mathématique $\mathbb{E}$:

$$\begin{aligned} m_r(X) &= \mathbb{E}[X^r] && \text{(A.2)} \\ &= \int_{x \in I} x^r \cdot p(x)\ \mathrm{d}x \quad \text{pour une variable continue} \\ &= \sum_{x \in I} x^r \cdot p(x) \quad \text{pour une variable discrète} && \text{(A.3)} \end{aligned}$$

Par définition, le moment d'ordre 1 est l'espérance de X, $\mathbb{E}[X]$, qui est aussi sa moyenne μ_X. Il est aussi utile de définir les moments centrés d'ordre $r \in \mathbb{N}$:

$$\begin{aligned} \mu_r(X) &= \mathbb{E}\left[(X - \mathbb{E}(X))^r\right] \\ &= m_r\left(X - \mathbb{E}[X]\right) \\ &= \int_{x \in I} (x - \mu_X)^r\ p(x)\ \mathrm{d}x \quad \text{pour une variable continue} \\ &= \sum_{x \in I} (x - \mu_X)^r\ p(x) \quad \text{pour une variable discrète} && \text{(A.4)} \end{aligned}$$

En particulier, le moment centré d'ordre 2 est la variance de X, $\mathrm{Var}(X)$, qui caractérise la dispersion de la distribution :

$$\begin{aligned} \mathrm{Var}(X) &= \mathbb{E}\left[(X - \mathbb{E}(X))^2\right] = \mathbb{E}\left[(X - \mu_X)^2\right] \\ &= \mathbb{E}[X^2] + \mathbb{E}[\mu_X^2] - 2\mathbb{E}[X \cdot \mu_X] \\ &= \mathbb{E}[X^2] + \mu_X^2 - 2\mu_X \mathbb{E}[X] \\ &= \mathbb{E}[X^2] + \mu_X^2 - 2\mu_X^2 \\ &= \mathbb{E}[X^2] - \mu_X^2 && \text{(A.5)} \end{aligned}$$

Une autre manière classique de caractériser la dispersion d'une distribution est l'écart-type, qui est défini comme la racine carrée de la variance :

$$\sigma(X) = \sqrt{\mathrm{Var}(X)} \tag{A.6}$$

Notons aussi la dénomination du moment centrée d'ordre 3, le coefficient d'asymétrie (ou asymétrie), et d'ordre 4, le kurtosis (ou coefficient d'aplatissement).

En vertu du théorème central limite, pour un taux de comptage τ, lorsque le nombre d'évènement est suffisamment grand ($N > 40$), la densité de probabilité de τ s'approche d'une distribution gaussienne. L'intervalle $\mu \pm \sigma$ contient alors 68.3% de la distribution. L'écart-type est alors interprété comme étant l'intervalle dans lequel se trouve la "vraie valeur" à un niveau de confiance de 68.3%.

Nous pouvons maintenant définir la covariance de deux variables aléatoires réelles X et Y, qui est une mesure de l'interdépendance des deux variables :

$$\begin{aligned}\mathrm{Cov}\,(X,Y) &= \mathbb{E}\left[(X-\mathbb{E}[X])\cdot(Y-\mathbb{E}[Y])\right] \\ &= \mathbb{E}\left[(X-\mu_X)\cdot(Y-\mu_Y)\right]\end{aligned} \tag{A.7}$$

Dans le cas particulier où $X = Y$, nous retrouvons la définition de la variance.

Une manière simple de comparer des covariances est de les borner. C'est pourquoi la corrélation de X et Y est définie comme :

$$\mathrm{Corr}\,(X,Y) = \frac{\mathrm{Cov}\,(X,Y)}{\sigma_X\sigma_Y} \tag{A.8}$$

$\mathrm{Corr}\,(X,Y) \in [-1;1]$ et si $\mathrm{Corr}\,(X,Y) = \pm 1$, alors X et Y sont totalement (anti-)corrélés. Si $\mathrm{Corr}\,(X,Y) = 0$, alors X et Y ne sont pas linéairement dépendantes.

De manière générales, pour un grand nombre de variables aléatoires $X_1, ...X_n$, l'ensemble des covariances et corrélations sont écrites sous forme matricielle. Nous noterons $\boldsymbol{C}$ la matrice de covariance et **Corr** la matrice de corrélation.

$$\boldsymbol{C} = \begin{pmatrix} \mathrm{Var}(X_1,X_1) & C(X_1,X_2) & \cdots & C(X_1,X_n) \\ C(X_2,X_1) & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \vdots \\ C(X_n,X_1) & \cdots & \cdots & \mathrm{Var}(X_n,X_n) \end{pmatrix} \tag{A.9}$$

A.2 Propagation d'incertitudes

Les propagations d'incertitudes reposent sur deux hypothèses fondamentales :

H1 - La linéarité des fonctions mises en jeu

H2 - La faible valeur de l'incertitude

Soit une fonction f, de N variables $\boldsymbol{x} = \{x_1, ..., x_N\}$, de moyenne $\boldsymbol{\mu} = \{\mu_1, ..., \mu_N\}$ et d'écart-type $\boldsymbol{\sigma} = \{\sigma_1, ..., \sigma_N\}$. Le développement en série de Taylor de f au premier ordre (H1) autour de sa valeur moyenne (H2) s'écrit :

$$f(\boldsymbol{x}) \approx f(\boldsymbol{\mu}) + \sum_{i=1}^{N} \frac{\partial f}{\partial x_i}(\boldsymbol{\mu})(x_i - \mu_i) \tag{A.10}$$

En mettant cette expression au carré, il vient :

$$f(\boldsymbol{x})^2 \approx f(\boldsymbol{\mu})^2 + 2f(\boldsymbol{\mu})\sum_{i=1}^{N}\frac{\partial f}{\partial x_i}(\boldsymbol{\mu})(x_i-\mu_i) + \sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N}\frac{\partial f}{\partial x_i}\frac{\partial f}{\partial x_j}(\boldsymbol{\mu})(x_i-\mu_i)(x_j-\mu_j) \tag{A.11}$$

Et ainsi :

$$\mathbb{E}\left[f(\boldsymbol{x})^2 - f(\boldsymbol{\mu})^2\right] \approx 2f(\boldsymbol{\mu})\sum_{i=1}^{N}\frac{\partial f}{\partial x_i}(\boldsymbol{\mu})\mathbb{E}[x_i-\mu_i]+\sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N}\frac{\partial f}{\partial x_i}\frac{\partial f}{\partial x_j}(\boldsymbol{\mu})\mathbb{E}\left[(x_i-\mu_i)(x_j-\mu_j)\right] \tag{A.12}$$

Sachant que $\mathbb{E}[x_i - \mu_i] = 0$ et que $\mathbb{E}\left[(x_i - \mu_i)(x_j - \mu_j)\right] = \mathrm{Cov}(x_i, x_j)$, cette équation se réécrit :

$$\mathrm{Var}(f) \approx \sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N}\frac{\partial f}{\partial x_i}\frac{\partial f}{\partial x_j}(\boldsymbol{\mu})\ \mathrm{Cov}(x_i, x_j) \tag{A.13}$$

Qui peut aussi s'écrire sous forme relative en faisant intervenir les coefficients de sensibilités $S_{f,x_i} = \dfrac{\partial f}{\partial x_i}(\boldsymbol{\mu})\ \dfrac{x_i}{f}$:

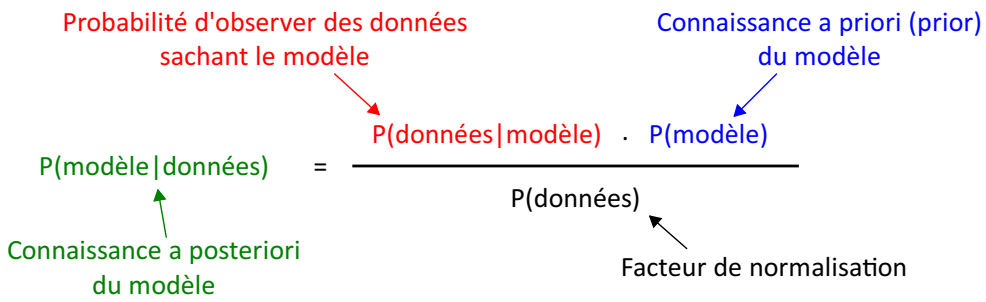
$$\frac{\mathrm{Var}(f)}{f^2} \approx \sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N} S_{f,x_i}S_{f,x_j}\frac{\mathrm{Cov}(x_i, x_j)}{x_i\ x_j} \tag{A.14}$$

De la même manière, dans le cas plus général de m fonctions $\boldsymbol{f} = \{f_1, ...f_m\}$ définies à partir des n variables $\boldsymbol{x} = \{x_1, ...x_n\}$:

$$\mathrm{Cov}(f_k, f_l) \approx \sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N}\frac{\partial f_k}{\partial x_i}\frac{\partial f_l}{\partial x_j}(\boldsymbol{\mu})\ \mathrm{Cov}(x_i, x_j) \tag{A.15}$$

A.3 Ajustement et test de modèle

Il existe deux approches statistiques classiques pour tester la validité d'un modèle. L'approche dite bayésienne qui repose sur le théorème de Bayes, permet d'améliorer une connaissance a priori (état de l'art) grâce à un nouveau jeu de données expérimentales. Schématiquement, cette approche se résume à l'inclusion de nouvelles données expérimentales :



Et l'approche dite fréquentiste dans laquelle nous nous placerons dans cette annexe et de manière générale dans ce travail

Considérons n variables indépendantes $\boldsymbol{y} = y_1, ..., y_n$ fonction de n autres variables $\boldsymbol{x} = x_1, ..., x_n$ tels que les y_i suivent une distribution gaussienne de moyenne $\boldsymbol{\mu} = \mu_1, ..., \mu_n$ et d'écart-type $\boldsymbol{\sigma} = \sigma_1, ..., \sigma_n$. Supposons un jeu de paramètres $\boldsymbol{\theta}$ tel que $\boldsymbol{\mu} = f(\boldsymbol{x}; \boldsymbol{\theta})$. La fonction de vraisemblance, L (Likelihood en anglais), s'écrit :

$$L(\boldsymbol{\theta}) = \prod_{i=1}^{n} \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_i} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{y_i - f(x_i; \boldsymbol{\theta})}{\sigma_i}\right)^2\right) \tag{A.16}$$

La fonction de vraisemblance est une mesure de la compatibilité entre les y_i et leur estimation avec le jeu de paramètres $\boldsymbol{\theta}$.

Lors d'un ajustement, l'objectif est de maximiser la fonction de vraisemblance pour en déduire le jeu de paramètres $\boldsymbol{\theta}$ ajusté sur les mesures $\boldsymbol{y}$ dans l'hypothèse du modèle f. En passant par le logarithme, maximiser $L(\boldsymbol{\theta})$ est équivalent à minimiser $\chi^2(\theta)$:

$$\chi^2(\boldsymbol{\theta}) = \sum_{i=1}^{n} \left(\frac{y_i - f(x_i; \boldsymbol{\theta})}{\sigma_i}\right)^2 \tag{A.17}$$

Ce dernier suit une distribution de χ^2 à r degré de liberté, où r est définie par le nombre de mesure n et le nombre p de paramètre $\boldsymbol{\theta}$ du modèle :

$$r = n - p - 1 \tag{A.18}$$

La distribution de χ^2 est définie $\forall\ x \in \mathbb{R}^+$ pour un degré de liberté r, telle que :

$$\chi^2(x, r) = \frac{x^{\frac{r}{2}-1} \exp\left(-\frac{x}{2}\right)}{2^{\frac{r}{2}}\Gamma\left(\frac{r}{2}\right)} \tag{A.19}$$

Une manière de juger de la qualité d'un ajustement, ou de manière plus générale, de la compatibilité de deux jeux de données, est de faire appel à la *p-value*. La définition formelle de la *p-value* est valable pour toute fonction f intégrable :

$$p(x) = \int_{x}^{+\infty} f(u)\ \mathrm{d}u \tag{A.20}$$

Dans le cas particulier de la loi du χ^2 :

$$p(\chi^2_{lim}) = \int_{\chi^2_{lim}}^{+\infty} \chi^2(u; k)\ \mathrm{d}u \tag{A.21}$$

Lors d'un test statistique de vraisemblance, la valeur de χ^2 observée, χ^2_{obs}, est comparée à la valeur limite χ^2_{lim} déterminée par le choix de p. Si $\chi^2_{obs} > \chi^2_{lim}$, la probabilité que le χ^2_{obs} soit obtenu pour un modèle (hypothèse) juste est $1 - p$. Un exemple de loi de χ^2 et de *p-value* est montré sur la figure A.1.

Ce test mène à deux types d'erreurs :

- Les faux négatifs : rejeter une hypothèse alors qu'elle est vraie (erreur de première espèce)
- Les faux positifs : accepter une hypothèse alors qu'elle est fausse (erreur de deuxième espèce) [1]

Autrement dit, la valeur de p nous indique la confiance dans le test statistique. Si $p = 0.1$, alors l'hypothèse est rejetée avec un intervalle de confiance, CL (pour Confidence Level), de $1 - p = 90\%$. Cela signifie que dans 10% des cas, l'hypothèse est invalidée malgré sa justesse.

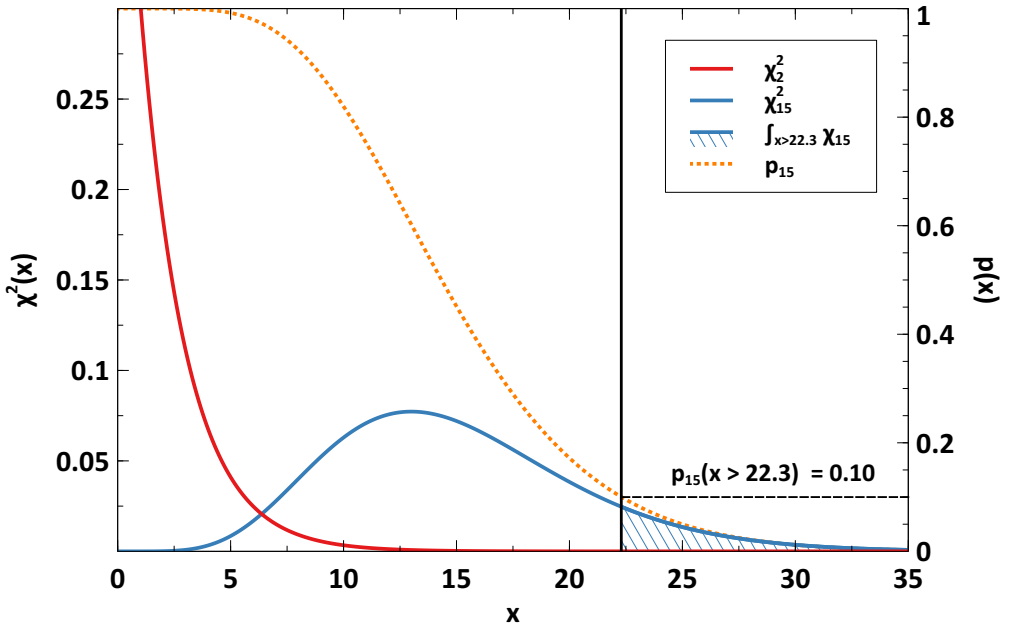


FIGURE A.1: Les distributions de χ^2 à 2 et 15 degrés de liberté (traits pleins) et la *p-value* pour 15 degrés de liberté (trait pointillé). En hachurée, l'intégrale de la distribution de χ^2 à 15 degrés de liberté correspondant à $p = 0.1$ *i.e.* $1 - p = 90\%$.

1. Avec un test de χ^2, cette erreur n'est pas quantifiable.

A.3.1 Généralisation du test de χ^2

Dans le cas où les y_i sont liés par une matrice de covariance $\boldsymbol{C}$ [2], une généralisation du test de χ^2 s'écrit :

$$\chi_g^2(\boldsymbol{\theta}) = \sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{n} (y_i - f(x_i;\boldsymbol{\theta}))\,(C^{-1})_{i,j}\,(y_j - f(x_j;\boldsymbol{\theta})) \tag{A.22}$$

Qui s'écrit sous forme matricielle :

$$\chi_g^2(\boldsymbol{\theta}) = (\boldsymbol{y} - f(\boldsymbol{x};\boldsymbol{\theta}))^T\,\boldsymbol{C}^{-1}\,(\boldsymbol{y} - f(\boldsymbol{x};\boldsymbol{\theta})) \tag{A.23}$$

A.3.2 Estimation de l'incertitude d'un paramètre

Une fois que le χ^2_{min} est trouvé pour un jeu de paramètres $\boldsymbol{\theta}_{min}$ le contour à 1σ est donnée par :

$$\chi(\boldsymbol{\theta}) = \chi^2_{min} + q \tag{A.24}$$

Où q dépend du nombre de paramètres N_{par}, voir le tableau A.1 pour quelques exemples.

Tableau A.1: Valeur de q en fonction du nombre de paramètres N_{par} [152].

N_{par}	1	2	3	...
q	1,00	2,30	3,53	...

Le cas à un paramètre sera notamment utilisé pour estimer les incertitudes des paramètres pour un ajustement. Un contour à 1σ correspond à un intervalle de confiance à 68% pour une distribution gaussienne [3] du paramètre recherché. En particulier, pour déterminer l'incertitude à 1σ d'un paramètre a, l'ensemble des paramètres sauf 1 est fixé à $\boldsymbol{\theta}_{min}$, et $q = 1$, ainsi :

$$\chi(\boldsymbol{\theta}_{min}; a \pm \sigma_a) = \chi^2_{min} + 1 \tag{A.25}$$

A.3.3 Addition d'incertitudes indépendantes

Nous avons vu dans le chapitre 3 que pour calculer $\overline{N}(A)$ il est parfois nécessaire d'ajouter une incertitude supplémentaire aux $N_{q_i}(A)$, lorsque le χ^2_g est supérieur à une

2. Une matrice de covariance est une matrice réelle symétrique *i.e.* semi-définie positive. Si son déterminant est non-nul elle est inversible.

3. Ce qui est l'hypothèse pour nos études.

valeur limite. Cette valeur limite est définie par notre choix d'intervalle de confiance. Pour réduire le χ^2_g, il faut ajouter une incertitude supplémentaire à la diagonale de la matrice de covariance, $\boldsymbol{C}$, des $N_{q_i}(A)$. Ainsi cette incertitude additionnelle est considérée indépendante (la covariance des différentes estimations est constante).

