

Section efficace de fission du 242Pu: progrès théoriques et expérimentaux

Carole Chatel

► To cite this version:

Carole Chatel. Section efficace de fission du 242Pu : progrès théoriques et expérimentaux. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Aix-Marseille Université (AMU), 2021. Français. NNT : . tel-03746124

HAL Id: tel-03746124 https://theses.hal.science/tel-03746124

Submitted on 4 Aug 2022

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.





THÈSE DE DOCTORAT

Soutenue à Aix-Marseille Université en cotutelle avec CEA/DES/IRESNE/CAD/DER/SPRC/Laboratoire d'Etudes de Physique le 04 novembre 2021 par

Carole Chatel

Section efficace de fission du ²⁴²Pu : Progrès théoriques et expérimentaux

Discipline Physique et sciences de la matière	Composition du jury Vincent MEOT CEA/DAM	Rapporteur
Spécialité Energie, Rayonnement et	Frank GUNSING CEA/IRFU	Rapporteur
Plasma	Philippe DESSAGNE CNRS/IPHC	Examinateur
École doctorale Physique et sciences de la	Muriel FALLOT SUBATECH	Examinatrice
Laboratoire/Partenaires de	José BUSTO AMU/CPPM	Président du jury
recherche CEA Cadarache Centre d'Etude Nucléaire de Bordeaux-Gradignan	Olivier BOULAND thèse CEA/IRESNE	Directeur de



Affidavit

Je soussigné, Carole CHATEL, déclare par la présente que le travail présenté dans ce manuscrit est mon propre travail, réalisé sous la direction scientifique de Olivier BOULAND, dans le respect des principes d'honnêteté, d'intégrité et de responsabilité inhérents à la mission de recherche. Les travaux de recherche et la rédaction de ce manuscrit ont été réalisés dans le respect à la fois de la charte nationale de déontologie des métiers de la recherche et de la charte d'Aix-Marseille Université relative à la lutte contre le plagiat.

Ce travail n'a pas été précédemment soumis en France ou à l'étranger dans une version identique ou similaire à un organisme examinateur.

Fait à Cadarache, le 04 novembre 2021

Liste de publications et participation aux conférences

- 1) Liste des publications réalisées dans le cadre du projet de thèse :
 - 1. Towards the experimental validation of a small Time-Projection-Chamber for the quasi-absolute measurement of the fission cross section, Carole Chatel, Ludovic Mathieu, Mourad Aïche, Maria Diakaki, Gilles Noguere and Olivier Bouland, Web of conferences, 2021
 - 2. Article théorique en cours d'écriture, Carole Chatel, Ludovic Mathieu, Mourad Aïche, Maria Diakaki, Gilles Noguere, Pierre Tamagno, Peter Möller and Olivier Bouland, Physical Review C
- 2) Participation aux conférences et écoles d'été au cours de la période de thèse :
 - 1. Ecole Joliot Curie 2019
 - 2. Mécanique des détecteurs et systèmes similaires 2019
 - 3. ANIMMA Conference 2021
 - 4. R-Matrix workshop 2021

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Olivier Bouland, directeur de cette thèse. Merci d'avoir cru en moi dès le début, de m'avoir tant appris et soutenue. Merci également pour nos conversations, pour tes blagues et ta bonne humeur qui ont rendu cette thèse bien plus attrayante. Je remercie également Ludovic Mathieu, encadrant principal au CENBG. Merci pour ton savoir, pour nos longues et nombreuses conversations enrichissantes mais également pour le fromage à raclette sur les crêpes que je subirai toute ma vie. Merci à tous mes autres encadrants : Gilles Noguère, Maria Diakaki et Mourad Aïche, merci pour votre temps et vos bons conseils.

Je remercie également Jean Christophe Bosq pour m'avoir accueillie au sein du SPRC, Cyrille de Saint Jean puis Véronique Bellanger, chefs du LEPh et également Fabrice Piquemal pour m'avoir acceptée au CENBG.

Merci aux membres du jury, particulièrement aux rapporteurs Frank Gunsing et Vincent Méot pour l'intérêt que vous avez portez à ce travail de thèse.

Je remercie également toute l'équipe de ACEN pour avoir accueillie « l'intrus », « l'espionne du CEA » pendant 1 an et demi. Merci pour votre accueil et vos conversations.

De même, merci à toute l'équipe LEPh que je n'ai malheureusement que peu eu l'occasion de côtoyer. J'espère pouvoir retravailler avec vous et rattraper le temps que les confinements et le télétravail prolongé nous ont fait perdre.

Comme promis, merci à mon sauveur, Patrick mais aussi à Abdel et à Thierry. Sans vous, le développement du DPR n'aurait pas pu autant avancer. Merci également à l'équipe AIFIRA, particulièrement à Stéphanie et Philippe pour votre aide lors des manips.

Merci tout particulièrement à Ana sans qui le temps passé à Bordeaux n'aurait pas été aussi agréable. Merci pour nos conversations, nos soirées, le sport entre midi et 2 mais aussi pour ton aide à chaque fois que tu l'as pu. Merci de même aux thésards du LEPh, particulièrement à David sans qui les soirées au Hameau auraient été beaucoup plus longues.

Merci à Axel et Julien pour toutes ces conversations et cette bonne humeur.

Je tiens enfin à remercie mon conjoint Fabien qui m'a soutenue au cours de ces 3 ans et qui connait par cœur chaque présentation que j'ai dû réaliser.

Résumé

L'énergie nucléaire est la technologie principale en France pour produire de l'électricité avec une part de plus de 70%. Dans un réacteur nucléaire, le combustible présent est composé d'uranium 235 et 238. Par captures successives de neutrons, ces noyaux vont créer des actinides supérieurs. Parmi eux, le ²⁴²Pu fait l'objet de notre étude.

Pour piloter un réacteur nucléaire avec sûreté, les codes de calculs de neutronique sont utilisés pour connaître et comprendre au mieux l'évolution du cœur du réacteur en fonction des conditions présentes à l'intérieur du cœur. Les codes de calculs requièrent entre autre comme paramètres de base des sections efficaces neutroniques fiables et dont l'intervalle de confiance a été bien cerné. De nos jours, les ordinateurs sont devenus tellement puissants que les techniques Monte-Carlo seront bientôt accessibles de façon routinière et que les méthodes déterministes ne contiennent presque plus d'approximations. La conséquence directe est que la précision des résultats dépend essentiellement de la précision des sections efficaces fournies en entrée. En outre, le développement des réacteurs nucléaires de quatrième génération impose une amélioration de la connaissance des sections efficaces de fission des noyaux fertiles, jusqu'à présent négligées.

Pour toutes ces raisons, en plus de l'utilisation du plutonium 242 (²⁴²Pu) en tant que dépôt pour la chambre à fission du dispositif Occitane du réacteur RJH, l'amélioration de la connaissance des sections efficaces neutroniques du ²⁴²Pu cible, et plus particulièrement de sa section efficace de fission, est devenue incontournable. Pour étudier ce noyau, deux volets sont complémentaires : l'expérimentation et le calcul théorique. La théorie a besoin de mesures expérimentales servant de référence (ou d'étalon). Inversement, la transformation des comptages d'évènements observés en « observables » nécessite souvent une part de calculs théoriques pour la composante non mesurable. D'autre part des connaissances théoriques sont toujours nécessaires pour comprendre ce qui est expérimentalement observé. Dans ce travail de thèse, nous étudierons successivement ces deux volets.

Pour développer une théorie, il faut d'abord en comprendre les différents éléments de base. L'interaction particule-noyau peut être schématisée par le puits de potentiel représentant le noyau cible et ressenti par la particule incidente. Ce puits contient des états d'excitation virtuels qui sont qualifiés par l'énergie nécessaire à leur excitation et par leurs nombres quantiques associés. Pour que le noyau fissionne, il doit d'abord se déformer. Sa déformation principale est l'élongation. En étudiant l'énergie du noyau dans la direction de l'élongation, on peut observer que le potentiel d'équilibre du noyau oscille en fonction de cette déformation. La courbe obtenue fait alors apparaître classiquement deux puits et deux bosses aussi appelées couramment barrières de fission. Leur hauteur, relativement à la valeur de S_n, l'énergie de séparation d'un neutron dans le noyau composé formé, détermine le caractère fissile ou fertile du noyau, un seuil de fission étant observable sur la section efficace de fission dans ce dernier cas. Etudier une section efficace de fission revient principalement à étudier le profil des états d'excitation présents à l'intérieur de chaque puits et au-dessus de chaque barrière.

Lors d'une interaction entre une particule incidente et un noyau cible, un système composé de la particule et du noyau est formé. Plusieurs modes de désexcitation en compétition existent dont la fission qui requière un système composé équilibré (théorie du noyau composé). Ce postulat implique l'étude de la structure nucléaire de ce dernier, nommément ²⁴³Pu. Dans ce travail, l'impact de la structure nucléaire du ²⁴³Pu a été particulièrement étudié.

Lors de l'analyse d'une section efficace, plusieurs régions énergétiques sont discernables, dont le domaine thermique, la région des résonances résolues (RRR), la région des résonances non résolues (URR) et le continuum neutronique. Pour modéliser une section efficace, il faut adapter le modèle mathématique, et donc le code de calculs, en fonction de la région étudiée. Dans le RRR, ce sont des approximations de la théorie de la matrice R qui sont classiquement utilisées. Le code de calculs utilisé sera le code CONRAD du CEA/LEPh avec les approximations Multi-Level Breit-Wigner et Reich-Moore. Dans le URR, il est possible d'utiliser la théorie de la matrice R moyenne ou le modèle optique. C'est ce dernier qui sera utilisé grâce au code ECIS-06 du système de codes TALYS. Ce dernier, couplant le modèle optique à un moteur Hauser-Feshbach, est également utilisé pour modéliser la section efficace dans le continuum. Prédire le comportement d'une section efficace revient à faire un travail d'« évaluation ». Le but d'un évaluateur est de faire une prédiction fiable de la section efficace d'une réaction donnée aux moyens de modèles théoriques et en s'appuyant sur les données expérimentales, les deux volets devant être cohérents. Néanmoins, dans le cas d'un modèle théorique déficient ou de simplifications justifiées, l'évaluateur peut se contenter de reproduire par un modèle mathématique plus simple la meilleure mesure de l'observable recherchée. Cela explique l'utilisation de coefficients de pénétrabilité de la barrière de fission constants en fonction de l'énergie du neutron incident (par simplification, fixés à l'unité) pour la modélisation du RRR notamment. Introduire une valeur non constante de ces coefficients revient à ajouter de la physique aux évaluations.

La même démarche a été appliquée dans chaque région énergétique de la section efficace neutronique de fission du ²⁴²Pu. Dans le RRR, le travail principal a été d'identifier les états de classe II observés du second puits de la barrière de fission et de quantifier les paramètres les décrivant afin de les prendre en compte dans l'évaluation. Pour cela, la pénétrabilité de la barrière de fission de forme lorentzienne implémentée dans le code CONRAD a été appliquée dans un cadre d'évaluation. Ceci a permis d'obtenir une meilleure estimation des amplitudes de fission (paramètres fondamentaux de la matrice R).

Dans le URR, les états de classe II ont également été identifiés puis ajoutés, cette fois dans le code TALYS, afin d'obtenir une évaluation de la section efficace de fission beaucoup plus fine que celles existantes. Ces états identifiés ont été comparés à la littérature et une analyse de la densité de niveaux a été réalisée. Pour cela, le module QPVRLD (pour Quasi-Particule Vibrational Rotational Level Density) du programme AVXSF, prédisant les états sur la base d'une méthode combinatoire et utilisant la théorie des quasi-particules, a servi de référence. Cette analyse a également permis d'avoir un regard critique sur l'énergie du fond du deuxième puits de fission estimée dans la littérature.

Pour le continuum neutronique, l'objectif était de comprendre l'origine d'une structure présente au-dessus du seuil de fission (autour de 1.1 MeV d'énergie neutron). Une analyse de sensibilité de la section efficace aux différents paramètres (hauteurs et courbures) des barrières de fission a alors été réalisée. Les états dits « de transition » fournis par AVXSF ont également été testés dans TALYS. Enfin, une origine indirecte de la structure liée à la diffusion inélastique a été envisagée. Un travail sur les niveaux de basse énergie (les Low-Lying-Levels) du ²⁴²Pu a donc été réalisé et cette dernière étude a permis de comprendre l'origine de cette structure.

Cependant, la taille de la structure modélisée dépend des paramètres choisis. Rappelons qu'en théorie, les données expérimentales servent de référence. Or, les différentes mesures réalisées de la section efficace de fission sont en désaccord de 10 à 15% au niveau de cette structure. Il convient alors de réaliser une nouvelle mesure centrée sur la structure qui soit fiable, précise et décorrélée des autres mesures.

Il existe deux types de mesures de section efficace : les mesures intégrales, réalisées dans les réacteurs nucléaires ou après irradiation, et les mesures microscopiques dédiées à la mesure d'une section efficace choisie. C'est dans ce deuxième cadre que se réalise la partie expérimentale de cette thèse. Une mesure microscopique peut être réalisée grâce à deux techniques différentes de flux de neutrons fournis par des accélérateurs de particules : la technique par temps de vol et la technique par flux de neutrons quasi mono-énergétique. Cette dernière a été choisie pour cette thèse. Pour mesurer une section efficace de fission, il faut mesurer (« compter ») le nombre de fissions et le flux de neutrons. Pour réaliser ce premier comptage, le détecteur habituellement utilisé est une chambre d'ionisation (chambre à fission). Celui que nous avons choisi est composé de cellules photovoltaïques. Le second comptage est réalisé à l'aide d'une référence. Celle habituellement choisie est la section efficace de fission du ²³⁵U ou, plus rarement, du ²³⁸U qui sont appelées des standards secondaires (car mesurées en référence à un standard primaire comme $\sigma_{H}(n,n)$). Afin de décorréler la mesure réalisée, la référence choisie dans cette thèse est un standard primaire : la diffusion élastique du neutron sur l'hydrogène H(n,n)p, section efficace la mieux connue et reproductible *ab initio*. La technique est alors appelée technique des protons de recul. Le détecteur habituellement utilisé pour cette technique est un détecteur silicium. Cependant sensible au bruit des électrons, ce détecteur ne peut pas être utilisé en dessous de 1 MeV d'énergie neutron. La structure se situant autour de 1 MeV, pour l'englober, la mesure doit commencer autour de 200-300 keV et finir vers 2 MeV. Le détecteur silicium n'est pas optimisé pour notre besoin et il n'existe aucun autre détecteur adapté. C'est pour cela que nous avons choisi d'en développer un nouveau : le Détecteur Gazeux à Protons de Recul (DGPR), actuellement au stade de prototype, dont la particularité est d'être une TPC miniature.

Ce détecteur est, comme son nom l'indique, un détecteur gazeux. Il est composé de deux électrodes parallèles espacées de 4 cm. La plaque anode est un détecteur segmenté de technologie Micromégas. Cette technologie se caractérise par la présence d'une grille 125 µm au-dessus de l'anode servant à amplifier le champ électrique d'un facteur 100, et donc à amplifier le signal émis. Ce détecteur contient également deux collimateurs parallèles entre eux et perpendiculaires aux électrodes. L'un des collimateurs sert d'entrée au détecteur et l'autre permet de limiter l'angle d'émission des protons de recul détectés afin que leur énergie soit au plus près de celle des neutrons qui les ont engendrés. Lorsqu'un proton entre dans le détecteur, il ionise le gaz. Les électrons produits vont dériver vers l'anode sous l'action du champ électrique et leur nombre va être amplifié après leur passage par la grille. Le signal détecté pour chaque pad (segmentation de l'anode) va d'abord être traité par trois cartes électroniques avant d'être envoyé au logiciel Cobo, interface avec l'utilisateur. La segmentation du plan de détection permet la discrimination des protons en fonction de leur provenance. Pour être sûr que tous les protons entrant dans le détecteur soient détectés, il faut étudier l'efficacité intrinsèque du détecteur. L'étude des conditions optimales d'utilisation du détecteur et de son efficacité ont fait l'objet du travail expérimental de cette thèse. Ainsi, il a été montré que le DGPR fonctionne avec 100% d'efficacité lorsque le nombre de protons par seconde entrant dans le détecteur est faible. Cette efficacité chute cependant dès que ce nombre augmente, indiquant un temps mort trop important lié au traitement du signal. Ce problème est en cours d'investigation. Une fois résolu, le DGPR sera redessiné. Si les problèmes identifiés sont résolus, ce détecteur pourra servir pour réaliser des mesures plus précises (3% d'incertitudes visées) qu'actuellement grâce à sa technique des protons de recul et permettra de couvrir avec un seul détecteur la région énergétique de 200 keV à 2.5 MeV.

Abstract

Present PhD aims to study the neutron fission cross section of the ²⁴²Pu that is classified as fertile isotope. This work relies on two complementary branches of nuclear physics, meaning the experimental and the theoretical aspect. This PhD takes place within a collaboration between the CEA (LEPh) of Cadarache and the CENBG (ACEN group) of Bordeaux-Gradignan.

When a fission occurs, a heavy nucleus starts to deform from its spheroid equilibrium shape. The minimum of nuclear potential fluctuates as a function of the nucleus main deformation (i.e. the elongation), drawing a double-humped curve with two wells: the first one corresponds to the point of normal equilibrium shape and the second one to the fission isomer deformation.

A heavy nucleus cross section overlays several energetic regions including the resolved resonance range (RRR), the unresolved resonance range (URR) and the neutron continuum. To model a cross section, the most physical and mathematically correct formalism must be applied as a function of the energy range involved. The theoretical part of this work aims to analyze and model the fission cross section over the various pre-cited energy domains. Hence, in the RRR, approximations of R-Matrix theory are used with the in-house developed computer code CONRAD. The excited states in the fission isomer well, namely the class-II states, are here described explicitly. In the URR, Hauser-Feshbach theory associated to Coupled Channels Optical Model calculations was used to represent the average resonant fission cross section. Once more, the class-II states have been identified and a more accurate data file is proposed. The present work ends with a careful study of the neutron continuum above the URR. Both the URR and the continuum were analyzed with the TALYS-ECIS-06 system of codes. Our goal was to explain the unknown origin of a sizeable structure lying right after the fission threshold at around 1.1 MeV of neutron energy. Prior to the present investigation, this rough structure was not correctly modeled, as well as its origin properly described. Since current experimental fission cross section database still shows 10 to 15% of discrepancies, a new precise measurement is advertised.

For a high quality cross section measurement, several choices have to be made: the type of beam (Time Of Flight method or quasi mono-energetic neutrons), the type of detectors to be selected (one for measuring the number of fission, the other for characterizing the neutron flux) and finally the cross section to be used as a reference to quantify the neutron flux. For a fission cross section measurement, the reference commonly chosen is the ²³⁵U(n,f) reaction that belongs to the category of secondary standards. The detectors classically selected are fission chambers. It was decided to set up an uncorrelated measurement with photovoltaic cells as fission detectors and to use the diffusion cross section H(n,n)p as reference. The latter is described as a primary standard and involves the proton recoil technique. However, no detector is suitable yet to cover the energy range spanning the broad resonant structure to be investigated. The experimental part of this work was driven around the development of a new detector: so called the Gaseous Proton Recoil Telescope. This detector carries the particularity to be a miniaturized Time Projection Chamber (TPC). Indeed, any particle track can be reconstructed in 3 dimensions, thanks to the Micromegas segmented detection plane and the electron drift velocity. The first task of my work was to determine the best operating range for this brand new detector. Once this was achieved, we paid attention to the device intrinsic efficiency since a precise measurement requires a detector with a 100% of intrinsic efficiency. The work was

initially carried out with a 3α source and then the final results were validated with a direct proton beam (at the AIFIRA accelerator of CENBG).

Key words: Nuclear physics – Neutron cross section – Fission – Measurement – Modeling – Level density simulation by combinatory method

Mots clefs : Physique nucléaire – Section efficace neutronique – Fission – Mesure – Modélisation – Simulation de densité de niveaux par combinatoire

Table des matières

Affidavit	III
Liste de publications et participation aux conférences	IV
Remerciements	V
Résumé	VI
Abstract	IX
Table des matières	XI
Table des Figures	XIV
Table des Tableaux	XIX
Introduction	1
1 Chapitre 1 Bases théoriques	9
1.1 Structure nucléaire en équilibre statique du noyau	
1.1.1 Réactions nucléaires	
1.1.2 Définition des nombres quantiques	11
1.1.3 Notions de puits de potentiel et de densité de niveaux	13
1.2 Structure nucléaire en déformation	16
1.3 Densité de niveaux macro-microscopique par combinatoire	
1.4 Conclusion du chapitre	
2 Chapitre 2 Modélisation de la section efficace de fission	27
2.1 Modélisation dans le domaine des résonances résolues	
2.1.1 Domaine énergétique couvrant le RRR	
2.1.2 Théorie de la matrice R	
2.2 Modélisation de la section efficace dans le continuum	
2.2.1 Présentation du continuum neutronique	
2.2.2 Théories de Hauser-Feshbach et du modèle optique	
2.2.3 Système de codes TALYS-ECIS06	
2.2.4 Loi de Gilbert-Cameron	
2.3 Pratique de l'évaluation	
2.3.1 Les données expérimentales	47
2.3.2 Modèles mathématiques utilisés	
2.4 Conclusion du chapitre	
3 Chapitre 3 Calculs théoriques et analyse des résultats	51
3.1 Obtention d'amplitudes de fission plus physiques dans le RRR	
3.1.1 Etat de la connaissance du ²⁴² Pu	

3.1.2	Identification des états de classe II dans le RRR	
3.1.3	Ajout des états de classe II dans CONRAD	61
3.2	Identification des états de classe II dans le URR	67
3.2.1	Données expérimentales choisies	
3.2.2	Identification des états de classe II dans le URR	69
3.2.3	Utilisation du code TALYS pour modéliser la section efficace de fiss	sion72
3.3	Comparaison avec la littérature	77
3.4	Détermination de l'énergie du fond du deuxième puits de fission	
3.4.1	Etude avec une séquence d'états fournie par AVXSF	
3.4.2	Loi de température constante	94
3.5	Continuum	103
3.5.1 barrières	Etude de la sensibilité de la section efficace de fission aux paran fondamentales (hauteurs et courbures)	nètres des 104
3.5.2	Insertion des états de transition tête de bande prédits pas AVXSF	115
3.5.3	Recherche d'une origine indirecte de la structure	119
3.6	Conclusion du chapitre	128
4 Char ²⁴² Pu(n,f)	pitre 4 Techniques de mesures de sections efficaces de fission, état de	l'art pour 129
4.1	Choix du flux de neutrons	
4.1.1	Mesure par temps de vol	
4.1.2	Mesure par flux de neutrons quasi mono-énergétique	
4.2	Choix de la référence	133
4.2.1	Utilisation d'un standard secondaire	133
4.2.2	Utilisation d'un standard primaire : technique des protons de recul	
4.3	Etat de l'art des mesures de la section efficace de fission du ²⁴² Pu	141
4.4	Conclusion du chapitre	145
5 Cha	pitre 5 Développement du Détecteur Gazeux à Protons de Recul	147
5.1	Présentation du dispositif	148
5.1.1	Principe de fonctionnement	148
5.1.2	Gaz utilisé : tension de claquage, gain et vitesse de dérive	151
5.2	Système d'acquisition	157
5.2.1	Rôle des cartes électroniques	157
5.2.2	Logiciel	158
5.3	Conditions de fonctionnement et acquisitions obtenues	160
5.3.1	Particules utilisées pour travailler	
5.3.2	Pressions utilisées, tension de polarisation et paramètres utilisés	

5.3.3	Reconstruction de trajectoire	164
5.4 E	Efficacité du détecteur	168
5.4.1	Mesure avec une source 3α	168
5.4.2	Etude avec un faisceau de protons directs	
5.4.3	Etudes avec un banc de test (réalisé après mon départ du CENBG)	176
5.5 (Conclusion du chapitre	177
Conclusion	et perspectives	179
Bibliograp	hie	
Mesures	de sections efficaces du ²⁴² Pu	
Partie the	éorie	189
Partie ex	périmentale	
Annexes		195
Annexe	2.1	195
Annexe	3.1	198
Annexe	3.2	
Annexe	3.3	
Annexe	3.4	
Annexe	3.5	
Annexe	3.6	
Annexe	3.7	
Annexe	3.8	
Annexe	3.9	
Annexe	3.10	
Annexe	3.11	
Annexe	3.12	

Table des Figures

Figure 0 - 1 : Schéma de la création d'actinides supérieurs dans le cœur des réacteurs nucléaires
Figure 0 - 2 : Flux neutroniques présents dans le cœur des réacteurs RJH, UOX et MOX [J. Politello, communication privée, 2021] (gauche) et dans le cœur des réacteurs Super-Phénix (RNR-Na), UOX et MOX [234] (droite)
Figure 0 - 3 : Courbes d'estimation de la décroissance de la radiotoxicité des déchets nucléaires en fonction du temps [250]
Figure 0 - 4 : Section efficace de fission du ²⁴² Pu de 0.1 eV à 20 MeV. Données de Auchampaugh et al. [102] (courbe noire) et évaluation JEFF3.3 [240] (courbe rose)
Figure 1 - 1: Illustration des niveaux d'énergie pour un noyau de puits de potentiel rectangulaire.
Figure 1 - 2 : Vue schématique des niveaux d'énergie pour une interaction neutron- 242 Pu 15 Figure 1 - 3 : Puits de potentiel du poyau composé fissionnant en fonction de son élongation (c)
(figure extraite de [221])
Figure 1 - 4 : Evolution des hauteurs des barrières pour la famille des plutoniums (figure reprise de [221], figure 7)
Figure 1 - 5 : Section efficace de fission du ²⁴² Pu dépendant du J ^{π} en fonction de l'énergie du neutron incident
Figure 2 - 1 : Section efficace de fission du ²⁴² Pu en fonction de l'énergie du neutron incident pour le domaine des résonances résolues ; données JEFF3.3 [240] (échelle log-log)
Figure 2 - 2 : Subdivision de l'espace dans le principe de la matrice R. Schéma inspiré de la Figure I.3.1 de [203]
Figure 2 - 3 : Section efficace de fission du ²⁴² Pu en fonction de l'énergie du neutron incident pour le domaine des résonances non résolues : données Auchampaugh et al. [102] (échelle log-
log)
pour le domaine du continuum neutronique ; données JEFF3.3 [240] (échelle log-log)
Figure 2 - 5 : Visualisation des hauteurs des deux barrières de fission du ²¹² Pu, données JEFF3.3 [240]. V _A correspond à la hauteur de la première barrière de fission du ²⁴² Pu et V _B à la hauteur
de la deuxième (échelle log-lin)
les états discrets sous la forme d'une densité de niveaux
Figure 3 - 2 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴² Pu par CONRAD en approximations MLBW et RM avec paramètres identiques. Comparaison en échelle lin-lin
(haut) et log-log (bas)
pour JEFF5.5 selon (5.01) avec C=0.4 (courbe rouge) et C=0.18 (courbe noire) (echelle lin-log)
Figure 3 - 4 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴² Pu par CONRAD en utilisation l'approximation RM après ajustement des paramètres de travail (échelle log-log). Zoom sur les trois premières résonances avec des données expérimentales disponibles (bas) (échelle lin-log)

Figure 3 - 5 : Largeurs de fission du ²⁴²Pu dans le RRR (haut) et cumulée des largeurs de fission Figure 3 - 6 : Courbes représentant la cumulée des largeurs de fission ajustées sur l'équation Figure 3 - 7 : Modélisation RM de la section efficace neutronique de fission du ²⁴²Pu avec traitement explicite des états de classe II. Vue d'ensemble (haut) et zoom sur le 2^e état de classe Figure 3 - 8 : Pénétrabilité Lorentzienne des états de classe II en fonction de l'énergie du neutron Figure 3 - 9: Largeurs de fission obtenues en approximation Reich-Moore avant prise en compte des états de classe II (haut), après prise en compte des états de classe II avec les paramètres obtenus en ajustant les seuils (milieu) et avec les paramètres ajustés par essais-Figure 3 - 10 : Amplitudes de fission obtenues en approximation Reich-Moore avant prise en compte des états de classe II (haut), après prise en compte des états de classe II avec les paramètres obtenus en ajustant les seuils (milieu) et avec les paramètres ajustés par essais-Figure 3 - 11 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu dans le URR – évaluation JEFF3.3 [240] et données expérimentales de Auchampaugh et Al. [102] renormalisées (hors incertitudes) Figure 3 - 12 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu selon les données de Auchampaugh et al. [102] renormalisées (divisée par un facteur 1.1) (échelle log-log). Les incertitudes Figure 3 - 13 : Cumulée de la section efficace de fission du ²⁴²Pu (avec zoom sur les 5 premiers keV) - données de Auchampaugh et al.[102]. Ajustement des seuils par des Lorentziennes via Figure 3 - 14 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu dans le URR – évaluation JEFF3.3 (courbe rose), données expérimentales de Auchampaugh et Al. [102] renormalisées (croix noires) et modélisation moderne réalisée par G. Noguère (courbe verte) (échelle log-log))......72 Figure 3 - 15 : Modélisation de la section efficace obtenue dans l'URR après ajout des états de classe II identifiés dans le paragraphe 3.2.2 (courbe bleue). Référence du travail : données de Figure 3 - 16 : Modélisation de la section efficace obtenue dans l'URR après ajustement des résonances de classe II identifiées dans le paragraphe 3.2.2 (courbe verte). Référence du travail : Figure 3 - 17 : Comparaison des états de classe II identifiés dans ce travail avec les états de classe I et II identifiés par [103]. Section efficace de référence : données de Auchampaugh et al. [102]. Les 50 keV sont coupés en 14 gammes d'énergies. Celles avec aucun état identifié ne sont pas représentées. Chaque gamme possède une ligne rose fixée arbitrairement à 10 mbarn et une ligne orange correspondant à la section efficace moyenne de la gamme. La gamme possédant la résonance la plus importante (figure b) possède également une ligne verte représentant la section efficace moyenne sans cette résonance. Les états de classe I identifiés par [103] sont placés par une flèche fine. Ces flèches sont bleues lorsque l'état a été identifié comme état de classe II par ce travail et noires lorsque ce travail ne les a pas identifiés. Les états de classe II sont placés par des flèches en gras. Ces flèches sont noires lorsque l'état a été identifié communément par ce travail et par [103]. Elles sont rouges lorsque l'état n'a été identifié que par ce travail et vertes lorsque seul [103] a identifié l'état. Ces dernières sont suivies d'un «?» lorsque les données de Auchampaugh et Al. ne permettent pas de justifier cet état. Le « ou » figure d est lié au fait que [103] identifie l'état à 3542 eV alors que [220] Figure 3 - 18 : Comparaison des sections efficaces de fission, de capture et totale du ²⁴²Pu mesurées dans le RRR et dans l'URR. [101, 102, 106, 113, 114, 116, 117] (haut). Zoom sur Figure 3 - 19 : Courbes comparant la cumulée des états de classe II observés dans ce travail (bleue) avec celle des états de classe II prédits par AVXSF (rouge) pour $E_{II} = 1.95$ MeV (haut), Figure 3 - 20 : Comparaison de la prédiction d'états du deuxième puits de fission pour le ²⁴³Pu formé par AVXSF-LNG (courbes rouges) et par RIPL-3 (courbes bleues) avec la cumulée des états (haut) et la densité de niveaux (bas). Le rectangle noir rappelle l'incertitude actuelle sur Figure 3 - 21 : Meilleure courbe obtenue pour $E_{II} = 1.70$ MeV avec ajustement de U₀ pour T = Figure 3 - 22 : Meilleure courbe obtenue pour $E_{II} = 1.75$ MeV pour un ajustement de U₀ pour Figure 3 - 23 : Meilleure courbe obtenue pour $E_{II} = 1.75$ MeV pour un ajustement de U₀ pour Figure 3 - 24 : Courbes de prédiction obtenues sous S_n : comparaison de la séquence AVXSF sous S_n avec les résultats obtenus par (3.09) pour T = 0.37291 MeV fixée et U₀ = -0818 MeV Figure 3 - 25 : Courbes de prédiction obtenues sous S_n : comparaison de la séquence AVXSF sous S_n avec les résultats obtenus par (3.09) pour $U_0 = -0.70050$ MeV fixée et T = 0.357 MeV Figure 3 - 26 : Courbes de prédiction obtenues sous S_n : comparaison de la séquence AVXSF sous S_n avec les résultats obtenus par (3.09) pour T = 0.371 MeV et U₀ = -080 MeV ajustées. Figure 3 - 27 : Etude de la sensibilité de la section efficace de fission du ²⁴²Pu à la hauteur de la première barrière V_A. Référence : données de Weigmann et al. (+ rouge) [103] normalisées Figure 3 - 28 : Etude de la sensibilité de la section efficace de fission du ²⁴²Pu à la hauteur de la deuxième barrière V_B. Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas) (échelle lin-lin) 107 Figure 3 - 29 : Etude fine de la sensibilité de la section efficace à la hauteur de la première barrière V_A pour $V_B = 5.48$ MeV (haut) et $V_B = 5.60$ MeV (bas). Référence : données de Weigmann et al. (+ rouges) [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la Figure 3 - 30 : Etude de la sensibilité de la section efficace de fission du ²⁴²Pu à la courbure de la première barrière $\hbar\omega_A$. Référence : données de Weigmann et al. [103] (+ rouges) normalisées Figure 3 - 31 : Etude de la sensibilité de la section efficace de fission du ²⁴²Pu à la courbure de la deuxième barrière $\hbar\omega_B$. Référence : données de Weigmann et al. [103] (+ rouges) normalisées Figure 3 - 32 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu en utilisant les états de transition tête de bande des deux barrières fournis par le code AVXSF. Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas, Figure 3 - 33 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu en utilisant les états de transition tête de bande des deux barrières fournis par le code AVXSF et en augmentant les valeurs de E_{start} et E_{rac}. Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] Figure 3 - 34 : Schéma des puits de potentiel illustrant la réaction de diffusion inélastique Figure 3 - 35 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu après augmentation de l'énergie de début de continuum du puits fondamental du ²⁴²Pu (noyau résiduel atteint par diffusion inélastique). Référence : données de Weigmann et al. (+ rouges) [103] normalisées Figure 3 - 36 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu après augmentation de l'énergie de début de continuum du puits fondamental du ²⁴²Pu (noyau résiduel de la diffusion inélastique) et ajout des états discrets manquants prédits par AVXSF. Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas, Figure 3 - 37 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu après augmentation de l'énergie de début de continuum du puits fondamental du ²⁴²Pu (novau résiduel de la diffusion inélastique), ajout des 5 états discrets manquants prédits par AVXSF et rabaissement à l'énergie initiale du début du continuum des états de transition de la première barrière . Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la Figure 3 - 38 : Comparaison des résultats obtenus avec des données expérimentales : Weigmann et al. normalisées (+ rouges) [103], Auchampaugh et al. (points bleus) [102], Tovesson et al. normalisées (losanges violets) [106], Marini et al. (carrés verts) [109] et Kögler et al. (triangles Figure 3 - 39 : Comparaison de la dernière modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu et de la section efficace de la section de diffusion inélastique (obtenue par la soustraction de la directe inélastique à la totale inélastique). Zoom sur la structure. Référence : données de Figure 4 - 1 : Schéma représentant le dispositif expérimental couramment utilisé pour réaliser Figure 4 - 2 : Comparaison de la section efficace de fission du ²³⁵U (haut) et de la section efficace de diffusion élastique du neutron sur l'hydrogène (bas) de 10⁻⁵ eV à 20 MeV (échelle Figure 4 - 3 : Taux de comptage des protons en fonction de l'énergie de ces protons. Détection par une jonction silicium pour des neutrons ayant une énergie de 1.6 MeV [302]......138 Figure 4 - 4 : Schéma représentant le dispositif expérimental pour réaliser une mesure de section efficace de fission en utilisant la technique des protons de recul [109]......139 Figure 4 - 5 : Taux de protons en fonction de l'énergie déposée après soustraction du bruit de fond obtenu avec un détecteur silicium d'épaisseur 50 µm pour des énergies de neutrons de a) Figure 4 - 6 : Mesures existantes de la section efficace de fission du ²⁴²Pu. Les lignes continues sont les mesures par temps de vol, les symboles sont les mesures avec flux de neutrons monoénergétique......142

Figure 5 - 1 : Photo légendée du détecteur DGPR (haut) et schéma de principe du Figure 5 - 2 : Schéma détaillé du principe de fonctionnement du DGPR utilisant la technologie Figure 5 - 3 : Photo agrandie du plan de détection Micromégas segmenté en 64 pads. Les lignes rouges correspondent aux emplacements des deux collimateurs. Les grands et petits pads carrés font 1 cm 5 mm de côté respectivement. Les pads rectangulaires mesurent 1 cm sur 5 mm. 150 Figure 5 - 4 : Tensions de claquage calculées pour un mélange gazeux N₂-CO₂ pour différentes teneurs en CO₂.....153 Figure 5 - 5 : Comparaison des tensions de claquage calculées théoriquement et mesurées avec le DGPR pour de l'Aligal 13 et du P10. Les barres verticales représentent les incertitudes des tensions......154 Figure 5 - 6 : Gain potentiel calculé du détecteur en fonction de la pression pour les gaz Aligal 13 et P10. Les courbes en pointillés correspondent aux gains obtenus pour une tension de polarisation de la grille de 450 V et les courbes continues représentent les gains aux tensions de Figure 5 - 7 : Comparaison des vitesses de dérive pour les gaz P10, Aligal 12 et CF₄. Pour une Figure 5 - 8 : Amplitudes movennes des pads en fonction de la trajectoire de la particule ... 157 Figure 5 - 9 : Exemple d'un évènement enregistré. Seule la réponse de pads choisis par Figure 5 - 10 : Exemple d'évènements enregistrés pour une pression de 50 mbar. Evènement correspondant à un a (haut) mais avec des problèmes de retour à la décharge. Mauvais Figure 5 - 11 : Exemple d'évènement enregistré à 100 mbar pour une tension de polarisation de la grille de 450 V, représentant la tension de claquage (1 point toutes les 10 ns)......162 Figure 5 - 12 : Investigation du nombre de coups par minute maximum enregistré par le système Figure 5 - 13 : Evènement utilisé pour reconstruire la trajectoire de la particule (1 point toutes Figure 5 - 14 : Reconstruction de la trajectoire de l'évènement Figure 5 - 13 sur le plan de détection. Rappel : les lignes rouges représentent l'emplacement des deux collimateurs. 165 Figure 5 - 15 : Reconstruction de trajectoire pour un évènement parasite (cosmique). Evènement (haut) et reconstruction sur le plan de détection (bas). Rappel : les lignes rouges représentent l'emplacement des deux collimateurs (1 point toutes les 10 ns)......166 Figure 5 - 16 : Reconstruction de la 3^{ème} dimension de l'évènement de la Figure 5 - 13. 167 Figure 5 - 17 : Schéma du dispositif expérimental pour la mesure de l'activité de la source 3a Figure 5 - 19 : Dispositif de l'expérience avec un microfaisceau de protons directs 174 Figure 5 - 20 : Graphique de l'efficacité du DGPR en fonction du taux de protons détectés dans Figure 0 - 5 : Comparaison des meilleurs résultats obtenus avec TALYS (Figure 3 - 37) avec les données expérimentales (non normalisées) [101, 102, 103, 105, 106, 107, 108, 109, 110, 111, 112] et leurs incertitudes (Figure 4 - 6). Zoom sur la structure étudiée à 1.1 MeV...... 182

Table des Tableaux

```
Tableau 0 - 1 : Exutoires des déchets nucléaires en France en fonction de leur catégorie. ...... 3
Tableau 0 - 2 : Sections efficaces dont la précision est à améliorer, précisions actuelles et visées
[233], en jaune les données relatives à la section efficace de fission du <sup>242</sup>Pu qui est l'objet de
Tableau 0 - 3 : Incertitudes des sections efficaces de fission et de captures radiatives du <sup>239</sup>Pu
et <sup>242</sup>Pu selon l'estimation COMAC V0 (basé sur BVII.1), en jaune les données relatives à
l'incertitude de la section efficace de fission du <sup>242</sup>Pu qui est l'objet de notre démonstration. . 6
Tableau I - 1 : Nombre de dégénérescences en fonction du moment angulaire orbital \ell...... 12
Tableau I - 2 : Spin total, parité et pénétrabilité centrifuge (avec \rho = ka_c avec k le nombre d'onde
et ac le rayon de voie [224 Tableau II A.1]) en fonction de la valeur du moment angulaire orbital
Tableau I - 3 : Différentes valeurs dans la littérature des hauteurs et courbures des barrières de
Tableau I - 5 : Propriétés des états collectifs assumés dans la détermination des spectres de
Tableau II - 1 : Rappel des différences entre les approximations de la matrice R et la théorie de
Tableau III - 2 : Paramètres des états de classe II dans le RRR obtenus par essais-erreurs
Tableau III - 3 : Paramètres obtenus pour l'ajustement des seuils correspondants aux 68 états
Tableau III - 4 : Paramètres obtenus après ajustement de la modélisation de la section efficace
pour les 68 états de classe II identifiés de 1 150 eV à 100 keV. Les résonances notées « 70 »
Tableau III - 5 : Tableau récapitulant les énergies d'excitation de début et de fin de chacune des
Tableau III - 6 : Récapitulatif du nombre d'états s (<700 eV), s et p (<10 keV et <20 keV) et s,
Tableau III - 7 : Tableaux comparant les espacements moyens expérimentaux de ce travail et
de [103] par rapport à ceux des séquences partielles de AVXSF-LNG sur 10 et 20 keV. ..... 90
Tableau III - 8 : Tableau récapitulant les paramètres utilisés pour un ajustement de U_0 pour T =
Tableau III - 9 Tableau récapitulant les paramètres utilisés pour un ajustement de U_0 pour T =
Tableau III - 10 : Tableau récapitulant les paramètres utilisés pour un ajustement de U<sub>0</sub> pour T
Tableau IV - 2 : Technique utilisée pour chaque mesure et référence choisie pour mesurer le
Tableau V - 1 : Valeurs de seuil de multiplicité à renseigner dans le logiciel pour le seuil de
```

Tableau V - 2 : Paramètres mesurés pour calculer l'efficacité géométrique du DGPI	R 169
Tableau V - 3 : Paramètres mesurés pour calculer l'efficacité géométrique du détecte	eur silicium
	170
Tableau V - 4 : Efficacité du détecteur pour les fréquences 10, 100 et 1000 Hz avec	e les modes
trigger interne et externe	176

Avec cinquante-six réacteurs nucléaires de puissance de type REP (Réacteur à Eau Pressurisée) et avec encore 70% de son électricité produite d'origine nucléaire, la France est un leader mondial de l'électricité nucléaire. Cette technologie, qui est l'une des plus décarbonées pour produire de l'électricité, fonctionne grâce au processus de fission nucléaire des noyaux lourds. En effet, le combustible présent dans le cœur d'un réacteur nucléaire est composé d'oxyde d'uranium dont 3 à 5% est de l'uranium 235 (²³⁵U, noyau fissile) et 95 à 97% de l'uranium 238 (²³⁸U, noyau fertile). Un flux de neutrons présent dans le cœur va permettre de faire fissionner les noyaux dits « fissiles » qui libèreront à leur tour d'autres neutrons. Chaque fission libère environ une énergie de 200 MeV permettant ainsi de chauffer le fluide caloporteur (de l'eau dans les REP) et de faire ainsi fonctionner la centrale. L'eau présente sert également à ralentir les neutrons du cœur, on parle alors de « réacteur à neutrons thermiques ».

Lorsqu'un noyau d'uranium fissionne, il émet environ 2.5 neutrons. L'un de ces neutrons servira à son tour à créer une fission : c'est le principe de la réaction en chaîne. Les autres neutrons vont soit subir diverses captures (combustible, bore dans l'eau, barres de contrôle, structures des assemblages), soit s'échapper. L'²³⁸U, non fissile thermiquement et présent dans le combustible, est responsable d'une grande partie des captures neutroniques. Il va, par captures successives et décroissances radioactives β^{-} , créer des actinides plus lourds appelés actinides supérieurs. C'est ainsi qu'est créé le plutonium 242, comme le montre la Figure 0 - 1 ci-dessous. Le noyau de ²⁴²Pu, et plus particulièrement ses propriétés de fission induite, fait l'objet de ce travail de thèse.

²³⁹ Cf	²⁴⁰ Cf	²⁴¹ Cf	²⁴² Cf	²⁴³ Cf	²⁴⁴ Cf	²⁴⁵ Cf	²⁴⁶ Cf	²⁴⁷ Cf	²⁴⁸ Cf	2
²³⁸ Bk	²³⁹ Bk	²⁴⁰ Bk	²⁴¹ Bk	²⁴² Bk	²⁴³ Bk	²⁴⁴ Bk	²⁴⁵ Bk	²⁴⁶ Bk z: 97 n:	²⁴⁷ Bk	2
²³⁷ Cm	²³⁸ Cm	²³⁹ Cm	²⁴⁰ Cm	²⁴¹ Cm	²⁴² Cm	²⁴³ Cm	²⁴⁴ Cm	²⁴⁵ Cm	²⁴⁶ Cm z: 96 n:	2
²³⁶ Am	²³⁷ Am	²³⁸ Am	²³⁹ Am	²⁴⁰ Am	²⁴¹ Am	2 ² Am z: 95 m	²⁴³ Am	²⁴⁴ Am	²⁴⁵ Am	2
²³⁵ Pu	²³⁶ Pu	²³⁷ Pu	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	⁴¹ Pu	⁴⁴² Pu	243 _{Pu}	244 Pu	2
²³⁴ Np	²³⁵ Np	²³⁶ Np	²³⁷ Np	²³⁸ Np	- ¹⁹ Np	²⁴⁰ Np	MN-	<mark>242</mark> Np z: 93 n:	²⁴³ Np	2
²³³ U	²³⁴ U z: 92 n:	235 _U	²³⁶ U	²³⁷ U	²³⁸ U z: 92 n:	³⁹ U	²⁴⁰ U	241 _U	²⁴² U z: 92 n:	2
²³² Pa	²³³ Pa	25 _{Pa} z: 91 n:	²³⁵ Pa	²³⁶ Pa	25. _{Pa}	²³⁸ Pa	²³⁹ Pa			

Figure 0 - 1 : Schéma de la création d'actinides supérieurs dans le cœur des réacteurs nucléaires.

Pour optimiser le pilotage d'un réacteur nucléaire, l'usure des crayons ou prédire la production de déchets, les calculs de neutronique sont réalisés afin d'étudier l'évolution du combustible (et donc son comportement) en fonction des conditions internes au cœur. Pour cela,

deux équations sont couplées : l'équation du transport ou équation de Boltzmann (0.01) et l'équation de Bateman.

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, v, \vec{\omega}, t)}{\partial t} = \int_0^\infty dv' \iint_{4\pi} d^2 \omega' \cdot \Sigma_s(\vec{r}, v' \to v, \vec{\omega}' \to \vec{\omega}, t) \cdot \Phi(\vec{r}, v', \vec{\omega}', t) + S\Phi(\vec{r}, v, \vec{\omega}, t) - \Sigma_t(\vec{r}, v, \vec{\omega}, t) \cdot \Phi(\vec{r}, v, \vec{\omega}, t) - \operatorname{div} \vec{J}(\vec{r}, v, \vec{\omega}, t)$$
(0.01)

Avec Φ le flux neutronique, Σ les sections efficaces macroscopiques (« s » de diffusion et « t » totale), S le terme source, J le courant, r la position spatiale, v la vitesse du neutron, ω la direction angulaire et t le temps. On remarque à partir de cette équation le besoin d'une connaissance précise notamment des sections efficaces totale (dont celle d'absorption), différentielle de diffusion et de fission (via le terme source S).

Ces codes neutroniques s'appuient sur des données nucléaires de base, dont les sections efficaces (les termes Σ de (0.01) sont les sections efficaces macroscopiques) qui donnent une estimation de la probabilité de l'interaction nucléaire en fonction de l'énergie du neutron incident. Ces données nucléaires sont évaluées en amont par des physiciens nucléaires. L'évolution des codes de neutronique conjointe à l'avènement des systèmes de calculs haute performance (HPC) a rendu primordiale un approfondissement de la connaissance de ces données ; les incertitudes des résultats de neutronique étant principalement dues aux incertitudes des données nucléaires. Il est ainsi devenu pressant d'améliorer la connaissance de la section efficace de fission des actinides secondaires fertiles comme celle du ²⁴²Pu, isotope devenant d'ailleurs fissile dans un flux de neutrons rapides.

La section efficace neutronique du ²⁴²Pu était en effet jugée peu prioritaire à cause du caractère fertile de ce noyau. Celui-ci est pourtant présent dans les combustibles UOx (Uranium Oxide) en évolution, MOx (Mixed Oxyde) dès le démarrage et pour l'avenir dans les réacteurs à neutrons rapides (RNR, réacteurs de génération IV fonctionnant avec des neutrons dits rapides). En outre, cet isotope a été en particulier choisi comme dépôt pour la chambre à fission du suivi en ligne du flux rapide du réacteur expérimental d'irradiation Jules Horowitz (RJH) du CEA Cadarache. Ce dernier, comme tous les réacteurs thermiques et rapides, présente un flux neutronique élevé autour du MeV, comme le montre la Figure 0 - 2 qui présente le flux neutronique de différents réacteurs. Ceci renforce notre intérêt pour l'amélioration de la connaissance de la section efficace de fission du ²⁴²Pu fertile et dont les différentes observations témoignent d'une dispersion des mesures de 10 à 15% autour du MeV.



Figure 0 - 2 : Flux neutroniques présents dans le cœur des réacteurs RJH, UOX et MOX [J. Politello, communication privée, 2021] (gauche) et dans le cœur des réacteurs Super-Phénix (RNR-Na), UOX et MOX [234] (droite).

La France est également leader mondial en termes de recyclage et retraitement des déchets nucléaires. En effet, lorsqu'un combustible irradié sort d'un réacteur nucléaire, il est recyclé et retraité. 95% de ce combustible est de l'uranium (de retraitement, URT) qui est récupéré pour être utilisé dans de nouveaux combustibles. 1% du combustible est du plutonium (dont le ²⁴²Pu) et est recyclé une fois dans le combustible MOx. Enfin, les 4% restant correspondent à des produits de fission et des actinides mineurs, déchets de haute activité non retraités.

Bien que la sûreté nucléaire pour le pilotage des réacteurs de puissance présents et futurs soit un sujet primordial, ma motivation personnelle originelle était conduite par le devenir des noyaux non contributeurs directement à la production d'énergie ainsi que leur utilisation optimisée dans les réacteurs. Compte tenu de l'importance de la gestion des déchets nucléaires dans l'acceptabilité de l'énergie nucléaire et donc la part qu'elle peut prendre dans la lutte contre le réchauffement climatique, nous pouvons rappeler brièvement le contexte actuel.

La définition d'un déchet radioactif est une matière nucléaire ou radioactive non valorisable. En France, tout matériau sortant d'une Installation Nucléaire de Base (INB) est considéré comme un déchet nucléaire. Les déchets sont catégorisés selon deux critères : leur radioactivité et leur demi-vie. Il existe en France 3 exutoires en fonction de ces catégories comme le montre le Tableau 0 - 1 :

	Très faible activité (TFA 1 à 100 Bq/g)	Faible et moyenne activité (FMA)	Haute activité (HA)
Vie courte (VC) (demi-vie < 31 ans) Vie longue (VL) (demi-vie > 31 ans)	Stockage en sub- surface au Centre industriel de regroupement, d'entreposage et de stockage (Cirès) à Morvilliers (Aube)	Stockage en surface au Centre de Stockage de l'Aube (CSA) à Soulaines	Loi Bataille du 30/12/1991

Tableau 0 - 1 : Exutoires des déchets nucléaires en France en fonction de leur catégorie.

La filière TFA est vouée à disparaître car les déchets appartenant à cette catégorie sont soit moins radioactifs que la radioactivité naturelle, soit du même ordre de grandeur. Ils ne sont donc pas dangereux ni pour l'homme ni pour l'environnement et cela n'a pas de sens de continuer de les stocker à part alors qu'une grosse partie pourrait être réutilisée sans danger. D'ailleurs, cette filière de déchets n'existe qu'en France.

Aucun exutoire n'existe actuellement pour les déchets HA ou MA-VL. La construction du site CIGEO à Bure à 500 m de profondeur aura cette finalité. Le site doit être réversible sur 100 ans et imperméable sur 100 000 ans. Ainsi, une fois que les déchets auront migrés en dehors des fûts puis du site vers la surface et qu'ils atteindront les nappes phréatiques (et donc la surface), ils ne seront plus dangereux. Les déchets FA-VL, comme le graphite des réacteurs Uranium-Naturel-Graphite-Gaz (UNGG) n'a actuellement aucun exutoire et CIGEO pourrait également servir pour ce type de déchets.

La loi Bataille du 30/12/1991 imposait que des recherches sur la gestion des déchets radioactifs MA-VL et HA soient entreprises. C'est dans ce cadre que CIGEO est né. En effet, les recherches ont été dirigées vers un stockage des déchets en profondeur mais aussi vers la

transmutation et l'incinération des déchets radioactifs. La transmutation (au sens restrictif) est le fait de faire capturer un neutron à un noyau afin de le faire décroître en un autre noyau, stable ou radioactif à vie très courte. Cette technique s'applique aux déchets appelés produits de fission. L'incinération, quant à elle, fait référence au « burn-up » qui mesure l'énergie libérée par le combustible (s'exprime en MWj/t de noyaux lourds initiale). Cette technique implique de faire fissionner les déchets noyaux lourds et s'applique donc aux plutoniums déjà recyclés une première fois dans le combustible MOx et aux actinides mineurs. Les réacteurs de génération IV à neutrons rapides permettraient le mieux cette incinération.

Avant de débattre sur la pertinence de chaque technique étudiée, analysons d'abord l'évolution de la radiotoxicité de différents déchets en fonction du temps grâce à la Figure 0 - 3 qui l'estime. En fixant comme limite raisonnable de non dangerosité des déchets la radiotoxicité de l'uranium naturel, nous pouvons voir que seulement 300 ans sont nécessaires aux produits de fission pour être inférieurs à cette limite. Le processus de transmutation imposant de séparer isotopiquement chaque noyau coûte très cher, justifiant que les recherches sur la transmutation ont été arrêtées. Les actinides mineurs et leurs produits de décroissance mettent, quant à eux, environ 10 000 ans pour être inférieurs à la limite. La nécessité de les faire fissionner afin qu'ils soient radiotoxiques moins longtemps est, selon moi, indiscutable. Cet argument est encore plus fort lorsque l'on constate que la radiotoxicité des plutoniums dure 100 000 ans et est responsable de l'écrasante majorité de la radiotoxicité des déchets après quelques milliers d'années.

On conçoit alors l'importance de trouver une alternative à un stockage aussi long grâce à l'incinération des déchets, réduisant au maximum la durée du stockage pendant laquelle les déchets pourraient être dangereux.



Figure 0 - 3 : Courbes d'estimation de la décroissance de la radiotoxicité des déchets nucléaires en fonction du temps [250].

En ce qui concerne le ²⁴²Pu, des controverses existent à le considérer ou non comme un déchet nucléaire. En effet, les plutoniums ne sont pas séparés isotopiquement à cause de leur forte radiotoxicité. Les plutoniums 239 et 241, noyaux fissiles, sont utilisés une fois dans le combustible MOx des réacteurs nucléaires. Cependant, en sortie de ce recyclage, les plutoniums ne sont pas réutilisés à cause de la dégradation de leur vecteur isotopique (augmentation de la proportion des plutoniums fertiles 238, 240 et 242 et consommation du ²³⁹Pu) qui empêche le multi-recyclage. Dans l'optique de fermer le cycle, les plutoniums sont entreposés en piscine, et non enfermés avec les déchets nucléaires, dans l'attente du développement des réacteurs de génération IV. La définition d'un déchet nucléaire étant une matière nucléaire non valorisable, qu'il soit conservé ou stocké, le ²⁴²Pu peut donc être considéré comme tel après première réutilisation car il n'est actuellement pas valorisable. Si un jour en France le cycle du combustible est fermé, tous les plutoniums deviendront matière nucléaire valorisable et le ²⁴²Pu ne sera indubitablement plus un déchet nucléaire. En attendant que ce jour arrive peut-être, le statut du ²⁴²Pu reste indécis.

Il découle qu'une meilleure alternative au stockage des isotopes du plutonium réside dans leur séparation à des fins de multi-recyclage et/ou à leur utilisation dans des réacteurs à flux rapide pour compenser le caractère fertile des isotopes pairs du plutonium par exemple.

Que ce noyau fissionne dans les réacteurs actuels, futurs ou dans une chambre à fission, la connaissance actuelle de la section efficace de fission du ²⁴²Pu est insuffisante. Le Tableau 0 - 2, issu de [233], (base de la liste High Priority Request List (HPRL)) fournit des incertitudes pour les sections efficaces de capture radiative ou de fission pour différents noyaux ainsi que l'incertitude visée pour améliorer leurs connaissances. On peut noter que l'incertitude du ²⁴²Pu est assez élevée (de 19% à 21%) et est à fortement améliorer (3% à 5% visée).

Noyau cible	Type de réaction	Plage d'énergie du neutron incident (MeV)	Précision actuelle (%)	Précision visée (%)
²³⁸ U σ _γ		2.04 – 24.8 keV	3 – 9	1.5 - 2
²³⁹ Pu	σγ	2–498 keV	7 - 15	4 - 7
²⁴⁰ Pu	σ_{f}	0.498 – 1.35 MeV	6	1.5 - 2
²⁴¹ Pu	$\sigma_{ m f}$	454 eV – 1.35 MeV	8 - 20	2 - 8
²⁴² Pu	$\sigma_{ m f}$	0.498 – 2.23 MeV	19 – 21	3 – 5
^{241}Am	$\sigma_{ m f}$	2.23 - 6.07 MeV	12	3

Tableau 0 - 2 : Sections efficaces dont la précision est à améliorer, précisions actuelles et visées [233], en jaune les données relatives à la section efficace de fission du ²⁴²Pu qui est l'objet de notre démonstration.