Pour s'en convaincre, prenons un cas simple fictif de deux valeurs, N_1 et N_2 tel que :

$$\boldsymbol{N} = \begin{pmatrix} N_1 = 1,00 \pm 0,15 \\ N_2 = 1,50 \pm 0,20 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \boldsymbol{C} = \begin{pmatrix} 0,0225 & 0,005 \\ 0,005 & 0,04 \end{pmatrix}$$

Avec une telle matrice de covariance $\boldsymbol{C}$, la valeur moyenne de N_1 et N_2 est $\overline{N} = 1,17$ et $\chi^2_g = 4,76$. Or pour un intervalle de confiance à 90%, à un degré de liberté, $\chi^2_{lim} = 2,71$. Dans le cas général, augmenter la variance de N_1 de σ_{k_1}, revient à additionner à N_1 : $k_1 = 0 \pm \sigma_{k_1}$, de même pour N_2. La nouvelle covariance de N_1 et N_2, $C'_{1,2}$, s'écrit alors :

$$\begin{aligned} C'_{1,2} &= \mathbb{E}\left((\Delta N_1 + \Delta k_1)(\Delta N_2 + \Delta k_2)\right) \\ &= C_{1,2} + \mathrm{cov}(k_1, k_2) + \mathrm{cov}(k_1, N_2) + \mathrm{cov}(N_1, k_2) \\ &= C_{1,2} + \mathrm{cov}(k_1, k_2) \end{aligned} \tag{A.26}$$

Si l'incertitude additionnelle est considérée comme indépendante, $\mathrm{cov}(k_1, k_2) = 0$, sinon $\mathrm{cov}(k_1, k_2) = \sigma_{k_1}\sigma_{k_2} = \sigma^2_k$.

Avec $\sigma_k = \sigma_{k_1} = \sigma_{k_2} = 0,01$, et l'incertitude considérée comme commune :

$$\boldsymbol{N'} = \begin{pmatrix} N'_1 = 1,00 \pm 0,18 \\ N'_2 = 1,50 \pm 0,22 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \boldsymbol{C} = \begin{pmatrix} 0,0325 & 0,015 \\ 0,015 & 0,05 \end{pmatrix}$$

Avec ce choix, $\overline{N} = 1,17$ et $\chi^2_g = 4,76$. La valeur moyenne et le χ^2_g restent inchangés.

Si l'incertitude est indépendante en revanche :

$$\boldsymbol{N'} = \begin{pmatrix} N'_1 = 1,00 \pm 0,18 \\ N'_2 = 1,50 \pm 0,22 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \boldsymbol{C} = \begin{pmatrix} 0,0325 & 0,005 \\ 0,005 & 0,05 \end{pmatrix}$$

Et $\overline{N} = 1,19$ et $\chi^2_g = 3,45$.

ANNEXE B

CALCUL MONTE-CARLO POUR DES PARAMÈTRES CORRÉLÉS

Une méthode Monte-Carlo (MC) est une approche probabiliste se basant sur l'échantillonnage, avec un grand nombre d'évènements, de paramètres. Histoire par histoire, ces paramètres servent à calculer d'autres grandeurs dont nous obtiendrons une densité de probabilité. La moyenne, l'écart-type et d'autres informations peuvent alors être déduites de ces densités. Dans notre utilisation, chaque densité de probabilité initiale est gaussienne.

Nous faisons appel à un échantillonnage MC pour :

- La résolution matricielle des équations de Bateman, présentée dans la sous-section 4.1.4.4
- Le calcul du BU, explicité dans la sous-section 3.4.1

Afin d'échantillonner n variables corrélées, il nous faut prendre en compte leur matrice de covariances, $\boldsymbol{C} \in \mathcal{M}_n(\mathbb{R})$. Ces variables initiales sont tout d'abord échantillonnées sur une gaussienne centrée réduite, $\boldsymbol{R}$. Les paramètres corrélés, $\boldsymbol{S}$ sont alors obtenus par [153] :

$$\boldsymbol{S} = \boldsymbol{P} \cdot \boldsymbol{R} + \boldsymbol{M} \tag{B.1}$$

Avec $\boldsymbol{P}$ tel quel $\boldsymbol{C} = \boldsymbol{P} \cdot \boldsymbol{P}^* = \boldsymbol{P} \cdot \boldsymbol{P}^T$, d'après la décomposition de Choleski et $\boldsymbol{M}$ est la valeur moyenne des paramètres à échantillonner. Nos paramètres corrélés ont ainsi les bonnes variances avec $\boldsymbol{P}$ et les bonnes moyennes, avec $\boldsymbol{M}$.

Cependant, une matrice de corrélation/covariance est semi-définie positive, elle n'est donc pas nécessairement inversible [1] et en particulier décomposable selon la décomposition de Choleski. Par exemple, une matrice de covariance correspondante à une matrice de corrélation unitaire n'est pas inversible, puisque son déterminant est nul. Lorsqu'une matrice de covariance n'est pas inversible, nous perturbons la diagonale jusqu'à ce que l'inversion soit possible. En pratique, cette perturbation est négligeable.

Pour chaque histoire, les paramètres ainsi générés servent à calculer les observables finales. Elle est répétée N fois (de l'ordre du million), afin d'obtenir avec une statistique suffisante la densité de probabilité des observables finale. Pour deux variables X et Y, dont les résultats par MC sont les vecteurs $\{x_1, x_2, ..., x_N\}$ et $\{y_1, y_2, ..., y_N\}$, les moyennes sont :

$$\overline{X} = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N} x_i \tag{B.2}$$

Et leur covariance :

$$\mathrm{cov}\,(X, Y) = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N} \left(x_i - \overline{X}\right) \cdot \left(y_i - \overline{Y}\right) \tag{B.3}$$

1. Une matrice définie positive en revanche est inversible.

ANNEXE C

DÉCONTAMINATION DES DISTRIBUTIONS EN CHARGE IONIQUE

Dans cette annexe nous présentons les résultats de la décontamination des distributions en charge ionique, présentée dans le sous-section 3.2.6. La figure C.1 présente les résultats de la décontamination pour les masses symétriques et la figure C.2 pour les masses très asymétriques.

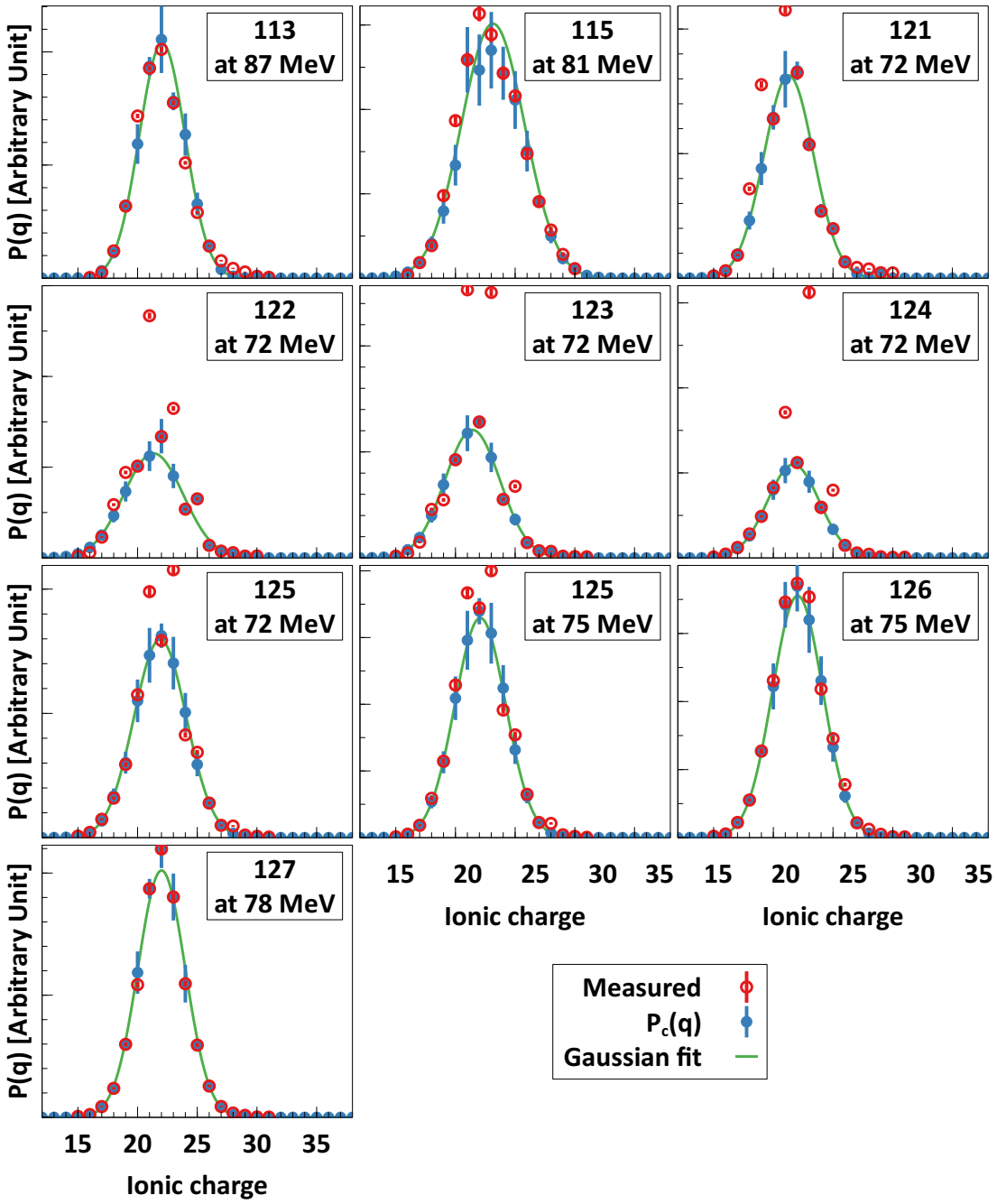


FIGURE C.1: Décontamination des distributions en charge ionique pour les masses de la région symétrique.

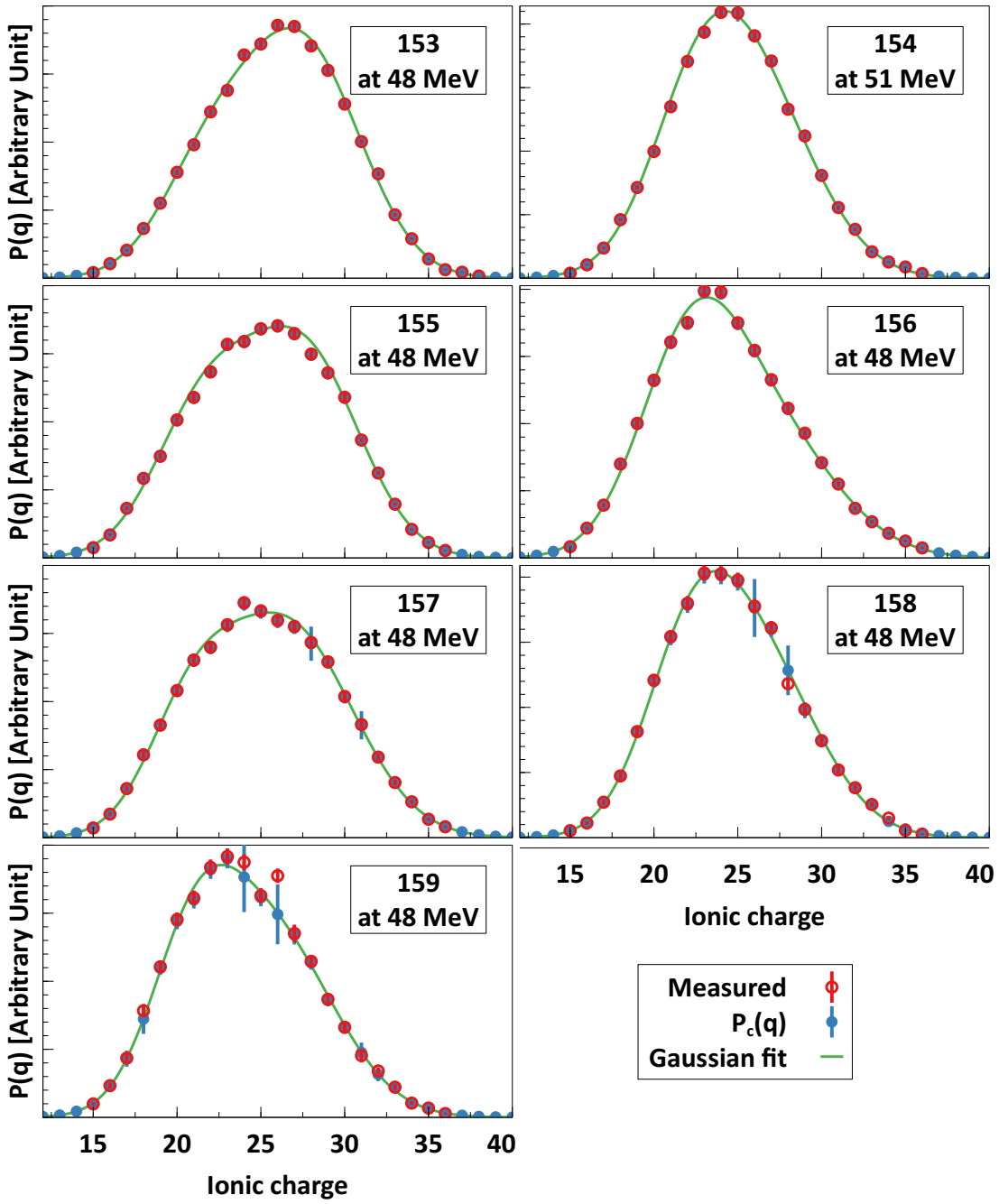


FIGURE C.2: Décontamination des distributions en charge ionique pour les masses de la région très asymétrique.

ANNEXE D

AJUSTEMENT DES DISTRIBUTIONS EN ÉNERGIE CINÉTIQUE DES MASSES SYMÉTRIQUES ET TRÈS ASYMÉTRIQUES

Dans cette annexe nous présentons les résultats des ajustements à deux gaussiennes pour les distributions en énergie cinétique des régions de la fission symétrique, Fig. D.1, et très asymétrique, Fig. D.2, présentées dans la sous-section 3.4.2. Ensuite, nous présentons les résultats obtenus lorsque nous considérons le maximum possible de décontamination, nous obtenons les figures D.3 pour les masses de la région symétrique et D.4 pour les masses de la région asymétrique. Les structures sont toujours visibles.

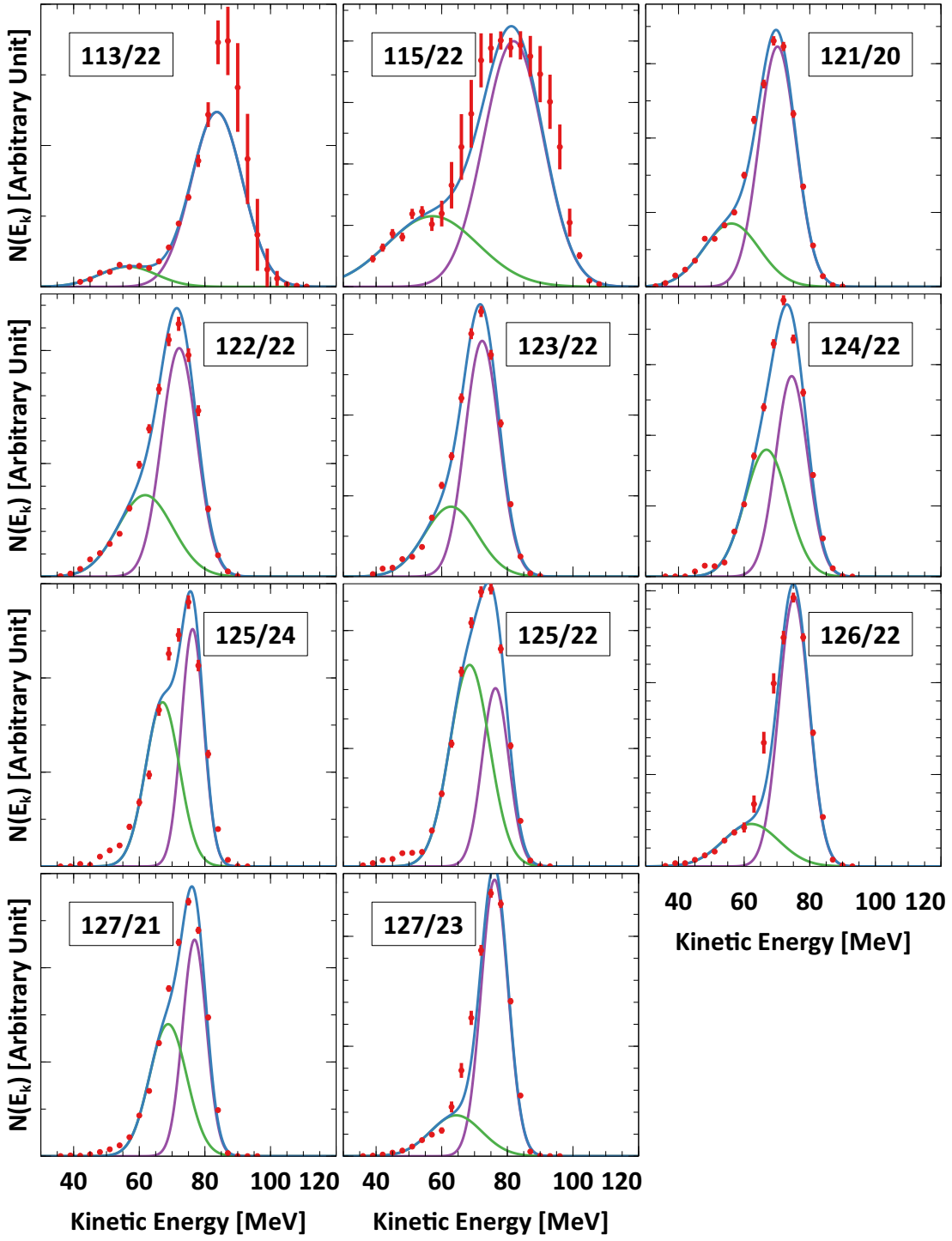


FIGURE D.1: Distributions en énergie cinétique pour les masses de la région symétrique, décontaminées des contaminants, ajustées avec deux gaussiennes.