Le Tableau 0 - 3, provenant de COMAC (pour Covariance MAtrices Cadarache, bibliothèque de variances-covariances basée sur des évaluations internes CEA ou externes), compare les incertitudes estimées pour les sections efficaces de capture radiative ou de fission du ²³⁹Pu et du ²⁴²Pu pour les différents groupes d'énergie utilisés dans les codes de calculs.

	Energie (eV)		Précision d	u ²³⁹ Pu (%)	Précision du ²⁴² Pu (%)	
Groupe	Litergi	Lifergie (ev)		110 ans)	(T _{1/2} =373 000 ans)	
	Début	Fin	$\Delta\sigma_\gamma$	$\Delta\sigma_{ m f}$	$\Delta\sigma_\gamma$	$\Delta\sigma_{ m f}$
15	1.00E-05	1.00E-01	4.2	0.9	4.0	50.0
14	1.00E-01	5.40E-01	4.3	1.9	3.8	45.5
13	5.40E-01	4.00E+00	3.6	1.1	12.0	15.0
12	4.00E+00	2.26 E+01	7.1	3.1	12.0	15.0
11	2.26 E+01	4.54 E+02	6.5	3.5	12.0	15.0
10	4.54 E+02	2.03 E+03	4.8	3.2	13.0	31.0
9	2.03 E+03	9.12 E+03	2.9	2.0	5.0	40.0
8	9.12 E+03	2.48 E+04	3.4	2.0	2.6	30.0
7	2.48 E+04	6.74 E+04	4.2	1.8	3.0	14.0
6	6.74 E+04	1.83 E+05	3.4	1.9	3.8	7.9
5	1.83 E+05	4.98 E+05	4.1	1.9	8.6	2.7
4	4.98 E+05	13.5 E+06	8.9	1.7	20.2	2.0
3	13.5 E+06	2.23 E+06	13.3	1.4	24.1	2.0
2	2.23 E+06	6.07 E+06	18.5	1.6	39.7	1.9
1	6.07 E+06	1.96 E+07	2.2	2.0	46.1	2.3

Tableau 0 - 3 : Incertitudes des sections efficaces de fission et de captures radiatives du ²³⁹Pu et ²⁴²Pu selon l'estimation COMAC V0 (basé sur BVII.1), en jaune les données relatives à l'incertitude de la section efficace de fission du ²⁴²Pu qui est l'objet de notre démonstration.

On peut noter dans ce tableau la forte différence d'incertitudes entre les sections efficaces d'un noyau fissile (et donc prioritaire) et d'un noyau fertile. La section efficace de fission du ²³⁹Pu est très bien connue sur une large gamme d'énergie (de 0.9 à 3.5% d'incertitudes). Au contraire, le caractère fertile du ²⁴²Pu se ressent dans la très mauvaise précision de la section efficace de fission sous le seuil de fission (voir Figure 0 - 4) (50% à très basse énergie, diminuant jusqu'à 14%). Une fois ce seuil passé, les incertitudes sont du même ordre de grandeur que celles du ²³⁹Pu

En 2008, la section efficace de fission du ²⁴²Pu a été placée sur la HPRL (acronyme de High Priority Request List) [244] entre 200 keV et 20 MeV. Il y a eu depuis un effort important pour de nouvelles mesures mais des divergences entre les différentes mesures perdurent. La section efficace de capture et totale du ²⁴²Pu ont également été ajoutées sur la HPRL dans le domaine des résonances [245] mais seulement deux nouvelles mesures de capture ont été réalisées.

L'ensemble des raisons évoquées ci-dessus constitue un socle de justifications pour une meilleure connaissance de la section efficace de fission du ²⁴²Pu qui s'ajoute à la dynamique de recherche autour de la structure nucléaire en général et dont cette thèse fait partie. La Figure 0 - 4 qui présente cette section efficace illustre la forme observée d'un noyau fertile. Nous pouvons noter la valeur de section efficace faible en dessous du seuil de fission (jusqu'à quelques centaines de keV) et surtout la présence d'une structure visible au franchissement de ce seuil (E_n autour de 1.1 MeV). Nous reviendrons sur ces caractéristiques plus tard dans ce manuscrit.



Figure 0 - 4 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu de 1 eV à 20 MeV. Données de Auchampaugh et al. [102] (courbe noire) et évaluation JEFF3.3 [240] (courbe rose).

Il existe deux façons d'étudier une section efficace : soit expérimentalement (mesure directe ou indirecte), soit théoriquement. Ces deux volets de la physique nucléaire sont tout autant importants et sont complémentaires. En effet, les expériences servent de référence et d'étalon aux calculs théoriques qui doivent reproduire ces mesures. La théorie n'est à l'heure actuelle pas encore assez précise pour prédire avec la précision recherchée (quelques %) toutes les observables nécessaires dans un calcul de réacteur nucléaire. Et la compréhension des observations expérimentales impose des contraintes sur les connaissances théoriques et parfois sur leur support (mesures relatives par exemple). Ces deux disciplines vont donc de pair et seront successivement étudiées au cours de cette thèse.

Afin de mieux comprendre la partie expérimentale, nous allons commencer ce manuscrit par les bases théoriques minimales pour la compréhension de ce sujet conjoint impliquant expérience et théorie dans une collaboration CENBG/CEA. Le premier chapitre sert donc de rappel aux bases théoriques permettant de comprendre tout le travail réalisé dans la deuxième partie chronologique de la thèse. Nous verrons donc la notion de puits de potentiel, d'équilibre statique et dynamique du noyau et d'états d'excitation intrinsèques ainsi que les ingrédients d'un calcul de structure nucléaire par la méthode combinatoire.

Une fois les bases théoriques acquises, nous revisiterons dans le deuxième chapitre la forme expérimentale de la section efficace neutronique en fonction de l'énergie du neutron incident avec le support théorique associé. Nous verrons qu'une section efficace peut être divisée en plusieurs régions énergétiques et qu'un modèle mathématique spécifique à chaque région est plus pertinent pour modéliser la section efficace. Nous appréhenderons ainsi le modèle de la matrice R, et ses approximations, ainsi que le principe du modèle optique. Nous verrons également comment ces différents modèles sont utilisés dans les codes de calculs TALYS et

CONRAD afin de modéliser de façon cohérente la section efficace sur l'ensemble des régions énergétiques. Nous définirons également ce qu'est communément appelé une évaluation, ses forces et ses faiblesses.

Au cours du chapitre 3, nous exposerons nos résultats de modélisation pour chaque domaine énergétique. En réalisant un bilan de la connaissance de la section efficace de fission du ²⁴²Pu, précédemment négligée, nous nous apercevrons que l'approximation utilisée pour l'évaluation dans la Région des Résonances Résolues (RRR) est obsolète, que l'évaluation JEFF3.3 dans la Région des Résonances non Résolues (URR) est perfectible et que l'origine d'une structure importante dans le continuum n'avait pas encore été expliquée. L'objectif de ce travail est donc d'ajouter de la physique à l'évaluation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu. Nous expliciterons ainsi comment identifier les états d'excitation dits de classe II (ceux du puits isomérique de fission) dans le RRR et dans le URR et à les prendre en compte dans l'évaluation. Nous convertirons les paramètres de l'approximation technologiquement obsolète en une approximation moins restrictive. Enfin, nous étudierons l'origine de la structure autour de 1.1 MeV d'énergie neutron jusqu'à présent inconnue. Nous clôturerons cette partie théorique sur la conclusion que des connaissances expérimentales supplémentaires sont impératives, justifiant la partie expérimentale de cette thèse.

La première étape de la partie expérimentale de cette thèse, décrite dans le chapitre 4, sera de rappeler les différentes techniques de mesures. Nous présenterons ainsi les différents accélérateurs de particules qui existent pour la mesure des sections efficaces. Nous comparerons la méthode de mesure par temps de vol et celle par flux de neutrons quasi mono-énergétique. Nous rappellerons ainsi qu'un flux de neutrons se mesure en référence à une autre section efficace. Nous ferons alors le point sur quelles références peuvent être utilisées pour la mesure précise d'une section efficace de fission et réaliserons par la même occasion un état de l'art des mesures de la section efficace de fission du ²⁴²Pu. Nous expliciterons pourquoi nous choisissons la technique des protons de recul, mesure en référence à la section efficace de diffusion du neutron sur l'hydrogène H(n,n)p. Enfin, nous justifierons le développement d'un nouveau détecteur, TPC miniature, en comprenant qu'aucun détecteur existant ne permet de répondre à l'ensemble de nos critères pour réaliser une mesure précise sur la plage d'énergie souhaitée.

C'est dans le 5^e et dernier chapitre que nous détaillerons le développement de ce nouveau détecteur : le Détecteur Gazeux à Protons de Recul (DGPR). Le prototype de ce détecteur avait été développé avant le début de cette thèse. Au cours de la partie expérimentale de ce travail, les conditions de fonctionnement du détecteur ont été investiguées. En effet, il faut connaître quelle pression et quelles tensions de polarisation sont optimales pour son fonctionnement. Différents paramètres sont également accessibles dans le système d'acquisition. Lors du pré-développement réalisé avant cette thèse, le critère impératif de non-sensibilité du détecteur au bruit des électrons (provenant de gamma (γ) ou de neutrons) a été vérifié et validé. Une fois la réponse du détecteur connue, il faut s'assurer que le détecteur répond à un second critère impératif : une efficacité intrinsèque de 100%, confirmant que tout proton qui entre dans le détecteur est détecté. Cette vérification a fait l'objet de la deuxième partie du développement réalisé durant cette thèse.

Dans le dernier volet de ce manuscrit, nous conclurons sur ce travail de thèse et parlerons des perspectives envisageables en physique nucléaire théorique et expérimentale.

Chapitre 1 Bases théoriques

Ce chapitre reprend les bases théoriques de ce travail de thèse sans toutefois le faire de façon exhaustive. Pour cela, le lecteur pourra se reporter aux références indiquées dans chaque partie.

Lorsqu'une particule heurte une cible d'un noyau défini, un certain nombre de réactions nucléaires sont engendrées. En étudiant par spectroscopie neutronique la probabilité que ces réactions se produisent – individuellement ou sans dissociation – en fonction de l'énergie des neutrons incidents, nous pouvons quantifier la valeur de la section efficace se rapportant à la collision particule-noyau. Ces sections efficaces sont nécessaires aux codes de calculs neutroniques pour piloter de manière toujours plus sûre les réacteurs nucléaires de puissance. De par la longue histoire militaire et civile pour la compréhension et le désir d'un contrôle de l'énergie nucléaire, la section efficace neutronique est certainement la mieux connue de toutes.

La physique nucléaire regroupe l'étude du noyau atomique mais aussi la physique de l'interaction particule-noyau et sert donc de base à la neutronique. Il faut néanmoins distinguer la partie structure nucléaire qui qualifie le noyau étudié (formé éventuellement par un moyen quelconque) de la partie interaction nucléaire qui s'intéresse au potentiel créé par la cible et ressenti par la particule incidente. Cette différence de référentiel entre la neutronique (essentiellement paramétrée en fonction du noyau cible décrit par son nombre total de nucléons A) et la structure nucléaire (le système composé formé (SC) A+1 dans le cas d'un neutron incident) doit être soulignée et rappelée pour une meilleure lisibilité des résultats de ce travail. Pour illustration des propos ci-dessus, prenons le cas de notre étude : la réaction de fission induite par neutron sur le plutonium 242 (²⁴²Pu) ; cela signifie que c'est en fait essentiellement la structure nucléaire du ²⁴³Pu qui est impliquée. Mais pour réaliser notre étude, il convient d'abord d'expliciter ce qu'est une réaction nucléaire, quels types de réactions existent et comment elles sont décrites. Pour cela, nous allons rappeler les bases de la structure du noyau. Dans le cas de la réaction de fission, le système composé par l'interaction neutron-noyau cible dispose d'une énergie d'excitation nucléaire U*≈E_n+S_n (avec E_n l'énergie du neutron incident et S_n l'énergie de séparation du premier neutron) qui lui permet de se déformer (essentiellement dans le sens de l'élongation) et éventuellement de se casser (« fissionner ») en deux (fission binaire) ou trois (fission tertiaire) fragments de fission. L'évolution de la structure nucléaire du système composé en fonction de l'élongation sera l'objet de la seconde partie de ce chapitre tandis que sa structure nucléaire dans son état d'équilibre normal (équilibre statique) sera présentée en première partie. Enfin, pour prédire les états d'excitation composant la structure nucléaire, plusieurs modèles existent. Durant ce travail, une méthode « combinatoire », reposant sur la théorie des « quasi-particules » servira de référence aux observations expérimentales. Nous en présenterons les bases.

1.1 Structure nucléaire en équilibre statique du noyau

1.1.1 Réactions nucléaires

Lorsqu'un neutron heurte un noyau cible, de nombreuses réactions peuvent être observées. Le neutron peut simplement « rebondir » ou pénétrer dans le noyau puis ressortir ou en provoquer l'éjection d'un autre neutron. Ces réactions sont dites de diffusion. Si l'énergie cinétique dans le centre de masse est conservée, c'est une diffusion élastique. Sinon, c'est une diffusion inélastique ; le noyau résiduel est temporairement dans un état d'énergie autre que son état fondamental, on dit qu'il est excité. Le noyau peut également absorber le neutron et se désexciter en émettant un ou une cascade de photons gamma (γ) : c'est une capture neutronique radiative. Le noyau peut également se désexciter en émettant une particule si le système composé est dans un état excité supérieur au seuil d'émission de cette particule. Enfin, il peut se déformer puis se scinder en deux fragments (ou plus rarement trois) : c'est la fission induite.

Dans le cas de neutrons ayant une énergie inférieure à quelques MeV, ces réactions nucléaires sont de trois sortes : les réactions directes, semi-directes et à noyau composé.

Les réactions directes et semi-directes sont dominantes au-dessus de 5 MeV d'énergie neutron pour les actinides. Elles existent néanmoins à plus basse énergie. Les réactions directes principales sont la diffusion élastique directe (ou diffusion potentielle, réaction la mieux connue et toujours présente) et les diffusions inélastiques directes. Les réactions semi-directes où seuls quelques nucléons du noyau cible sont excités sont significatives au-dessus de 1 MeV d'énergie d'excitation.

La réaction majoritaire à basse énergie ($E_n < 5 \text{ MeV}$) est du type « noyau composé » (NC). Dans ce cas, l'énergie d'excitation de la collision a été répartie entre tous les nucléons de la cible. Dans le cadre de la théorie du noyau composé énoncée par Niels Bohr [229], l'hypothèse posée implique que le noyau a oublié comment il s'est formé puisque sa durée de vie est supérieure au temps de collision. Les réactions de diffusion élastique ou inélastique peuvent également être de type noyau composé. Au contraire, les réactions de fission ne peuvent avoir lieu qu'au sein du noyau composé (postulat et retours expérimentaux).

Cette dernière réaction fait l'objet de ce travail de thèse. Cette réaction implique un noyau composé oscillant entre sa forme d'équilibre et des formes plus déformées jusqu'à se scinder en deux ou en trois noyaux plus légers – les fragments de fission – avec éjection de photons γ et de neutrons. Il existe deux sortes de fission. Elle peut être spontanée, c'est-à-dire le noyau radioactif se désexcite en fissionnant naturellement. La fission peut également être induite par photon (on parle de photofission) ou par une particule (ici induite par neutron).

La technique d'étude d'une section efficace induite par neutron sur une gamme d'énergie s'appelle la spectroscopie neutronique. Cette dernière ne permet d'avoir accès qu'à certains niveaux au-dessus de l'énergie de liaison de ce neutron dans le système composé et est conditionnée aux nombres quantiques impliqués. Dans la suite, nous rappellerons comment sont construits les nombres quantiques qui caractérisent les états excités dans le puits de potentiel du système composé.

Chapitre 1 : Bases théoriques

1.1.2 Définition des nombres quantiques

Il est difficile de comprendre la structure nucléaire d'un noyau sans faire appel aux nombres quantiques. Communément, nous retrouvons :

- N : nombre quantique principal
- ℓ : nombre quantique azimutal, également appelé moment angulaire orbital
- π : parité du noyau ou de la particule

Soit N un entier naturel décrit par trois degrés de liberté tel que :

$$N = n_x + n_y + n_z \tag{1.01}$$

Pour chaque N, il y a $\frac{(N+1)(N+2)}{2}$ combinaisons. En tenant compte du moment angulaire intrinsèque (ou spin) du nucléon s = $\frac{1}{2}$, la dégénérescence totale d'un niveau est :

$$d_{\rm N} = (2s+1)\frac{({\rm N}+1)({\rm N}+2)}{2} = ({\rm N}+1)({\rm N}+2)$$
(1.02)

Les niveaux d'énergie construits dans l'hypothèse d'un puits de potentiel harmonique (de fréquence d'oscillation ω avec la quantité $\hbar\omega$ introduisant une échelle d'énergie pour le système) sont alors :

$$E_{\rm N} = \left(N + \frac{3}{2}\right)\hbar\omega \tag{1.03}$$

En coordonnées sphérique, on obtient N tel que :

$$N = 2(n-1) + \ell$$
 (1.04)

Avec n le nombre quantique radial et $\ell \leq N$

La dégénérescence en fonction de n et ℓ vaut alors :

$$d_{n,\ell} = 2 * (2\ell + 1) \tag{1.05}$$

On obtient ainsi le nombre de dégénéres cences en fonction de ℓ exprimé dans le Tableau I - 1 :

Chapitre 1 : Bases théoriques

ł	Nombre de dégénérescences	Notation de spectroscopie atomique
0	2	S
1	6	р
2	10	d
3	14	f
4	18	g
5	22	h
6	26	i

Tableau I - 1 : Nombre de dégénérescences en fonction du moment angulaire orbital l

Chaque nucléon possède un moment angulaire orbital « classique » ℓ , un spin i et une parité π . Le moment angulaire total (ou spin total) d'un nucléon est alors donné par la relation $\vec{j} = \vec{\ell} + \vec{i}$. Souhaitant lever la dégénérescence (ou nombre de niveaux de même énergie), nous pouvons exprimer les niveaux d'énergie $E_{n,\ell,j}$ en fonction de la valeur de i qui veut être $+\frac{1}{2}$ ou $-\frac{1}{2}$ tel que : $E_{n,\ell,j} = \ell + \frac{1}{2}$ ou $\ell - \frac{1}{2}$. Ce dernier niveau est toujours d'une énergie supérieure à celle du premier et la dégénérescence d'un niveau est donnée par d_j = 2j + 1.

Le moment intrinsèque total du noyau J, également appelé moment angulaire total ou plus couramment spin total est alors une somme de moments angulaires totaux de tous les nucléons. Sa parité π vaut :

$$\pi = (-1)^{\ell} \tag{1.06}$$

Tous les nucléons d'un noyau se couplent deux par deux pour former des bosons (de spin entier) ayant un spin-parité (J^{π}) valant 0⁺. Ainsi, le J^{π} de l'état fondamental d'un noyau pairpair comme le ²⁴²Pu vaut toujours 0⁺. Pour un noyau impair, le J^{π} est donné par le nucléon restant célibataire.

Lors d'une réaction, il faut alors prendre en compte le spin intrinsèque du projectile, que l'on notera i et le spin de la cible appelé I. Le spin total de la réaction J vaut alors :

$$\vec{\mathcal{J}} = \vec{\ell} + \vec{i} + \vec{l} \tag{1.07}$$

Ou encore avec l'introduction d'un nombre quantique intermédiaire « s » ou spin de voie :

$$\vec{\mathcal{J}} = \vec{\ell} + \vec{s} \tag{1.08}$$

Avec $\vec{\ell}$ le moment angulaire relatif, \vec{i} le spin intrinsèque du projectile et \vec{l} le spin intrinsèque de la cible. Dans le cas d'une réaction induite par neutron, i vaut $\frac{1}{2}$.

L'introduction des nombres quantiques ci-dessus permet de décrire les états excités d'un système nucléaire et plus précisément lors de l'interaction neutron-noyau de prédire les états peuplés en fonction du moment orbital relatif de l'interaction. Ceci permet de calculer également la pénétrabilité de la barrière centrifuge (P_ℓ) associée à ce système. Appliquée au système n + ²⁴²Pu, avec i = $\frac{1}{2}$ et I = 0, nous obtenons une valeur unique du spin de voie $s = \frac{1}{2}$ et

par conséquence, une seule valeur de J pour les ondes « s ». Le Tableau I - 2 retrace les différentes combinaisons à inclure dans un calcul de section efficace. Nous présenterons plus loin (Figure 1 - 5) la manifestation physique de la pénétrabilité centrifuge.

Type d'ondes	ł	$\vec{J} = \vec{\ell} + \vec{s}$	Parité π	Pénétrabilité centrifuge (ℓ)
« S »	0	$\frac{1}{2}$	$(-1)^{\ell} = +$	$P_{\ell=0}=\rho$
« p »	1	$\frac{1}{2};\frac{3}{2}$	-	$\mathbf{P}_{\ell=1} = \frac{\rho^3}{1+\rho^2}$
« d »	2	$\frac{3}{2};\frac{5}{2}$ +		$P_{\ell=2} = \frac{\rho^5}{9+3\rho^2+\rho^4}$
« f »	3	$\frac{5}{2};\frac{7}{2}$	-	$P_{\ell=3} = \frac{\rho^7}{225 + 45\rho^2 + 6\rho^4 + \rho^6}$

Tableau I - 2 : Spin total, parité et pénétrabilité centrifuge (avec $\rho = ka_c$ avec k le nombre d'onde et a_c le rayon de voie [224 *Tableau II A.1]*) en fonction de la valeur du moment angulaire orbital ℓ et du type d'ondes.

Reportons-nous maintenant au puits de potentiel (schématiquement rectangulaire) décrivant le système composé formé dans un état d'excitation U* correspondant soit à un niveau discret soit à un continuum neutronique d'états lors de l'interaction neutronique.

1.1.3 Notions de puits de potentiel et de densité de niveaux

L'énergie d'excitation U* du système composé vaut :

$$U^* = E_n * \frac{A}{A+1} + S_n \tag{1.09}$$

Avec A le nombre de masse du noyau, E_n l'énergie du neutron incident dans le cas d'une spectroscopie neutronique et S_n l'énergie de séparation du premier neutron. Pour les actinides, la correction du centre de masse $\frac{A}{A+1}$ (inférieure au pourcent) est négligeable relativement à la précision des calculs. Pour le système nucléaire ²⁴³Pu, nous considèrerons donc U^{*} $\equiv E_n + S_n$.

Soit E_F , l'énergie de Fermi représentant l'énergie du plus haut état quantique occupé du noyau formé. A cette énergie, on a U* = $E_F \equiv z$ éro.

Le puits de potentiel d'un noyau, en fonction de U*, peut être schématisé comme sur la Figure 1 - 1 :



Figure 1 - 1 : Illustration des niveaux d'énergie pour un noyau de puits de potentiel rectangulaire.

La résolution de l'équation de Schrödinger correspondante à un puits de potentiel donné adresse une série d'états propres, non remplis au-dessus de l'énergie de Fermi et appelés « états d'excitation ».

Sur cette figure, nous pouvons distinguer parmi les états propres les états propres discrets liés occupés : remplis par les nucléons composant le noyau. Cette zone énergétique se termine à l'énergie de Fermi, délimitant les niveaux discrets pleins des niveaux discrets vides. Comme ces deux parties se situent en dessous de S_n , les fonctions d'ondes correspondantes restent localisées dans le puits et les niveaux sont liés. Les états de plus basse énergie composant la partie états discrets vides (ou virtuels) sont appelés communément les « Low Lying Levels » (sur environ 1 MeV pour les actinides).

Au-dessus de S_n , les états sont vides et non liés. La spectroscopie neutronique correspond à une échelle en énergie dont le zéro est à S_n (énergie cinétique du neutron nulle). On peut alors noter que, dans le cas de création d'un noyau composé, celui-ci est toujours formé avec une énergie d'excitation $U^* \ge S_n$. De plus, seuls certains états (dépendant du J^{π}) au-dessus de S_n sont accessibles. Les autres états, au-dessus de l'énergie de Fermi ou de S_n , peuvent être accessibles par spectroscopie photonique ou par la méthode de substitution [235].

La durée de vie (et donc la largeur totale Γ_t) des états répond au principe de Heisenberg ($\Delta E.\Delta t \sim \hbar$). La largeur des états augmente donc avec l'énergie d'excitation U. De même, l'espacement moyen \overline{D} entre deux états diminue avec U.

Les états sont alors considérés comme discrets tant que :

$$\frac{\Gamma_{\rm t}}{\overline{\rm D}} \ll 1 \tag{1.10}$$

Chapitre 1 : Bases théoriques

Lorsque $\frac{\Gamma_t}{\overline{D}}$ devient de l'ordre de 1 ou supérieur à 1, les états ne sont plus distinguables (ou non résolus en énergie) les uns des autres et ne peuvent plus être considérés comme discrets. Comme ils sont trop nombreux par unité d'énergie pour être dissociés, et aussi pour des raisons pratiques et statistiques, ils sont regroupés par bin d'énergie ΔE . On peut alors introduire les termes de « continuum » et de « densité de niveaux ». La densité est ainsi décrite par le nombre d'états ΔN par unité d'énergie : $d = \frac{\Delta N}{\Delta E}$.

Au cours de ce travail de thèse, nous avons étudié la section efficace de fission du ²⁴²Pu induite par neutron. Le noyau composé correspondant est donc le ²⁴³Pu. L'énergie de séparation du premier neutron S_n compilée dans la littérature [223] est : S_n = 5.034 MeV. Il est ainsi possible de représenter les niveaux d'énergie impliqués dans la création et la désexcitation d'un noyau composé faisant suite à l'interaction neutronique, comme sur la Figure 1 - 2 :



Figure 1 - 2 : Vue schématique des niveaux d'énergie pour une interaction neutron-²⁴²Pu.

La Figure 1 - 2 permet de visualiser le zéro en énergie du neutron correspondant au S_n dans le noyau composé, ainsi que la création du ²⁴³Pu dans un état d'excitation supérieur à S_n . Une fois le système composé formé, il peut directement fissionner, c'est la fission de première chance. Si l'énergie du neutron incident est suffisante (E_n approchant S_n du noyau résiduel), le noyau peut alors émettre un neutron avant de fissionner, c'est la fission de seconde chance. Ce
processus peut ensuite se faire en émettant deux neutrons ou trois etc. à condition à chaque fois que l'énergie du neutron incident franchisse le seuil d'émission neutronique.

Maintenant que nous avons introduit la notion de structure nucléaire en équilibre statique du noyau, étudions plus particulièrement son évolution au cours du processus de fission avec la déformation du noyau composé dans le sens de l'élongation.

1.2 Structure nucléaire en déformation

Lorsque le noyau composé formé fissionne, il passe tout d'abord par un stade de déformation multidimensionnelle, avec comme déformation principale l'élongation. Il est possible d'expliquer ce phénomène grâce au modèle de la goutte liquide [228]. Ce modèle, dont l'origine provient de la formule semi-empirique de Bethe-Weizsacker, décrit l'énergie de liaison E_B du noyau sphérique de masse A et de protons Z comme suit [230] :

$$E_{\rm B} = a_{\rm v}A - a_{\rm s}A^{\frac{2}{3}} - a_{\rm c}\frac{Z^2}{A^{\frac{1}{3}}} - a_{\rm a}\frac{({\rm N}-Z)^2}{A} \pm a_{\rm p}A^{-\frac{1}{2}}$$
(1.11)

Avec a_v , a_s , a_c , a_a et a_p les constantes respectives de volume, de surface, de Coulomb, d'asymétrie et d'appariement.

Lorsqu'un noyau sphérique se déforme, l'énergie de surface résiste à la déformation tandis que l'action de l'énergie coulombienne est opposée. Lorsque l'énergie de Coulomb E_c est telle que les forces coulombiennes deviennent supérieures aux forces de surface ($E_c > 2E_s$), alors la goutte liquide se déforme en s'allongeant jusqu'à ce que le noyau fissionne. Le paramètre de fissibilité normalisé *x* exprime le rapport de l'énergie de Coulomb sur l'énergie de surface. Ceci permet de connaître l'élongation à laquelle cette instabilité commence [228] (plus *x* est petit, plus l'élongation doit être grande) :

$$x = \frac{E_{c}}{2E_{s}} = \frac{-a_{c}\frac{Z^{2}}{1}}{-\frac{A^{3}}{2a_{s}}A^{\frac{2}{3}}} = \frac{a_{c}}{2a_{s}}\frac{Z^{2}}{A}$$
(1.12)

Lorsque $\frac{2a_s}{a_c} = \left(\frac{Z^2}{A}\right)_{crit}$, alors x = 1, la sphère est dans un équilibre instable.

Il est ainsi commun de représenter le puits de potentiel du système composé en fonction de la déformation principale qui est l'élongation avec en abscisse l'élongation et en ordonnée l'énergie potentielle de déformation. Cette représentation est disponible Figure 1 - 3.



A.Bohr transition states on top of each barrier hump A and B

Figure 1 - 3 : Puits de potentiel du noyau composé fissionnant en fonction de son élongation (ɛ) (figure extraite de [221]).

Sur cette figure unidimensionnelle, on peut observer que le minimum de potentiel du noyau varie en fonction de sa déformation illustrée avec des formes paraboliques (les puits) ou inversement paraboliques (les bosses). Ce chemin d'élongation contient ici deux puits et deux bosses : c'est la courbe en dos de chameau bien connue après le travail de Strutinsky [225]. Nommément, la barrière fondamentale de fission du noyau contenant deux points-selles, notés (A) et (B), apparaît.

Le premier puits de fission est le puits d'équilibre classique (noyau statique) et correspond à un noyau non sphérique (légèrement sphéroïde, déformation $\varepsilon_1 = 0.2$ (unité arbitraire) [226]). Pour rappel, l'énergie d'excitation zéro (le point de zéro vibration $E_0 = (n + \frac{1}{2}\hbar\omega)$ avec n = 0) ne correspond pas au fond du puits mais à l'harmonique $\frac{1}{2}\hbar\omega$. Les états d'excitation dont la fonction d'onde est localisée principalement dans ce puits sont appelés, en théorie de la fission, états de classe I [222]. Ces états sont observés jusqu'à approximativement 1 MeV pour les actinides grâce notamment à la spectroscopie gamma.

Le potentiel du noyau fait ensuite apparaître une première bosse, appelée par abus de langage première barrière de fission, correspondant à une déformation du noyau d'environ 0.5. Sa hauteur sera notée V_A et sa courbure $\hbar\omega_A$. Au-dessus de cette première barrière fondamentale, des états d'excitation intrinsèques appelés états de transition ou états de Aage Bohr [227] sont disponibles.

Lorsque le noyau atteint une déformation de 0.6-0.7, un deuxième puits d'équilibre instable apparaît. Lorsque la déformation du noyau correspond au deuxième puits et plus particulièrement à son état fondamental, nous parlons d'isomère de fission avec sa décroissance naturelle : la fission spontanée. L'énergie du fond de ce puits dépend du noyau étudié et est couramment notée E_{II} . Les états d'excitation localisés dans ce puits sont donc appelés états de

classe II. Ces états sont exclusifs à la réaction de fission. Nos connaissances de l'état fondamental de ce puits sont largement soutenues par la mesure de la fission spontanée.

Enfin, le potentiel du noyau pour une déformation d'environ 0.8 fait apparaître une deuxième bosse, appelée aussi par abus de langage deuxième barrière de fission. Sa hauteur sera notée V_B et sa courbure $\hbar\omega_B$. Au-dessus de cette seconde barrière fondamentale, les états d'excitation intrinsèques présents sont appelés états de transition de la deuxième barrière.

Les actinides légers tels que le thorium présentent un troisième puits de fission avec une troisième bosse [222]. Ce n'est cependant pas le cas des plutoniums. Pour fissionner, le noyau doit se déformer pour franchir la barrière de fission, c'est-à-dire les deux bosses. Par la suite, nous parlerons du puits fondamental ou premier puits de fission, de la première barrière de fission, du deuxième puits de fission et de la deuxième barrière de fission et le terme « la barrière de fission » fera référence à l'ensemble des puits et bosses.

L'analyse des mesures de fission depuis A. Bohr a donné accès à certaines caractéristiques des états de transition de basse énergie d'excitation. Néanmoins, la connaissance exhaustive de celles-ci repose principalement sur la théorie.

Pour le ²⁴³Pu, des valeurs empiriques (Maslov-RIPL-3) et des valeurs théoriques (Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) RIPL-3 par exemple) sont disponibles pour ces paramètres [223]. Celles-ci sont à comparer à des valeurs ajustées récemment par matrice R [221]. Le Tableau I - 3 suivant permet de quantifier l'importance du modèle.

Paramètres (MeV)	Maslov- RIPL-3 (empirique ajusté) [223]	Hartree- Fock- Bogoliubov [223]	Macro- micro Möller [226]	Bouland et al R-matrice ajustée [221]	Bjornholm et Lynn [222]
VA	6.05	6.47	6.65	5.83	5.9 ± 0.2
ħω _A	0.70	0.72		0.85	0.8
VB	5.45	5.80	6.38	5.48	5.2 ± 0.2
ħω _B	0.50	0.46		0.5	0.52
E _{II}		1.53			1.7 ± 0.3

Tableau I - 3 : Différentes valeurs dans la littérature des hauteurs et courbures des barrières de fission ainsi que de l'énergie du deuxième puits de fission du ²⁴³Pu composé.

Quelle que soit la méthode, nous pouvons noter que pour le ²⁴³Pu, la barrière la plus haute est la première barrière. L'évolution des hauteurs des barrières pour la famille des plutoniums est visible sur la Figure 1 - 4 (figure 7 de [221]).



Figure 1 - 4 : Evolution des hauteurs des barrières pour la famille des plutoniums (figure reprise de [221], figure 7).

Pour le noyau ²⁴³Pu qui nous intéresse, en comparant les hauteurs des barrières de fission avec l'énergie S_n (5.034 MeV), nous remarquons que cette dernière est inférieure aux hauteurs des deux barrières. Cela signifie que pour une ouverture large de la fission, en mettant de côté l'effet tunnel, l'énergie du neutron incident doit être supérieure à la différence d'énergie entre la barrière la plus haute et S_n . Cela conduit à un seuil de fission de première chance au-delà de S_n et classe le noyau dans la catégorie des noyaux fertiles. Les noyaux fissiles, utilisés pour la production d'électricité par fission nucléaire thermique, ont par contre leur énergie S_n largement supérieure aux hauteurs des deux barrières ($S_n \sim V_f + 1$ MeV). Ainsi, essentiellement l'énergie apportée par le neutron incident par référence à S_n est efficace pour faire fissionner le noyau composé formé. Cela explique en partie l'utilisation de neutrons thermiques dans les réacteurs de puissance communément développés dans le monde (en France, réacteurs de type REP).

Dans une représentation à deux puits et deux bosses de la barrière de fission, chaque état de transition présent au sommet des bosses augmente la probabilité de franchir (pénétrer) la barrière globale à partie d'un noyau composé formé dans un état d'excitation du puits I. La présence dans le deuxième puits de fission d'un état d'excitation d'énergie voisine a pour effet d'amplifier localement (en énergie) cette probabilité. Ainsi, à une énergie donnée, la largeur totale de fission Γ_f peut s'exprimer en fonction de la pénétrabilité de la barrière totale P_f (barrière de fission) et de la largeur de fission réduite γ_f (ou amplitude de fission) selon [204, équation (3.27)] :

$$\Gamma_{\rm f} = 2P_{\rm f} * \gamma_{\rm f}^2 \tag{1.13}$$

Chapitre 1 : Bases théoriques

Nous rappelons que « γ_f » est le paramètre fondamental de la matrice R (voir chapitre 2.1.2). Ce dernier n'est pas tabulé dans les évaluations, au contraire de la largeur observée (Γ_f) historiquement reconnue par les expérimentateurs (le facteur 2 est conventionnel en matrice R).

Pour exprimer le facteur de pénétrabilité, il existe deux approches éventuellement complémentaires mais chacune incomplète : une pénétrabilité globale moyenne de la barrière de type $P_F = \frac{P_A P_B}{P_A + P_B}$ avec $P_{f = A \text{ ou } B}$ approximée par la formule de Hill-Wheeler [231] et l'approximation de type Lorentzienne [204], équation (3.50) qui reproduit l'effet d'une barrière propre à un état d'excitation et conjointement l'effet d'un état de classe II associé.

Hill et Wheeler [231] ont approximé le comportement d'une barrière à une bosse par une forme parabolique pour établir la formule suivante (1.14) :

$$P_{f} = \frac{1}{1 + e^{-2\pi \frac{(E_{x} - V_{f} - \varepsilon_{i})}{\hbar\omega}}}$$
(1.14)

Avec P_f la pénétrabilité d'une barrière simple, $E_x = S_n + E_n$ l'énergie d'excitation, V_f la hauteur de la barrière fondamentale (i.e. le point de zéro vibration), ε_i l'énergie intrinsèque de l'état de transition (par rapport à V_f) et $\hbar\omega$ la courbure de la barrière correspondante à l'état d'excitation i de la barrière de fission.

L'approximation d'une pénétrabilité de la barrière de fission de type Lorentzien (1.15), telle que proposée par le code CONRAD, est une approche pratique pour reproduire de façon satisfaisante le pic de la résonance de classe II. Les ailes de cette dernière ainsi que le niveau moyen de la barrière dans son intégralité sont assurés par un paramètre additionnel de bruit de fond. Ce dernier, implémenté récemment dans CONRAD, n'a pas été utilisé pour notre étude du RRR.

$$P_{\text{CII}} = \frac{\frac{\sigma_{\text{CII}}\Gamma_{\text{CII}}^2}{4}}{(E - E_{\text{CII}})^2 + \frac{\Gamma_{\text{CII}}^2}{4}}$$
(1.15)

Avec E_{CII} l'énergie de l'état de classe II, Γ_{CII} la largeur de cet état et σ_{CII} l'amplitude de l'état au pic de la résonance.

Enfin, lors de l'étude d'une section efficace avec une spectroscopie neutronique, seuls certains niveaux sont peuplés en fonction de l'énergie du neutron. La simulation des seuils spectroscopiques (ondes s, p, d) a été faite à l'aide du logiciel AVXSF [221]. La Figure 1 - 5 propose l'estimation de l'impact de la barrière centrifuge en fonction de l'énergie du neutron incident et du moment orbital relatif ℓ .

Chapitre 1 : Bases théoriques



*Figure 1 - 5 : Section efficace de fission du*²⁴²*Pu dépendant du* J^{π} *en fonction de l'énergie du neutron incident.*

Cette figure illustre la dépendance en J^{π} de la section efficace de fission. Celle-ci est donc la somme des contributions de chaque valeur des ondes J^{π} . En effet, le neutron incident ne peut atteindre que certains états d'excitation en fonction de son énergie. Ce nombre d'états augmente naturellement avec l'énergie du neutron. Ainsi, en dessous de 700 eV, seules les voies « s » peuvent être considérées comme ouvertes (disponibles dès S_n). Ensuite, les voies « p » s'ouvrent au-dessus de 700 eV. Enfin, les voies « d » s'ouvrent à partir de 20 keV. Pour les besoins de ce travail, cette étude n'a pas été poussée au-dessus de 100 keV. Le Tableau I - 2 précédent rappelle les J^{π} formés en fonction du ℓ .

Afin d'avoir un soutien théorique à notre observation, nous avons utilisé le code AVXSF-LNG (AVerage CROSS Section Fission - Lynn and Next Generation, [221, 235]) afin de modéliser les états d'excitation dans le puits d'équilibre normal (puits I), le puits isomérique de fission (puits II) ainsi que pour les états de transition des deux bosses (barrières). Ce code repose sur une méthode de combinatoire macro-microscopique.

1.3 <u>Densité de niveaux macro-microscopique par</u> <u>combinatoire</u>

Pour prédire les états d'excitation individuels, la méthode la plus courante est le modèle d'excitation particule-trou. Dans ce cas-là, une particule localisée sous l'énergie de Fermi est placée lors d'une excitation dans un état d'excitation au-dessus de cette énergie en laissant une orbite vide à sa place précédente (représentée par la flèche présente sur la Figure 1 - 1). Une variante à ce modèle passe par le concept de quasi-particules. Ce concept est le point de départ de la théorie du liquide de Fermi [236]. Dans ce liquide, les excitations élémentaires (quasiparticules et quasi-trous) sont en correspondance directe avec les excitations (particules ou trous) d'un gaz idéal de Fermi. Les propriétés intrinsèques des quasi-particules sont choisies de façon à représenter les effets des corrélations entre particules (nucléons) et une seule configuration simple quasi-particule représente un sous ensemble de très nombreuses configurations du modèle en couches. Les quasi-particules sont construites rigoureusement à partir des opérateurs création et annihilation du modèle en couches appliqués sur l'état fondamental (dit « état du vide ») du système nucléaire. Cet état fondamental est aussi décrit sous le nom de « mer de Fermi ». L'approche du module « Quasi Particle Vibrational Rotational Level Density » (QPVRLD) du code AVXSF [221] (dont les développements récents ont été réalisés au CEA dans le groupe LEPh par O. Bouland) n'impose pas l'utilisation de ces opérateurs mais reprend le concept de quasi-particule et notamment l'équation (1.16) décrivant l'énergie d'excitation de la quasi-particule. Le spectre nucléaire est donc pour partie expliqué en termes d'un petit nombre de configurations de quasi-particules. Ce spectre est complété d'excitations collectives ajustées pour donner le spectre final.

L'énergie d'excitation de la quasi-particule v résultant d'une brisure de paire de nucléons va être calculée selon (1.16):

$$E_{\nu}^{\text{exc}} = \sqrt{(e_{\nu} - \lambda)^2 + \Delta^2} \tag{1.16}$$

avec e_v l'énergie de la simple-particule appariée (un neutron ou un proton) sur l'orbite v d'un état de Nilsson [226], λ jouant le rôle de l'énergie de Fermi et Δ , l'énergie d'une paire de nucléons.

L'équation (1.16) montre que dans le cas où une particule est présente sur une orbite remplie e_v très proche de l'énergie de Fermi ($e_v - \lambda \sim 0$), l'énergie d'excitation d'une paire de quasiparticules est $2E_v^{exc}=2\Delta$. C'est l'énergie nécessaire pour briser une paire de particules appariées de la mer de Fermi et créer deux quasi-particules non appariées sur une orbite au-dessus de la mer de Fermi. Il n'y aura donc pas d'excitation individuelle en dessous de U = $2\Delta_{n \text{ ou } p}$ pour les noyaux pair-pair (e-e). La spectroscopie γ du puits I au fil des années a montré la présence d'autres formes d'excitations pour les noyaux e-e à basse énergie : les excitations collectives (ou excitation de nucléons du noyau de façon cohérente).

En ce qui concerne les excitations individuelles (excitations de quasi-particules), le programme procède par une méthode combinatoire en brisant pour les noyaux e-e une paire de particules, puis une deuxième, puis une troisième etc. Les neutrons et les protons sont

Chapitre 1 : Bases théoriques

considérés indépendamment (i.e. chacun dans un puits rempli jusqu'à E_F avec le nombre d'orbitales remplies deux par deux telles que $N_{E_{F_n}} \equiv \frac{A-Z}{2}$ et $N_{E_{F_p}} \equiv \frac{Z}{2}$.

Le nombre de configurations (i.e. d'assemblage de quasi-particules non appariées) est de 10 dans le programme et est adapté au caractère e-e, e-o (pair-impair), o-e (impair-pair) et o-o (impair-impair) du noyau. Dans le cas d'un noyau impair en nucléons, qui a donc une quasi-particule célibataire sur la dernière orbite remplie, il y aura des états d'excitation de type simple quasi-particule immédiatement au-dessus de l'énergie de Fermi. La configuration de l'état fondamental correspond alors à un état simple quasi-particule noté {0P-1N} ou {1P-0N} respectivement pour un noyau impair en neutrons ou impair en protons. Le module QPVRLD fonctionne ainsi avec 10 configurations. Les configurations construites pour un noyau pair-pair (comme le ²⁴²Pu) et un noyau pair-impair (comme le ²⁴³Pu) sont données dans le Tableau I - 4.

Configurations	Noyau	pair-pair	Noyau pair-impair		
Configurations	Quasi-protons	Quasi-neutrons	Quasi-protons	Quasi-neutrons	
Etat fondamental	0	0	0	1	
Driguras da nairas y	0	2	0	3	
Brisures de paires :	2	0	2	1	
particules non appariées	2	2	2	3	
	0	4	0	5	
	2	4	2	5	

Tableau I - 4 : Exemples de configurations d'excitations individuelles.

Pour prédire l'ensemble des états d'excitation (individuels et collectifs), le code AVXSF-LNG procède de la façon suivante :

- 1- Génération des excitations collectives. Pour réaliser ces calculs, le code se base sur les valeurs des phonons correspondant aux vibrations collectives élémentaires. Pour cela, les données d'entrée attendues sont le 0β zéro vibration (β représentant l'élongation du noyau), sa première harmonique 1β h ω (avec h ω la courbure du puits impliqué), le bending (correspondant au mouvement de respiration du noyau selon l'image des ailes de papillon), le triaxe γ représentant une déformation plus importante d'un côté que de l'autre dans le sens perpendiculaire à l'élongation et l'asymétrie de masse.
- 2- Génération des excitations individuelles sur la base théorique des quasi-particules.
- 3- Couplage des excitations collectives par combinatoire.
- 4- Couplage des excitations collectives et individuelles par combinatoire pour former des états dits « tête de bande ».
- 5- En raison de la déformation (moment d'inertie non nul) à laquelle est réalisé le calcul, génération du spectre de rotation correspondant.

Pour créer les spectres de rotation, le programme AVXSF utilise la formule classique (1.17) donnant l'énergie de chaque état de rotation par rapport à l'énergie de la tête de bande en fonction du spin de l'état tête de bande K (avec K la projection de J sur l'axe de l'élongation), et de I, le moment d'inertie dépendant de la déformation (selon [221]) :

$$E_{\rm rot} = \frac{\hbar^2}{2I} \{ J(J+1) - K(K+1) \}$$
(1.17)

Chapitre 1 : Bases théoriques

Avec $\frac{\hbar^2}{2I}$ la constante de bande rotationnelle.

Sur la base d'une séquence de 20J par pas de 1 en partant de J = 0 (noyau e-e) ou $J = \frac{1}{2}$ (autres noyaux), on peut déterminer tous les états de la séquence de rotation associés à la tête de bande K.

$$J^{\pi} = \begin{cases} K^{\pi}, (K+1)^{\pi}, (K+2)^{\pi}, \dots & \text{pour } K \neq 0\\ 0^{+}, 2^{+}, 4^{+}, \dots & \text{pour } K = 0^{+}\\ 1^{-}, 3^{-}, 5^{-}, \dots & \text{pour } K = 0^{-} \end{cases}$$

Le Tableau II de la référence [237] copié ci-dessous donne la valeur des phonons évalués des états collectifs en fonction de la déformation. Plus précisément, ces valeurs sont données pour une déformation correspondant soit au premier puits (I), soit à la première bosse (A), soit au deuxième puits (II) soit à la deuxième bosse (B) dans le cadre d'un noyau fissionnant présentant une double barrière de fission comme le ²⁴³Pu*.

En dehors de la valeur de la constante rotationnelle évaluée à 6.5, 3.33, 3.5 et 2.5 keV [237] respectivement pour ces quatre déformations impliquant un tassement du spectre de rotation avec l'accroissement de la déformation, on constate que les énergies des tête de bande pour un noyau donné sont proches entre le puits I et le puits II et que la séquence d'états d'excitation à la première bosse sera marquée par sa triaxialité ($E_{phonique} \approx 150 \text{ keV}$), tandis que celle à la deuxième bosse le sera par son asymétrie de masse ($E_{phonique} \approx 100 \text{ keV}$). Ceci gouverne la partie spectre collectif de la séquence finale et la pente de la densité de niveaux.

Character	K^{π}	J^{π} (rotation)	$E^{\rm int}(\beta_{\rm I})$	$E^{\rm int}(\beta_A)$	$E^{\rm int}(\beta_{\rm II})$	$E^{\rm int}(\beta_B)$	Γ_{VD_0}
Nil (ground)	0^{+}	$2^+, 4^+, 6^+, \ldots$	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1
Octupole (mass asymmetry)	0-	$1^{-}, 3^{-}, 5^{-}, \ldots$	0.597	0.7	0.6	0.1	0.1
Octupole (bending)	1-	$2^{-}, 3^{-}, 4^{-}, \ldots$	0.94	0.8	0.65	0.55	0.2
γ	2+	$3^+, 4^+, 5^+, \ldots$	1.14	0.15	0.8	0.8	0.2
Mass asymmetry + bending	1+	$2^+, 3^+, 4^+, \ldots$	1.56	1.15	1.35	1.0	0.3
Mass asymmetry $+ \gamma$	2-	3-,4-,5-,	1.56	0.85	1.4	0.9	0.3
2γ	0^{+}	$2^+, 4^+, 6^+, \ldots$		0.45	1.6	1.5	0.3
2γ	4+	$5^+, 6^+, 7^+, \ldots$		0.37	1.6	1.7	0.3
Two quasiparticle	0-	$1^{-}, 2^{-}, 3^{-}, \ldots$		1.74	1.45	1.74	0.4

Tableau I - 5 : Propriétés des états collectifs assumés dans la détermination des spectres de niveaux pour le chemin de fission. Table II de [237].

1.4 Conclusion du chapitre

Au cours de ce chapitre, nous avons vu les bases théoriques nécessaires à la compréhension du travail réalisé pendant cette thèse. Lorsqu'un noyau subit une interaction nucléaire par une particule, plusieurs types de réactions nucléaires peuvent avoir lieu. En ce qui concerne la fission, il y a nécessité de création d'un noyau composé. Le noyau formé a alors partiellement oublié comment il s'est formé. Pour étudier la section efficace de fission induite du ²⁴²Pu, il faut alors étudier le noyau composé ²⁴³Pu.

Le noyau peut être schématisé par un puits de potentiel rectangulaire contenant des états d'excitation virtuels. Chaque état est caractérisé par son énergie ainsi que par ses spin et parité J^{π} . L'espacement entre chaque état diminue avec l'énergie alors que leur largeur augmente inversement proportionnellement à leur durée de vie. Ainsi, les états vont petit à petit se recouvrir jusqu'à ce qu'ils ne soient plus discernables les uns des autres.

Lorsque l'on étudie la fission, l'énergie potentielle du noyau varie essentiellement en fonction de l'élongation de ce noyau. La surface d'énergie équipotentielle du noyau, ou plus pragmatiquement en une dimension la courbe d'énergie potentielle fait apparaître deux puits de potentiel et deux bosses. Communément, on parlera de puits fondamental, comprenant des états de classe I, de la première barrière de fission, au-dessus de laquelle se situent des états d'excitation dits de transition, du deuxième puits de fission, comprenant des états de classe II et de la deuxième barrière de fission avec aussi des états de transition. Pour fissionner, le noyau doit disposer d'une énergie d'excitation suffisante pour franchir les deux barrières de fission (par effet tunnel si l'énergie est inférieure à celle de la barrière considérée). Chaque état d'excitation sert de « tremplin » à la fission, augmentant localement, en ce qui concerne les états de classe II, la probabilité de franchir la barrière. Pour prendre en compte cette augmentation pour chaque barrière et pour les états de classe II, nous disposons de formules approchées ainsi que de la pénétrabilité Lorentzienne implémentée dans le code CONRAD. Au cours de sa thèse, P. Tamagno [204] a redémontré la pertinence d'une Lorenztienne pour simuler l'effet d'un classe II dans la section efficace de fission.

Dans chaque puits et au-dessus de chaque barrière se trouvent des états d'excitation qui peuvent être prédits grâce aux méthodes combinatoires, par exemple, celle développée par S. Goriely, S. Hilaire et A.J. Koning [238]. Au cours de ce travail de thèse, le code AVXSF-LNG, qui utilise cette technique, sera fréquemment utilisé pour prédire les états et servira de référence pour l'étude de la section efficace de fission. Maintenant que nous avons vu les bases théoriques nécessaires à la compréhension de ce travail, plongeons-nous dans le concept de section efficace et de sa modélisation dans le cadre d'une « évaluation ».

Chapitre 1 : Bases théoriques

La section efficace ($\sigma(E)$), plus souvent dénommée fonction d'excitation pour les réactions à seuil au-dessus de S_n, représente la probabilité qu'une interaction entre une particule et un noyau cible ait lieu en fonction de l'énergie de la particule (noyau cible au repos hormis effet Doppler). La section efficace représente qualitativement la surface effective du noyau « vue » par la particule et s'exprime en barn, 1 barn valant 10⁻²⁴ cm². Prenons l'exemple de la neutronique avec un neutron comme particule incidente. La probabilité que ce neutron interagisse avec le noyau-cible en fonction de l'énergie de ce neutron est mesurée par sa section efficace totale. Cette dernière, pour un noyau, ne dépend que de la voie d'entrée, ici le neutron, et détermine le flux neutronique à répartir entre toutes les voies de sortie possibles. Lorsque l'on s'intéresse à une voie de sortie particulière, on parle alors de section efficace partielle. Il existe de nombreux types de réactions partielles, comme la diffusion élastique, la diffusion inélastique, la capture radiative, la fission, l'émission d'une particule légère etc. Dans cette thèse, nous nous focalisons sur la section efficace de fission du ²⁴²Pu.

Pour appréhender une réaction au travers de sa section efficace, on peut simplement la mesurer ou l'étudier théoriquement mais l'analyse théorique requière toujours un étalon de mesure.

On observe visuellement quatre régions en énergie pour une section efficace neutronique. Tout d'abord, à basse énergie, en dessous de la première résonance, la région thermique : une section efficace monotone de pente 1/v (désexcitation radiative ou fission), ou constante (diffusion potentielle) est observée. Quand l'énergie augmente, la section efficace présente alors de fortes fluctuations localisées. Ces variations, manifestation d'états excités du noyau composite formé, sont appelées résonances. Cette région des résonances résolues en énergie (RRR) s'étend pour les actinides d'environ 0.5 eV d'énergie neutron à un maximum de quelques keV. L'espacement entre deux résonances diminue jusqu'à ce que ces dernières deviennent indiscernables. La forme de la section efficace devient alors plus confuse. C'est la région des résonances dites non résolues en énergie (URR, acronyme de Unresolved Resonance Range). Enfin, à partir de quelques dizaines à centaines de keV, la section efficace devient monotone, c'est le continuum dit neutronique. La limite entre chaque région (thermique – RRR – URR – continuum neutronique) est arbitraire et dépend uniquement de la résolution énergétique expérimentale permettant de dissocier ou non les résonances et du choix de l'analyste.

Pour formaliser ces trois dernières régions de manière théorique, des modèles sont alors pratiqués et implémentés dans des codes de calculs pour reproduire la section efficace mesurée. Dans le domaine du RRR, c'est une approximation de la théorie de la matrice R qui est couramment utilisée. Dans l'URR, la partie noyau composé est décrite par la théorie de Hauser-Feshbach [216] tandis que la matrice R moyenne ou le modèle optique décrivent la section efficace totale. Enfin, pour le continuum, le modèle optique conjointement à la théorie de Hauser-Feshbach [216] reste la référence consensuelle.

Cette reproduction par modèles basée sur des mesures s'appelle familièrement « évaluation ». Dans le cadre de la section efficace de fission, l'évaluation inclue communément les états du premier puits de la barrière de fission (fondamental) mais les états du deuxième puits de fission ne sont pas décrits explicitement. Mon travail dans le RRR et dans l'URR a donc pour but notamment d'intégrer la modélisation des états du deuxième puits de fission dans l'évaluation des sections efficaces neutroniques des actinides en travaillant sur la section efficace observée de fission du ²⁴²Pu, cible fertile.

Dans ce chapitre, nous allons tout d'abord reprendre à la modélisation d'une section efficace dans le RRR. Nous étudierons ensuite la modélisation dans le URR puis dans le continuum. Enfin, nous donnerons la pratique de l'évaluation.

2.1 Modélisation dans le domaine des résonances résolues

Pour les énergies neutron les plus basses, d'environ 0.5 eV jusqu'à un maximum de quelques keV, la section efficace couvre la région des résonances résolues, que nous appellerons en abrégé le RRR. Le formalisme utilisé pour reproduire la section efficace à basse énergie est la théorie de la matrice R. Plusieurs modèles approximant ce formalisme mathématiquement exact existent. Ce travail a reposé sur l'approximation Multi-Niveaux de Breit et Wigner, appelé MLBW pour Multi-Level Breit Wigner (dans sa formulation ENDF) et celle de Reich-Moore. Ces modèles ont été implémentés au fil du temps dans les codes de calculs pour reproduire les sections efficaces mesurées. Au cours de cette étude, nous avons choisi d'utiliser le code maison CONRAD [239], code développé par le CEA/SPRC. Bien sûr, des codes concurrents plus anciens existent avec notamment le code SAMMY développé à Oak Ridge National Laboratory [224].

Nous allons donc d'abord reprendre la description du RRR. Nous nous intéresserons ensuite au formalisme exhaustif de la matrice R en éclaircissant son principe puis en s'intéressant aux différents niveaux d'approximations appliquées à cette théorie. Enfin, nous démystifierons le code CONRAD ainsi que commenterons brièvement son utilisation.