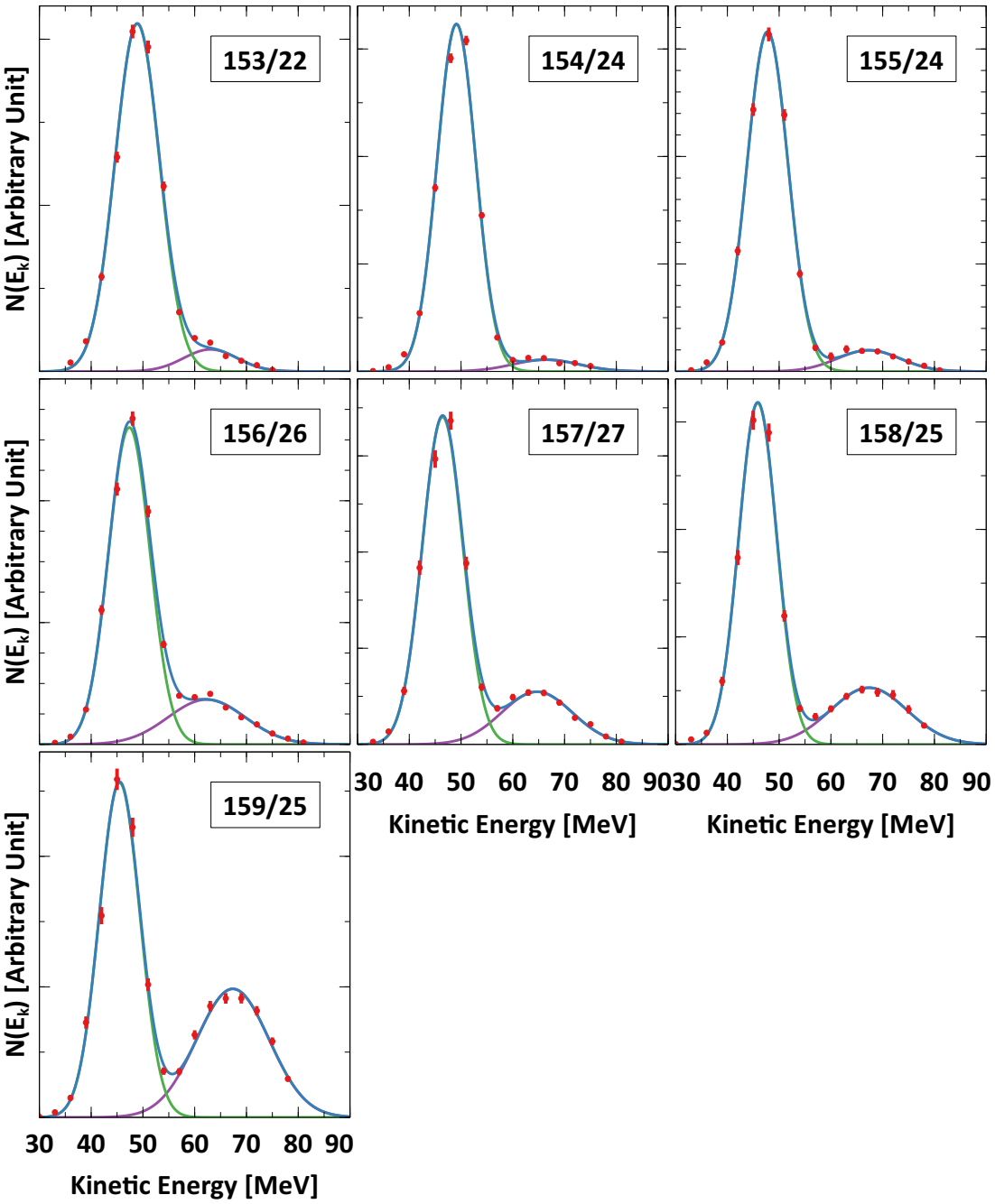


FIGURE D.2: Distributions en énergie cinétique pour les masses de la région très asymétrique, décontaminées des contaminants, ajustées avec deux gaussiennes.

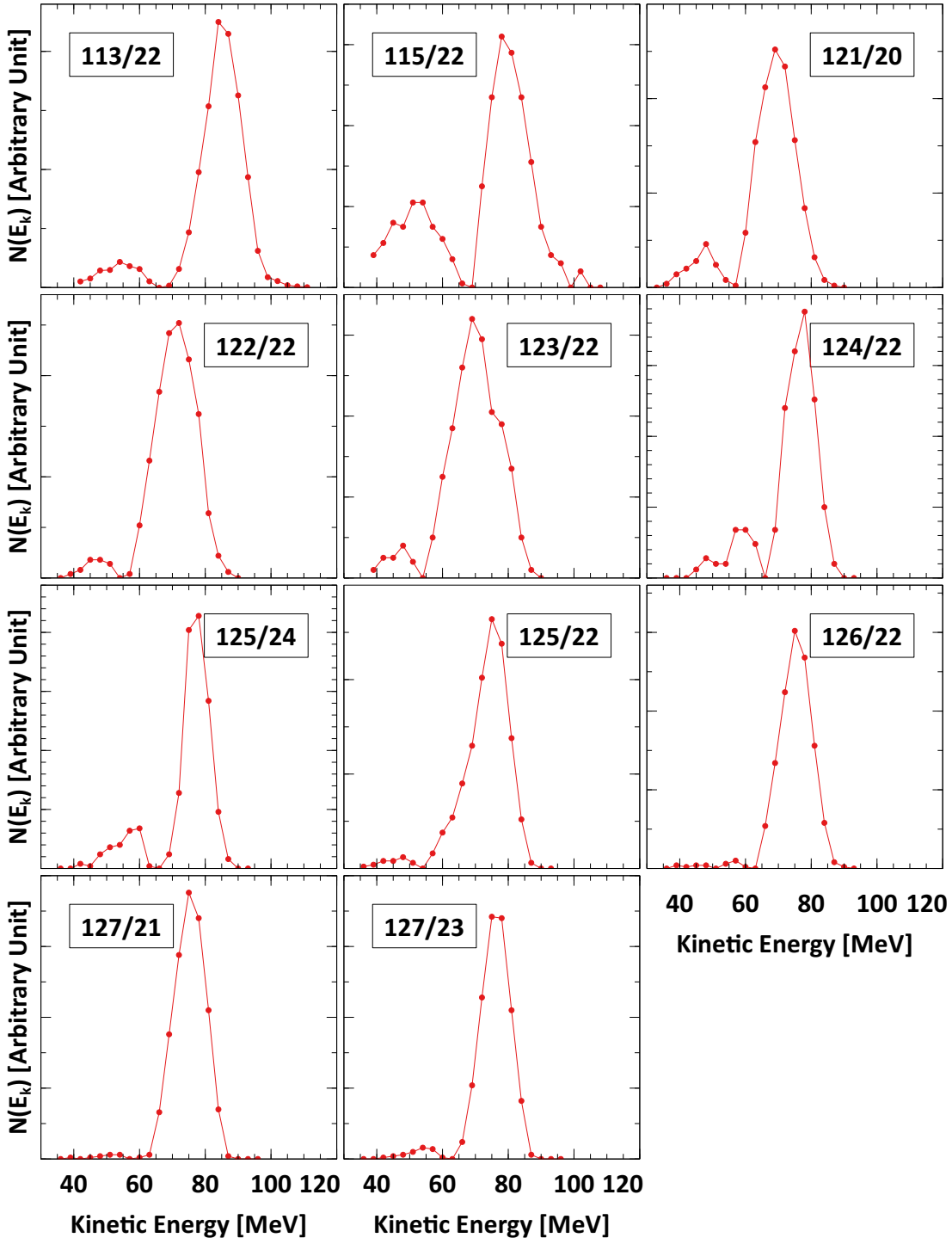


FIGURE D.3: Distributions en énergie cinétique pour les masses de la région symétrique au maximum de décontamination.

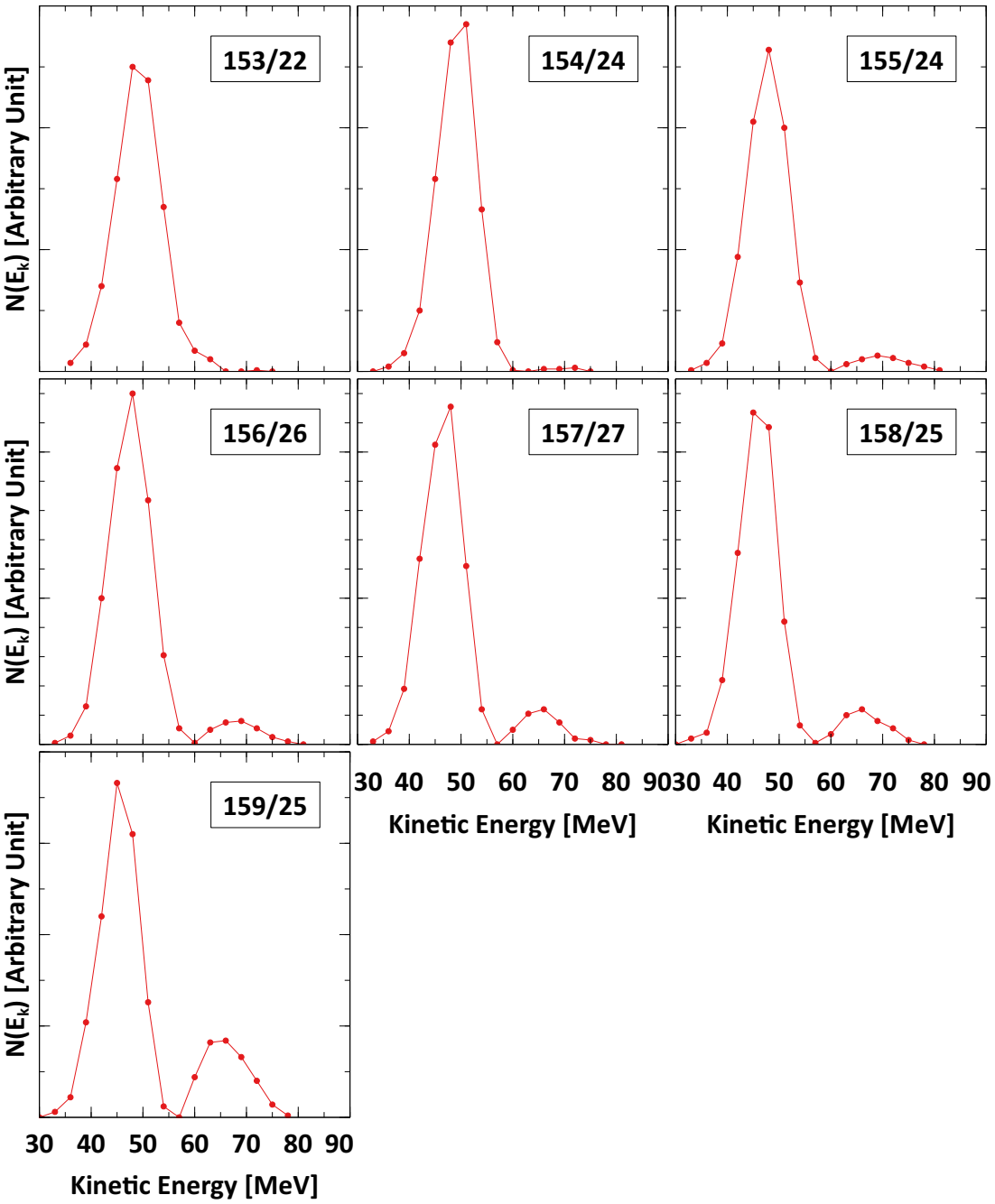


FIGURE D.4: Distributions en énergie cinétique pour les masses de la région très asymétrique au maximum de décontamination.

ANNEXE E

RÉSOLUTION DES ÉQUATIONS DE BATEMAN

Les équations de Bateman représentent l'évolution de la population d'un noyau i, N_i, dans une chaîne de décroissance donnée. C'est un bilan de l'évolution en temps, t, de cette population, prenant en compte les termes de production et de disparition. Pour notre étude il y a deux termes de production : la production par fission P_i (en s^{-1}), et la production suite à la désintégration des noyaux en amont dans la chaîne de désintégration. Ce deuxième terme prend en compte le rapport d'embranchement $\alpha_{k\to i}$ du noyau k sur le noyau i qui est défini comme étant la probabilité que le noyau k décroisse sur le noyau i. Dans un cas simple où il n'existe pas d'état métastable, le noyau $i-1$ peuple le noyau i lorsque celui-ci décroit par désintégration β^- : $\alpha_{i-1\to i} = \dfrac{I_{i-1\ \beta^-}}{I_{i-1\ \beta^-} + I_{i-1\ \beta_n^-}}$

Où $I_{i-1\ \beta^-}$ et $I_{i-1\ \beta_n^-}$ sont respectivement les intensités des décroissances β^- et β_n^- du noyaux $i-1$.

Enfin, le seul terme de disparition est la décroissance radioactive $\lambda_i N_i(t)$, où λ_i est la constante de désintégration du noyau considéré (en s^{-1}).

De manière générale, l'évolution en temps de N_i s'écrit donc :

$$\frac{\mathrm{d}N_i(t)}{\mathrm{d}t} = -\lambda_i N_i(t) + P_i + \sum_{k<i} \alpha_{k\to i}\lambda_k N_k(t) \tag{E.1}$$

Il est possible d'écrire cette équation pour chaque noyau de la chaîne de désintégration et de résoudre analytiquement ce système mais l'écriture s'alourdit très rapidement. La résolution des équations de Bateman pour une chaîne de désintégration donnée peut

rapidement s'avérer fastidieuse et confuse. Ceci est particulièrement vrai lorsque différents chemins de désintégrations sont possibles, ce qui est le cas lorsqu'il existe des états métastables. Afin d'adopter une représentation générale et de simplifier l'écriture des équations, il est préférable de se tourner vers une résolution matricielle des équations de Bateman, déjà proposé dans [19].

Pour une explication plus claire, nous allons d'abord aborder le cas d'une chaîne de désintégration sans état métastable pour les masses 137, 139, 140 et 141, puis nous expliciterons les cas des chaînes des masses 130, 132, 136 et 138 dans lesquelles au moins un métastable est visible dans la section E.2.

E.1 Cas d'une chaîne ne comprenant pas d'isomère visible

Lorsqu'aucun état métastable n'est présent, la chaîne de désintégration est la suivante :

$$ {}^{A}_{Z_0}K \xrightarrow[\alpha_{0\to1}]{\beta^-} {}^{A}_{Z_1}L \xrightarrow[\alpha_{1\to2}]{\beta^-} \quad \dots \quad \xrightarrow[\alpha_{n-1\to n}]{\beta^-} {}^{A}_{Z_n}Z $$

Soit $\boldsymbol{N}$ et $\boldsymbol{P}$ les vecteurs colonnes tels que :

$$ \boldsymbol{N} = \begin{pmatrix} N_0 \\ N_1 \\ \vdots \\ N_n \end{pmatrix} \qquad \text{et} \qquad \boldsymbol{P} = \begin{pmatrix} P_0 \\ P_1 \\ \vdots \\ P_n \end{pmatrix} $$

$\boldsymbol{N}$ est alors le vecteur population de noyaux et $\boldsymbol{P}$ le vecteur production par fission.

Le but des calculs décrits ici est de trouver $\boldsymbol{P}$, *i.e*, la production uniquement par fission de chaque isotope de la chaîne de désintégration.

Avec les notations précédentes, nous obtenons le système d'équations :

$$ \begin{cases} \dfrac{\mathrm{d}N_0(t)}{\mathrm{d}t} = -\lambda_0 N_0(t) + P_0 \\ \vdots \\ \dfrac{\mathrm{d}N_n(t)}{\mathrm{d}t} = -\lambda_n N_n(t) + P_n + \alpha_{n-1}\lambda_{n-1}N_{n-1}(t) \end{cases} \tag{E.2} $$

Qui se résume sous sa forme matrice en :

$$ \frac{\mathrm{d}\boldsymbol{N}(t)}{\mathrm{d}t} = \boldsymbol{A}\boldsymbol{N}(t) + \boldsymbol{P} \tag{E.3} $$

$\boldsymbol{A}$ est alors une matrice $n \times n$ mettant en relation chaque équation de Bateman. Par définition, $\boldsymbol{A}$ s'écrit :

$$\boldsymbol{A} = \begin{pmatrix} -\lambda_0 & 0 & \cdots & 0 \\ \alpha_0\lambda_0 & -\lambda_1 & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & \alpha_{n-1}\lambda_{n-1} & -\lambda_n \end{pmatrix}$$

Le vecteur colonne $\boldsymbol{N}$ représente la population réelle des isotopes de la masse A considérée. Or, lors de nos mesures par spectroscopie γ, le nombre de γ émis par désintégration β^- de cette population, $N_{\gamma i}$, est détecté. Pour passer de l'un à l'autre il faut prendre en compte l'efficacité du détecteur à l'énergie du γ considéré ϵ_γ, le facteur de correction d'effet de somme $f_{\gamma i}$, l'intensité de la raie γ détectée, $I_{\gamma i}$, et le taux de désintégration, lié à la constante radioactive λ_i. Il est important de noter ici que l'intensité de la raie détectée, $I_{\gamma i}$, est définie pour 100 désintégrations des noyaux parents, ainsi, le rapport d'embranchement n'intervient pas dans la relation entre N_i et $N_{\gamma i}$. Dans le chapitre où les rendements isotopiques sont abordés, (Cf chapitre 4), $I_{\gamma i}$ est scindé en deux parties, $I_{\gamma i} = I_{\gamma i}^{rel} \cdot I_{\gamma i}^{norm}$. Pour ne pas inutilement alourdir les équation, dans cette annexe nous n'allons pas nous préoccuper de cette distinction entre $I_{\gamma i}^{rel}$ et $I_{\gamma i}^{norm}$, nous ne raisonnerons qu'avec $I_{\gamma i}$. Pour chaque noyau i et chaque énergie de rayonnement γ mesuré, Δt étant la durée de la mesure, le nombre de γ détecté est alors :

$$N_{\gamma i}(\Delta t) = I_{\gamma i} \cdot f_{\gamma i} \cdot \epsilon_\gamma \int_0^{\Delta t} \lambda_i N_i(u)\,\mathrm{d}u \tag{E.4}$$

Pour la suite du calcul nous allons utiliser une forme réduite du nombre de γ détectés :

$$J_i(t) = \int_0^{\Delta t} \lambda_i N_i(u)\,\mathrm{d}u \quad \longrightarrow \quad N_{\gamma i}(\Delta t) = I_{\gamma i} \cdot f_{\gamma i} \cdot \epsilon_\gamma \cdot J_i(\Delta t) \tag{E.5}$$

Lors de notre analyse, nous mesurons à l'aide des spectres γ les $N_{\gamma i}$. Il faut donc, afin d'appliquer le calcul qui suit, diviser par $I_{\gamma i}$, $f_{\gamma i}$ et ϵ_γ afin de travailler sur les J_i.