2.1.1 Domaine énergétique couvrant le RRR

En préambule, rappelons quelques notions que nous avons vues dans le chapitre I. Un noyau lourd excité par capture d'un neutron vibre autour de sa position d'équilibre et peut éventuellement se déformer. En représentant l'énergie potentielle du noyau en fonction de sa déformation, une barrière avec deux maximaux (bosses) apparait couramment. Par abus de langage, le terme « maximum » est remplacé par « barrière » tandis que la barrière globale contient deux puits (I et II) et ses barrières individuelles (A et B). Le premier minimum détermine la localisation du premier puits (ou puits fondamental). Le premier maximum est dénommé première barrière. Entre les deux maximas, nous parlerons de second puits, avec comme fond de puits le second minimum. Enfin le second maximum qualifie la deuxième barrière. Afin qu'aucune ambiguïté ne soit faite par la suite, nous garderons ces appellations. A l'intérieur de chaque puits et au-dessus de chaque barrière se développent des états d'excitation en fonction d'une déformation donnée du noyau. A l'intérieur du puits fondamental, nous dénommerons ces états excités « états de classe I » ou simplement « classe I ». A l'intérieur du second puits, nous nommerons ces états « états de classe II » ou plus simplement « classe II ». Enfin les états au-dessus de chaque barrière sont dénommés « états de transition de la

première/deuxième barrière ». Rappelons également que 0 eV d'énergie neutron est équivalent dans le noyau composite à l'énergie d'excitation S_n , soit 5.034 MeV pour le ²⁴³Pu. Notre référence dans ce manuscrit sera l'énergie cinétique du neutron (sauf indication contraire).

Dans la région du RRR, de fortes fluctuations locales sont observées, avec des pics et des creux. Chaque pic s'appelle logiquement « résonance » puisque l'énergie du neutron est exactement égale à une énergie d'un état excité du système composé (neutron-noyau). Plus l'énergie du neutron diminue, plus les résonances sont espacées. Au contraire, plus l'énergie du neutron est forte, plus les résonances sont rapprochées. Tant que les résonances sont discernables les unes des autres, elles appartiennent au RRR. Une fois qu'elles ne le sont plus, on parle de URR. La séparation entre ces deux domaines dépend de la résolution énergétique expérimentale des installations servant à réaliser les mesures. Meilleure sera cette résolution, plus le RRR sera étendu. C'est pour cela que la limite entre ces deux domaines n'est pas définie de manière catégorique et est arbitraire et différente pour chaque noyau. En ce qui concerne le ²⁴²Pu cible¹, le RRR se termine un peu arbitrairement à 1.15 keV.

La figure 2.1 illustre le domaine des résonances résolues de la section efficace de fission du ²⁴²Pu via l'évaluation européenne JEFF3.3 [240].



Figure 2 - 1 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu en fonction de l'énergie du neutron incident pour le domaine des résonances résolues ; données JEFF3.3 [240] (échelle log-log).

Sur la Figure 2 - 1, nous observons de nombreuses résonances. Chaque résonance correspond à un état d'excitation du premier puits, états de classe I. Tous les états de classe I ne

¹ On rappelle qu'en neutronique, on décrit implicitement les propriétés du système composé alors que ces dernières sont classées à la rubrique noyau cible. Cette ambiguïté n'existe pas en structure nucléaire qui décrit toujours le système composé.

sont pas visibles sur toutes les sections efficaces partielles. L'analyse de plusieurs sections efficaces partielles d'un même noyau permet donc de répertorier un plus grand nombre d'états de classe I au travers d'une maximalisation de l'information. Dans le RRR, les états de classe II, quant à eux, ne sont pas identifiables aussi simplement que ceux de classe I. Cependant, contrairement aux états de classe I, les états de classe II (dont le J^{π} peut être atteint par le neutron) restent tous discernables dans le RRR. La structure visible sur la Figure 2 - 1 autour de 750 eV manifeste l'enveloppe d'un état de classe II par la présence d'un groupe (cluster) de résonances de classe I. Mais nous verrons dans le chapitre 3.1 que cet état n'est pas le seul observé dans le RRR et nous proposerons une façon de les identifier.

Maintenant que nous avons dressé un portrait de la région des résonances résolues, nous allons donner les bases de la théorie de la matrice R utilisée pour permettre une compréhension des formalismes décrivant le RRR.

2.1.2 Théorie de la matrice R

Dans cette partie, nous allons d'abord expliciter le principe de la matrice R. Nous énoncerons ensuite les approximations développées pour simplifier le formalisme élaboré de la matrice R dans les codes de calculs dont nous avons eu besoin durant le travail : approximations multi-niveau Breit-Wigner (au sens ENDF) et Reich-Moore.

2.1.2.1 Principe de la théorie de la matrice R

La théorie de la matrice R a traité jusqu'à présent essentiellement les problèmes à deux corps (pour les problèmes à 3 corps, voir [241]) : avec un projectile (particule légère en cinématique directe) et un noyau cible (léger ou lourd). Son but premier était de mieux comprendre et interpréter les phénomènes de résonances observées dans les collisions à deux corps. Son principe consiste à subdiviser l'espace en deux régions dépendantes de la portée du potentiel nucléaire (interaction forte). Dans la région interne, le potentiel nucléaire est ressenti par la particule, tout comme le potentiel coulombien. Le potentiel interne vaut alors :

$$V_{int}(r) = V_{nucl}(r) + V_{coul}(r)$$
(2.01)

Ce potentiel interne n'est pas explicité dans la théorie de la matrice R. Cependant, le modèle optique considère l'interaction projectile-noyau comme une diffusion (partie réelle) et une absorption (partie imaginaire), d'une onde sur une sphère de cristal. Cette considération est également faite pour le modèle optique et les équations sont exprimées partie 2.2.2.2.

Dans la région externe, appelée également espace des voies, le potentiel nucléaire ne peut pas être ressenti par le projectile. Le nom « espace des voies » vient du fait que le couple formé par le projectile et le noyau est défini en fonction de ses nombres quantiques. Chaque ensemble unique de nombres qualifie une « voie » c de réaction : $c \equiv \{(\alpha, J, \pi, \ell, s)\}$ (voir chapitre I pour leur définition, avec α qualifiant la paire entrante et la paire sortante). Dans cette théorie de basse énergie, le couplage ℓ - s (avec s le spin de voie) est choisi pour calculer l'équation (1.07) :

$$\vec{s} = \vec{i} + \vec{l} \tag{2.02}$$

Puis :

$$\vec{J} = \vec{\ell} + \vec{s} \tag{2.03}$$

L'interface entre la partie interne/externe s'appelle la surface de séparation. Elle dépend du rayon de voie a_c définissant une sphère intérieure, approximé généralement pour un neutron (masse $\equiv 1$):

$$a_c \approx 1.35(A+1)^{1/3}$$
 (2.04)

Avec A, le nombre de nucléons du noyau cible. A+1 représente donc le système composé, du noyau cible + neutron.

Ce principe est représenté sur la Figure 2 - 2 :



Figure 2 - 2 : Subdivision de l'espace dans le principe de la matrice R. Schéma inspiré de la Figure I.3.1 de [203].

Comme le potentiel interne n'est pas caractérisé, le formalisme de la matrice R évalue la fonction d'onde externe du couple neutron + noyau-cible dans l'équation de Schrödinger à la surface de séparation ; cette fonction et sa dérivée étant imposées continues à cette surface. Voyons cela en équations.

2.1.2.2 Théorie mathématique de la matrice R

L'objectif de cette sous-partie n'est pas de développer toute la théorie de la matrice R ni ses équations qui sont longuement décrites dans les références [201, 203, 204, 249]. Cette partie ne fera que reprendre les équations principales de la théorie. Cette théorie a pour but d'obtenir une paramétrisation de la matrice de collision, matrice dépendante de l'énergie. L'objectif est de rendre ces paramètres indépendants de l'énergie pour simplifier la résolution des équations. Pour cela, une hypothèse, principale, est émise : la fonction d'onde dans la région interne peut être étendue sur un ensemble de fonctions propres X du système Hamiltonien. Le principe du formalisme de la matrice R consiste à traiter les particules (au sens large) incidentes sous la forme de la fonction d'onde associée entrante et réciproquement les particules par leur fonction d'onde sortante. Nous appellerons par la suite c la voie entrante et c' la voie sortante.

Ainsi, ce formalisme peut se résumer en trois matrices :

- La matrice de collision **U** qui est unitaire et symétrique et est invariante par inversion du temps
- La matrice des niveaux A
- La matrice des voies **R**

Pour un état propre (résonance) λ , les éléments de la matrice **R** s'expriment comme suit : $R_{cc'} = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E}$ (2.05)

Avec :

- $\gamma_{\lambda C}$ la quantité résultant de la projection de la fonction X_{λ} , solution de l'équation de Schrödinger (fonction orthogonale et normalisée) sur la surface des voies S. Nous pouvons également introduire sa dérivée $\delta_{\lambda c}$.
- E est l'énergie totale dans le système du laboratoire.
- E_{λ} est la valeur propre de X_{λ} .

$$\gamma_{\lambda c} = \sqrt{\frac{\bar{h}^2}{2Ma_c}} \int_s dS \Phi_c^* X_\lambda$$
(2.06)

$$\delta_{\lambda c} = \sqrt{\frac{\bar{h}^2}{2Ma_c}} \int_{s} dS \Phi_c^* grad_n(r_c X_\lambda)$$
(2.07)

Où :

- Φ_c est la projection de la fonction d'onde à la surface de la voie c
- M est la masse du noyau cible.
- S est la surface des voies.

On peut alors écrire la matrice de collision U en fonction de la matrice R :

$$\mathbf{U}_{cc'} = e^{-i(\phi_c + \phi_{c'})} \mathbf{P}_c^{1/2} \{ [\mathbf{1} - \mathbf{R}(\mathbf{L} - \mathbf{B})]^{-1} [\mathbf{1} - \mathbf{R}(\mathbf{L}^* - \mathbf{B})] \}_{cc'} \mathbf{P}_{c'}^{-1/2}$$
(2.08)

Avec φ_c le facteur de déphasage sur sphère dure pour la voie c. Il représente le changement de phase brusque que subit l'onde sortante liée à la différence des vitesses de l'onde en présence ou non des forces nucléaires. Nous retrouvons le rayon de voie a_c de la sphère induisant le décalage dans l'hypothèse d'une répulsion infinie.

Tous les termes en gras représentent des matrices, avec :

- 1 la matrice unité
- **B**, **P**, **L** et **L**^{*} sont des matrices diagonales, **B** et **P** (matrice de pénétrabilité) sont réelles et **L** et **L**^{*} sont complexes. Les éléments de **B** sont les conditions aux limites :

$$\mathbf{B}_{c} = \frac{\delta_{\lambda c}}{\gamma_{\lambda c}} \tag{2.09}$$

Les trois autres matrices peuvent s'exprimer en fonction de la matrice diagonale **O** des fonctions d'ondes radiales sortantes ou de sa matrice complexe conjuguée des ondes incidentes **I** :

$$\mathbf{P} = \operatorname{Re}\left(\rho \frac{1}{0} \frac{\partial \mathbf{0}}{\partial \rho}\right) \tag{2.10}$$

$$\mathbf{L} = \mathbf{P}\mathbf{O}'\mathbf{O}^{-1} = \rho \frac{\partial \mathbf{O}}{\mathbf{O} \partial \rho} - \mathbf{B}$$
(2.11)

$$\mathbf{L}^* = \rho \frac{\partial \mathbf{I}}{\mathbf{I} \partial \rho} - \mathbf{B}$$
(2.12)

Avec $\rho = kr$, r le module du vecteur position radiale et $k = \frac{1}{\bar{h}}\sqrt{2\frac{mM}{m+M}E}$ avec m et M les masses respectives du projectile et du noyau cible.

On peut également écrire la matrice de collision U en fonction de la matrice des niveaux A (pratique pour les démonstrations et la compréhension des termes corrélés) :

$$U_{cc'} = e^{-i(\varphi_c - \varphi_{c'})} \left(\delta_{cc'} + i \sum_{\lambda,\mu} \Gamma_{\lambda c}^{1/2} \mathbf{A}_{\lambda\mu} \Gamma_{\mu c'}^{1/2} \right)$$
(2.13)

Avec λ et μ des niveaux (ou résonances données) et avec :

$$\Gamma_{\lambda c}^{1/2} \equiv \gamma_{\lambda c} \sqrt{2 \mathbf{P}_c} \tag{2.14}$$

Finalement la section efficace partielle $\sigma_{cc'}$ s'exprime en fonction de la matrice de collision U de voie d'entrée c et de sortie c' :

$$\sigma_{cc'}^{J} = \pi \lambda^2 g_J |\delta_{cc'} - \mathbf{U}_{cc'}|^2$$
(2.15)

Le module $|\mathbf{U}_{cc'}|^2$ représente alors la probabilité de la transition de la voie c vers la voie c'. $\delta_{cc'}$ existe au cas où c=c', c'est-à-dire si la particule entrante ne peut être distinguée de la particule sortante (diffusion). g_J est le facteur de spin statistique :

$$g_{J} = \frac{2J+1}{(2I+1)(2i+1)}$$
(2.16)

Dans le cas d'une réaction où la voie d'entrée et la voie de sortie sont différentes comme c'est le cas pour la fission, la section efficace dépend quadratiquement de $U_{cc'}$ et vaut :

$$\sigma_{cc'} = \pi \lambda^2 \sum_{J} g_J \sum_{l,s} \sum_{l',s'} |\mathbf{U}_{cc'}|^2$$
(2.17)

Enfin, la section efficace totale est, quant à elle, une fonction linéaire de $U_{cc'}$ et est donc plus simple à établir :

$$\sigma_{\text{tot}} = 2\pi\lambda^2 \sum_{J} g_J \sum_{l,s} (1 - \text{Re}(\mathbf{U}_{cc'}))$$
(2.18)

Lorsque l'on veut réaliser des calculs exacts avec la théorie générale de la matrice R, des complications peuvent vite apparaitre, particulièrement avec les noyaux lourds comme c'est le cas du ²⁴²Pu. En effet, ces noyaux ont une multitude de choix de désexcitation lors de captures radiatives et chaque désexcitation correspond à une voie photon. Traiter un grand nombre de voies (pouvant aller jusqu'à 800 transitions électromagnétiques) n'était pas réaliste pour les ordinateurs jusqu'à présent. Plusieurs approximations ont été proposées au cours du temps pour

simplifier la résolution numérique du problème. Au cours de ce travail, les approximations de Breit et Wigner et de Reich-Moore ont été utilisées. Intéressons-nous donc à ces deux approximations.

2.1.2.3 Approximation Multi-Level Breit-Wigner

Une première solution de simplification a été proposée par Breit et Wigner. Deux approximations portant leur nom existent. Elles sont utilisables lorsque les niveaux sont bien espacés et définis. La première est l'approximation Simple Niveau Breit Wigner (SLBW). Dans cette approximation, seul un niveau (i.e. état excité) est retenu, les autres sont négligés pour le traitement de ce dernier. Cela signifie que chaque résonance est calculée indépendamment des autres, aucune interférence autre qu'intra-résonance n'étant prise en compte.

Il existe également l'approximation Multi-Niveaux Breit Wigner (MLBW). Cette fois-ci, les interférences entre les voies identiques des différentes résonances sont prises en compte. Tous les éléments non diagonaux de la matrice inverse des niveaux A⁻¹ sont négligés. La matrice de collision ainsi obtenue implique une simple somme sur les résonances en se rappelant que U_{cc} , implique l'inversion de la matrice A et que la section efficace partielle σ_{cc} , implique le module carré de U_{cc} :

$$\mathbf{U}_{cc'} = e^{-i(\varphi_c - \varphi_{c'})} \left(\delta_{cc'} + i \sum_{\lambda} \frac{\Gamma_{\lambda c}^{1/2} \Gamma_{\lambda c'}^{1/2}}{E_{\lambda} + \Delta_{\lambda} - E - i \frac{\Gamma_{\lambda}}{2}} \right)$$
(2.18)

Où :

- $\Delta_{\lambda} = -(S_c B)\gamma_{\lambda c}^2$ est le décalage de la voie associé au niveau λ , avec S_c le facteur de décalage (S₀=0 [224], Tableau II A 1).
- $\Gamma_{\lambda} = 2\mathbf{P}_{c}\gamma_{\lambda c}^{2}$ est la largeur de voie associée au niveau λ .

Les approximations de Breit et Wigner sont devenues technologiquement obsolètes. En effet, les ordinateurs peuvent maintenant réaliser des calculs avec des modèles plus raffinés et des approximations moins restrictives. Au cours de ce travail, ce modèle a tout de même été rencontré lié au fait que les paramètres renseignés dans le fichier ENDF du ²⁴²Pu correspondent à l'approximation MLBW. Il faut toutefois faire attention à la définition MLBW des fichiers ENDF. En effet, l'approximation « MLBW – ENDF » correspond en réalité à l'approximation MLBW pour toutes les voies de diffusion et à l'approximation SLBW pour toutes les autres voies de réaction. Le « SLBW – ENDF » correspond, lui, à une somme de termes simple niveau (i.e. une somme SLBW sur toutes les résonances).

Enfin, il est important de souligner qu'au sens strict de la matrice R, les voies de fission sont très nombreuses, une voie correspondant à une fragmentation précise du noyau. Cependant, comme l'a montré A. Bohr [243] (ou encore l'analyse statistique des largeurs de fission expérimentales), peu de voies au travers des états de transition de la barrière de fission sont ouvertes dans le RRR. Des résultats généralement satisfaisants sont obtenus en choisissant uniquement une ou deux voies de fission. Pour plus de simplicité, le facteur de pénétrabilité de la fission, constant dans le RRR, est classiquement fixé arbitrairement à 1 dans ce domaine (P_f équation 1.13). Seuls les états de classe II éventuellement présents se manifestent par une perturbation locale de la pénétrabilité de fission.

2.1.2.4 Approximation de Reich-Moore

Une autre solution pour simplifier moins drastiquement les calculs a été proposée par Reich et Moore (1958) en ne considérant pas les termes non diagonaux des voies radiatives. En effet, le signe de chaque transition γ est aléatoire et leur amplitude est comparable, ce qui, en moyenne, annule les termes croisés pour un grand nombre de transitions électromagnétiques. L'erreur finale est alors assez faible pour les noyaux lourds. Ainsi, seuls les éléments des voies photons diagonaux de la matrice R restent, ceux-ci s'additionnant tous avec leur carré ($\sum \gamma_{\gamma}^2$). Toutes les interférences des voies autres que photons sont prises en compte. Nous obtenons alors une matrice R réduite dans le sens où elle est seulement définie dans le sous-espace des voies sans photon. Contrairement à l'approximation de Breit-Wigner, cette fois, les interactions entre les différentes voies sont prises en compte. Les composants de la matrice R sont alors définis comme suit :

$$R_{cc'} = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E - i \frac{\Gamma_{\lambda \gamma}}{2}}$$
(2.19)

Dans cette équation, $\Gamma_{\lambda\gamma}$ représente la largeur totale de désexcitation radiative de la résonance λ avec $\Gamma_{\lambda\gamma} \equiv \sum 2\gamma_{\lambda\gamma_i}^2$ et $P_{\gamma} \equiv 1$.

Cette approximation est celle présentant le meilleur compromis entre le temps de calcul et l'exactitude des résultats. Le travail effectué dans le RRR le sera donc avec cette approximation.

Ce formalisme comporte toutefois encore quelques lacunes en ce qui concerne la fission. En effet, l'approximation Reich-Moore ne change pas l'hypothèse d'un facteur de pénétrabilité de fission est égale à 1. Dans un premier temps, on peut penser que comme les amplitudes de largeur sont ajustées sur des données expérimentales, l'ajustement équilibre les lacunes de la modélisation. Cependant, cela introduit un biais lorsque l'on souhaite déterminer les propriétés statistiques des amplitudes de largeur liées aux canaux de fission. [204]

Les caractéristiques des différentes approximations de la matrice R sont résumées dans le Tableau II - 1 :

	Interférences entre résonances	Interférences voie d'entrée (c)/voie de sortie (c')	Interférences capture totale/fission	Interférences voies de capture partielles
SLBW	NON	OUI, intra résonance	NON (une seule voie de fission)	NON
MLBW	OUI	OUI, intra résonance et entre les résonances	NON (une seule voie de fission)	NON
RM	OUI	OUI, intra résonance et entre les résonances	OUI (possiblement entre 2 voies de fission)	NON
Matrice R	OUI	OUI, intra résonance et entre les résonances	N/A (sauf si la matrice R est divisée en 2 parties avec une « capture totale partielle »	OUI

Tableau II - 1 : Rappel des différences entre les approximations de la matrice R et la théorie de la matrice R.

Maintenant que nous avons vu le formalisme de la matrice R et les approximations en vigueur dans les codes de calculs, décrivons l'un de ces codes permettant de modéliser des sections efficaces dans le RRR : le code CEA/LEPh CONRAD. Le code CONRAD – pour « COde for Nuclear Reaction Analysis and Data assimilation » – est un logiciel développé au CEA Cadarache SPRC originellement par Cyrille de Saint Jean puis par Pierre Tamagno en langage C++. Son but est de modéliser les sections efficaces de réactions induites par des neutrons ou particules chargées sur une plage d'énergie allant du meV au MeV. Les calculs peuvent être théoriques ou basés sur des données expérimentales. Même si le couplage avec le code TALYS est disponible, la motivation originelle était la modélisation du RRR. Pour cela, CONRAD dispose de la matrice R (approximée ou non).

Vous trouverez en Annexe 2.1 les détails pratiques pour une utilisation du code CONRAD.

Nous venons de rappeler la définition du RRR, les formalismes le concernant, avec en annexe la description de l'outil CONRAD utilisé pendant ce travail pour la modélisation de la section efficace. Nous présentons ci-dessous le continuum neutronique ainsi que la théorie telle qu'utilisée dans le code internationalement reconnu TALYS.

2.2 Modélisation de la section efficace dans le continuum

Lorsque l'énergie des neutrons est supérieure à un ou quelques keV et que les structures résonantes finies ne sont plus individuellement identifiables, la section efficace relève de la physique du continuum neutronique. Ce dernier peut être subdivisé en deux parties : celle des résonances grossièrement résolues, communément appelé URR et celle du continuum monotone. La première région s'étend jusqu'à quelques dizaines voire une centaine de keV. Dans cette gamme d'énergie, deux options s'offrent à nous pour modéliser la section efficace totale : le formalisme de la matrice R moyenne ou le modèle optique. Pour notre étude, nous avons choisi le modèle optique au travers du système de codes TALYS.

Nous allons donc d'abord rappeler les caractéristiques de l'URR historiquement séparé du continuum. Nous donnerons ensuite brièvement les équations des modèles de Hauser-Feshbach et optique. Enfin, nous donnerons des détails sur le code TALYS.

2.2.1 Présentation du continuum neutronique

La région des résonances non résolues (URR) est une partie du continuum contenant des amas de résonances qui ne peuvent être individuellement identifiables expérimentalement. Elle est comprise entre le RRR et le continuum. Comme expliqué précédemment, ses limites dépendent de la résolution énergétique des mesures réalisées, aucune borne n'est donc définitivement fixée et les limites restent arbitraires. Le URR commence en général à un ou quelques keV d'énergie neutrons et se termine entre quelques dizaines et une centaine de keV. Le nom de cette région vient du fait que les résonances de classe I ne sont plus visibles individuellement mais des amas de résonances sont observables. Au contraire, les résonances de classe II sont individuellement observables dans la section efficace de fission. Tout comme les états de classe I, les états de classe II sont espacés à basse énergie et leur espacement diminue lorsque l'énergie augmente. Tant que les résonances de classe II sont discernables les unes des autres, le domaine reste le URR. Une fois qu'elles ne le sont plus, la région d'énergie devient le continuum. On peut choisir de traiter l'URR par la même théorie que le continuum puisque la matrice R moyenne comme le modèle optique sont des modèles statistiques. Néanmoins, la distinction d'URR répond à une nécessité neutronique. En effet, la présence de structures même grossières nécessite de traiter leurs impacts en fonction de la concentration du noyau montrant cette caractéristique et présent dans le mélange combustible. Par conséquent, l'URR se distingue du continuum par un jeu de paramètres moyens ($\overline{\Gamma_n}$, $\overline{\Gamma_y}$, $\overline{\Gamma_f}$, D) qui permettent le calcul de l'autoprotection des résonances dans ce domaine énergétique d'entre deux. La notion d'autoprotection, non utilisée dans ce travail, est décrite dans la référence [242].

Pour le ²⁴²Pu, le URR commence à 1.15 keV et finit autour de 40 keV mais nous avons choisi de pousser notre étude jusqu'à 100 keV. La figure 2.3 montre le domaine des résonances non résolues de la section efficace de fission du ²⁴²Pu.



Figure 2 - 3 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu en fonction de l'énergie du neutron incident pour le domaine des résonances non résolues ; données Auchampaugh et al. [102] (échelle log-log).

Sur la Figure 2 - 3, nous observons de nombreuses résonances. Chaque résonance correspond soit à un amas d'états d'excitation du premier puits, soit un état d'excitation du second puits, état de classe II. Dans de rares cas, il est possible d'observer des états de classe I individuels. Ces différents cas seront traités dans le chapitre suivant. Comme pour les états de classe I dans le RRR, tous les états de classe II ne sont pas visibles.

Une fois que les états de classe II ne sont plus discernables, la section efficace se met à varier beaucoup plus lentement, c'est le continuum. Pour le ²⁴²Pu, ce domaine commence autour de 40 keV et continue jusqu'aux plus hautes énergies. La section efficace est alors moyennée et seule la tendance générale est observable. Les états de classe II ne sont alors plus visibles mais des amas de ces états peuvent créer des structures visibles.

Comme expliqué dans le chapitre précédent, le 242 Pu est un isotope lourd fertile. Ses barrières de fission sont au-dessus de S_n et sont donc observables. En effet, la présence d'un seuil sur cette section efficace confirme la localisation de ces barrières. Rappelons que le S_n correspond au 0 de l'énergie neutron. De manière générale pour un isotope fertile, le seuil débute à $|V_{min}-S_n|$ et se termine à $|V_{max}-S_n|$, V_{min} et V_{max} étant respectivement la hauteur de la barrière la plus basse et de la barrière la plus haute.

A plus haute énergie, pour n'importe quel isotope fissile ou fertile, il est également possible d'observer les seuils correspondant aux fissions de seconde chance (vers 6 MeV d'énergie neutron), de troisième chance (vers 12 MeV) etc.

La Figure 2 - 4 montre le domaine du continuum de la section efficace de fission du ²⁴²Pu.





Figure 2 - 4 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu en fonction de l'énergie du neutron incident pour le domaine du continuum neutronique ; données JEFF3.3 [240] (échelle log-log).

En faisant un zoom sur le premier seuil, nous pouvons placer les hauteurs des barrières de fission, comme montré sur la Figure 2 - 5. Nous pouvons également noter la présence d'une structure de taille importante au franchissement du seuil de fission. L'explication de l'origine de cette structure est l'objectif final de la partie théorie de cette thèse. C'est également le détail et la confirmation de cette structure qui motive la partie expérimentale de cette thèse.



Figure 2 - 5 : Visualisation des hauteurs des deux barrières de fission du ²⁴²Pu, données JEFF3.3 [240]. V_A correspond à la hauteur de la première barrière de fission du ²⁴²Pu et V_B à la hauteur de la deuxième (échelle log-lin).

Maintenant que nous avons décrit exhaustivement la région des résonances non résolues et le continuum, nous allons donner les équations s'y référant.

2.2.2 Théories de Hauser-Feshbach et du modèle optique

La section efficace moyenne de désexcitation dans la voie c' pour l'URR comme pour le continuum est décrite par la théorie de Hauser-Feshbach.

2.2.2.1 Modèle de Hauser-Feshbach

Le modèle de Hauser-Feshbach a été développé dans les années 1950 pour des réactions induites par des neutrons avec formation de noyau composé. Ce formalisme s'applique idéalement dans les cas où la largeur totale Γ_t^J des niveaux de spin J est supérieure à l'espacement moyen D_J des niveaux de même spin. Ce modèle du noyau composé imaginé par N. Bohr [229] repose sur l'indépendance entre la voie de formation et le noyau composé formé et donc les voies de sortie. Dans la réalité, un couplage existe entre la voie « neutron incident » et la voie « neutron émis » ainsi qu'indirectement avec les autres voies de sortie (capture, fission) via la largeur totale Γ_t de l'interaction.