Définissons $\boldsymbol{X}$:

$$X_i(\Delta t) = \int_0^{\Delta t} N_i(u)\,\mathrm{d}u \quad \text{et} \quad \boldsymbol{X} = \begin{pmatrix} X_0(\Delta t) \\ \vdots \\ X_n(\Delta t) \end{pmatrix} \tag{E.6}$$

Et la matrice $\boldsymbol{L} = \begin{pmatrix} \lambda_0 & \cdots & 0 \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & \lambda_n \end{pmatrix}$ nous obtenons depuis E.5 la relation $\boldsymbol{J} = \boldsymbol{L}\boldsymbol{X}$. Notons que la matrice $\boldsymbol{L}$ est diagonale non nulle et donc inversible, nous pouvons donc aussi écrire $\boldsymbol{X} = \boldsymbol{L}^1\boldsymbol{J}$.

Puisque les fonctions sont C^1 [1] il est possible d'inverser l'intégrale et la dérivé. En intégrant relativement au temps l'équation E.3, nous obtenons :

$$\begin{aligned} & \int_0^{\Delta t} \frac{\mathrm{d}\boldsymbol{N}(u)}{\mathrm{d}u}\,\mathrm{d}u = \boldsymbol{A}\int_0^{\Delta t} \boldsymbol{N}(u)\,\mathrm{d}u + \int_0^{\Delta t} \boldsymbol{P}\,\mathrm{d}u \\ \iff \quad & \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}\Delta t}\int_0^{\Delta t} \boldsymbol{N}(u)\,\mathrm{d}u = \boldsymbol{A}\int_0^{\Delta t} \boldsymbol{N}(u)\,\mathrm{d}u + \int_0^{\Delta t} \boldsymbol{P}\,\mathrm{d}u \\ \iff \quad & \frac{\mathrm{d}\boldsymbol{X}}{\mathrm{d}\Delta t} = \boldsymbol{A}\boldsymbol{X} + \Delta t\boldsymbol{P} \end{aligned} \tag{E.7}$$

Et en multipliant par la gauche E.7 par $\boldsymbol{L}$:

$$\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{J}}{\mathrm{d}\Delta t} = \boldsymbol{L}\boldsymbol{A}\boldsymbol{X} + \Delta t\boldsymbol{L}\boldsymbol{P} \tag{E.8}$$

Le but de cette étape est d'obtenir une équation différentielle simple en $\boldsymbol{J}$. Pour cela, nous définissons la matrice $\boldsymbol{S}$ tel que $\boldsymbol{L}\boldsymbol{A}\boldsymbol{X} = \boldsymbol{S}\boldsymbol{J}$:

$$\boldsymbol{L}\boldsymbol{A}\boldsymbol{X} = \boldsymbol{L}\boldsymbol{A}\boldsymbol{L}^{-1}\boldsymbol{J} = \boldsymbol{S}\boldsymbol{J} \quad \iff \quad \boldsymbol{S} = \boldsymbol{L}\boldsymbol{A}\boldsymbol{L}^{-1} \tag{E.9}$$

Par définition, $\boldsymbol{S}$ s'écrit : $\boldsymbol{S} = \begin{pmatrix} -\lambda_0 & 0 & \cdots & 0 \\ \alpha_0\lambda_1 & -\lambda_1 & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \cdots & \alpha_n\lambda_{n-1} & -\lambda_n \end{pmatrix}$

La différence avec la matrice $\boldsymbol{A}$ est dans la définition des termes $i, i-1$. La matrice $\boldsymbol{S}$ est diagonale inférieure et non nulle donc est diagonalisable. Il existe une matrice $\boldsymbol{D_S}$ diagonale et une matrice $\boldsymbol{R_S}$ inversible tel que $\boldsymbol{S} = \boldsymbol{R_S}\boldsymbol{D_S}\boldsymbol{R_S}^{-1}$. Il est maintenant possible d'écrire depuis l'équation E.8 :

$$\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{J}}{\mathrm{d}\Delta t} = \boldsymbol{S}\boldsymbol{J} + t\boldsymbol{L}\boldsymbol{P} = \boldsymbol{R_S}\boldsymbol{D_S}\boldsymbol{R_S}^{-1}\boldsymbol{J} + \Delta t\boldsymbol{L}\boldsymbol{P} \tag{E.10}$$

En multipliant à gauche par $\boldsymbol{R_S}^{-1}$, l'équation E.10 devient :

$$\boldsymbol{R_S}^{-1}\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{J}}{\mathrm{d}\Delta t} = \boldsymbol{D_S}\boldsymbol{R_S}^{-1}\boldsymbol{J} + \Delta t\boldsymbol{R_S}^{-1}\boldsymbol{L}\boldsymbol{P} \tag{E.11}$$

1. Une fonction C^1 est une fonction continue et dérivable sur l'intervalle considéré

Maintenant, posons $\boldsymbol{Y} = \boldsymbol{R_S}^{-1}\boldsymbol{J}$ et $\boldsymbol{C} = \boldsymbol{R_S}^{-1}\boldsymbol{LP}$. $\boldsymbol{R_S}^{-1}$ étant indépendant du temps, de l'équation précédente nous obtenons :

$$\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{Y}}{\mathrm{d}\Delta t} = \boldsymbol{D_S}\boldsymbol{Y} + \boldsymbol{C}\Delta t \tag{E.12}$$

Ce qui est équivalent à n équations différentielles d'ordre 1 :

$$\frac{\mathrm{d}Y_i(\Delta t)}{\mathrm{d}\Delta t} = D_{Sii}Y_i(\Delta t) + C_i\Delta t \tag{E.13}$$

La condition initiale est connue, d'après la définition de J (eq. E.5), lorsque $\Delta t = 0$:

$$\forall\ i,\ J_i(0) = \int_0^0 \lambda_i N_i(u)\,\mathrm{d}u = 0 \tag{E.14}$$

Ce qui implique $\forall\ i,\ Y_i(0) = 0$. D'où la solution de l'équation différentielle E.13 :

$$Y_i(\Delta t) = \frac{C_i}{D_{Sii}^2}(e^{D_{Sii}\Delta t} - 1 - D_{Sii}\Delta t) \iff C_i = \frac{D_{Sii}^2}{e^{D_{Sii}\Delta t} - 1 - D_{Sii}\Delta t}Y_i(\Delta t) \tag{E.15}$$

Maintenant, en définissant :

$$\forall\ i,\ E_{ii} = \frac{D_{Sii}^2}{e^{D_{Sii}\Delta t} - 1 - D_{Sii}\Delta t} \tag{E.16}$$

Nous obtenons la matrice diagonale $\boldsymbol{E}$:

$$\boldsymbol{E} = \begin{pmatrix} E_{00} & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & E_{11} & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \cdots & 0 & E_{nn} \end{pmatrix}$$

Tel que :

$$\boldsymbol{C} = \boldsymbol{EY} \iff \boldsymbol{R}^{-1}\boldsymbol{LP} = \boldsymbol{ER}^{-1}\boldsymbol{J} \iff \boldsymbol{LP} = \boldsymbol{RER}^{-1}\boldsymbol{J}$$

Enfin, en multipliant par la gauche par $\boldsymbol{L}^{-1}$ et en notant $\boldsymbol{Q} = \boldsymbol{L}^{-1}\boldsymbol{RER}^{-1}$, il vient :

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{QJ} \tag{E.17}$$

La production par fission est ainsi obtenue pour chaque noyau i de la chaîne de désintégration de la masse A à partir des J_i et d'une matrice $\boldsymbol{Q}$ à calculer pour chaque chaîne de désintégration en fonction de la durée Δt de la mesure.

E.2 Cas d'une chaîne comprenant au moins un isomère visible

Lorsqu'un des éléments i de la chaîne de désintégration possède un isomère, i_m, d'une durée de vie suffisamment grande (au minimum du même ordre de grandeur que le temps de vol dans LOHENGRIN), les calculs précédents ne sont que partiellement valables. En effet, l'isomère est considéré comme un noyau à part entière dans la chaîne de désintégration, pouvant être produit par fission et/ou par décroissance du noyau $i-1$ et se désintégrant sur le noyau i par transition interne ou le noyau $i+1$ par décroissance β^-. L'ordre simple de la chaîne de désintégration de la section E.1 est bouleversé, l'état isomérique pouvant être peuplé par la décroissance du noyau $i-1$ et pouvant décroître par transition interne ou par β^-.

La démarche précédente reste valide mais la définition des matrices $\boldsymbol{A}$ et $\boldsymbol{S}$ est différente. Pour illustrer cela le cas particulier de la masse 138 est détaillé.

E.2.1 Exemple à travers le cas de l'état isomère du ^{138}Cs

Prenons le cas de la chaîne de désintégration de la masse 138 dans laquelle le Cs possède un état métastable détectable. Quatre isotopes peuvent être détectés avec notre dispositif expérimental : l'iode, I, le xénon, Xe, le césium métastable, ^{m}Cs et son état fondamental Cs. La partie de la chaîne de désintégration nous intéressant est :

$$\begin{array}{ccccccc}
{}^{138}_{53}I\ {\scriptstyle 6{,}230\ s} & \xrightarrow[\alpha_{I\to Xe}]{\beta^-} & {}^{138}_{54}Xe\ {\scriptstyle 14{,}08\ s} & \xrightarrow[\alpha_{Xe\to {}^{m}Cs}]{\beta^-} & {}^{138}_{55m}Cs\ {\scriptstyle 2{,}91\ min} \\
 & \beta^- \downarrow_{\alpha_{Xe\to Cs}} & & \overset{IT}{\underset{\alpha_{{}^{m}Cs\to Cs}}{\swarrow}} & \beta^- \downarrow_{\alpha_{{}^{m}Cs\to Ba}} \\
 & {}^{138}_{55}Cs\ {\scriptstyle 33{,}41\ min} & & \xrightarrow[\alpha_{Cs\to Ba}]{\beta^-} & {}^{138}_{56}Ba\ {\scriptstyle stable}
\end{array}$$

Ainsi, la matrice $\boldsymbol{A}$ s'écrit :

$$\boldsymbol{A} = \begin{pmatrix} -\lambda_I & 0 & 0 & 0 \\ \alpha_{I\to Xe}\lambda_I & -\lambda_{Xe} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{Xe\to {}^{m}Cs}\lambda_{Xe} & -\lambda_{{}^{m}Cs} & 0 \\ 0 & \alpha_{Xe\to Cs}\lambda_{Xe} & \alpha_{{}^{m}Cs\to Cs}\lambda_{{}^{m}Cs} & -\lambda_{Cs} \end{pmatrix}$$

Et la matrice $\boldsymbol{S}$:

$$\boldsymbol{S} = \begin{pmatrix} -\lambda_I & 0 & 0 & 0 \\ \alpha_{I\to Xe}\lambda_{Xe} & -\lambda_{Xe} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{Xe\to Cs}\lambda_{^mCs} & -\lambda_{^mCs} & 0 \\ 0 & \alpha_{Xe\to Cs}\lambda_{Cs} & \alpha_{^mCs\to Cs}\lambda_{Cs} & -\lambda_{Cs} \end{pmatrix}$$

ANNEXE F

RÉSOLUTION DES ÉQUATIONS DE BATEMAN POUR CORRIGER DU BRUIT DE FOND

Dans cette annexe, nous proposons de détailler le calcul de la contamination provenant des noyaux qui se sont déposés lors des mesures précédentes sur le cadre support de la bande, comme présentée dans la sous-section 4.1.4.4. Les notations N_i, λ_i et $\alpha_{k\to i}$ sont les même que dans l'annexe E. De même que dans l'annexe E, nous nous placerons dans le cas d'une chaîne de désintégration sans état isomère afin de faciliter la présentation des calculs.

L'évolution typique de la population d'un isotope est présentée sur la figure F.1 ef, avec la définition des temps suivants :

- $t_0 = 0$ début de la mesure des désintégrations provenant du cadre
- t_1 fin de la mesure des désintégration provenant du cadre
- t_2 début de la mesure de rendement
- t_3 fin de la mesure de rendement

Lorsque nous voulons prendre en compte le bruit de fond dû aux mesures précédentes, il n'y a pas de production par fission car le faisceau du LOHENGRIN est fermé. Ainsi, les équations de Bateman se simplifient en :

$$\begin{cases} \dfrac{\mathrm{d}N_0(t)}{\mathrm{d}t} = -\lambda_0 N_0(t) \\ \vdots \\ \dfrac{\mathrm{d}N_n(t)}{\mathrm{d}t} = -\lambda_n N_n(t) + \alpha_{n-1}\lambda_{n-1}N_{n-1}(t) \end{cases} \iff \frac{\mathrm{d}\boldsymbol{N}(t)}{\mathrm{d}t} = \boldsymbol{A}\boldsymbol{N}(t) \tag{F.1}$$

En revanche, les conditions initiales ne sont plus $N_i(0) = 0$ comme dans l'annexe E. Ici, un certain nombre de noyaux est présent au début de la mesure. Notre but est d'estimer

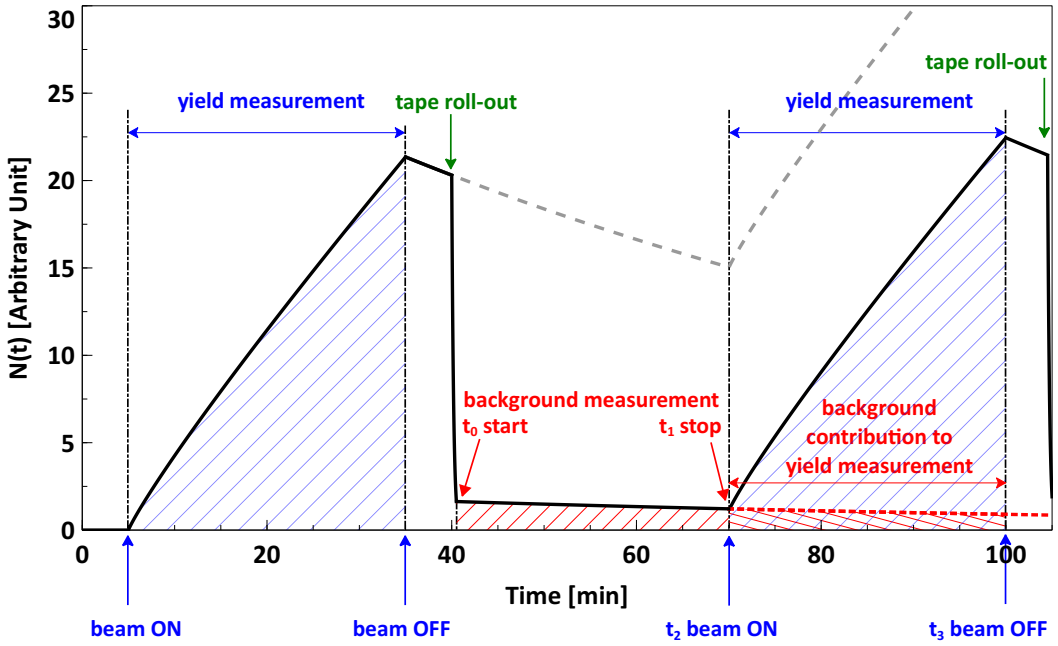


FIGURE F.1: Illustration de l'évolution d'une population isotopique $N(t)$ en fonction du temps. Sont indiqué sur le schéma les différents temps auxquels nous nous référerons.

l'impact de la contamination du cadre sur le nombre de désintégration détecté lors de la mesure.

La définition de la matrice $\boldsymbol{A}$ est la même que dans l'annexe E :

$$\boldsymbol{A} = \begin{pmatrix} -\lambda_0 & 0 & \cdots & 0 \\ \alpha_0\lambda_0 & -\lambda_1 & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \cdots & \alpha_{n-1}\lambda_{n-1} & -\lambda_n \end{pmatrix}$$

Puisque les fonctions sont au moins C^1, il est possible d'inverser la dérivée et l'intégrale. En intégrant l'équation F.1 relativement au temps, nous obtenons :

$$\boldsymbol{N}(t) - \boldsymbol{N}(0) = \boldsymbol{A}\int_0^t \boldsymbol{N}(u)\,\mathrm{d}u = \boldsymbol{A}\boldsymbol{X} \quad \text{avec} \quad \boldsymbol{X} = \int_0^t \boldsymbol{N}(u)\,\mathrm{d}u \tag{F.2}$$

Le lien avec le nombre de γ détecté s'écrit pour chaque isotope et chaque raie γ :

$$X_i(t_1) = \frac{N_i(t_1)}{I_{\gamma_i} f_{\gamma_i} \epsilon_\gamma \lambda_i} \tag{F.3}$$

$\boldsymbol{A}$ est une matrice triangulaire inférieure non nulle, donc diagonalisable. Il existe une matrice diagonale $\boldsymbol{D_A}$ et une matrice inversible $\boldsymbol{R_A}$ tel que $\boldsymbol{A} = \boldsymbol{R_A}\boldsymbol{D_A}\boldsymbol{R_A}^{-1}$. Posons :

$$\boldsymbol{Y} = \boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{X} \quad \text{et} \quad \boldsymbol{M} = \boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{N}(0)$$

En multipliant l'équation F.2 à gauche par $\boldsymbol{R_A}^{-1}$, il vient :

$$\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{Y}}{\mathrm{d}t} = \boldsymbol{D_A}\boldsymbol{Y} + \boldsymbol{M} \tag{F.4}$$

Qui est équivalent à, $\forall\ i$:

$$\frac{\mathrm{d}Y_i(t)}{\mathrm{d}t} = D_{Aii}Y_i(t) + M_i \tag{F.5}$$

Avec comme condition initiale, d'après la définition de X F.2 :

$$\boldsymbol{X}(0) = \int_0^0 \boldsymbol{N}(u)\,\mathrm{d}u = 0 \quad \text{donc} \quad \boldsymbol{Y}(0) = 0 \tag{F.6}$$

La résolution de cette équation différentielle donne, $\forall\ i$:

$$Y_i = \frac{M_i}{D_{Aii}}(e^{D_{Aii}t} - 1) \quad \Longleftrightarrow \quad M_i = \frac{D_{Aii}Y_i}{e^{D_{Aii}t} - 1} \tag{F.7}$$

Maintenant, en définissant $\forall\ i$:

$$\begin{cases} E_{ii} = \dfrac{e^{D_{Aii}t} - 1}{D_{Aii}} \\[2ex] F_{ii} = \dfrac{D_{Aii}}{e^{D_{Aii}t} - 1} \end{cases} \tag{F.8}$$

Nous avons les matrices diagonales

$$\boldsymbol{E} = \begin{pmatrix} E_{00} & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & E_{11} & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \cdots & 0 & E_{nn} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \boldsymbol{F} = \begin{pmatrix} F_{00} & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & F_{11} & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \cdots & 0 & F_{nn} \end{pmatrix}$$

Tel que :

$$\boldsymbol{Y} = \boldsymbol{E}\boldsymbol{M} \Longleftrightarrow \boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{X} = \boldsymbol{E}\boldsymbol{M} \Longleftrightarrow \boldsymbol{X} = \boldsymbol{R_A}\boldsymbol{E}\boldsymbol{M} = \boldsymbol{R_A}\boldsymbol{E}\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{N}(0) \tag{F.9}$$

$$\boldsymbol{M} = \boldsymbol{F}\boldsymbol{Y} \Longleftrightarrow \boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{N}(0) = \boldsymbol{F}\boldsymbol{Y} \Longleftrightarrow \boldsymbol{N}(0) = \boldsymbol{R_A}\boldsymbol{F}\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{X} = \boldsymbol{R_A}\boldsymbol{F}\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{X} \tag{F.10}$$

Nous sommes intéressé par la contamination due à $\boldsymbol{N}(0)$ sur le nombre de désintégration mesurés. Ce que nous souhaitons obtenir ici est donc :

$$\begin{aligned}\int_{t_2}^{t_3} \boldsymbol{N}(u)\,\mathrm{d}u = \boldsymbol{X}(t_3) - \boldsymbol{X}(t_2) &= \boldsymbol{R_A}\boldsymbol{E}(t_3)\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{N}(0) - \boldsymbol{R_A}\boldsymbol{E}(t_2)\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{N}(0) \\ &= \boldsymbol{R_A}\left(\boldsymbol{E}(t_3) - \boldsymbol{E}(t_2)\right)\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{N}(0) \end{aligned} \tag{F.11}$$

Or, durant la mesure des désintégrations provenant du cadre, nous obtenons une mesure de :

$$\boldsymbol{\lambda}\int_{t_0}^{t_1} \boldsymbol{N}(u)\,\mathrm{d}u = \boldsymbol{\lambda}\boldsymbol{X}(t_1)$$

Ainsi,

$$\begin{aligned}\boldsymbol{X}(t_3) - \boldsymbol{X}(t_2) &= \boldsymbol{R}\left(\boldsymbol{E}(t_3) - \boldsymbol{E}(t_2)\right)\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{N}(0) \\ &= \boldsymbol{R_A}\left(\boldsymbol{E}(t_3) - \boldsymbol{E}(t_2)\right)\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{R_A}\boldsymbol{F}(t_1)\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{X}(t_1) \\ &= \boldsymbol{R_A}\left(\boldsymbol{E}(t_3) - \boldsymbol{E}(t_2)\right)\boldsymbol{F}(t_1)\boldsymbol{R_A}^{-1}\boldsymbol{X}(t_1) \end{aligned} \tag{F.12}$$

Grâce à la mesure de $\boldsymbol{X}(t_1)$, il est possible de déterminer la contamination du bruit de fond venant du cadre durant la mesure à faisceau ouvert entre les temps t_2 et t_3.

La contribution des isotopes du cadres à la mesure est alors :

$$\boldsymbol{J_{BdF}} = \boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{X}(t_3) - \boldsymbol{X}(t_2)) \tag{F.13}$$

Qu'il faudra soustraire au résultat de la mesure comme présenté dans la sous-section 4.1.4.4 (se référer notamment à l'eq. 4.15).

LISTE DES FIGURES

1.1 À gauche, l'évolution dans le temps de la production mondiale d'énergie primaire (TPES pour Total Primary Energy Supply) par type d'énergie. Le terme « other » regroupe entre autres la géothermie, le solaire, l'éolien et l'exploitation des forces de marée. À droite, la part de chaque type d'énergie primaire dans les émissions de GES. Tiré de [3]. 6

1.2 À gauche, l'évolution de la consommation mondiale d'énergie (TFC pour Total Final Consumption) par type d'énergie. Le terme « other » regroupe entre autres le chauffage solaire et la géothermie. À droite, la production d'électricité par type d'énergie. Tiré de [3]. 6

1.3 L'évolution de la production d'électricité d'origine hydraulique (à gauche) et solaire (à droite), dans les différentes régions du monde. Tiré de [3]. . . 6

1.4 À gauche, l'évolution en temps de la production mondiale d'électricité nucléaire par région. À droite, la distribution du budget public de recherche et développement alloué aux énergies. Tiré de [3]. 7

1.5 À gauche, l'évolution dans le temps des émissions de GES pour la production d'énergie, par habitant, dans plusieurs pays européens. À droite, le détail par catégories d'émetteurs pour l'année 2015, pour la France, l'Allemagne et la Suède. Données provenant de [1]. 8

1.6 L'incertitude de la puissance résiduelle élémentaire venant de la fission induite par neutron thermique du ^{239}Pu. Adapté de [11]. 14

1.7 L'incertitude de la puissance résiduelle élémentaire venant de la fission induite par neutron thermique du ^{235}U obtenue avec JEFF-3.1.2 et ENDF/B-VII.1., pour différentes hypothèses de covariances. Adapté de [12]. 14

2.1 En haut, les différentes étapes du processus de fission. En bas, la topographie de l'énergie potentielle en fonction de deux degrés de liberté clés : l'asymétrie des masses des fragments et l'élongation (distance entre les barycentres des deux fragments). En rouge, le chemin que peut parcourir le noyau fissionnant, de son état stable jusqu'au point de scission. Adapté de [37]. 21

2.2 Les temps caractéristiques du phénomène de fission nucléaire à partir du point selle. 22

2.3 À gauche, les niveaux d'énergie en fonction de la déformation du noyau, plus particulièrement en fonction des moments quadrupolaire et hexadécapolaire. À droite, le chemin d'énergie minimale que suit le noyau. E_f représente la barrière de fission au point selle, au-delà duquel la fission est irréversible. Tiré de [35]. 23
2.4 À gauche, la paramétrisation de la forme du noyau composé dans le FRLDM, tiré de [47]. À droite, les résultats de cette paramétrisation (traits pleins) comparés aux résultats du GSI [48] (points noirs). Tiré de [49]. 25
2.5 À gauche, la distribution en masse de ^{252}Cf(s.f.) et au milieu, de ^{235}U(n$_{th}$,f) : en traits pleins les données expérimentales, en pointillés, les calculs du modèle de point de scission. À droite, la distribution en énergie cinétique totale pour ^{252}Cf(s.f.). En traits pleins, les données expérimentales et les calculs du modèle de point de scission pour les cas 1 (points noirs) et 2 (croix noires). Tiré de [51]. 28
2.6 À gauche, les rendements (pré-neutron) de fission isobarique pour la fission induite par neutron thermique de différents actinides obtenus avec SPY (en rouge) et comparées à l'évaluation ENDF/B-VII.1 (en noir). À droite, un zoom de cette distribution pour l'^{235}U. Tiré de [52]. 29
2.7 L'évolution temporelle d'une coupe 2D de la densité du noyau composé du ^{240}Pu obtenu par des calculs TDHF (Time Dependant Hartree-Fock) utilisant l'interaction de Skyrme. Les lignes iso sont de 0,05 nucléons par fm^3. Tiré de [57]. 30
2.8 Résultats obtenues avec TDGCM pour ^{239}Pu(n,f), comparés aux données expérimentales [59; 60] et à JEFF-3.1 avec une paramétrisation utilisé pour l'interaction de Skyrme, SkM (en bleu) et de l'interaction de Gogny, D1S (en rouge). Tiré de [58]. 31
2.9 Distributions en utilisant les paramètres proposés par Wahl pour ^{235}U(n$_{th}$,f), en fonction de la masse du fragment, A_{pre}, pour : en haut, la polarisation de charge ΔZ, au milieu, la largeur de la distribution en charge, σ_Z et, en bas, les paramètres F_Z et F_N rendant comptes des effets pair-impairs protons et neutrons. Tiré de [22]. 33
2.10 Quelques exemples récents des résultats de GEF. En haut, les rendements de fission post-émission neutron pour différents éléments : GEF (en bleu continu), comparé aux résultats de VAMOS [69] (en noir, vert et rouge) pour la fission à basse énergie d'excitation du ^{240}Pu, tiré de [68]. En bas, la distribution en masse à charge nucléaire donnée pour les rendements de fission post-émission neutron : GEF (en noir), comparé aux résultats de SOFIA [70] (en rouge) et du GSI [71] (en bleu) pour la fission à basse énergie d'excitation du ^{238}U, tiré de [70]. 36
2.11 À gauche, une visualisation des modes de fission proposés par Brosa et al. pour la fission du ^{252}Cf, tiré de [72]. À droite, pour ^{237}Np(n,f), les résultats des calculs de Brosa avec la composante provenant de chacun des quatre modes hypothétisés, comparées aux résultats expérimentaux. Tiré de [74]. 37
2.12 Tracé de la loi en rapport de température en fonction de la masse du fragment lourd. 41

2.13 Illustration du schéma de niveaux échantillonné par FIFRELIN avec trois zones distinctes : les niveaux discrets connus (1), les niveaux discrets partiellement connues et complétés par un modèle de densité de niveaux (2) et le continuum (3). 43
2.14 Nappe de χ^2 afin de reproduire les valeurs de $\overline{\nu}$ de JEFF-3.1.1 en fonction des valeurs de R_T^{min} et R_T^{max} obtenue pour différentes énergies de neutron incident. 46
2.15 Nappe de χ^2 afin de reproduire les valeurs de $\overline{\nu}_L$ de JEFF-3.1.1 en fonction des valeurs de R_T^{min} et R_T^{max} obtenue pour différentes énergies de neutron incident. La valeur maximale de l'échelle est imposée à $\chi^2_{max} = 20$ pour les énergies de 3,0, 4,0 et 5,0 MeV, afin de faciliter la visualisation de l'évolution de cette nappe. 46
2.16 Évolution de $\overline{\nu}$, $\overline{\nu}_L$ et $\overline{\nu}_H$ obtenus avec FIFRELIN pour des énergies de neutrons allant du point thermique jusqu'à 5,5 MeV. 47
2.17 Évolution de $\overline{\nu}(A)$ obtenu avec FIFRELIN pour différentes énergies de neutron incident. 47

3.1 Schéma de principe du spectromètre de masse LOHENGRIN à l'ILL. Adapté de [99]. 53
3.2 Les deux positions expérimentales, la première pour mesurer des rendements en masse, la deuxième, des rendements isotopiques. 53
3.3 Schéma de la dispersion sur le plan focal de LOHENGRIN. Les gaussiennes de couleurs sont une représentation de l'image de différentes masses (à une énergie cinétique et une charge ionique donnée) par LOHENGRIN. Adapté de [101]. 56
3.4 Mesure de la résolution en masse de LOHENGRIN pour les produits de fission lourds pour une tension de 350 kV aux bornes du condensateur. La résolution obtenue est $\frac{\Delta A}{A} \approx \frac{1}{900}$. Tiré de [103]. 57
3.5 Coupe schématique (proportions non respectées) d'une cible type de ^{241}Pu utilisée lors de nos expériences (à gauche) et la cible de ^{239}Pu de l'expérience de novembre 2014. 58
3.6 Photo d'une cible d'actinide utilisée sur LOHENGRIN avec une couche de Ni de 0,25 μm sur un diaphragme en Ti de 7 x 0,5 cm^2. Tirée de [104]. 58
3.7 Évolution de la puissance thermique du réacteur de l'ILL au cours du cycle s'étalant du 13/10/2015 au 17/12/2015 (à gauche) et sur la seizième journée du même cycle (à droite). Tiré de [106]. 60
3.8 Schéma de principe d'une chambre d'ionisation avec grille de Frisch. Adapté de [19]. 62
3.9 Exemple de mesure obtenue avec la chambre d'ionisation pour la masse $A = 100$ à $E_k = 100$ MeV et à la charge ionique $q = 20$. Chaque tache correspond à un triplet (A, E_k, q) satisfaisant les ratios A/q et E_k/q imposés par LOHENGRIN. Sur les axes, en nombre de canaux : l'énergie totale déposée dans la chambre, E_{tot} et l'énergie déposée avant la grille de séparation, ΔE. Le centre des taches correspond à l'énergie sélectionnée par LOHENGRIN, les bins alentours sont dus à la résolution de la chambre d'ionisation couplée à LOHENGRIN. 64
3.10 Représentation en 3-D de la distribution $N(A, E_k, q)$ lorsque charge ionique et énergie cinétique sont indépendantes. Nous verrons par la suite l'impact de cette hypothèse. 65

3.11 Évolution du BU pour les expériences de Mai 2013 (à gauche) et Novembre 2015 (à droite) sur le ^{241}Pu. Les points rouges sont les points de mesure du BU. À gauche, les points bleus correspondent à l'interpolation du BU aux temps de mesures. À droite, la courbe verte représente l'évolution du BU_n. Le profil régulier du BU de la mesure de 2015 permet un ajustement global, alors que le profil irrégulier de la cible de 2013 nécessite un ajustement local. 67
3.12 Évolution de la moyenne et de l'écart-type de la distribution en énergie cinétique du BU (masse 136) pour l'expérience de Mai 2013. 69
3.13 Ajustement linéaire de la moyenne (en haut) et de l'écart-type (en bas) des distribution en énergie cinétique en fonction de la charge ionique avant (en rouge) et après (en bleu) correction de l'évolution de la cible pour deux exemple : la masse 133 de l'expérience de Mai 2013 (à gauche) et la masse 137 de l'expérience de Novembre 2015 (à droite). 70
3.14 Résultats de l'ajustement linéaire en fonction de la masse et de la cible pour les expériences de Mai 2013 (à gauche) et Novembre 2015 (à droite). 70
3.15 Représentation en 2-D de la distribution $N(A, E, q)$. Les 3 courbes de gauche sont trois distributions en énergie aux charges 18, 22 et 27 pour une masse A. Ces distributions ne sont pas normalisées à 1. La courbe du bas est la distribution en charge ionique à 66 MeV (E_{ref}). Le contour sans corrélation est la projection de la distribution présentée sur la figure 3.10. Le contour avec corrélations est une représentation exagérée de l'effet des corrélations (E_k, q). 71
3.16 Exemple de l'évolution de $\overline{E}_k$ et σ_E en fonction de la charge ionique (à gauche) et distribution de la charge ionique, normalisée à 1, sans et avec la prise en compte des corrélations (E_k, q) (à droite), pour la masse 139 lors de l'expérience de Novembre 2015. 72
3.17 $\overline{N}(A)$ obtenus (en haut) et leur incertitude (en bas) pour une partie des masses (hauts rendements) de l'expérience de Novembre 2015 pour trois différents choix de CL. 74
3.18 Matrice de corrélation des $\overline{N}(A)$ obtenus pour une partie des masses (hauts rendements) pour l'expérience de Novembre 2015 pour trois différents choix de CL. 74
3.19 Les différentes évaluations de $N(A = 139)$: $N_{q=18}$, $N_{q=21}$, $N_{q=22}$ et $N_{q=27}$, obtenues à partir des mesures à différentes charges ioniques pour l'expérience de Novembre 2015 sans prise en compte des corrélations (E_k, q) (en rouge) et avec (en bleu). La valeur moyenne est aussi indiquée dans les deux cas, avec son incertitude. 75
3.20 Distribution en énergie cinétique de la masse 98 (à gauche) aux charges ioniques 18, 21 et 24 et pour la masse 136 (à droite) pour les charges ioniques 18, 24 et 26. La cible « épaisse » déforme la distribution en énergie cinétique et fait apparaître une composante à basse énergie cinétique, notamment visible sur les distributions à basses charges. 76
3.21 Évolution du BU pour l'expérience de Novembre 2014 sur le ^{239}Pu. Les points rouges, bleus et verts sont les points de mesure du BU. Les croix violettes correspondent à l'extrapolation du BU aux temps de mesures. Le profil irrégulier du BU nécessite un ajustement local, la seconde partie du BU ne sera pas étudiée. 77