La section efficace partielle d'une voie d'entrée c vers une voie de sortie c' vaut alors [216, 219] :

$$\sigma_{cc'}^{HF} = \pi \bar{\lambda}^2 \frac{T_c T_{c'}}{\Sigma_i T_i} W_{cc'}$$
(2.20)

Avec T_i le coefficient de transmission de la voie i et W_{cc} le facteur de correction de fluctuations de largeurs de voie (marquant une validité incomplète de l'hypothèse de N. Bohr). Aux énergies auxquelles nous travaillons, seules les voies neutron, fission et capture radiative sont ouvertes. La section efficace neutronique de fission vaut alors :

$$\sigma_{\rm nf}^{\rm HF} = \pi \bar{\lambda}^2 \frac{T_{\rm n} T_{\rm f}}{T_{\rm n} + T_{\rm f} + T_{\rm \gamma}} W_{\rm nf}$$
(2.21)

Au-dessus d'environ 1.6 MeV d'énergie neutron [235] pour un noyau lourd, le facteur de correction de fluctuations tend vers l'unité. Comme nous travaillons avec un noyau composé, en négligeant le facteur de correction, nous pouvons également écrire la section efficace sous la forme de :

$$\sigma_{\rm nf}^{\rm HF} = \sigma^{\rm CN} * P_{\rm nf} \tag{2.22}$$

Avec P_{nf} , la probabilité de se désexciter en voie fission pour un noyau composé formé sous incidence neutronique, valant :

$$P_{\rm nf} = \frac{T_{\rm nf}}{\sum_i T_i} W_{\rm nf}$$
(2.23)

Ti est défini [216] comme :

$$T_{c} = 1 - e^{-2\pi \frac{\Gamma_{c}}{D}}$$
(2.24.a)

Si l'hypothèse résonance étroite s'applique, $\frac{\overline{\Gamma_c}}{D} \ll 1$, alors pour les voies de capture et de fission, nous pouvons appliquer :

$$T_{c} \approx 1 - \left(1 - 2\pi \frac{\overline{\Gamma_{c}}}{D}\right) \approx 2\pi \frac{\overline{\Gamma_{c}}}{D}$$
 (2.24.b)

Avec $\overline{\Gamma_c}$ la largeur moyenne de la voie c et D l'espacement moyen :

$$\mathsf{D} = \frac{1}{\rho} \tag{2.25}$$

Où ρ est la densité de niveaux moyenne. Le rapport $\frac{\overline{\Gamma_c}}{D}$ est décrit sous le nom de la fonction force pour la voie c{J, π , s, ℓ } S_c, (soit S_n pour la voie neutron ; à ne pas confondre avec l'énergie de séparation du premier neutron). Les coefficients de transmission sont calculés par le modèle optique à voies couplées via ECIS-06 [214] appelé par le système de codes TALYS.

2.2.2.2 Base du modèle optique

Le modèle optique représente phénoménologiquement le noyau par son puits de potentiel. Dans ce modèle, une particule absorbée par le noyau peut en ressortir. Le processus mis en jeu

est analogue à l'interaction d'une onde optique avec une sphère de cristal. Il est donc équivalent à la transmission optique du noyau. Dans ce modèle, le potentiel du noyau est complexe :

$$U(r) = V(r) + iW(r)$$
(2.26)

La partie réelle V(r) représente la diffusion de l'onde incidente sur le potentiel. Usuellement, c'est le potentiel de Wood-Saxon qui est utilisé. Dans ce cas,

$$V(r) = -V_0 f(r)$$
 (2.27)

Où :

$$f(r) = \frac{1}{1 + e^{\frac{r-R}{a}}}$$
(2.28)

Avec R la largeur d'un puits de potentiel carré et V_0 la profondeur d'un puits de potentiel sphérique de rayon a. r est la dimension radiale.

La partie imaginaire W(r) représente, quant à elle, l'absorption et la réémission différée d'une partie de l'onde incidente par le potentiel. En général, W(r) est exprimé comme suit :

$$W(r) = W_0 \frac{d}{dr} f(r)$$
(2.29)

Pour utiliser ce modèle avec un noyau déformé non sphérique, il faut développer le rayon du noyau en harmoniques sphériques. Par symétrie, il n'y a que des harmoniques paires.

En ce qui concerne les nombres quantiques, un couplage différent dit (j-j') de (2.02) est choisi historiquement pour calculer (1.07):

$$\vec{j} = \vec{\ell} + \vec{i} \tag{2.30}$$

Puis :

$$\vec{J} = \vec{j} + \vec{l} \tag{2.31}$$

Maintenant que nous avons donné les bases des formalismes de Hauser-Feshbach et du modèle optique, reportons-nous sur le code que nous avons sélectionné pour la modélisation d'une section efficace moyenne mais résonante dans le URR et le continuum.

2.2.3 Système de codes TALYS-ECISO6

TALYS est un code de réactions nucléaires internationalement reconnu. Il a été développé au CEA de Bruyère-le-Châtel en 1998 dans une collaboration avec NRG Petten (Pays-Bas), l'université Libre (Bruxelles) et l'AIEA (Vienne). Son objectif est d'analyser et de prédire les réactions nucléaires en réalisant des calculs les plus complets et précis possibles. C'est un code polyvalent pouvant prédire des réactions avec plusieurs sortes de projectiles comme les

neutrons, protons, photons etc. La plage d'énergie visée optimale pour ce code s'étend de 1 keV jusqu'à 200 MeV. Son utilisation est donc pertinente dans le domaine du continuum neutronique en incluant le URR.

Pour fonctionner, le code TALYS a besoin en entrée du code ECIS-06 [214]. ECIS-06 repose sur le modèle optique à voies couplées afin de fournir les coefficients de transmission des différentes voies (équations (2.24) a et b) nécessaires à TALYS. Les paramètres qui nous intéressent particulièrement sont les coefficients de transmission des voies neutron (dérivées des fonctions force S_c). Ces coefficients sont nécessaires pour la résolution de l'équation de Hauser-Feshbach (équation 2.20) menant au calcul des sections efficaces partielles du noyau composé. Le code TALYS pilotant ECIS-06 permet un calcul intégré de toutes les observables décrivant le continuum².

Notre travail a porté essentiellement sur la reproduction de la section efficace de la voie de fission du ²⁴²Pu, ici grâce au code TALYS. Ce code nous a plus particulièrement aidé dans l'extraction des positions et paramètres des états de classe II de l'URR et dans le continuum pour répertorier toutes les causes pouvant conduire à la structure observée autour de 1.1 MeV. Dans la pratique, nous avons utilisé une version locale de TALYS (TALYS1.3) améliorée consciencieusement par Gilles Noguère (CEA/LEPh).

TALYS est un code qui permet à son utilisateur de modifier et d'utiliser les paramètres qu'il souhaite. Pour cela, plusieurs fichiers d'entrée sont impliqués. Nous recensons rapidement les principaux qui ont été utiles à ce travail.

2.2.3.1 Fichier d'entrée (input)

C'est le fichier principal de TALYS et celui appelé lors de l'exécution du programme. Il contient un minimum d'information à fournir dont les noms du projectile et du noyau cible (masse et élément) et celui d'un fichier contenant la grille d'énergie pour les calculs. Ce dernier fichier doit comporter une liste d'au maximum cent points pour l'énergie cinétique du projectile (dans l'ordre croissant) dans le référentiel du laboratoire pour lesquels TALYS va réaliser les calculs.

Lorsque l'on souhaite améliorer, affiner ou personnaliser les calculs en fonction de nos besoins, c'est également dans ce fichier que les nombreuses options sont ajoutées (pour obtenir un calcul raffiné). Il est, par exemple, possible de spécifier si les états de classe II sont à prendre en compte, quel type de modèle doit être choisi pour les calculs (cf manuel TALYS [212]). Il est également possible de spécifier pour chaque isotope fissionnant la valeur de la hauteur de chaque barrière (de fission de première chance, de deuxième chance etc), les courbures associées, le nombre de niveaux tête de bande à prendre en compte, l'énergie choisie pour commencer le continuum des états de transition etc. De multiples options peuvent être précisées via ce fichier. La liste exhaustive est donnée dans le chapitre 6 de la référence [212].

² Le système de codes TALYS contient une variété de formalismes élaborés. Néanmoins, dans sa version « presse-bouton » ou boîte noire, il peut calculer n'importe quel type de sections efficaces pour tous les noyaux. Dans ce cas, l'utilisateur devra être attentif à la qualité des résultats.

2.2.3.2 Fichier class2states

Ce fichier a été ajouté dans la version locale par Gilles Noguère. C'est le fichier qui a été le plus utilisé et modifié pour ce travail. La première ligne de ce fichier indique le nombre d'états de classe II que le calcul doit prendre en compte. Chacune des lignes suivantes contient les caractéristiques d'un état de classe II (énergie E_{II} (MeV), largeur à mi-hauteur Γ_{CII} (MeV) et amplitude β_{CII} (Ø)). Un nombre maximum de cent états est accepté par défaut par le code TALYS. Un facteur d'amplification Lorenztien (indépendant du J^{π} du classe II) est appliqué au coefficient de transmission de fission calculé tel que T_{f(En)} = T_{f(En)}. F_{\mathscr{A}}(En) et :

$$F_{\mathcal{L}} = \sum_{CII_i} \beta_i \frac{\left(\frac{\Gamma_{\text{CII}_i}}{2}\right)^2}{\left(E_n - E_{\text{CII}_i}\right)^2 + \left(\frac{\Gamma_{\text{CII}_i}}{2}\right)^2}$$
(2.32)

Avec E_n l'énergie du neutron incident (c'est-à-dire l'énergie de la grille de calcul). Cette équation est similaire à l'équation 1.15 (avec ici une somme sur les états). Nous rappelons que la version standard de TALYS traite les états de classe II en fonction de la valeur de leur J^{π}, ce qui n'est pas le cas dans notre approche plus pragmatique (version modifiée par G. Noguère).

2.2.3.3 Fichier hbstates

Ce fichier recense les états de transition tête de bande de chaque barrière dont le nombre maximum est fixé dans le fichier input. Le code TALYS permet de prendre en compte par défaut un maximum de deux cents états de transition tête de bande par barrière et génère ensuite la séquence d'états du spectre de rotation. La première ligne de ce fichier indique à quelle barrière (1 ou 2) appartiennent les états de transition. Sur cette même ligne est indiqué le nombre d'états de transition tête de bande à prendre en compte et l'énergie maximale à partir du fondamental de la barrière à laquelle commence le continuum (lorsque les états ne sont plus discrets et qu'une densité de niveaux est alors utilisée). L'énergie de début de continuum est fixée par l'utilisateur dans le fichier input. Pour cela, une énergie minimale de début de continuum Estart et une énergie de raccordement Erac est indiquée. TALYS va alors générer les états discrets rotationnels à partir des états tête de bande fournis dans le fichier hbstates jusqu'à l'énergie maximale de début de continuum et construit simultanément la courbe définie par le cumul de niveaux discrets. La densité d'états de transition est modélisée avec le modèle Gilbert et Cameron composite (CGCM) à partir de l'énergie minimale de début du continuum. TALYS va ensuite ajuster la température nucléaire du CTM pour que la courbe de densité de niveaux de basse énergie soit le mieux possible raccordée avec le cumul des états discrets. Le calcul utilisera ensuite les états discrets jusqu'à l'énergie de raccordement et la densité d'états audessus de cette énergie.

Le calcul de densité de niveaux est effectué par TALYS pour les états de transition des deux barrières mais aussi pour les états du premier puits de fission. L'influence de l'énergie de début de continuum sur la section efficace modélisée a été pris en compte au cours de ce travail pour les états de transition (cf chapitre 3, partie 5.2) ainsi que pour les états du premier puits de fission (cf chapitre 3, partie 5.3 ; ces derniers sont disponibles dans la base expérimentale de données ENSDF [234]). La Figure 2 - 6 est un exemple de courbes établies par TALYS relatives

aux densités de niveaux de la deuxième barrière et illustre le travail réalisé par TALYS ainsi que les paramètres indiqués par l'utilisateur ($E_{MaxContinuum}$, E_{start} et E_{rac} ou N_L et N_T). Attention : TALYS modifie E_{rac} pour correspondre à l'état discret le plus proche.



Figure 2 - 6 : Exemple de courbe de la cumulée de niveaux créée par TALYS pour prolonger les états discrets sous la forme d'une densité de niveaux.

Les lignes d'états de transition commencent par le numéro de l'état. L'énergie à laquelle se situe cet état au-dessus de la barrière fondamentale est ensuite indiqué. Les troisièmes et quatrièmes colonnes de ces lignes précisent le J^{π} de chaque état.

Parmi les formules de densité de niveaux disponibles dans la littérature (voir RIPL-3 [223]), le modèle composite Gilbert-Cameron occupe une place incontournable. Ce modèle simple, déduit de l'expérience, a démontré sa facilité d'utilisation avec son nombre de paramètres réduits et sa validité par confrontation aux modèles théoriques les plus complets (HFB-BCS par exemple [238]). Nous l'avons utilisé exhaustivement dans nos calculs, en voici donc les grandes lignes.

2.2.4 Loi de Gilbert-Cameron

Ce paragraphe rappelle donc les grandes lignes de la loi de densité de niveaux telle qu'imaginée par Gilbert et Cameron [210] et disponible dans TALYS dont la longue pratique a confirmé sa validité. Une loi empirique reste toujours plus simple d'utilisation dans des calculs routiniers. Néanmoins, dans cette thèse, des calculs macro-microscopiques en soutien sont réalisés à l'aide de la méthode de simulation de densité de niveaux par combinatoire (présenté au chapitre 1.3).

Le modèle de Gilbert-Cameron permet de prédire des densités de niveaux lorsque peu d'informations expérimentales sont disponibles (notamment avec des paramètres établis par des « systématiques » sur un ensemble de noyaux). A haute énergie, il s'appuie sur le modèle du gaz libre établissant la densité de niveaux à une énergie E pour un J^{π} donné :

$$\rho_{2}(E,J) = \frac{\sqrt{\pi}}{12} \frac{e^{2\sqrt{aU}}}{a^{\frac{1}{4}}U^{\frac{5}{4}}} \frac{(2J+1)e^{\frac{-(J+\frac{1}{2})^{2}}{2\sigma^{2}}}}{2\sqrt{2\pi}\sigma^{3}} [MeV^{-1}]$$
(2.33)

Et
$$\rho_2(E, J, \pi) = \frac{1}{2}\rho_2(E, J) \quad \forall \pi \text{ avec l'hypothèse d'équiparité.}$$

Avec :

$$\mathbf{U} = \mathbf{E} - \mathbf{U}_0 = \mathbf{E} - \Delta \tag{2.34}$$

Avec $\Delta = P(Z) + P(N)$ où P(Z) et P(N) sont respectivement les énergies d'appariement protons et neutrons telles celles proposées dans la table III de [210] en partant du principe (repris dans la méthode combinatoire au 1.3) qu'une paire de nucléons doit être brisée avant qu'un nucléon puisse être excité individuellement. Le paramètre de Fermi a est établi empiriquement par Gilbert et Cameron sur la base de la bonne corrélation de $\frac{a}{A}$ avec S la correction totale de couche (i.e. la proximité d'une couche fermée en neutrons ou protons) selon (pour un noyau déformé) :

$$\frac{a}{A} = 0.00917S + 0.120 \tag{2.35}$$

Enfin, pour σ^2 caractérisant la largeur de la distribution statistique des spins dans un gaz de Fermi, une formule approchée sera :

$$\sigma^2 = 0.0888 (aU)^{\frac{1}{2}} A^{\frac{2}{3}}$$
(2.36)

A étant le nombre de nucléons du système composé. Cette équation à trois paramètres (a, σ , Δ) est valable au-dessus d'une énergie fixée $E_x = E_{match}$. Le paramètre a est ajustable tel que $\rho_{\ell=0}(E \equiv S_n) = \frac{1}{D_{\ell=0}}$ avec $D_{\ell=0}(S_n)$, l'espacement moyen des résonances « s » observées par spectroscopie neutronique dans le RRR. En dessous de cette énergie (classique entre 3 et 4 MeV d'énergie d'excitation E_x), l'équation adéquate pour calculer la densité de niveau est donnée par le modèle à température uniforme ou constante (CTM) :

$$\rho_1(E) = \left(\frac{1}{T}\right) e^{\frac{(E-E_0)}{T}}$$
(2.37)

Où T, la température nucléaire et E_0 dite énergie de décalage (« shift ») sont les paramètres d'ajustement permettant de reproduire les niveaux de basse énergie (Low Lying Levels) observés jusqu'à classiquement 1 MeV d'énergie d'excitation pour les noyaux lourds. Ces deux paramètres s'obtiennent en égalisant ρ_1 et ρ_2 et leur dérivée à l'énergie $E = E_{match}$.

Maintenant que nous avons assimilé les formalismes permettant de modéliser théoriquement une section efficace et recensé les codes que nous utilisons durant ce travail, il est important de comprendre ce qu'est une évaluation, comment la faire, sa pratique et ses limites.

2.3 Pratique de l'évaluation

Produire une évaluation consiste à établir un ensemble de paramètres cohérents et fiables permettant de modéliser entre autres les sections efficaces. Pour cela, deux choses sont indispensables : la base de données nucléaires et neutroniques expérimentales sur laquelle l'évaluation va s'appuyer et des modèles physiques et mathématiques raisonnables permettant de reproduire l'expérimentation, voire idéalement la prédire.

2.3.1 Les données expérimentales

Pour réaliser une évaluation, des données expérimentales fiables sont requises. Il est important de comprendre comment ces données ont été obtenues – et donc de connaître les techniques de mesures expliquées au chapitre 4 - afin de connaître leurs intervalles de confiance, leurs forces et leurs faiblesses. Nous avons choisi ici de nous reposer uniquement sur des données microscopiques, c'est-à-dire des données obtenues par des expériences différentielles (accélérateurs).

Pour le travail réalisé dans le RRR, nous avons choisi de travailler à partir du fichier ENDF (notre « a priori »). Les paramètres présents dans ce fichier sont extraits du travail de H. Weigmann et al. [103] dont les données expérimentales en dessous de 300 keV sont manquantes irrémédiablement. L'analyse des données de leur travail est compatible avec l'évaluation JEFF3.3 qui nous servira de référence tout au long de cette étude. En effet, il n'existe à ce jour que deux jeux de données expérimentales disponibles dans le RRR (dans EXFOR et JanisBook) et aucun des deux n'incluent les premières résonances dans la voie fission. Notre travail dans le RRR se justifie par une faiblesse de l'évaluation : le fichier ENDF n'identifie pas la classe des états qu'il comporte. Les valeurs des paramètres sont donc biaisées puisque les états de classe I sont influencés par la présence éventuelle de classes II. Néanmoins, le but premier d'un évaluateur est de reproduire la section efficace observée pour des calculs de neutronique raisonnables. Dans ce cadre, les amplitudes des largeurs de fission obtenues sont alors juste phénoménologiques car le facteur de pénétrabilité de la barrière de fission est fixé à 1. L'équation (1.13) est réduite à :

$$\Gamma_{\rm f} = 2 * \gamma_{\rm f}^2 \tag{2.38}$$

Dans ce cas, P_f devient égal à 1 et les amplitudes des largeurs de fission sont alors peu significatives. La motivation seconde d'un évaluateur est de comprendre physiquement ce qui peut être observé expérimentalement. C'est dans cette optique là que notre travail se place. L'objectif sera donc de « retirer » l'influence des états de classe II masqués dans les paramètres des états de classe I en utilisant l'équation (1.15) implémentée dans le code CONRAD par P. Tamagno. Les résultats de ce travail seront présentés au chapitre 3.

Pour travailler dans le URR, nous avons choisi d'utiliser les données mesurées par Auchampaugh et al. [102]. En effet, la modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu par l'évaluation JEFF3.3 dans le URR est très grossière en respectant seulement la valeur moyenne. Or, une identification des états de classe II nécessite l'utilisation de données assez précises. Enfin, dans le continuum, nous avons utilisé les données de H. Weigmann et al. [103]. L'évaluation JEFF3.3 se base sur ces données expérimentales pour modéliser la section efficace de fission du ²⁴²Pu.

2.3.2 Modèles mathématiques utilisés

Comme nous l'avons expliqué précédemment, les modèles mathématiques utilisés dépendent de la région d'énergie dans laquelle nous travaillons.

Dans le RRR, nous avons fait le choix d'utiliser le code CONRAD, basé sur le modèle mathématiquement exact de la matrice R. Le fichier JEFF3.3 en format ENDF repose sur l'approximation Multi-Level-Breit-Wigner. De nos jours, les ordinateurs peuvent sans aucun problème réaliser des calculs avec l'approximation de Reich-Moore qui est beaucoup moins approximative (notamment en conservant l'unité de la matrice de collision $\sum_{c'} |U_{cc'}|^2 = I$). Rappelons que la différence majeure entre ces deux approximations est la prise en compte des interférences entre voies. Ainsi, lorsque l'on analyse une section efficace avec une échelle linéaire-linéaire (lin-lin), une distinction entre les deux approximations est très difficile. Cependant, elle est totalement visible lorsque l'on utilise une échelle logarithmique-logarithmique (log-log) avec des résonances fortement asymétriques. Notre premier objectif sera donc une conversion des paramètres de l'approximation Multi-Level-Breit-Wigner à l'approximation Reich-Moore.

Pour l'URR et le continuum, notre travail repose sur le système de code TALYS. Le calcul de la section efficace moyenne totale repose sur le modèle optique à voies couplées du code ECIS-06. Une fois que la partie « noyau composé » est isolée de la section efficace totale moyenne, le moteur Hauser-Feshbach (équation (2.21)) permet de reproduire la partie section efficace de fission moyenne ; c'est-à-dire la section efficace de fission observée sachant que par le postulat de A. Bohr, la fission ne procède que par un noyau composé dont l'énergie d'excitation a été également répartie entre les nucléons (théorie du noyau composé de N. Bohr).

2.4 Conclusion du chapitre

Nous avons vu qu'une section efficace neutronique peut être divisée en trois régions énergétiques : le RRR, l'URR et le continuum neutronique. Le RRR se distingue par une section efficace variant beaucoup localement. Ces variations (ou fluctuations) sont liées à des résonances visibles, correspondantes à des états d'excitation du premier puits de fission, appelés états de classe I. Les états des classe II sont moins distinguables dans cette région car « cachés » par les états de classe I. L'espacement entre les résonances diminuent avec l'énergie et leur largeur augmente jusqu'à ce qu'elles ne soient plus discernables les unes des autres. C'est alors le domaine de l'URR où des amas d'états de classe I sont visibles et où les états de classe II sont encore visuellement identifiables car dans un puits moins profond que le puits I (U = $E_n + S_n - E_{II}$). La section efficace varie plus lentement. Lorsque les états de classe II ne sont plus distinguables, le domaine énergétique devient un continuum où seule la forme macroscopique de la section efficace est visible. On note par exemple comme exception les noyaux fissionnant avec un troisième puits dans la barrière de fission (actinides plus légers que l'uranium).

Pour modéliser une section efficace afin de réaliser une évaluation, deux choses complémentaires sont nécessaires : des modèles physiques et mathématiques et des données expérimentales servant de référence. Le modèle mathématique utilisé lors de l'évaluation dépend de la région énergétique de la section efficace lors de cette évaluation. Dans le RRR, le meilleur formalisme est la théorie de la matrice R et nous avons choisi d'utiliser le code CONRAD avec pragmatiquement les approximations de la matrice R. Dans le URR, deux modèles mathématiques sont possibles : le formalisme de la matrice R moyenne ou le modèle optique. Nous avons choisi d'utiliser TALYS qui repose sur le modèle optique grâce au couplage des codes ECIS-06 et TALYS pour à la fois l'URR et le continuum. Ce choix nous permet une meilleure cohérence entre les paramètres de l'URR et du continuum puisque nous ne recherchons pas la génération de paramètres moyens nécessaires à des calculs neutroniques dans le domaine d'énergie où des fluctuations résonantes significatives existent.

Des évaluations de qualité sont disponibles (JEFF3 et celle de G. Noguère) et notre travail utilisera comme « a priori » celle de JEFF3.3. Nous avons vu que les évaluations actuelles ont des limites. Elles n'utilisent pas toutes la même approximation dans le RRR, donnant des résultats plus ou moins précis. Les paramètres disponibles dans les fichiers ENDF ne sont basés que sur une extraction des états de classe I. Notre travail sera donc d'identifier les états de classe II et d'extraire leurs paramètres afin de les modéliser explicitement dans l'évaluation. Ceci permet, dans le RRR, d'avoir des paramètres (amplitudes de fission) des états de classe I moins biaisés par les états de classe II et, dans l'URR, d'avoir une évaluation plus détaillée de la section efficace de fission du ²⁴²Pu dont la valeur moyenne fluctue fortement localement.

Chapitre 3 Calculs théoriques et analyse des résultats

Nous venons de voir qu'une section efficace peut être divisée en au moins trois domaines énergétiques. Pour réaliser une évaluation, il faut adapter le modèle mathématique, et donc le code de calculs, au domaine énergétique de travail.

Dans le chapitre 1, nous avons vu que lorsque le noyau composé se déforme pour fissionner, deux puits principaux sont alors à modéliser ainsi qu'au moins deux barrières de fission. Dans ces puits et au-dessus des barrières se trouvent des états d'excitation. Notre travail consiste à mieux définir les caractéristiques de ces états d'excitation, plus précisément celles des états de classe I (noyau sphéroïde à l'équilibre normal), des états de classe II (isomère de fission) et les états de transition de la première et de la deuxième barrière.

Comme nous venons de le voir, une évaluation classique dans le RRR fournit des paramètres basés sur l'extraction des résonances indépendamment de la classe des états qui les engendrent. Notre travail aura donc pour objectif d'identifier précisément les états de classe II dans ce domaine d'énergie afin de les ajouter dans la base de paramètres nucléaires du code de calculs CONRAD et d'ainsi obtenir des paramètres plus représentatifs de la réalité. Ensuite, les états de classe II dans le URR seront aussi identifiés afin d'obtenir une modélisation plus fine de la section efficace dans ce domaine grâce au code TALYS. Une fois ces tâches réalisées, nous utiliserons une séquence fournie par le code AVXSF puis une loi de température constante afin d'affiner la valeur de l'énergie du fond du deuxième puits de fission. Enfin, nous travaillerons dans le continuum neutronique pour atteindre l'objectif final de cette phase d'étude : comprendre l'origine de la structure observée située au-dessus du seuil de fission, autour de 1 MeV d'énergie neutron. Pour cela, l'influence de différents paramètres - caractérisant les barrières de fission - sur l'évaluation sera étudiée. Enfin, une origine indirecte possible sera investiguée.

Pour réaliser ce travail, nous aurons besoin de la méthodologie décrite dans [207] pour identifier les états de classe II dans le RRR et dans le URR, des analyses expérimentales préalablement obtenues par [102], [103] et [220] et d'une loi de température constante introduite par RIPL-3 [223]. Le code CONRAD avec l'ajout de la pénétrabilité Lorenztienne des états de classe II par P. TAMAGNO [204] sera utilisé pour le RRR. Dans le URR et dans le continuum neutronique, ce sera la version du code TALYS1.4 modifiée par G. Noguère [communication privée] qui servira de base de travail. Commençons donc par identifier les états de classe II dans le RRR.
3.1 <u>Obtention d'amplitudes de fission plus physiques dans le</u> <u>RRR</u>

Dans l'évaluation JEFF3 (quelle que soit la version) du ²⁴²Pu, les résonances décrites correspondent aux états d'excitation du premier et du second puits de fission sans distinction. Les largeurs des résonances de classe I situées à proximité des résonances de classe II sont alors influencées par la présence de ces dernières. Il est alors intéressant de situer énergétiquement et paramétrer ces résonances de classe II afin que les paramètres des largeurs de classe I n'englobent réellement que la contribution de l'état du premier puits de fission. Pour atteindre cet objectif, il faut prendre en compte le terme $P_{f,CII}$, selon l'équation (1.13), des amplitudes de fission (ou largeurs réduites de fission) afin que ces dernières soient plus physiques que celles existantes. Pour cela, nous allons utiliser la formule (1.15) implémentée dans le code CONRAD. Pour identifier les états de classe II dans le RRR, nous devons calculer la somme (ou cumulée) des largeurs de fission [207]. Les états de classe II sont obtenus en identifiant les sauts (ou seuils) de la courbe de la cumulée. L'équation (3.02) permet ensuite de reproduire les seuils créés par ces états de classe II en restant toujours dans l'approximation d'une Lorenztienne. Les paramètres obtenus fournissent une base de travail (fichier .th de CONRAD) qui nécessite ensuite d'être affinée. Nous pourrons alors obtenir des largeurs de fission des états de classe I plus conformes à la physique. Bien sûr, pour que tout ce travail soit possible, il faut d'abord que CONRAD modélise correctement la section efficace de fission du ²⁴²Pu. Réalisons donc d'abord un état des lieux des connaissances du ²⁴²Pu.

3.1.1 Etat de la connaissance du ²⁴²Pu

Pour obtenir les paramètres permettant de modéliser la section efficace de fission du ²⁴²Pu dans le RRR, le fichier ENDF du ²⁴²Pu est fourni en entrée du code CONRAD. Dans ce fichier sont données pour chaque résonance du RRR :

- L'énergie de modélisation de la résonance (E_{λ})
- Sa largeur neutronique (Γ_n)
- Sa largeur de fission (Γ_f)
- Sa largeur gamma (Γ_{γ})
- Son spin (J) et parité (π)

Ce dernier a une valeur unique $\frac{1}{2}^+$ pour toutes les résonances du RRR du ²⁴²Pu. La Figure 3 - 1 retranscrit la section « résonances résolues (2-151) » du fichier ENDF qui nous intéresse.



Figure 3 - 1 : Copie d'une partie du fichier ENDF du ²⁴²Pu légendé.

Le fichier ENDF n'est pas facilement lisible des lignes 0 à 5 mais à partir de la 6, chaque ligne décrit les paramètres d'une résonance λ avec E_{λ} , J^{π} , $\Gamma_t = \Gamma_n + \Gamma_{\gamma} + \Gamma_f$, Γ_n , Γ_{γ} , Γ_f . L'Annexe 3.1 répertorie les paramètres nécessaires pour le calcul de modélisation initial.