3.22 À gauche, les mesures de calibration du temps mort de la chambre d'ionisation en fonction du taux d'évènements mesuré, pour l'expérience de Mai 2013. À droite, le facteur correctif pour chaque point de mesure (numéro de fichier). 79
3.23 À gauche, le BU pour l'expérience de Mai 2013 avec la correction du temps mort (en rouge) et sans (en bleu). À droite, la différence relative des $\overline{N}(A)$ obtenus avec et sans la correction du temps mort (référence : avec la correction). 79
3.24 Résultats de la réanalyse (en rouge) de l'expérience de Mai 2013 comparés à l'analyse précédente (en vert) durant la thèse de F. Martin [19]. 80
3.25 Image de la contamination des masses ayant changées de charge pour deux contaminants A_{ct} et A'_{ct}. Les parties hachurées représentent $P_{img}(A_{ct})$ et $P_{img}(A'_{ct})$. 81
3.26 Pour l'expérience de Novembre 2015, en haut, les distributions en charge ionique pour la masse 125 à 72 MeV (à gauche) et à 75 MeV (à droite) avant (en rouge) et après correction de la contamination (en bleu). En vert l'ajustement gaussien permettant l'interpolation aux charges contaminées. La distribution bleue est normalisée à 1, la distribution rouge est normalisée à la bleu pour faciliter la comparaison. En bas la fraction due au contaminant, charge par charge. 85
3.27 Pour l'expérience de Novembre 2015, les distributions en énergie cinétique (normalisées à 1) pour la masse 115 à la charge 22 et ses trois principaux contaminants : les masses 95 à la charge 20, 105 à la charge 21 et 137 à la charge 24. La distribution de la masse 105 à la charge 21, que nous n'avons pas mesuré, est supposée identique à la distribution de la masse 105 à la charge 22. Les lignes tracées ne sont que pour guider l'œil. 87
3.28 En haut, un zoom des résultats de la chambre d'ionisation pour la masse 115 à la charge 22 à 84 MeV (à gauche) et à 87 MeV (à droite). En bas, le taux de comptage obtenus pour la masse 115 à la charge 22 en considérant l'intégralité de la tache associée (en noir) ou uniquement la contribution de la masse 115 (en marron), pour les énergies où la distinction est suffisante. En gris, la distribution 115/22 corrigée, grâce à notre méthode, des contaminations et la contribution des trois principaux contaminants (croix de couleurs). 88
3.29 Résultats de la normalisation de l'expérience de Mai 2013 à l'expérience de Novembre 2015 pour le ^{241}Pu. Le bandeau vert indique la moyenne des deux jeux de données et son incertitude. 92
3.30 Distribution de l'énergie cinétique moyenne mesurée en fonction de la masse, pour le ^{241}Pu, corrigée de l'évolution de la cible. 95
3.31 Écart-type de la distribution en énergie cinétique en fonction de la masse, pour le ^{241}Pu, corrigé de l'évolution de la cible. 96
3.32 Énergie moyenne après correction des pertes d'énergie dans la cible en fonction de la masse du produit de fission, obtenue pour les expériences de Mai 2013 (en rouge) et Novembre 2015 (en bleu) pour le ^{241}Pu. En vert, la moyenne des deux. 98
3.33 Exemple de la densité de probabilité (p.d.f.) obtenue analytiquement (en rouge), ou par un calcul MC (en bleu), pour l'expérience de Novembre 2015 à 18,13 jours, pour l'équation 3.69. 101

3.34 Différence relative obtenue entre le calucl MC et le calcul analytique (référence : MC) pour l'expérience de Novembre 2015, avec l'équation $a\exp(b \cdot t)$, sur la valeur moyenne (en haut) du BU et son écart-type (en bas) en fonction du temps. La structure de l'écart-type autour de 12,5 jours est liée au passage de 1 à 3 shutters, ce qui demande une normalisation supplémentaire. 102
3.35 Distributions en énergie cinétique (normalisées à 1) obtenues par la méthode de décontamination (points rouges) pour la masse 121 à la charge 20 (à gauche) et la masse 159 à la charge 25 (à droite). Les étoiles bleues sont obtenus en soustrayant au maximum les contaminants (non normalisés). . 103
3.36 Distributions en énergie cinétique (normalisées à 1) obtenues par la méthode de décontamination (points rouges) pour les masses très asymétriques, ajustées par deux gaussiennes (en vert la somme des deux gaussiennes). Les étoiles bleues correspondent à la décontamination maximale possible avec les contaminants identifiés. 105
3.37 Distributions en énergie cinétique (normalisées à 1) obtenues par la méthode de décontamination (points rouges) pour les masses symétriques, ajustées par deux gaussiennes (en vert la somme des deux gaussiennes). Les étoiles bleues correspondent à la décontamination maximale possible avec les contaminants identifiés. 106
3.38 Distance estimée entre les deux fragments à la scission pour les différents modes (avec $TKE_{pre-sci.} = 0$ MeV) en fonction de la masse du produit de fission mesuré. 107
3.39 Rendements en masse de ^{239}Pu(n_{th},f), normalisés à la somme de JEFF-3.1.1 sur les masses mesurées (en haut) et leurs incertitudes relatives (en bas), comparés à JEFF-3.1.1 (en bleu) et ENDF/B-VII.1 (en vert). 109
3.40 Matrice de corrélation pour les rendements de ^{239}Pu(n_{th},f). 110
3.41 Rendements en masse de ^{241}Pu(n_{th},f) (en haut) et leurs incertitudes relatives (en bas), comparés à JEFF-3.3 (en bleu) et ENDF/B-VII (en vert). 110
3.42 Zoom sur la région de la fission asymétrique et très asymétrique, pour les rendements en masse de ^{241}Pu(n_{th},f) (en haut) et leurs incertitudes relatives (en bas), comparés à ENDF/B-VII et JEFF-3.3. Le bas du bandeau rouge correspond au minimum de décontamination possible, le haut si aucune contamination n'est considérée. 111
3.43 Matrice de corrélation pour les rendements de ^{241}Pu(n_{th},f). 111
3.44 Rendements en masse de ^{241}Pu(n_{th},f), comparés à GEF et à FIFRELIN. Le bas du bandeau rouge correspond au minimum de décontamination possible, le haut si aucune contamination n'est considérée. 112
3.45 Distribution en charge ionique de la masse 142 du ^{241}Pu à 57 et 71 MeV pour l'expérience de Mai 2013 et à 60 MeV pour Novembre 2015, sans prise en compte des corrélations (E_k, q) (à gauche) et avec leur prise en compte (à droite), comparé à la même observable, obtenue par A. D. Belyaev [126] (à droite). 113
3.46 Rendements obtenus autour de la masse 140 pour le ^{239}Pu (en rouge) et le ^{241}Pu (en bleu). 113

4.1 Présentation de l'agencement des détecteurs germanium : les deux clovers (groupement de 4 cristaux Ge) sont disposés de part et d'autre de la bande sur laquelle sont déposés les produits de fission. La position de chaque détecteur (angle, distance à la bande) peut varier d'une expérience à l'autre. Adapté de [19]. 119
4.2 Quelques niveaux choisis du schéma de niveaux du ^{140}Cs après décroissance du ^{140}Xe par β^- (100%). 119
4.3 Visualisation sur un spectre obtenu pour la masse 140 des raies caractéristiques de la décroissance du ^{140}Xe par β^-. Les couleurs des contours de chaque raie sont en accord avec la figure 4.2. Des raies caractéristiques des autres isotopes (^{140}I, ^{140}Cs) de cette masse sont aussi visibles, ainsi que deux raies de l'^{41}Ar et du ^{40}K qui peuvent être utilisées pour la calibration en énergie. 120
4.4 Schéma de principe de la détection d'une raie γ avec un détecteur à semi-conducteur (à gauche). Un spectre typique obtenu pour une source de ^{60}Co (à droite). 122
4.5 Courbe de l'efficacité photoélectrique absolue des détecteurs germanium en fonction de l'énergie du γ incident. En rouge, la simulation, en bleu, vert, orange et violet, les valeurs expérimentales, normalisées à la simulation. Les incertitudes pour la simulation sont de 2%. 124
4.6 L'effet de somme à travers l'exemple d'un spectre du ^{60}Co obtenu durant l'expérience de 2013 avec une source de Co de haute activité (en rouge) et de basse activité (en bleu). 126
4.7 Facteur correctif de l'effet de somme pour les raies γ utilisées dans l'analyse de la masse 139 pour l'ensemble des deux détecteurs (en rouge), pour les cristaux de faible efficacité (en bleu) et pour les cristaux de forte efficacité (en vert). 128
4.8 Les courbes de BU pour les expériences de 2013 (à gauche) et 2016 (à droite). L'arrêt du réacteur au cours de l'expérience de 2013 explique le saut du BU en temps. 130
4.9 Exemple d'une configuration de schéma de niveaux avec un état métastable. Les raies γ_1 et γ_3 signent la décroissance de $^{Am}_{Z}$X alors que la raie γ_2 signe la décroissance de $^{Am}_{Z}$X ou de son état fondamental, $^{Ags}_{Z}$X. 131
4.10 En haut, un extrait du spectre γ aux alentours du pic du ^{139}Xe à 218,59 keV pour la masse 139 à la charge $q = 15$ et à l'énergie $E_k = 64$ MeV. Au milieu, les zones utilisées pour ajuster le bruit de fond et le bruit de fond obtenu (en vert). En bas, l'ajustement gaussien obtenu pour le pic du ^{139}Xe à 218,59 keV (en violet). 134
4.11 Un exemple de la distribution du nombre de coups mesurés en fonction de q, corrigés de l'intensité de la raie γ, de l'efficacité du détecteur et de l'effet de somme pour les différentes raies du ^{136}Te, deux lots de raies γ sont clairement incompatibles entre-eux. 135
4.12 Un exemple de la distribution du nombre de coups mesurés en fonction de q, corrigés de l'intensité de la raie γ, de l'efficacité du détecteur (à gauche) ainsi que du facteur correctif d'effet de somme (à droite) pour les différentes raies du^{139}Xe. Par soucis de lisibilité, les distributions sont légèrement décalées les unes des autres. 136

4.13 Illustration de l'évolution d'une population isotopique $N(t)$ susceptible d'être mesurée par les détecteurs Ge en fonction du temps (trait pleins). En pointillé, lorsque la bande n'est pas déroulée. 139
4.14 Illustration de l'impact de la correction du bruit de fond du cadre pour le ^{138gs}Cs (à gauche, $T_{1/2} = 32,5$ min) et le ^{139}Ba (à droite, $T_{1/2} = 83,06$ min). 140
4.15 Les distributions en charge ionique du ^{139}Cs et du ^{139}Ba en cumulé, à gauche et en indépendant, à droite. Les valeurs de p obtenues indique que l'hypothèse de compatibilité à 0 est acceptable pour les taux de comptage négatifs. Par soucis de lisibilité, les distributions sont légèrement décalées les unes des autres. 142
4.16 La distribution en charge ionique du taux de comptage indépendant pour l'^{136gs}I selon le jeu de raies choisi pour le ^{136}Te. La solution une est incompatible avec 0 et est donc rejetée. 142
4.17 Distribution en charge ionique à $E_k = 72$ MeV du taux de production par fission de l'état isomérique du ^{132}Sn (à gauche) et de son état fondamental (à droite), avant (en rouge) et après (en bleu) l'étape de correction du temps de vol. 144
4.18 Les distributions en énergie cinétique obtenues avec la chambre d'ionisation pour les charges ioniques 18, 22 et 26 pour la masse 137. Afin de guider l'œil les points ont été reliés pour une des distributions à chaque charge ionique. 146
4.19 L'évolution en fonction de la charge ionique de la moyenne (en rouge) et de l'écart-type (en bleu) des distributions en énergie cinétique obtenues avec la chambre d'ionisation pour l'expérience de 2013 pour la masse 137. En orange la droite $1,1 \cdot q + 38,6$, suivie pour le cas « variable » de la masse 137. 148
4.20 Distributions normalisées de la charge ionique pour la méthode « classique » avant et après correction de la dépendance en énergie cinétique, comparées à la distribution obtenue par la méthode « variable » (à gauche). Les mêmes distributions comparées à celle obtenue auprès de la chambre d'ionisation (à droite). Les valeurs de χ^2 sont un indicateur de la pertinence des comparaisons ($\chi^2_{lim} = 22,3$ pour un CL de 90%). Par soucis de lisibilité, les différentes distributions sont légèrement décalées les unes des autres. 149
4.21 Pour chaque isotope de la masse 137, Te, I et Xe, la distribution en charge ionique de la méthode « classique », avant et après correction de la dépendance en énergie cinétique, comparée à la méthode « variable ». Les valeurs de χ^2 sont un indicateur de la pertinence des comparaisons ($\chi^2_{lim} = 22,3$ pour un CL de 90%). Par soucis de lisibilité, les différentes distributions sont légèrement décalées les unes des autres. 150
4.22 La distribution en charge nucléaire obtenue pour la masse 139, comparée à JEFF-3.3. Pour cette masse, le rendement des isotopes non mesurés est supposé négligeable. 151

4.23 La matrice de corrélation pour la masse 139 aux étapes clés de son évolution. En haut : après la moyenne sur les raies γ (étape 3), à gauche, après la division par I_γ^{norm} (étape 4), au milieu et après le calcul du taux de production indépendant (étape 6), à droite. En bas : après la correction en énergie cinétique, sommé sur les charges ioniques (étape 9), à gauche et après la normalisation absolue (étape 11), à droite. 153
4.24 Le rendement cumulé (normalisé à 1 pour une masse) en fonction de la charge nucléaire (en rouge) pour les masses 132 (à gauche) et 136 (à droite) ajusté par la fonction de répartition d'une gaussienne (en bleu). La contrainte $C(A, Z) = 1$ est attribuée à la charge maximale mesurée +2 (respectivement 54 et 56). 158
4.25 Les distributions en charge nucléaire (incluant le rendement résiduel) de la masse 140 (à gauche), 132 et 136 (à droite) obtenues, ajustées par une distribution gaussienne, ainsi que par la cumulative d'une gaussienne pour les masses 132 et 136. 158
4.26 La charge moyenne mesurée en fonction de la masse post-émission neutron A_{post} comparée à la charge de l'hypothèse UCD (à gauche) et l'écart-type de la distribution (à droite). 160
4.27 La polarisation de charge (axe de gauche) obtenue à partir des équations 4.30 et 4.31 pour nos données expérimentales (en rouge) comparée aux données de Schillebeeckx et al. (en bleu) et à JEFF-3.3 (en vert). La multiplicité moyenne des neutrons prompts en fonction de la masse, prédite par FIFRELIN, est aussi indiquée (en gris, sur l'axe de droite). . . 160
4.28 La polarisation de charge obtenue pour nos données expérimentales (en rouge) comparée aux données de Schillebeeckx et al. extrapolées aux masses lourdes (en bleu) et à JEFF-3.3 (en vert). 162
4.29 La probabilité d'obtenir par la fission l'^{139}I, en haut à gauche, le ^{139}Xe (en haut à droite), le ^{139}Cs (en bas à gauche) et le ^{139}Ba (en bas à droite) en fonction de l'énergie cinétique du produit de fission. En rouge pour l'expérience de Juillet 2016 et en bleu pour Mai-Juin 2013 à 64 MeV, à titre de comparaison. 163
4.30 Résultats de la convolution de la distribution en énergie cinétique de la masse 136 de FIFRELIN à une loi de Landau ajustée pour reproduire les distributions expérimentales, pour la masse 136 à la charge 23 (BU) à deux temps différents. 164
4.31 Résultats de la convolution des distributions de FIFRELIN à une loi de Landau pour les paramètres obtenus pour les mesures à 54 MeV. À gauche, la distribution de la masse 139, qui est aussi comparée à une mesure dans la chambre d'ionisation, à droite, la distribution du ^{139}Cs uniquement. . . 165
4.32 La probabilité d'obtenir par la fission l'^{139}I (en haut à gauche), le ^{139}Xe (en haut à droite), le ^{139}Cs (en bas à gauche) et le ^{139}Ba (en bas à droite) en fonction de l'énergie cinétique du produit de fission. En rouge pour l'expérience de Juillet 2016 et en bleu pour Mai-Juin 2013 à 64 MeV à titre de comparaison. En vert les rendements obtenues avec FIFRELIN. . 167
4.33 L'évolution en fonction de l'énergie cinétique du rendement cumulé, sommé sur les charges ioniques, N_c, pour l'^{139}I (en haut à gauche), le ^{139}Xe (en haut à droite), le ^{139}Cs (en bas à gauche) et le ^{139}Ba (en bas à droite) pour notre expérience (en rouge) et comparé à FIFRELIN (en bleu). . . . 168

4.34 Les ratios I/Xe, I/Cs et I/Ba des rendements cumulés mesurés (en rouge) et comparés à FIFRELIN (en bleu) pour la masse 139. 168
4.35 Les ratios Xe/Cs, Xe/Ba et Cs/Ba des rendements cumulés mesurés (en rouge) et comparés à FIFRELIN (en bleu) pour la masse 139. 169
4.36 L'effet pair-impair des produits de fission pour la masse 139 en fonction de l'énergie cinétique post-neutron sélectionnée par LOHENGRIN, obtenu lors de nos expérience (en violet et en bleu), comparé aux résultats de FIFRELIN convolué à une distribution de Landau (en vert). L'effet pair-impair directement obtenu avec FIFRELIN est aussi tracé (en rouge). . . 170
4.37 L'effet pair-impair de FIFRELIN pour la masse 139 post émission neutrons en fonction de l'énergie d'excitation du fragment lourd. Le nombre ν de neutrons émis par le fragment lourd en fonction de son énergie d'excitation est également tracé. 171
4.38 L'effet pair-impair de FIFRELIN pour la masse 139 post émission neutrons en fonction de l'énergie d'excitation du fragment lourd. Chaque composante pré-émission neutron est présentée indépendamment. 172
4.39 L'effet pair-impair de FIFRELIN pour la masse 139 post émission neutrons en fonction de l'énergie cinétique du fragment lourd. Chaque composante pré-émission neutron est présentée indépendamment. 173
4.40 En haut, les rendements isotopiques obtenus pour les masses 130, comparés à JEFF-3.3 (en bleu). En bas, les rapports isomériques obtenus, comparées à JEFF-3.3/Madland-England (en bleu), aux mesures de Naik et al. (en vert) et à FIFRELIN (en violet). 174
4.41 En haut, les rendements isotopiques obtenus pour les masses 132, comparés à JEFF-3.3 (en bleu). En bas, les rapports isomériques obtenus, comparées à JEFF-3.3/Madland-England (en bleu), aux mesures de Naik et al. (en vert) et à FIFRELIN (en violet). 175
4.42 En haut, les rendements isotopiques obtenus pour les masses 136, comparés à JEFF-3.3 (en bleu). En bas, les rapports isomériques obtenus, comparées à JEFF-3.3/Madland-England (en bleu), aux mesures de Naik et al. (en vert) et à FIFRELIN (en violet). 175
4.43 En haut, les rendements isotopiques obtenus pour les masses 138, comparés à JEFF-3.3 (en bleu). En bas, les rapports isomériques obtenus, comparées à JEFF-3.3/Madland-England (en bleu), aux mesures de Naik et al. (en vert) et à FIFRELIN (en violet). 176
4.44 Rendements isotopiques obtenus pour les masses 137 (à gauche) et 139 (à droite), comparés à JEFF-3.3 (en bleu). 176
4.45 Rendements isotopiques obtenus pour les masses 140 (à gauche) et 141 (à droite), comparés à JEFF-3.3 (en bleu). 177
4.46 La distribution en charge nucléaire de la masse 139 (en rouge) et sa matrice de corrélation comparée à JEFF-3.3 (en bleu) : à gauche lorsque les incertitudes sur I_γ^{norm} sont propagées, à droite lorsqu'elles ne le sont pas. 178
4.47 Exemple de résultats du spectromètre VAMOS. À gauche, l'identification des produits de fission en fonction la masse et de la charge ionique afin d'illustrer la résolution obtenue. À droite, les rendements isotopiques de la fission induite par réaction de transfert du ^{240}Pu, chaque numéro atomique est représenté par une couleur différente. Tiré de [147] et [148]. . 180