Les paramètres du ²⁴²Pu sont donnés dans l'approximation Multi-Level Breit-Wigner (MLBW, LRF=2, voir Figure 3 - 1). Rappelons que cette approximation était principalement utilisée dans le passé pour des noyaux fertiles pour simplifier les calculs avec des ordinateurs peu performants. En effet, la section efficace de fission de ces noyaux étant très faible sous le seuil de fission et les résonances assez espacées, ne pas traiter les termes d'interférences de second ordre est une approximation raisonnable. Nous soulignons que l'approximation MLBW-ENDF ne repose en fait sur l'approximation MLBW que pour la voie de diffusion, les voies fission et capture totale réfèrent seulement à l'approximation SLBW. La puissance des ordinateurs n'étant cependant plus un problème de nos jours, l'approximation MLBW est devenue technologiquement obsolète. Il est alors préférable de travailler avec l'approximation RM bien plus physiquement correcte car moins restrictive, permettant aussi une extension possible de la théorie. Cela n'a aujourd'hui pas de sens de garder des approximations alors que

l'on peut passer à un cas plus général. La différence entre les approximations est rappelée dans le Tableau II - 1.

Le code CONRAD reconstruit parfaitement la section efficace de JEFF3.3 en approximation MLBW. En utilisant les mêmes paramètres MLBW mais dans un calcul CONRAD RM, peu de différences sont visibles en échelle lin-lin. Cependant, en travaillant en échelle log-log, les interférences entre les résonances deviennent visibles. Le niveau dans la région thermique est également modifié. La Figure 3 - 2 représente la section efficace de fission du ²⁴²Pu modélisée par CONRAD en approximation MLBW et RM en échelle lin-lin (haut) et en échelle log-log (bas) avec les mêmes paramètres. Au vue de ces résultats, le premier travail à faire est donc de « convertir » les paramètres d'entrée de l'approximation MLBW-ENDF en RM afin de retrouver le niveau de la section efficace dans la région thermique expérimentale ainsi qu'une modélisation raisonnable des interférences entre les résonances.





Figure 3 - 2 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu par CONRAD en approximations MLBW et RM avec paramètres identiques. Comparaison en échelle lin-lin (haut) et log-log (bas).

Pour réaliser la « conversion expérimentale » des paramètres de MLBW à RM, nous disposons uniquement de l'évaluation JEFF3.3. En effet, les données expérimentales dans le

RRR [101, 102] et disponibles dans EXFOR sont présentées sur la Figure 3 - 2 inférieure. Le manque de données expérimentales disponibles dans le RRR est patent. De plus, les deux jeux de données disponibles ne couvrent pas toutes les résonances ([101] commence à 50 eV, [102] à 200 eV). Il n'est donc pas possible de travailler à partir de données expérimentales, c'est pour cela que nous avons choisi l'évaluation JEFF3.3 comme référence puisqu'elle a été établie sur la base de la mesure de Weigmann et al. [103] maintenant malheureusement perdue.

Lors de la conversion des paramètres, nous avons remarqué que le signe des largeurs réduites (unique) de fission influençait sur la forme des interférences entre résonances. Il a alors été choisi d'ajuster les résonances l'une après l'autre en omettant les résonances supérieures et donc en coupant le calcul à une énergie un peu plus faible que le début de la résonance suivante. Pour cela, nous avons choisi de :

- Ajuster l'énergie de la résonance avec une incertitude de 1% ;
- Ajuster la largeur de fission avec une incertitude de 10% ;
- Pour chaque résonance, réaliser un calcul avec la largeur réduite de fission positive et un autre avec la largeur de fission négative ;
- Ajuster la valeur de la largeur de fission et de l'énergie de la résonance testée, de la résonance précédente et de la suivante ;
- Choisir les paramètres reproduisant le mieux la résonance et proposant une forme d'interférences raisonnable (par défaut).

Pour réaliser ces ajustements, CONRAD impose que les données servant de référence soient couplées avec des incertitudes. Or, les données ponctuelles de JEFF3.3 ont été récupérées dans JANIS qui ne fournit aucune incertitude pour les évaluations. Les incertitudes ont donc été reconstituées sur la base de l'amplitude de la section efficace dans et hors résonances. Pour cela, la formule suivante a été appliquée :

$$I_{\text{JEFF},i} = \frac{C}{\log(\sigma_i) - \log(0.000007)}$$
(3.01)

La soustraction log(0.000007) permet que les incertitudes calculées soient toutes positives. Un premier ajustement a été réalisé avec C=0.4 puis un deuxième avec C=0.18. Nous précisons néanmoins que l'évaluation JENDL4 propose avec la section efficace de fission évaluée un domaine d'incertitudes beaucoup moins restrictif que celui obtenu avec les constantes choisies, comme le montre la Figure 3 - 3.





Figure 3 - 3 : Comparaison des incertitudes proposées par JENDL4 (courbe bleue) et calculées pour JEFF3.3 selon (3.01) avec C=0.4 (courbe rouge) et C=0.18 (courbe noire) (échelle lin-log).

La Figure 3 - 4 représente la section efficace de fission du ²⁴²Pu calculée par CONRAD en RM en échelle log-log une fois les paramètres ajustés au mieux.



Figure 3 - 4 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu par CONRAD en utilisation l'approximation RM après ajustement des paramètres de travail (échelle log-log). Zoom sur les trois premières résonances avec des données expérimentales disponibles (bas) (échelle lin-log).

Les paramètres obtenus sont disponibles dans l'Annexe 3.2. Nous pouvons remarquer sur la Figure 3 - 4 (haut) que l'inadéquation du niveau de la section efficace dans la zone thermique est pratiquement résolue. Nous pouvons également constater que les interférences entre résonances sont vraisemblablement plus réalistes. Il est cependant important de noter, grâce à la Figure 3 - 4 du bas, que les incertitudes expérimentales entre les résonances [101] sont telles (de l'ordre de 0.1 barn) qu'il n'est pas possible de savoir réellement comment ajuster les interférences entre les résonances. Cette question est liée à la conjonction de deux facteurs : un bruit de fond élevé lors de la mesure de la section efficace de fission et un très faible niveau de cette dernière entre les résonances (amplifié par le caractère fertile du noyau lourd). Nous soulignons sur cette figure la différence au niveau de la résonance à 53 keV entre les données de Bergen et al. et l'ajustement de CONRAD. Cela est lié au fait que ce dernier a été réalisé sur la base de JEFF3.3 dont la référence est la mesure de Weigmann et al. [103].

Maintenant que les paramètres MLBW sont adaptés au formalisme RM, le travail d'identification des états de classe II dans le RRR peut commencer.

3.1.2 Identification des états de classe II dans le RRR

Pour identifier les états de classe II, nous nous servons de la méthodologie de [207]. Dans les paramètres du fichier ENDF, les états de classe II influencent les largeurs de la voie de fission des résonances de classe I se trouvant à proximité. Grâce à cette influence, il est possible d'identifier les résonances de classe II en traçant la cumulée (intégrale) des largeurs de fission de classe I. L'apparition de seuils (et donc de discontinuité) dans la cumulée est significatif d'une résonance de classe II (dont la caractéristique est de posséder une largeur de fission intrinsèque bien supérieure à celle d'un classe I). Il est alors ainsi possible d'extraire la position des états de classe II. La Figure 3 - 5 trace les largeurs de fission (Γ_f) observés dans le RRR (haut) et leur cumulée (bas) en fonction de l'énergie.



Chapitre 3 : Calculs théoriques et analyse des résultats

Figure 3 - 5 : Largeurs de fission du 242 Pu dans le RRR (haut) et cumulée des largeurs de fission du 242 Pu (bas) en fonction de l'énergie.

Sur la Figure 3 - 5, nous remarquons deux seuils significatifs caractéristiques de la présence d'un état de classe II. Les positions énergétiques de ces deux états de classe II sont :

- 468 eV

- 762 eV

Maintenant que deux états de classe II du ²⁴²Pu présents dans le RRR ont été identifiés, il est possible d'ajuster une courbe permettant de reproduire les seuils grâce à l'équation (3.02) [207] sur la base de pénétrabilité d'un état de classe II de type Lorentzienne selon l'équation (1.15) :

$$S_{\text{CII},i}(E_n) = \alpha_i + \sigma_{\text{CII},i} * \operatorname{Arctan}\left(\frac{E_n - E_{\text{CII},i}}{\Gamma_{\text{CII},i}}\right)$$
(3.02)

Avec $E_{CII,i}$ l'énergie de l'état de classe II n°i, $\Gamma_{CII,i}$ sa largeur et $\sigma_{CII,i}$ son amplitude. Le coefficient α est une constante qui permet de régler le niveau de la courbe puisque cette formule intègre la pénétrabilité globale de la double barrière de fission. Trois courbes sont alors obtenues : une pour chaque état de classe II et une représentant la totalité de la cumulée. La Figure 3 - 6 retrace les trois courbes.



Chapitre 3 : Calculs théoriques et analyse des résultats

Figure 3 - 6 : Courbes représentant la cumulée des largeurs de fission ajustées sur l'équation (3.02) (échelle lin-lin).

Les paramètres de l'équation (3.02) obtenus pour chaque état de classe II sont recensés dans le Tableau III - 1 :

<i>Tubican III</i> 1. <i>Turanenes des etais de classe II autis le I</i> III.				
	E _{CII,i} (eV)	Γ _{CII,i} (eV)	$\sigma_{ m CII,i}$	α_{i}
Etat de CII n°1	447	3	0.0112	$1.75*10^{-2}$
Etat de CII n°2	759	0.04	0.12854	2.37*10-1

Tableau III - T : Parametres aes etats ae classe II aans h	ibleau III	ramètres des états de cl	lasse II dans le RRR.
------------------------------------------------------------	------------	--------------------------	-----------------------

Maintenant que les états de classe II du RRR sont identifiés, nous pouvons les ajouter à la base de structure nucléaire du code CONRAD.

3.1.3 Ajout des états de classe II dans CONRAD

Pour distinguer explicitement les états de classe II dans le code CONRAD, P. Tamagno a implémenté l'équation d'une pénétrabilité de barrière de fission de type Lorentzienne (1.15) ; laquelle a été implémentée avec l'approximation RM. Cela confirme que l'approximation MLBW, peu compatible avec les développements récents (et sûrement futurs), est technologiquement dépassée.

Pour discriminer les états de classe II dans CONRAD, nous reprenons les paramètres identifiés grâce à l'ajustement des seuils : $E_{CII,i}$, $\Gamma_{CII,i}$ et $\sigma_{CII,i}$. L'amplitude ($\sigma_{CII,i}$), seule valeur sans unité, est à ajuster en fonction du code de calcul. Dans le cas de CONRAD, elle doit être multipliée par 10⁶ ([204] « The σ_{C} parameter has no effect on practical resonance parameter

analysis [...] Thus the σ_C parameter will have the effect of a normalization factor that will vanish in the resonance parameter analysis as the quantity of interest is the relative distribution $\gamma_{\lambda f}^2 / \langle \gamma_{\lambda f}^2 \rangle$ »). Les autres paramètres restent inchangés. En prenant en compte la pénétrabilité des états de classe II P_{CII}, les amplitudes réduites de fission $\gamma_{\lambda f} = \sqrt{\frac{\Gamma_{\lambda f}}{2P_L(E)}}$ (1.13) sont naturellement

modifiées mais également la valeur de $\Gamma_{\lambda f}$ globale. Il faut donc réajuster ces derniers coefficients. Pour cela, la méthode est la même que celle expliquée au paragraphe 3.1.1. Les paramètres obtenus sont disponibles en Annexe 3.3. La modélisation de la section efficace obtenue est présentée Figure 3 - 7 (haut) avec un zoom sur la deuxième résonance de classe II (bas). Nous pouvons remarquer sur cette figure que le problème de niveau dans la région thermique, maintenant réajustée, est totalement résolu. Nous pouvons également noter que les maximas des résonances sont un peu moins bien ajustés mais toujours du même ordre de grandeur. Il serait possible de les ajuster parfaitement à JEFF3.3 mais cela serait une longue procédure pour un résultat qui, de par les larges incertitudes expérimentales relatives, ne serait pas certain d'être beaucoup plus juste que le résultat actuel.





Figure 3 - 7 : Modélisation RM de la section efficace neutronique de fission du 242 Pu avec traitement explicite des états de classe II. Vue d'ensemble (haut) et zoom sur le 2^e état de classe II (échelle lin-log)(bas). Le trait bleu situe l'état de classe II à 759 eV.

La Figure 3 - 9 compare les largeurs de résonance (absolues) en formalisme RM avant (haut) et après (milieu) la prise en compte des états de classe II. Une autre analyse avait initialement été réalisée avec des paramètres d'états de classe II préliminaires qui permettaient une reproduction de la section efficace d'une qualité similaire. Ces derniers paramètres, obtenus par essais-erreurs avec le code CONRAD, sont présentés dans le Tableau III - 2. La pénétrabilité Lorentzienne correspondante aux états de classe II est présentée Figure 3 - 8. Les largeurs des états de classe II dans la littérature [204, 207] étant de l'ordre de plusieurs dizaines d'eV, ces paramètres préliminaires sont plus en concordance avec la littérature que ceux obtenus par ajustement des seuils. C'est pour cette raison que nous avons choisi de les présenter et de les confronter aux autres résultats.



Tableau III - 2 : Paramètres des états de classe II dans le RRR obtenus par essais-erreurs (paramètres préliminaires).

Figure 3 - 8 : Pénétrabilité Lorentzienne des états de classe II en fonction de l'énergie du neutron (échelle lin-lin).

Le graphe des largeurs de fission obtenus avec ces derniers paramètres est disponible Figure 3 - 9 (bas). Nous pouvons remarquer que la distribution des largeurs de fission de classe I après prise en compte des états de classe II est beaucoup plus statistique qu'avant cette prise en

compte (figure du haut comparée à celles du milieu et du bas), ce qui est plus physique et plus réel. Nous pouvons également remarquer l'importance des paramètres choisis pour qualifier les états de classe II. Ces derniers influent en effet sur les largeurs de fission finales obtenues et donc sur leur distribution.



Figure 3 - 9 : Largeurs de fission obtenues en approximation Reich-Moore avant prise en compte des états de classe II (haut), après prise en compte des états de classe II avec les paramètres obtenus en ajustant les seuils (milieu) et avec les paramètres ajustés par essais-erreurs (préliminaires) (bas).

Une fois ce travail réalisé, nous pouvons affiner l'analyse en calculant les amplitudes de fission $\gamma_f \left(=\sqrt{\frac{\Gamma_{\lambda f}}{2P_L(E)}}\right)$ et en séparant la contribution de la pénétrabilité de type Lorentzienne. Les résultats sont disponibles Figure 3 - 10 avec en haut avant prise en compte des états de classe II ($P_L \equiv 1$), au milieu avec la prise en compte des états de classe II ($P_L \neq 1$), paramètres obtenus en ajustant les seuils et en bas avec prise en compte des états de classe II, paramètres

initialement obtenus par ajustement essais-erreurs. Sur cette figure, nous rappelons la conversion directe entre Γ_{CII} et γ_f lorsque les états de classe II ne sont pas pris en compte. Nous pouvons également noter encore une fois (en comparant les graphes du milieu et bas), lors de la prise en compte des états de classe II, l'influence des paramètres choisis sur les résultats obtenus.



Figure 3 - 10 : Amplitudes de fission obtenues en approximation Reich-Moore avant prise en compte des états de classe II (haut), après prise en compte des états de classe II avec les paramètres obtenus en ajustant les seuils (milieu) et avec les paramètres ajustés par essais-erreurs (bas).

Il peut être ici remarqué l'influence des paramètres des facteurs de pénétrabilité sur l'allure générale des amplitudes de fission. Nous pouvons également noter que l'emplacement des états de classe II est toujours visible, preuve que leur prise en compte explicite ne retire pas totalement leur influence sur les largeurs des états de classe I. Par exemple, on rappellera qu'un état de classe II se manifeste par une quasi-Lorentzienne et un décalage énergétique. Ce dernier n'est pas modélisé par CONRAD et ses implications ne sont pas répercutées dans l'ajustement. Dans tous les cas, la comparaison des γ_f après soustraction des $P_L=f(E)$ redresse la valeur des γ_f des deux classes I proches des E_{CII} observés.

Maintenant que nous avons identifié les états de classe II dans le RRR et que nous les avons ajoutés dans le fichier d'entrée du code CONRAD, nous pouvons identifier ces états dans l'URR.

3.2 Identification des états de classe II dans le URR

Même si le but recherché est le même que dans le RRR, le travail dans le URR sera totalement différent. Pour commencer, aucune largeur de fission n'est classiquement disponible dans le URR, nous ne disposons donc pas des valeurs « a priori » pour notre étude d'identification des états de classe II. Ensuite, comme le montre la Figure 3 - 11 (courbe continue), l'évaluation JEFF3.3 est plutôt rudimentaire dans le URR et ne pourra pas servir de support à notre étude. Comme dans chaque évaluation, notre première tâche consiste à sélectionner les données expérimentales disponibles et fiables. Enfin, nous avons choisi d'utiliser le code TALYS qui, rappelons-le, utilise la description Hauser-Feshbach pour la voie fission et repose sur le modèle optique via le code ECIS-06 en ce qui concerne la section efficace totale.



Figure 3 - 11 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu dans le URR – évaluation JEFF3.3 [240] et données expérimentales de Auchampaugh et Al. [102] renormalisées (hors incertitudes) (échelle log-log).

3.2.1 Données expérimentales choisies

Pour commencer, rappelons que le domaine de l'URR actuel s'étend de 1,15 keV à 40 keV (c'est-à-dire au seuil de la diffusion inélastique à 44.5 keV). Comme l'évaluation JEFF3.3 est faible de support, le choix de données expérimentales fiables et complètes sur cette gamme d'énergie est encore plus important pour notre étude. Il y a deux jeux de données disponibles dans EXFOR couvrant totalement le URR : les mesures de Auchampaugh et al. [102] et celles de Tovesson et al. [106]. Le premier jeu de données comporte 2276 points entre 1.15 keV et 40 keV alors que le second comporte 260 points entre 2 keV et 39.6 keV. Les données expérimentales de Auchampaugh et al. sont donc beaucoup plus fines et permettront une analyse plus précise de la section efficace. 177 points de plus sont disponibles entre 40 keV et 100 keV, permettant d'étendre notre étude jusqu'à cette dernière énergie.

Par un retour d'information de données intégrales, V. Huy [208] a proposé une renormalisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu au niveau du premier plateau (après le seuil de fission de première chance). Les données de Tovesson et al. nécessitent d'être divisées par 1.04. Les données de Auchampaugh et al ne sont par contre pas étudiées dans [208]. Il y a trois jeux de données de Auchampaugh et al dans EXFOR. L'un va de 200 eV à 501 keV et les deux autres vont de 511 keV à 4 MeV et 9.57 MeV. Parmi ces deux derniers jeux de données, celui finissant à 9.57 MeV n'a pas besoin d'être renormalisé alors que celui se terminant à 4 MeV doit être divisé par un facteur 1.1 pour correspondre aux autres plateaux renormalisés. En ce qui concerne le jeu de données de 200 eV à 501 keV, nous avons choisi de diviser la section efficace par le facteur 1.1 également. Ceci a été obtenu en comparant les valeurs moyennées de Tovesson et al. et de Auchampaugh et al. Il n'y a cependant pas de différence fondamentale de niveau entre les données renormalisées ou non à cause des incertitudes élevées sous le seuil. La différence principale est localisée au niveau des pics des résonances ajustées. La Figure 3 - 12 est un graphe en échelle log-log de données de Auchampaugh et al. normalisées (divisées par 1.1) avec les incertitudes correspondantes.



Figure 3 - 12 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu selon les données de Auchampaugh et al. [102] renormalisées (divisée par un facteur 1.1) (échelle log-log). Les incertitudes expérimentales des données sont les barres en orange.

Maintenant que nous avons sélectionné les données à utiliser pour réaliser notre travail, la méthode de [207] peut être utilisée pour identifier les états de classe II dans le URR.

3.2.2 Identification des états de classe II dans le URR

Tout comme pour le RRR, [207] explique une méthodologie pour identifier les états de classe II dans le URR. Cette fois-ci, ce ne sont pas les largeurs de fission qui sont utilisées - car non disponibles pour le URR – mais directement la section efficace de fission. En effet, comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, uniquement les résonances de classe I les plus larges sont observables dans l'URR. Seuls des amas de résonances de classe I et des résonances individuelles de classe II peuvent être identifiés. La méthode alors proposée est à nouveau de réaliser une cumulée - cette fois de la section efficace – pour repérer les seuils qui pourront être associés à des états de classe II. Afin de ne pas oublier de petits seuils plus difficilement repérables, nous avons choisi d'également moyenner la section efficace de fission sur cinq points consécutifs et de considérer comme état de classe II toute « bosse » totalement distinguable du bruit de fond. Ce sont ainsi 68 seuils qui ont été identifiés et ajustés par l'équation (3.02) : 56 seuils de 1,15 keV à 40 keV et 12 seuils de 40 keV à 100 keV. Nous pouvons ici noter que, comme le nombre d'états par bin d'énergie augmente avec l'énergie, de nombreux états de classe II ne peuvent pas être identifiés de 40 à 100 keV mais seulement des amas d'états. La Figure 3 - 13 représente la cumulée de la section efficace dans le URR avec les seuils ajustés. Le Tableau III - 3 répertorie les paramètres de la formule (3.02) pour chacun de ces états.



Figure 3 - 13 : Cumulée de la section efficace de fission du ²⁴²Pu (avec zoom sur les 5 premiers keV) – données de Auchampaugh et al.[102]. Ajustement des seuils par des Lorentziennes via l'équation (3.02).

å 100 keV.				
	E _{CII,i} (eV)	$\Gamma_{\text{CII,i}}$ (eV)	$\sigma_{ m CII,i}$	α_{i}
Etat de CII n°1	1 306.7	1.00	0.0827	1.381
Etat de CII n°2	1 401.6	0.95	0.0535	2.332
Etat de CII n°3	1 456.0	1.40	0.0779	2.739
Etat de CII n°4	1 751.0	1.91	0.0683	4.026
Etat de CII n°5	1 790.3	5.10	0.1615	4.402
Etat de CII n°6	1 837.4	1.55	1.0090	6.453
Etat de CII n°7	1 890.2	2.15	0.0612	8.151
Etat de CII n°8	2 748.0	3.50	0.0453	10.355
Etat de CII n°9	3 114.5	5.40	0.1903	11.110
Etat de CII n°10	3 142.8	4.80	0.1115	11.475
Etat de CII n°11	3 574.2	9.20	0.1515	21.517
Etat de CII n°12	3 656.3	5.70	0.0785	12.882
Etat de CII n°13	3 673.9	4.60	0.1500	13.129
Etat de CII n°14	4 860.0	16.80	0.2020	14.640
Etat de CII n°15	4 902.8	8.30	0.2710	15.145
Etat de CII n°16	5 169.0	11.70	0.0138	15.636
Etat de CII n°17	5 399.0	7.50	0.0102	15.726
Etat de CII n°18	5 918.0	14.00	0.0340	15.980
Etat de CII n°19	6 482.0	38.00	0.0384	16.218
Etat de CII n°20	6 646.0	13.00	0.0180	16.312
Etat de CII n°21	6 932.8	13.00	0.0431	16.468
Etat de CII n°22	7 730.0	18.00	0.0134	16.696
Etat de CII n°23	8 162.0	26.00	0.0354	16.830
Etat de CII n°24	8 486.0	24.00	0.0277	16.953
Etat de CII n°25	9 534.0	34.00	0.0372	17.237

Tableau III - 3 : Paramètres obtenus pour l'ajustement des seuils correspondants aux 68 états de classe II identifiés de 1 150 eV à 100 keV.

Etat de CII n°26	9 968.0	40.00	0.0222	17.351
Etat de CII n°27	10 277	32.00	0.0557	17.484
Etat de CII n°28	10 845	41.00	0.0470	17.666
Etat de CII n°29	11 525	40.00	0.0260	17.835
Etat de CII n°30	11 616	40.00	0.0252	17.870
Etat de CII n°31	11 875	41.00	0.0247	17.946
Etat de CII n°32	12 596	70.00	0.0150	18.047
Etat de CII n°33	12 945	85.00	0.0589	18.145
Etat de CII n°34	13 404	90.00	0.0205	18.247
Etat de CII n°35	13 785	32.00	0.0630	18.378
Etat de CII n°36	14 200	85.00	0.0115	18.484
Etat de CII n°37	14 630	44.00	0.0310	18.561
Etat de CII n°38	14 990	65.00	0.0169	18.631
Etat de CII n°39	15 154	58.00	0.0173	18.665
Etat de CII n°40	16 012	60.00	0.0519	18.819
Etat de CII n°41	16 852	30.00	0.0322	18.962
Etat de CII n°42	17 205	85.00	0.0186	19.029
Etat de CII n°43	18 440	75.00	0.0149	19.106
Etat de CII n°44	18 725	75.00	0.0120	19.135
Etat de CII n°45	19 350	105.00	0.0209	19.184
Etat de CII n°46	20 652	130.00	0.0197	19.268
Etat de CII n°47	22 202	80.50	0.0423	19.398
Etat de CII n°48	23 432	143.00	0.0369	19.526
Etat de CII n°49	26 112	112.00	0.0157	19.736
Etat de CII n°50	27 080	115.00	0.0470	19.832
Etat de CII n°51	28 215	147.00	0.0724	20.033
Etat de CII n°52	29 290	175.00	0.0270	20.164
Etat de CII n°53	31 140	250.00	0.032	20.307
Etat de CII n°54	32 375	230.00	0.0273	20.408
Etat de CII n°55	33 957	180.00	0.0317	20.523
Etat de CII n°56	34 920	192.00	0.0245	20.596
Etat de CII n°57	40 950	295.00	0.0556	20.946
Etat de CII n°58	41 937	220.00	0.0350	21.045
Etat de CII n°59	45 329	390.00	0.0595	21.249
Etat de CII n°60	47 385	650.00	0.0377	21.381
Etat de CII n°61	52 490	880.00	0.0689	21.593
Etat de CII n°62	55 290	228.00	0.0246	21.713
Etat de CII n°63	57 550	800.00	0.0302	21.797
Etat de CII n°64	61 800	600.00	0.0292	21.916
Etat de CII n°65	66 300	860.00	0.0382	22.064
Etat de CII n°66	68 971	512.00	0.0347	22.150
Etat de CII n°67	82 710	1235.00	0.0597	22.432
Etat de CII n°68	89 850	1700.00	0.0605	22.643

Maintenant que les principaux états de classe II dans le URR sont identifiés, nous pouvons les ajouter explicitement dans le fichier d'entrée du code TALYS pour modéliser la section efficace de fission résonnante dans ce domaine.

3.2.3 Utilisation du code TALYS pour modéliser la section efficace de fission

Pour modéliser la section efficace moyenne dans le URR, nous disposons du code TALYS et en particulier de la version TALYS1.4 modifiée par G. Noguère [communication privée]. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, ce code utilise le modèle de Hauser-Feshbach. Pour calculer les coefficients de transmission nécessaires, la méthodologie repose sur le modèle optique à voies couplées du code ECIS-06. C'est ce couplage qui sera utilisé.

Pour modéliser la section efficace, l'évaluation réalisée par Gilles Noguère sera utilisée comme base de travail. En reprenant la Figure 3 - 11, la courbe verte de la Figure 3 - 14 correspond à la meilleure modélisation actuelle de la section efficace de fission dans le URR par G. Noguère.



Figure 3 - 14 : Section efficace de fission du ²⁴²Pu dans le URR – évaluation JEFF3.3 (courbe rose), données expérimentales de Auchampaugh et Al. [102] renormalisées (croix noires) et modélisation moderne réalisée par G. Noguère (courbe verte) (échelle log-log).

Pour obtenir cette modélisation, G. Noguère a ajouté dans le fichier d'entrée de TALYS des états de classe II fictifs avec des largeurs importantes afin d'augmenter le niveau global de la section efficace. Pour obtenir la modélisation réalisée durant ma première phase de travail, tous les états de classe II fictifs de G. Noguère en dessous de 40 keV ont été retirés. Ensuite, comme tous les états ne peuvent pas être identifiés pour une énergie supérieure, un état sur deux uniquement a été retiré sur les 40 keV suivants afin de préserver le niveau de la section efficace. Au-dessus de 80 keV, tous les états de classe II fictifs ont été laissés.

Les états de classe II identifiés dans le paragraphe précédent ont ensuite été ajoutés. Encore une fois, l'amplitude (β_i , équation (2.32)), seule valeur sans unité, est à ajuster en fonction du code de calculs. Dans le cas de TALYS, elle est multipliée par 1.10³. Les autres paramètres sont

utilisables sans modification (attention, l'unité de la largeur est en MeV). La nouvelle modélisation obtenue dans ce travail est présentée sur la Figure 3 - 15 (courbe bleue).



Figure 3 - 15 : Modélisation de la section efficace obtenue dans l'URR après ajout des états de classe II identifiés dans le paragraphe 3.2.2 (courbe bleue). Référence du travail : données de Auchampaugh et al. (croix noires) [102] renormalisées (échelle log-log).