4.48 Exemple de résultats de la collaboration SOFIA. À gauche, la distribution isotopique pour des produits de fission du ^{238}U qui illustre la résolution atteinte. À droite, les rendements isotopiques obtenus pour la même réaction, en rouge, comparé à GEF, en noir. Tiré de [150]. 180
4.49 Résultats préliminaires des rapports isomériques pour les isomères nanosecondes, obtenus à partir des distributions en charge ionique et comparés à FIFRELIN. Tiré de [151]. 181

A.1 Les distributions de χ^2 à 2 et 15 degrés de liberté (traits pleins) et la *p-value* pour 15 degrés de liberté (trait pointillé). En hachurée, l'intégrale de la distribution de χ^2 à 15 degrés de liberté correspondant à $p = 0.1$ *i.e.* $1 - p = 90\%$. 189

C.1 Décontamination des distributions en charge ionique pour les masses de la région symétrique. 195
C.2 Décontamination des distributions en charge ionique pour les masses de la région très asymétrique. 196

D.1 Distributions en énergie cinétique pour les masses de la région symétrique, décontaminées des contaminants, ajustées avec deux gaussiennes. 198
D.2 Distributions en énergie cinétique pour les masses de la région très asymétrique, décontaminées des contaminants, ajustées avec deux gaussiennes. 199
D.3 Distributions en énergie cinétique pour les masses de la région symétrique au maximum de décontamination. 200
D.4 Distributions en énergie cinétique pour les masses de la région très asymétrique au maximum de décontamination. 201

F.1 Illustration de l'évolution d'une population isotopique $N(t)$ en fonction du temps. Sont indiqué sur le schéma les différents temps auxquels nous nous référerons. 210

LISTE DES TABLEAUX

3.1 Les densités retenues pour le PuO_2 et le Ni [109] pour les différentes cibles des expériences de rendement en masse ou isotopique. 61
3.2 Pour la cible de Novembre 2015, biais estimé et incertitude associée en fonction de la différence entre la charge ionique à laquelle a été faite la distribution en énergie cinétique, q_i et la charge ionique moyenne, $\overline{q}$. Ces estimations ont été faites sur les $N_{q_i}(A)$ des 32 masses à haut rendement disponibles. 90
3.3 Les différentes étapes d'analyse et les corrélations qu'elles induisent. Pour certaines étapes, entre parenthèses, l'incertitude typique de l'étape est indiquée. 94
3.4 Énergie cinétique moyenne post-émission neutron obtenues pour ce travail, comparé à Thierens et al. [118], JEFF3.1.1, JEFF-3.3 et FIFRELIN. 99
3.5 Énergie cinétique moyenne pré-émission neutron obtenues pour ce travail, comparé à Neiler et al. [120] et FIFRELIN. 100
3.6 Distances des deux fragments à la scission estimé à partir de nos mesures, comparés à des publications antérieures. 108

4.1 Caractéristiques des cibles utilisées pour les campagnes de mesures isotopiques de 2013 et 2016. 129
4.2 Exemple des données extraites avec TV pour la raie à 218,59 keV du ^{139}Xe à quatre charges ioniques différentes, lorsque le faisceau est ouvert. 132
4.3 Les raies γ visibles pour le ^{138}Cs et son état métastable. Les raies communes deux à deux sont marquées de la même couleur. 137
4.4 Les énergies cinétiques auxquelles ont été faîtes les mesures isotopiques de 2013. 146
4.5 Les différentes étapes d'analyse et les corrélations qu'elles induisent. Pour certaines étapes, entre parenthèses, l'incertitude typique de l'étape est indiquée. L'étape 10 n'est pas nécessaire pour l'obtention des rendements. 155
4.6 La somme des rendements isotopique pour chaque masse obtenue (mesures isotopiques de 2013) comparés au rendement en masse (mesures isobariques de 2013 et 2015) et la différence des deux. 156
4.7 Le rendement estimé des isotopes non mesurables obtenu à partir de $Y(A)_{res}$ pour la campagne de 2013 et leurs période radioactive. 157
4.8 Les $\overline{Z}$ et σ_Z obtenus par ajustement du rendement cumulé pour les masses 132 et 136, en fonction de la contrainte sur la charge maximale. 157

4.9 Les $\overline{Z}$ et σ_Z obtenus par ajustement d'une gaussienne aux rendements indépendants et pour les masses 132 et 136 obtenus par ajustement du rendement cumulé pour les masses 132 et 136, avec les masses pré-neutrons estimées et la polarisation de charge calculée 161
4.10 Pertes d'énergie calculées pour la masse 139 en fonction de la charge nucléaire et de l'énergie cinétique initiale. 166
4.11 Paramètres de la distribution de Landau et intervalles d'intégrations de la distribution $P(A, Z, E_k)$ de FIFRELIN pour la comparaison aux données expérimentales. 166

A.1 Valeur de q en fonction du nombre de paramètres N_{par} [152]. 190

BIBLIOGRAPHIE

[1] IEA. CO_2 emissions from fuel combustion - Highlights, 2017. URL https://webstore.iea.org/co2-emissions-from-fuel-combustion.

[2] UN, Accessed : 11/07/2018. URL https://treaties.un.org/Pages/ViewDetails.aspx?src=TREATY&mtdsg_no=XXVII-7-d&chapter=27&lang=_en&clang=_en.

[3] IEA. Key world energy statistics, 2017. URL https://webstore.iea.org/key-world-energy-statistics-2017.

[4] NEA. NEA annual report, 2017. URL http://www.oecd-nea.org/pub/activities/ar2017/ar2017.pdf.

[5] NEA. Nuclear energy data, 2017. URL http://www.oecd-nea.org/ndd/nuclear-energy-data/2017/.

[6] Ifop pour WWF France. Les français et l'action gouvernementale en matière environnementale, 2018. URL https://www.ifop.com/wp-content/uploads/2018/06/115611-Rapport-D%C3%A9finitif.pdf.

[7] NEA. Uranium : resources, production and demand, 2016. URL http://www.oecd-nea.org/ndd/pubs/2017/7388-uranium-2016-es.pdf.

[8] J. Kim et al. Recovery of uranium from seawater : a review of current status and future research needs. *Sep. Sci. Technol.*, 48 :367–387, 2013.

[9] D. De Bruyn et al. The MYRRHA ADS project in Belgium enters the front end engineering phase. *Physics Proc.*, 66 :75–84, 2015.

[10] A. Sinha et al. BRAHMMA : A compact experimental accelerator driven subcritical facility using D-T/D-D neutron source. *Ann. Nucl. Energy*, 75 :590–594, 2015.

[11] J. Katakura. Uncertainty analyses of decay heat summation calculations using JENDL, JEFF, and ENDF files. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 50 :799–807, 2013.

[12] L. Fiorito et al. Fission yield covariance generation and uncertainty propagation through fission pulse decay heat calculation. *Ann. Nucl. Energy*, 69 :331–343, 2014.

[13] A. A. Sonzogni. Effects of fission yield data in the calculation of antineutrino spectra for ^{235}U(n ;fission) at thermal and fast neutron energies. *Phys. Rev. Lett.*, 116 :132502, 2016.

[14] M. B. Chadwick and al. ENDF/B-VII.1 nuclear data for science and technology : Cross sections, covariances, fission product yields and decay data. *Nucl. Data Sheets*, 2011.

[15] M. A. Kellett, O. Bersillon, and R.W. Mills. The JEFF-3.1/-3.1.1 radioactive decay data and fission yields sub-libraries. *Rapport NEA - JEFF Report 20*, 2009.

[16] A. Plompen et al. To be submitted. *Eur. Phys. J. A.*

[17] F. Nordmann et G. Baillard. *Instrumentation de surveillance chimique et radiochimique dans les centrales nucléaires.* Ed. Techniques Ingénieur, Saint-Denis Cedex, 2009.

[18] A. Bail. Mesures de rendements isobariques et isotopiques des produits de fission lourds sur le spectromètre de masse LOHENGRIN. *Thèse de Doctorat de l'Université de Bordeaux I*, 2009.

[19] F. Martin. Étude des distributions en masse, charge nucléaire et énergie cinétique des produits de fission de l'^{233}U(n$_{th}$,f) et du ^{241}Pu(n$_{th}$,f) mesurées auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN (ILL). *Thèse de Doctorat de l'Université de Grenoble*, 2013.

[20] C. Amouroux. Mesure des rendements de fission de l'Am-242 auprès du spectromètre Lohengrin (réacteur ILL) & Amélioration et validation du code semi empirique GEF. *Thèse de Doctorat de l'Université Paris-Sud*, 2014.

[21] A. Chebboubi. Contribution à l'étude de la fission nucléaire : de LOHENGRIN à FIPPS. *Thèse de Doctorat de l'Université de Grenoble*, 2015.

[22] N. Terranova. Covariance evaluation for nuclear data of interest to the reactivity loss estimation of the Jules Horowitz material testing reactor. *PhD Thesis of the Università di Bologna*, 2016.

[23] D. Rochman et al. A Bayesian Monte Carlo method for fission yield covariance information. *Ann. Nucl. En.*, 95 :125–134, 2016.

[24] O. Hahn and F. Strassmann. Über die Entstehung von Radiumisotopen aus Uran durch Bestrahlen mit schnellen und verlangsamten Neutronen. *Naturwiss.*, 26 : 755–756, 1938.

[25] O. Hahn and F. Strassmann. Über die Bruchstücke beim Zerplatzen des Urans. *Naturwiss.*, 27 :163–164, 1939.

[26] O. Hahn and F. Strassmann. Zur Frage nach der Existenz der "Trans-Urane" - I. Endgültige Streichung von Eka-Platin und Eka-Iridium. *Naturwiss.*, 27 :451–453, 1939.

[27] L. Meitner and O. R. Frisch. Disintegration of uranium by neutrons : a new type of nuclear reaction. *Nature*, 143 :239–240, 1939.

[28] I. Noddack. Über das Element 93. *Angew. Chem.*, 47 :653–655, 1934.

[29] D. N. Poenaru and R. A. Gherghescu. Fission approach to cluster radioactivity. *PRAMANA-J. Phys.*, 85 :415–421, 2015.

[30] H. Diegl and W. Greiner. Theory of ternary fission in the Liquid Drop Model. *Nucl. Phys. A*, 229 :29–46, 1974.

[31] C. Wagemans. *The nuclear fission process.* Chap. 12. CRC Press, Boca Raton, 1991.

[32] U. Köster et al. Ternary fission yields of ^{241}Pu(n$_{th}$,f). *Nucl. Phys. A*, 1999.

[33] C. F. von Weizsäcker. *Die Atomkerne : Grundlagen und Anwendungen ihrer Theorie.* JW Edwards, 1937.

[34] G. Gamow. Mass defect curve and nuclear constitution. *P. R. Soc. Lond. Ser.-A*, 126 :632–644, 1930.

[35] N. Bohr and J. A. Wheeler. The mechanism of nuclear fission. *Phys. Rev.*, 56 : 426–450, 1939.

[36] A. V. Karpov, A. Kelić, and K.-H. Schmidt. On the topographical properties of fission barriers. *J. Phys. G : Nucl. Part. Phys.*, 35, 2008.

[37] A. N. Andreyev, K. Nishio, and K.-H. Schmidt. Nuclear fission : a review of experimental advances and phenomenology. *Rep. Prog. Phys.*, 81 :016301, 2018.

[38] T. Ericson. *The statistical model and nuclear level densities.* Department of Physics and Laboratory of Nuclear Science, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, 1960.

[39] H. Marten and D. Seeliger. Neutron evaporation during fission fragment acceleration. *J. Phys. G : Nucl. Phys.*, 14 :211–218, 1988.

[40] R. W. Fuller. Dependence of neutron production in fission on rate of change of nuclear potential. *Phys. Rev.*, 126 :684–693, 1962.

[41] V. M. Strutinsky. Shell effects in nuclear masses and deformation energies. *Nucl. Phys. A*, 95 :420–442, 1967.

[42] V. M. Strutinsky. "shells" in deformed nuclei. *Nucl. Phys. A*, 122 :1–33, 1968.

[43] A. Michaudon. *Advances in nuclear physics*, volume 6, Chap. 1. Plenum Press, New York, 1973.

[44] J. R. Nix. Further studies in the liquid-drop theory of nuclear fission. *Nucl. Phys. A*, 130 :241–292, 1969.

[45] V. V. Pashkevich. On the asymmetric deformation of fissioning nuclei. *Nucl. Phys. A*, 169 :275–293, 1971.

[46] U. Brosa et al. Nuclear scission. *Nucl. Pys. A*, 502 :423c–442c, 1989.

[47] P. Möller et al. Heavy-element fission barriers. *Phys. Rev. C*, 79 :064304, 2009.

[48] K.-H. Schmidt et al. Relativistic radioactive beams : a new access to nuclear-fission studies. *Nucl. Phys. A*, 665 :221–267, 2000.

[49] J. Randrup and P. Möller. Energy dependence of fission-fragment mass distributions from strongly damped shape evolution. *Phys. Rev. C*, 88 :064606, 2013.

[50] P. Fong. Statistical theory of nuclear fission : asymmetric fission. *Phys. Rev.*, 102 : 434–448, 1956.

[51] B. D. Wilkins, E. P. Steinberg, and R. R. Chasman. Scission-point model of nuclear fission based on deformed-shell effects. *Phys. Rev. C*, 14 :1832–1863, 1976.

[52] J.-F. Lemaître. Étude des fragments de fission au point de scission avec le modèle SPY. *Thèse de Doctorat de l'Université de Paris-Sud*, 2015.

[53] K. A. Brueckner and C. A. Levinson. Approximate reduction of the many-body problem for strongly interacting particles to a problem of self-consistent fields. *Phys. Rev.*, 97 :1344–1352, 1955.

[54] K. A. Brueckner and C. A. Levinson. Many-body problem for strongly interacting particles. ii. linked cluster expansion. *Phys. Rev.*, 100 :36–45, 1955.

[55] T. H. R. Skyrme. The effective nuclear potential. *Nucl. Phys.*, 9 :615–634, 1959.

[56] D. Gogny. Simple separable expansions for calculating matrix elements of two-body local interactions with harmonic oscillator functions. *Nucl. Phys. A*, 237 : 399–418, 1975.

[57] P. Goddard, P. Stevenson, and A. Rios. Fission dynamics within time-dependent Hartree-Fock : deformation-induced fission. *Phys. Rev. C*, 92 :054610, 2015.

[58] D. Regnier et al. Fission fragment charge and mass distributions in ^{239}Pu(n,f) in the adiabatic nuclear energy density functional theory. *Phys. Rev. C*, 93 :054611, 2016.

[59] P. Schillebeeckx et al. Comparative study of the fragments' mass en energy characteristics in the spontaneous fission of ^{238}Pu, ^{240}Pu and ^{242}Pu and in the thermal-induced fission of ^{239}Pu. *Nucl. Phys. A*, 545 :623–645, 1992.

[60] K. Nishio et al. Measurement of fragment mass dependent kinetic energy and neutron multiplicity for thermal neutron induced fission of plutonium-239. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 32 :404–414, 1995.

[61] A. C. Wahl. Systematics of nuclear charge distribution in fission : the Z_p model. *J. Radioanal. Chem.*, 55 :111–123, 1980.

[62] A. C. Wahl. Nuclear-charge distribution and delayed-neutron yields for thermal-neutron-induced fission of ^{235}U, ^{233}U, and ^{239}Pu and for spontaneous fission of ^{252}Cf. *Atom. Data Nucl. Data*, 39 :1–156, 1988.

[63] A. C. Wahl et al. Nuclear-charge distribution in low-energy fission. *Phys. Rev.*, 126 :1112–1127, 1962.

[64] D. G. Madland and T. R. England. The influence of isomeric states on independent fission product yields. *Nucl. Sci. Eng.*, 64 :859–865, 1977.

[65] H. A. Bethe. Nuclear physics : nuclear dynamics, theoretical. *Rev. Modern Phys.*, 9 :69–244, 1937.

[66] C. Bloch. Theory of nuclear level density. *Phys. Rev.*, 93 :1094–, 1954.

[67] K.-H. Schmidt et al. General description of fission observables : GEF model code. *Nucl. Data Sheets*, 131 :107–221, 2016.

[68] C. Schmitt, K.-H. Schmidt, and B. Jurado. The GEF model : Assessment of fission-fragment properties over an extended region. *EPJ Web of Conf.*, 169 : 00022, 2018.

[69] D. Ramos. (unpublished). *PhD Thesis of the University of Santiago de Compostela*, 2016.

[70] E. Pellereau. Accurate isotopic fission yields of electromagnetically induced fission of ^{238}U measured in inverse kinematics at relativistic energies. *Phys. Rev. C*, 95 : 054603, 2017.

[71] C. Donzaud et al. Low-energy fission investigated in reactions of 750 AMeV ^{238}U-ions on ^{208}Pb. II : isotopic distributions. *Eur. Phys. J. A*, 1 :407–426, 1998.

[72] U. Brosa, S. Grossmann, and A. Müller. Four channels in the fission of ^{252}Cf. *Z. Naturforsch.*, 41a :1341–1346, 1986.

[73] U. Brosa, S. Grossmann, and A. Müller. Nuclear scission. *Phys. Rep.*, 197 :167–262, 1990.

[74] P. Siegler et al. Fission modes in the compound nucleus ^{238}Np. *Nucl. Phy. A*, 594 :45–56, 1995.

[75] O. Litaize and O. Serot. Investigation of phenomenological models for the Monte Carlo simulation of the prompt fission neutron and γ emission. *Phys. Rev. C*, 82 : 11, 2010.

[76] O. Litaize, O. Serot, and L. Berge. Fission modelling with FIFRELIN. *Eur. Phys. A*, 15 :177, 2015.

[77] J. R. Nix and W. J. Swiatecki. Studies in the liquid-drop theory of nuclear fission. *Nucl. Phys.*, 71, 1965.

[78] A. Ignatyuk, G. Smirenkin, and A. Tishin. Phenomenological description of energy denpendence of the level density prameter (translated from russian). *Yadernaya Fizika*, 21(3) :485–490, 1975.

[79] A. Ignatyuk, K. Istekov, and G. Smirenkin. Role of collective effects in systematics of level density of nuclei. *Technical Report KfK-tr-632*, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1979.

[80] T. Ohsawa. Representation of fission neutron spectrum by non-equitemperature Madland-Nix model. *IAEA Report*, 251(INDC(NDS)) :71–80, 1991.

[81] H. O. Denschlag et al. *Seminar on Fission.* World Scientific, Singapore, 2000.

[82] L. Thullier. Caractérisation des fragments de fission et développement du dispositif expérimental FALSTAFF. *Thèse de Doctorat de l'Université Paris-Saclay*, 2017.

[83] R. Capote et al. RIPL - Reference Input Parameter Library for calculation of nuclear reactions and nuclear data evaluations. *Nucl. Data Sheets*, 110 :3107–3214, 2009.

[84] A. Gilbert and A. G. W. Cameron. A composite nuclear-level density formula with shell corrections. *Can. J. Phys.*, 43 :1446–1496, 1965.

[85] D. Regnier, O. Litaize, and O. Serot. An improved numerical method to compute neutron/gamma deexcitation cascades starting from a high spin state. *Comp. Phys. Comm.*, 201 :19–28, 2016.

[86] J. Raynal. Notes on ECIS94. *Technical report - CEA Saclay*, 1994.

[87] A. Koning and J. Delaroche. Local and global nucleon optical models from 1 keV to 200 MeV. *Nucl. Phys. A*, 713 :231–310, 2003.

[88] B. Morillon and P. Romain. Bound single-particle states for neutrons from a global spherical optical model. *Phys. Rev. C*, 74 :014601, 2006.

[89] J. Kopecky and M. Uhl. Test of gamma-ray strength functions in nuclear reaction model calculations. *Phys. Rev. C*, 41 :1941–1955, 1990.

[90] J. Kopecky, M. Uhl, and R. E. Chrien. Radiative strength in the compound nucleus ^{157}Gd. *Phys. Rev. C*, 47 :312–322, 1993.

[91] C. E. Porter and R. G. Thomas. Fluctuations of nuclear reaction widths. *Phys. Rev*, 104 :483–491, 1956.

[92] T. Kibédi et al. Evaluation of theoretical conversion coefficients using BrIcc. *Nucl. .Instr. and Meth. A*, 589 :202–229, 2008.

[93] Cours donné par F. Gönnenwein. FIESTA, Santa Fe, U.S.A., 2014.

[94] A. A. Naqvi et al. Fission fragment properties in fast-neutron-induced fission of ^{237}Np. *Phys. Rev. C*, 34 :218–225, 1986.

[95] K.-H. Schmidt and B. Jurado. Entropy driven excitation energy sorting in superfluid fission dynamics. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :212501, 2010.

[96] E. Rutherford. Nuclear constitution of atoms. *Proc. Roy. Soc. A*, 97 :374–400, 1920.

[97] J. Chadwick. Possible existence of a neutron. *Nature*, 129 :312, 1932.

[98] J. Chadwick. The existence of a neutron. *Proc. Roy. Soc. A*, 136 :692–708, 1932.

[99] ILL, 2018. URL https://www.ill.eu.

[100] H. G. Börner and F. Gönnenwein. *The neutron.* B & Jo Enterprise Pte Ltd, Singapore, 2012.

[101] G. Fioni et al. Reduction of energy dispersion on a parabola mass spectrometer. *Nucl. Instrum. Methods A*, 332 :175–180, 1993.

[102] H. R. Faust et al. Calibration and adjustment procedures for LOHENGRIN. *Rapport scientifique interne*, 81FA45S, 1981.

[103] E. Moll et al. Analysis of ^{236}U-fission products by the recoil separator "LOHENGRIN". *Nucl. Instr. Methods*, 123 :615–617, 1975.

[104] U. Köster et al. Experience with in-pile fission targets at LOHENGRIN. *Nucl. Instrum. Methods A*, 613 :363–370, 2010.

[105] H. Mehrer. *Diffusion in solid metals and alloys.* Landolt-Börnstein, Springer, Berlin, 1990.

[106] ILL. Reactor power, 2018. URL https://data.ill.eu/reactor.

[107] T. D. Chikalla, C. E. McNeilly, and R. E. Skavdahl. The plutonium-oxygen system. *J. Nucl. Mater.*, 1964.

[108] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack. SRIM - the Stopping and Range of Ions in Matter. *Nucl. Instrum. Meth. B*, 268 :1818–1823, 2010.

[109] J. E. Jensen et al. Selected cryogenic data notebook. *Brookhaven National Laboratoy*, 1980.

[110] G. F. Knoll. *Radiation detection and measurement.* 3rd ed. John Wiley & Sons, Inc.1, New York, 2000.

[111] W. R. Leo. *Techniques for nuclear and particle physics experiments.* Springer-Verlag, 1987.

[112] D. Rochman. Mesure et analyse de la distribution en masse et charge des produits de fission de ^{245}Cm(n$_{th}$,f) grâce au spectromètre de masse Lohengrin (ILL-Grenoble). *Thèse de Doctorat de l'Université de Strasbourg*, 2001.

[113] H.-D. Betz. Charge states and charge-changing cross sections of fast heavy ions penetrating through gaseous and solid media. *Rev. Mod. Phys.*, 44 :465–539, 1972.

[114] M. Schmelling. Averaging correlated data. *Phys. Scripta*, 51 :676–679, 1995.

[115] A. C. Aitken. On least squares and linear combination of observations. *P. Roy. Soc. Edin. A*, 55 :42–48, 1935.

[116] B. Voirin et al. From fission yield measurements to evaluation : status on statistical methodology for the covariance question. *Eur. Phys. J. N*, 4, 2018.

[117] G. Knyazheva et al. Energy losses of ^{252}Cf fission fragments in thin foils. *Nucl. Instrum. Meth. B*, 248 :7–15, 2006.

[118] H. Thierens et al. Fragment mass and kinetic energy distributions for ^{242}Pu(sf), ^{241}Pu(n_{th},f), and ^{242}Pu(γ,f). *Phys. Rev. C*, 29 :498–507, 1984.

[119] F. Gönnenwein. *The nuclear fission process.* Chap. 8. CRC Press, Boca Raton, 1991.

[120] J. N. Neiler, F. J. Walker, and H. W. Schmitt. Fission-fragment energy-correlation measurements for the thermal-neutron fission of ^{239}Pu and ^{241}Pu. *Phys. Rev.*, 149 : 894–905, 1966.

[121] S. Julien-Laferrière et al. A study of the construction of the correlation matrix of ^{241}P(n$_{th}$,f) isobaric fission yields. *Eur. Phys. J. N*, 4, 2018.

[122] R. Brun and F. Rademakers. ROOT - an object oriented data analysis framework. *Nucl. Instrum. Methods A*, 389 :81–86, 1997.

[123] NRV. Q value calculator, 2018. URL http://nrv.jinr.ru/nrv/webnrv/qcalc/.

[124] H.-H. Knitter F.-J. Hambsch and C. Budtz-Jørgensen. Fission mode fluctutions in the resonances of ^{235}U(n,f). *Nucl. Phys. A*, 491, 1989.

[125] Gupta et al. Fission fragment yield distribution in the heavy mass region from ^{239}Pu(n$_{th}$, f) reaction. *Phys. Rev. C*, 2017.

[126] A. D. Belyaev et al. Some peculiarities in ionic charge distribution of ^{241}Pu(n$_{th}$,f)-fission products. *Nucl. Instrum. Meth. B*, 43 :5–8, 1989.

[127] U. Quade et al. Nuclear yields of light fission products from thermal neutron induced fission of ^{233}U at different kinetic energies. *Nucl. Phys. A*, 487 :1–36, 1988.

[128] C. Schmitt et al. Fission yields at different fission-product kinetic energies for thermal neutron induced fission of ^{239}Pu. *Nucl. Phys. A*, 430 :21–60, 1984.

[129] N. Nica. Nuclear Data Sheets for A = 140. *Nucl. Data Sheets*, 108 :1287–1470, 2007.

[130] B. G. Streetman and S. Banerjee. *Solid state electronic devices.* Prentice Hall, New Jersey, 2000.

[131] Y.-R. Luo and P. D. Pacey. Effects of alkyl substitution on ionization energies of alkanes and haloalkanes and on heats of formation of their molecular cations. *Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes*, 112 :63, 1992.

[132] X-5 Monte Carlo Team. MCNP - A general Monte Carlo N-Particule transport code, version 5. *Los Alamos National Laboratory*, 2003.

[133] I. J. Kim, C. S. Park, and H. D. Choi. Absolute calibration of ^{60}Co by using sum-peak method and an HPGe detector. *Appl. Radiat. Isotopes*, 58 :227–233, 2003.

[134] Sándor Sudár. TrueCoinc a program for calculation of true coincidence correction for gamma rays. *Institute of Experimental Physics*, 2009.

[135] M. R. Bhat. *Nuclear data for science and technology.* Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1992.

[136] J. Theuerkauf et al. *Program Tv.* Institute for Nuclear Physics, Cologne University, 1993.

[137] E. Rutherford. Radioactivity. *University press*, 1905.

[138] H. Bateman. The solution of differential equations occuring in the theory of radioactive transformations. *Proc. Cambridge Philos. Soc.*, 15 :423–427, 1910.

[139] H. Wohlfarth et al. The ionic charge distribution of fission products and the influence of internal conversion on highly preionized heavy ions. *Z. Phys. A*, 287 : 153–163, 1978.

[140] T. Materna et al. Indirect identification of nanosecond isomers using the fission fragment separator Lohengrin. *AIP Conf. Proc.*, 1175 :367–370, 2009.

[141] J. Chen. Nuclear Data Sheets for A = 138. *Nucl. Data Sheets*, 146 :1–386, 2017.

[142] P. Schillebeeckx et al. Investigation of mass, charge and energy of ^{241}Pu(n_{th},f) fragments with the Cosi-Fan-Tutte spectrometer. *Nucl. Phys. A*, 580 :15–32, 1994.

[143] L. Landau. On the energy loss of fast particles by ionization. *J. Phys. USSR*, 8 : 201–205, 1944.

[144] F. Gönnenwein. On the notion of odd-even effects in the yields of fission fragments. *Nucl. Instrum. Methods A*, 316 :405–415, 1992.

[145] H. Naik et al. Systematics of fragment angular momentum in low-energy fission of actinides. *Nucl. Phys. A*, 587 :273–290, 1995.

[146] R. W. Mills. Fission product yield evaluation. *PhD thesis of the University of Birmingham*, 1995.

[147] M. Camaaño et al. Isotopic yield distributions of transfer- and fusion-induced fission from ^{238}U + ^{12}C reactions in inverse kinematics. *Phys. Rev. C*, 88 :024605, 2013.

[148] F. Farget et al. Transfer-induced fission in inverse kinematics : Impact on experimental and evaluated nuclear data bases. *Eur. Phy. J. A*, 51 : :175, 2015.

[149] G. Boutoux et al. The SOFIA experiment. *Physics Proc.*, 47 :166–171, 2013.

[150] E. Pellereau. Accurate isotopic fission yields of electromagnetically induced fission of ^{238}U measured in inverse kinematics at relativistic energies. *Phys. Rev. C*, 95 : 054603, 2017.

[151] L. Thombansen. Étude des rendements des isomères nanosecondes produits par la réaction de fission ^{241}Pu(n$_{th}$,f). *Mémoire de stage de M1 (LPSC, Grenoble)*, 2018.

[152] Y. Avni. Energy spectra of X-ray clusters of galaxies. *Astrophys. J.*, 210 :642–646, 1976.

[153] A. Kessy, A. Lewin, and K. Strimmer. Optimal whitening and decorrelation. *Am. Stat.*, DOI : 10.1080/00031305.2016.1277159, 2018.

[154] B. Singh. Nuclear Data Sheets for A = 130. *Nucl. Data Sheets*, 93 :33–242, 2001.

[155] Y. Khazov et al. Nuclear Data Sheets for A = 132. *Nucl. Data Sheets*, 104 : 497–790, 2005.

[156] A. A. Sonzogni. Nuclear Data Sheets for A = 136. *Nucl. Data Sheets*, 95 :837–994, 2002.

[157] E. Browne and J. K. Tuli. Nuclear Data Sheets for A = 137. *Nucl. Data Sheets*, 108 :2173–2318, 2007.

[158] P. K. Joshi. Nuclear Data Sheets for A = 139. *Nucl. Data Sheets*, 138 :1–292, 2016.

[159] N. Nica. Nuclear Data Sheets for A = 141. *Nucl. Data Sheets*, 122 :1–204, 2014.

Résumé

Approche expérimentale et phénoménologique des rendements de la fission induite par neutron thermique du ^{239}Pu et du ^{241}Pu

La fission nucléaire, bien que connue depuis 80 ans, reste un défi théorique. La complexité et la multiplicité des interactions au sein d'un noyau fissionnant rendent la modélisation du phénomène de fission délicate. Les modèles de fission nucléaire peinent à reproduire les observables. Parmi ces observables, les rendements de fission sont pourtant des ingrédients clés pour la physique des réacteurs. S'ils ne peuvent être prédits efficacement, il est nécessaire de les mesurer.

Les bibliothèques de données nucléaires évaluées, qui condensent la connaissance actuelle de ces rendements de fission, présentent pourtant des incertitudes importantes, ainsi que des divergences. Depuis quelques années, une collaboration entre le CEA, le CNRS et l'Institut Laue Langevin (ILL) vise à mesurer avec précision les rendements de la fission induite par neutron thermique pour des actinides d'importance pour les cycles Uranium-Plutonium et Thorium-Uranium, afin de compléter les connaissances actuelles et également fournir des données de référence pour le test de modèles. En particulier, au cours de cette thèse, des données expérimentales acquises sur le spectromètre de masse LOHENGRIN à l'ILL, ont été analysées pour le ^{239}Pu(n$_{th}$,f) et le ^{241}Pu(n$_{th}$,f). Plusieurs types de rendements ont été déterminés : des rendements en masse, à l'aide d'une chambre d'ionisation, et des rendements isotopiques et isomériques, par spectrométrie γ avec des détecteurs Ge.

Grâce à un protocole expérimental rigoureux testant la reproductibilité des observables et une méthode d'analyse innovante, adaptée en particulier à l'estimation des covariances et à leurs propagations, les rendements en masse obtenus présentent des incertitudes réduites et une matrice de covariance expérimentale complète. Celle-ci est essentielle pour la compréhension et l'utilisation des données mesurées.

Les rendements obtenus par spectrométrie γ sont fortement dépendants des données de structure nucléaire, et présentent de facto des incertitudes importantes. L'amélioration future des données de structure permettra, grâce aux outils d'analyse développés, de réduire l'incertitude des rendements isotopiques mesurés.

D'autres observables d'intérêts ont pu être extraites des mesures, en particulier la distribution de l'énergie cinétique moyenne des produits de fission en fonction de leur masse, ainsi que la polarisation de charge pour une partie du pic lourd et certains rapports isomériques. Ces données sont complémentaires des rendements et présentent un intérêt pour les modèles et les futures évaluations.

Mot Clés : rendements de fission isotopique, rendements de fission isobariques, ^{239}Pu, ^{241}Pu, spectromètre de masse LOHENGRIN

Abstract

Experimental and phenomenological approach of the neutron induced fission yields for ^{239}Pu and ^{241}Pu

Nuclear fission, although known for 80 years, remains a theoretical challenge. The complexity and multiplicity of interactions within a splitting nucleus make the modelling of the fission phenomenon delicate. Nuclear fission models struggle to replicate observables. Among these observables, however, fission yields are key ingredients for reactor physics. If they cannot be predicted effectively, it is necessary to measure them.

The evaluated nuclear data libraries, which condense the current knowledge of these fission yields, nevertheless present significant uncertainties, as well as discrepancies.

For several years, a collaboration between the CEA, the CNRS and the Institut Laue Langevin (ILL) has aimed at accurately measuring the yields of thermal neutron induced fission for actinides of importance for the Uranium-Plutonium and Thorium-Uranium cycles, in order to complete current knowledge and also provide reference data for model testing.

In particular, during this thesis, experimental data acquired on the LOHENGRIN mass spectrometer at the ILL in Grenoble (France) were analysed for ^{239}Pu(n$_{th}$,f) and ^{241}Pu(n$_{th}$,f). Two types of yields were determined : mass yields, using an ionization chamber, and isotopic yields, by spectrometry γ with Ge.

Thanks to a rigorous experimental protocol testing the reproducibility of the observables and an innovative analytical method, adapted in particular to the estimation of covariances and their propagation, the mass yields obtained present reduced uncertainties and a complete experimental covariance matrix. This is essential for understanding and using the measured data.

The isotopic yields obtained are highly dependent on the nuclear structure data, and de facto present significant uncertainties. The future improvement of the nuclear structure data will allow, thanks to the analysis tools developed, to reduce the uncertainty of the isotopic yields measured.

Other observables of interest have been extracted from the measurements, in particular the average kinetic energy distribution of the fission products as a function of their mass, as well as the charge polarization for part of the heavy peak. These data are complementary to fission yields and are of interest for models and future evaluations.

Keywords : isotopic fission yields, isobaric fission yields, ^{239}Pu, ^{241}Pu, LOHENGRIN mass spectrometer