Nous pouvons remarquer sur cette figure que le niveau de la section efficace modélisée est correct, bien qu'un peu bas. Encore une fois, les incertitudes expérimentales entre les résonances (correspondant au bruit de fond de l'expérience hors résonances) sont telles qu'il n'est pas possible de connaître exactement le niveau. Il n'est donc pas utile de l'ajuster. Au contraire, il peut être noté que tous les pics des résonances doivent être ajustés afin de respecter les incertitudes fournies. Nous obtenons alors la modélisation présentée Figure 3 - 16 (courbe verte). Par soucis de netteté, les incertitudes expérimentales ne sont pas représentées (courbe avec incertitudes disponible en Annexe 3.4).





Figure 3 - 16 : Modélisation de la section efficace obtenue dans l'URR après ajustement des résonances de classe II identifiées dans le paragraphe 3.2.2 (courbe verte). Référence du travail : données de Auchampaugh et al. (croix noires) [102] renormalisées.

Les nouveaux paramètres obtenus pour réaliser cette modélisation sont présentés dans le Tableau III - 4. Les résonances notées « n°70 » correspondent aux états de classe II fictifs proposés par G. Noguère qui n'ont pas été supprimés.

1 100 CF 0 100 KCF. LCS	resonances noices « 70 »	som cenes jienves ajoun	cos par G. moguere er non
	E _{CILi} (MeV)	Γ _{CIL} i (MeV)	$\sigma_{\rm CILi}$
Etat de CII n°1	0.0013072	00.5*10 ⁻⁶	0.05290*10 ³
Etat de CII n°2	0.0013988	02.0*10 ⁻⁶	$0.04853*10^3$
Etat de CII n°3	0.0014569	01.8*10 ⁻⁶	$0.04605*10^3$
Etat de CII n°4	0.0017510	00.5*10 ⁻⁶	0.04990*10 ³
Etat de CII n°5	0.0017923	07.0*10 ⁻⁶	$0.05118*10^3$
Etat de CII n°6	0.0018390	02.0*10 ⁻⁶	$1.29000*10^3$
Etat de CII n°7	0.0018915	01.0*10 ⁻⁶	$0.04850*10^3$
Etat de CII n°8	0.0027490	03.4*10-6	$0.04090*10^3$
Etat de CII n°9	0.0031157	10.0*10-6	$0.20700*10^3$
Etat de CII n°10	0.0031443	08.5*10-6	0.12212*10 ³
Etat de CII n°11	0.0035748	12.0*10-6	$0.12900*10^3$
Etat de CII n°12	0.0036580	09.0*10 ⁻⁶	$0.07500*10^3$
Etat de CII n°13	0.0036765	11.6*10 ⁻⁶	$0.20500*10^3$
Etat de CII n°14	0.0048623	17.2*10 ⁻⁶	$0.18450*10^3$
Etat de CII n°15	0.0049070	16.0*10 ⁻⁶	0.41480*10 ³
Etat de CII n°16	0.0051734	02.2*10-6	$0.01150*10^3$
Etat de CII n°17	0.0054030	02.5*10-6	0.01300*10 ³
Etat de CII n°18	0.0059226	35.0*10-6	0.04350*10 ³
Etat de CII n°19	0.0064850	50.0*10-6	0.01999*10 ³
Etat de CII n°20	0.0066550	15.0*10 ⁻⁶	$0.02800*10^3$
Etat de CII n°21	0.0069370	30.0*10 ⁻⁶	$0.07340*10^3$
Etat de CII n°22	0.0077398	08.0*10-6	$0.01500*10^3$
Etat de CII n°23	0.0081690	43.0*10-6	0.04315*10 ³
Etat de CII n°24	0.0084930	37.8*10 ⁻⁶	0.04061*10 ³
Etat de CII n°25	0.0095430	56.5*10 ⁻⁶	0.04975*10 ³
Etat de CII n°26	0.0099850	55.0*10 ⁻⁶	0.02300*10 ³
Etat de CII n°27	0.0102850	$60.0*10^{-6}$	$0.09245*10^3$
Etat de CII n°28	0.0108500	53.0*10 ⁻⁶	$0.07640*10^3$
Etat de CII n°29	0.0115270	41.0*10-6	0.03300*10 ³
Etat de CII n°30	0.0116310	55.0*10 ⁻⁶	$0.03600*10^3$
Etat de CII n°31	0.0118870	69.0*10 ⁻⁶	0.03560*10 ³
Etat de CII n°32	0.0125960	55.0*10 ⁻⁶	0.01100*10 ³
Etat de CII n°33	0.0129580	98.0*10 ⁻⁶	$0.06653*10^3$
Etat de CII n°34	0.0134750	85.0*10 ⁻⁶	0.01370*10 ³
Etat de CII n°35	0.0138040	50.0*10 ⁻⁶	$0.15500*10^3$
Etat de CII n°36	0.0142200	55.0*10 ⁻⁶	0.00610*10 ³
Etat de CII n°37	0.0146530	85.0*10 ⁻⁶	$0.05870*10^3$
Etat de CII n°38	0.0150080	70.0*10 ⁻⁶	$0.02520*10^3$
Etat de CII n°39	0.0151800	60.0*10 ⁻⁶	$0.02460*10^3$
Etat de CII n°40	0.0160500	100.0*10-6	$0.10870*10^3$
Etat de CII n°41	0.0168730	55.0*10 ⁻⁶	$0.12150*10^3$
Etat de CII n°42	0.0172510	100.0*10-6	$0.02550*10^3$
Etat de CII n°43	0.0184650	25.0*10 ⁻⁶	$0.02200*10^3$
Etat de CII n°44	0.0187800	40.0*10-6	$0.02000*10^3$
Etat de CII n°45	0.0193800	90.0*10 ⁻⁶	$0.02700*10^3$
Etat de CII n°46	0.0206400	100.0*10 ⁻⁶	$0.02300*10^3$

Tableau III - 4 : Paramètres obtenus après ajustement de la modélisation de la section efficace pour les 68 états de classe II identifiés de <u>1</u> 150 eV à 100 keV. Les résonances notées « 70 » sont celles fictives ajoutées par G. Noguère et non supprimées.

	0.0000000	1.40.0**10-6	0.00000+103
Etat de CII n°47	0.0222320	140.0*10-0	0.09339*103
Etat de CII n°48	0.0234700	220.0*10*0	$0.05655*10^3$
Etat de CII n°49	0.0259820	200.0*10-0	$0.02800*10^{3}$
Etat de CII n°50	0.0271220	192.0*10-0	0.12073*10 ³
Etat de CII n°51	0.0282620	270.0*10-6	$0.15240*10^3$
Etat de CII n°52	0.0295600	500.0*10-6	$0.04400*10^3$
Etat de CII n°53	0.0312900	420.0*10 ⁻⁶	$0.04000*10^3$
Etat de CII n°54	0.0324550	280.0*10 ⁻⁶	$0.03500*10^3$
Etat de CII n°55	0.0340200	270.0*10 ⁻⁶	$0.07091*10^3$
Etat de CII n°56	0.0350000	260.0*10 ⁻⁶	$0.04600*10^3$
Etat de CII n°70	0.040	0.005	20
Etat de CII n°57	0.0410500	460.0*10 ⁻⁶	$0.08435*10^3$
Etat de CII n°58	0.0420570	340.0*10 ⁻⁶	$0.07150*10^3$
Etat de CII n°59	0.0454440	640.0*10 ⁻⁶	$0.09400*10^3$
Etat de CII n°60	0.0474300	800.0*10 ⁻⁶	$0.02950*10^3$
Etat de CII n°61	0.0524200	850.0*10 ⁻⁶	$0.07400*10^3$
Etat de CII n°62	0.0554300	440.0*10 ⁻⁶	$0.06345*10^3$
Etat de CII n°63	0.0577700	400.0*10 ⁻⁶	$0.01205*10^3$
Etat de CII n°70	0.060	0.010	30
Etat de CII n°64	0.0620200	290.0*10 ⁻⁶	$0.02610*10^3$
Etat de CII n°65	0.0665600	840.0*10 ⁻⁶	$0.04430*10^3$
Etat de CII n°66	0.0691900	780.0*10 ⁻⁶	$0.07157*10^3$
Etat de CII n°70	0.080	0.010	20
Etat de CII n°67	0.0830000	1710.0*10-6	$0.0567*10^3$
Etat de CII n°68	0.0901280	1680.0*10-6	$0.0360*10^3$
Etat de CII n°70	0.090	0.010	20
Etat de CII n°70	0.100	0.010	30
Etat de CII n°70	0.150	0.050	20
Etat de CII n°70	0.200	0.100	40
Etat de CII n°70	0.300	0.100	30
Etat de CII n°70	0.400	0.100	15
Etat de CII n°70	0.500	0.100	6
Etat de CII n°70	0.600	0.100	6
Etat de CII n°70	0.700	0.100	0.7
Etat de CII n°70	0.800	0.100	0.2
Etat de CII n°70	2.000	0.150	0.1
Etat de CII n°70	2.880	1.000	0.2
Etat de CII n°70	4.500	1.000	0.1

En conclusion, nous avons identifié les états de classe II principaux dans les domaines énergétiques résonnants résolus et non résolus. Bien sûr, ce travail d'identification a déjà été initié par d'autres chercheurs : Weigmann et al. [103] et Auchampaugh et al. [220]. Nous pouvons donc étalonner nos résultats aux leurs.

3.3 Comparaison avec la littérature

Deux autres travaux sérieux d'identification des états de classe II dans le RRR et dans l'URR sont disponibles : [103] et [220]. Ces deux études ont été faites suite à des mesures expérimentales réalisées par ces mêmes auteurs. Les états de classe I ont donc été également identifiés.

Les travaux de Weigmann et al. [103] s'étendent sur une gamme d'énergie de 2 eV à 47.2 keV. Une hypothèse a été faite par les auteurs : tous les états identifiés en dessous de 4 keV (hors 468 eV et 762 eV) sont de classe I. Seuls des regroupements ou des résonances particulièrement importantes sont également de classe II. Par cette hypothèse, les auteurs ont choisi de centrer des états de classe II par rapport aux états de classe I identifiés lorsque plusieurs résonances importantes de classe I sont visibles (exemple Figure 3 - 17 a et b). L'énergie à laquelle notre travail identifie un état de classe I ne correspond donc pas à celle d'un état de classe II pour [103] mais plutôt à un état de classe I (exemple Figure 3 - 17 g). Pour cette raison, le pic de certains états de classe II n'est pas identifiable sur la section efficace (cf exemple Figure 3 - 17 a flèche verte). Au-dessus de 4 keV, tous les états prépondérants sont classifiés classe II. 80 états de classe I sont identifiés entre 2 eV et 22.26 keV avec aucun état identifié entre 857 et 1300 eV (voir Figure 3 - 17 a). 66 états de classe II ont été repérés entre 468 eV et 47.2 keV.

Les travaux de Auchampaugh et al. [220] s'étendent sur deux gammes d'énergie de 595 eV à 924 eV et de 1696 eV à 3836 eV. La même hypothèse que les auteurs de [103] a été posée concernant l'appartenance au premier puits de fission des résonances observées en dessous de 4 keV. Sur ces deux gammes, 71 états de classe I et 6 états des classe II ont été identifiés.

En comparant ces deux études sur les gammes d'énergie communes, tous les états de classe II identifiés par [220] le sont par [103] qui a identifié un état supplémentaire. Par contre, en ce qui concerne les états de classe I, [103] a identifié 7 états sur la première gamme également identifiés par [220] qui en a noté 14 de plus. Sur la deuxième gamme d'énergie, 14 états sont identifiés par les deux références et [220] en a identifié 36 supplémentaires. En conclusion, ces deux travaux sont assez cohérents. [103] a réalisé son étude sur une plus large gamme d'énergie et a identifié plus d'états de classe II tandis que [220] a identifié plus d'états de classe I. Cependant, les états de classe I n'étant pas l'objet de notre étude, il est plus intéressant de comparer notre travail à celui de [103] qui est plus exhaustif.

Dans le RRR, les deux états de classe II identifiés dans ce travail le sont également dans [103]. Pour une représentation plus visuelle de la comparaison des travaux de [103] et de ce travail dans le URR, les états des classe I et II identifiés par [103] et durant ce travail ont été marqués sur la section efficace (données de Auchampaugh et al.). Les 50 keV sur lesquelles l'étude [103] a été réalisée ont été découpés en 14 gammes d'énergie. Sur chaque gamme, la limite arbitraire à 10 mbarn est indiquée par une ligne rose et la section efficace moyenne de la gamme est indiquée par une ligne orange. Pour toutes les courbes de la Figure 3 - 17 (a à l), les flèches en gras correspondent aux états de classe II, celles fines correspondent aux états de classe I identifiés par [103], les flèches bleues correspondent à des états identifiés comme états de classe II dans ce travail alors que les flèches

noires correspondent à des états non identifiés ici. Parmi les états de classes II identifiés, les flèches noires correspondent à des états identifiés communément entre [103] et ce travail, les flèches vertes sont des états identifiés dans [103] mais pas dans ce travail et l'inverse est représenté par des flèches rouges. Certains états de classe II identifiés uniquement par [103] (représentés par une flèche verte en gras) sont notés avec un « ? ». Cela signifie que les données de Auchampaugh et al. ne permettent pas de comprendre cette identification (états de classe II centrés entre plusieurs états de classe I). Les gammes d'énergie où aucun état n'est identifié ne sont pas représentées dans la Figure 3 - 17.



























Figure 3 - 17 : Comparaison des états de classe II identifiés dans ce travail avec les états de classe I et II identifiés par [103]. Section efficace de référence : données de Auchampaugh et al. [102]. Les 50 keV sont coupés en 14 gammes d'énergies. Celles avec aucun état identifié ne sont pas représentées. Chaque gamme possède une ligne rose fixée arbitrairement à 10 mbarn et une ligne orange correspondant à la section efficace moyenne de la gamme. La gamme possédant la résonance la plus importante (figure b) possède également une ligne verte représentant la section efficace moyenne sans cette résonance. Les états de classe I identifiés par [103] sont placés par une flèche fine. Ces flèches sont bleues lorsque l'état a été identifié comme état de classe II par ce travail et noires lorsque ce travail ne les a pas identifiés. Les états de classe II sont placés par des flèches en gras. Ces flèches sont noires lorsque l'état a été identifié communément par ce travail et par [103]. Elles sont rouges lorsque l'état n'a été identifié que par ce travail et vertes lorsque seul [103] a identifié l'état. Ces dernières sont suivies d'un « ? » lorsque les données de Auchampaugh et Al. ne permettent pas de justifier cet état. Le « ou » figure d est lié au fait que [103] identifie l'état à 3542 eV alors que [220] l'identifie à 3568 eV.

Nous pouvons noter la différence majeure entre ces deux études en dessous de 4 keV liée à l'hypothèse posée par les auteurs : les résonances identifiées sont de classe I alors que ce travail repose sur l'hypothèse implicite que toute résonance identifiée dans le URR est de classe II. Nous pouvons alors discuter de la pertinence de ces hypothèses peut-être arbitraires. Le RRR se termine à 1150 eV car les résonances de classe I deviennent trop rapprochées et larges pour être ensuite individuellement observées. On peut alors faire la juste hypothèse que les états de classe I ne peuvent pas être individuellement observés dans le URR. Ainsi, les résonances observées au-dessus de 1150 eV (première à 1305 eV) sont soit des amas de résonances de classe I, soit des résonances de classe II. Aucune des deux hypothèses n'est sûrement juste, la réalité étant certainement un mélange des deux. La seule façon de valider ou d'invalider ces hypothèses en identifiant l'origine de chaque résonance incontestablement est de comparer la section efficace de fission à une section efficace induite par neutron du ²⁴²Pu d'un autre type. En effet, les états de classe II ne sont directement observables que sur la section efficace de fission et parfois sur la totale (pour les fissiles) mais pas sur la capture. Toute résonance observée dans les différents types de sections efficaces est donc une résonance ou un groupe de résonances de classe I. Malheureusement, trop peu de mesures de haute résolution énergétique existent à ce jour pour permettre une telle comparaison, soulignant ainsi la pauvreté de la base

expérimentale, malgré la mesure récente de capture de Buckner (2016), pour ce noyau cible comme le montre la Figure 3 - 18.

Nous pouvons voir sur la Figure 3 - 18 (haut) que très peu de jeux de données expérimentales (de plus de quelques dizaines de points) existent en dessous de 100 keV (i.e. dans le résonnant). On constate seulement 2 jeux pour chacune des sections efficaces totale et de capture, 3 pour celle de fission. Nous signalons néanmoins que les structures de la fission restent fortes, même dans l'URR. Il serait intéressant d'avoir un jeu de données non moyennées pour la capture pour discriminer les structures. Enfin, en regardant la Figure 3 - 18 (bas) qui est un zoom sur la résonance de classe II autour de 760 eV, les données de capture non moyennées ne montrent pas de fluctuations singulières.

D'autres différences entre nos travaux et ceux de [103] existent, principalement liées au fait que les données expérimentales utilisées ne sont pas les mêmes mais également dépendantes de la limite fixée par chacun pour considérer que la fluctuation est un état observé et non une fluctuation liée aux incertitudes. Des mesures très précises sont alors nécessaires pour valider l'existence de certains états. Cependant, le niveau très bas de la section efficace dans l'URR lié au caractère fertile de l'isotope ne permet pas d'obtenir des incertitudes assez faibles pour valider la présence de ces fluctuations.

Enfin, nous pouvons noter une augmentation observable graphiquement de l'espacement moyen entre les états à partir de 30 keV. Nous pouvons donc affirmer qu'au-dessus de cette énergie, certains états ne sont plus identifiables.

Nous avons donc identifié les états de classe II dans le RRR et dans l'URR et comparé nos résultats avec la littérature reportée. Grâce au code AVXSF puis à la loi de température constante, nous pouvons maintenant aller plus loin dans l'analyse et en déduire plus précisément l'énergie du fond du deuxième puits de fission.



Figure 3 - 18 : Comparaison des sections efficaces de fission, de capture et totale du ²⁴²Pu mesurées dans le RRR et dans l'URR. [101, 102, 106, 113, 114, 116, 117] (haut). Zoom sur l'état de classe II autour de 760 eV (bas).

3.4 <u>Détermination de l'énergie du fond du deuxième puits de</u> <u>fission</u>

Pour déterminer l'énergie du fond du deuxième puits E_{II} , plusieurs axes peuvent être investigués dans ce travail. Tout d'abord, le code AVXSF, et plus précisément le module QPVRLD (cf chapitre 1.3) génère une séquence d'états de classe II permettant de comparer les états identifiés durant ce travail à une séquence individuelle réaliste ainsi que la densité d'états. Ensuite, une loi de température constante permettant de prédire le nombre d'états en fonction de l'énergie d'excitation sera utilisée, les paramètres étant choisis en se référant aux données fournies par AVXSF, RIPL-3 [223] et TALYS. Enfin, en comparant les résultats de l'étude avec AVXSF, de la loi de température constante ainsi que des états identifiés durant ce travail, l'énergie du fond du deuxième puits de fission pourra être discutée.

3.4.1 Etude avec une séquence d'états fournie par AVXSE

Pour commencer ce travail, il faut rappeler la valeur de paramètres décrits au chapitre 1 :

- $S_n = 5.034 \text{ MeV}$;
- $E_{II} = 1.7 \pm 0.3 \text{ MeV}$;
- Voie d'entrée neutronique « s » ouverte dès S_n;
- Voie d'entrée neutronique « p » considérée ouverte à S_n + 700 eV ;
- Voie d'entrée neutronique « d » considérée ouverte à $S_n + 20$ keV.

Toute la phase d'études suivante se base sur ces paramètres en testant des valeurs de E_{II} comprises dans l'intervalle d'incertitude fourni par la littérature (± 0.3 MeV) [222, Table XXXII]. Rappelons avec les voies d'entrée « ouvertes » que la spectroscopie neutron ne permet d'exciter que certains niveaux (pour $\ell = 0$ notamment, $J^{\pi} = 0.5^+$ unique) et non tous ceux présents dans la séquence de structure nucléaire générée par AVXSF.

L'étude portant sur les états au-dessus de S_n, leur énergie d'excitation U* est donc supérieure à : U* \geq (S_n – E_{II}) = (3.334 ± 0.3) MeV. Pour E_{II, min}, U \geq 3.634 MeV alors que pour E_{II, max}, U* \geq 3.034 MeV. Comme les états de classe II ont été identifiés de 0 à 100 keV, l'étude se fera également sur la plage de S_n à (S_n + 100) keV. Ainsi, le code AVXSF doit fournir une séquence d'états dont l'énergie d'excitation est comprise entre 3.034 et 3.734 MeV.

Nous avons décidé de réaliser 13 séquences partielles en découpant les valeurs possibles de E_{II} par tranche de 50 keV. Pour chaque séquence, seuls les états excités « s » sont gardés sur les 700 premiers eV, ensuite sont ajoutés les états « p » jusqu'à 20 keV puis les états « d » sur les 80 derniers keV. Chaque séquence partielle est recalée afin que l'énergie du premier état 0.5^+ corresponde au premier état de classe II identifié à 468 eV au-dessus de S_n . Comme il est utopique de pouvoir discriminer expérimentalement les états dégénérés, un seul état par énergie a été retenu en cas de dégénérescence. Puisque le nombre d'états non observés augmente avec l'énergie, deux intervalles ont été analysés : de 0 à 10 keV et de 0 à 20 keV. Le Tableau III - 5 récapitule la valeur de E_{II} , l'énergie de début et de fin de séquence pour chacune des 13 séquences partielles QPVRLD.
n° de la		Début	Fin (keV)		
séquence	EII (IVIEV)		10	20	100
1	2,00	3,0352	3,0452	3,0552	3,1352
2	1,95	3,0842	3,0942	3,1042	3,1842
3	1,90	3,1342	3,1442	3,1542	3,2342
4	1,85	3,1852	3,1952	3,2052	3,2852
5	1,80	3,2343	3,2443	3,2543	3,3343
6	1,75	3,2838	3,2938	3,3038	3,3838
7	1,70	3,3347	3,3447	3,3547	3,4347
8	1,65	3,3836	3,3936	3,4036	3,4836
9	1,60	3,4336	3,4436	3,4536	3,5336
10	1,55	3,4850	3,4950	3,5050	3,5850
11	1,50	3,5337	3,5437	3,5537	3,6337
12	1,45	3,5844	3,5944	3,6044	3,6844
13	1,4	3,6341	3,6441	3,6541	3,7341

Tableau III - 5 : Tableau récapitulant les énergies d'excitation de début et de fin de chacune des 13 séquences partielles.

Le nombre d'états pour chaque séquence QPVRLD en dessous de 700 eV, jusqu'à 10 keV, jusqu'à 20 keV et sur 100 keV est récapitulé dans le Tableau III - 6.

 $Tableau \ III - 6: Récapitulatif \ du \ nombre \ d'états \ s \ (<700 \ eV), \ s \ et \ p \ (<10 \ keV \ et \ <20 \ keV) \ et \ s, \ p \ et \ d \ (<100 \ keV) \ pour \ chacune \ des \ séquences \ partielles \ AVXSF-LNG.$

n° de la	Nombre d'états				
séquence	s (<700 eV)	s+p (<10 keV)	s+p (<20 keV)	s+p+d (<100keV)	
1	1	14	35	366	
2	3	29	52	413	
3	1	24	45	411	
4	1	25	51	437	
5	1	28	45	506	
6	1	27	57	535	
7	2	23	54	531	
8	1	27	51	574	
9	1	35	67	608	
10	1	27	62	628	
11	1	33	69	693	
12	1	42	80	741	
13	1	40	83	795	

Il est alors possible de comparer l'espacement moyen (inverse de la densité d'états) D_{II} vers S_n de chaque séquence à la fois avec les états identifiés dans ce travail et ceux identifiés par [103] sur 10 keV et 20 keV. Une comparaison sur la plage de 100 keV de ces espacements moyens expérimentaux n'a pas de sens puisque l'étude précédente a montré que la plupart des états ne sont pas individuellement observables au-dessus de 30 keV. Les résultats sont disponibles dans le Tableau III - 7.

La première chose notable est que le nombre d'états de la séquence partielle proposée par AVXSF (et donc l'espacement moyen) n'augmente pas graduellement quand E_{II} diminue (séquences 1 à 13). Ceci témoigne que le régime statistique de densité de niveaux (le gaz libre)

n'est pas encore atteint et que le régime du CTM s'applique bien dans ce domaine d'énergie d'excitation (U* < 4 MeV).

En analysant les résultats d'espacements moyens de notre travail, il est possible de noter que l'espacement moyen trouvé sur l'intervalle 0-20 keV devrait être inférieur à celui trouvé sur 0-10 keV, ce qui n'est pas le cas. Ceci peut témoigner de deux phénomènes :

- Certains états de classe I ont été identifiés comme classe II, diminuant l'espacement moyen sur 10 keV.
- Certains états de classe II n'ont pas été observés, augmentant l'espacement moyen principalement sur 20 keV.

En comparant notre travail d'analyse expérimentale avec les séquences de AVXSF, nous pouvons remarquer que le nombre d'états de classe II identifiés sur 10 keV ($D_{II} \approx 0.3704$ keV) correspond parfaitement aux prédictions de AVXSF pour $E_{II} = 1.80$ MeV (cadre rouge du Tableau III - 7). En considérant que certaines résonances identifiées comme classe II sont en fait des amas de résonances de classe I, l'espacement moyen doit être supérieur à la valeur sur 10 keV. Les valeurs de E_{II} possibles sont alors 2.00, 1.90, 1.85, 1.75, 1.70, 1.65 et 1.55 MeV (cadres jaunes du Tableau III - 7, colonne « sur 10 keV »).

L'espacement moyen (et donc le nombre de résonances identifiées) sur 20 keV dans notre travail le plus proche d'une valeur prédite par AVXSF correspond à un E_{II} de 1.80 MeV également. Si certains états au-dessus de 10 keV n'ont pas été observés, comblant une erreur par une autre, l'espacement moyen devrait être inférieur à la valeur trouvée. Ces valeurs correspondent à une énergie E_{II} de 1.85, 1.70 et 1.65 MeV (cadres jaunes du Tableau III - 7, colonne « sur 20 keV »). Il est déjà possible de conclure que les valeurs de E_{II} inférieures 1.55 MeV sont à rejeter tout comme 1.95 MeV. La différence entre les espacements trouvé dans ce travail et par AVXSF pour un E_{II} de 2.00 MeV est telle qu'il est également possible de rejeter cette valeur.

Ainsi, si tous les états de classe II ont été identifiés et qu'aucun état identifié n'est en fait de classe I, la valeur de E_{II} serait 1.80 MeV. Comme il est plus probable que ces deux problèmes aient été rencontrés, comblant une erreur par une autre, les valeurs plus crédibles de E_{II} seraient 1.85, 1.70 ou 1.65 MeV. Les valeurs 1.90, 1.75 et 1.55 MeV ne sont tout de même pas à rejeter à cause du régime non statistique de ce domaine.

En ce qui concerne le travail de [103], l'analyse sur 10 keV indique $E_{II} = 2.00 \text{ MeV}$ (espacements moyens identiques). Celle sur 20 keV ($D_{II} \approx 0.67 \text{ keV}$) indique un nombre d'états identifiés insuffisant (espacement moyen de [103] toujours trop élevé quelle que soit la séquence). La séquence AVXSF dont l'espacement se rapproche le plus de 0.67 keV est celle pour $E_{II} = 2.00 \text{ MeV}$, valeur de E_{II} maximale des séquences partielles étudiées. Comme en moyenne l'espacement moyen augmente avec E_{II} et comme l'incertitude de la valeur de E_{II} est de ±0.3 MeV, nous pouvons déduire de cette observation que certains états identifiés comme classe I par [103] sont des états de classe II.

Espacement moyen pour chaque						
S	séquence (keV)					
EII	Sur 10 keV Sur 20 ke					
2,00	0,7692	0,5882				
1,95	0,3571	0,3922				
1,90	0,4348	0,4545				
1,85	0,4167	0,4000				
1,80	0,3704	0,4545				
1,75	0,3846	0,3571				
1,70	0,4545	0,3774				
1,65	0,3846	0,4000				
1,60	0,2941	0,3030				
1,55	0,3846	0,3279				
1,50	0,3125	0,2941				
1,45	0,2439	0,2532				
1,40	0,2564	0,2439				

Tableau III - 7 : Tableaux comparant les espacements moyens expérimentaux de ce travail et de [103] par rapport à ceux des séquences partielles de AVXSF-LNG sur 10 et 20 keV.

Espacement moyen				
expérimental pour ce				
travail [keV]				
Sur 10 keV Sur 20 keV				
0,3704 0,4348				

Espacement moyen				
expérimental pour le				
travail [103] [keV]				
Sur 10 keV Sur 20 keV				
0,7692 0,6667				

Nous pouvons conclure que cette phase de travail, ne reposant que sur la valeur trouvée pour $D_{II}(S_n)$, est insuffisante pour déduire l'énergie du fond du deuxième puits de fission. Une analyse complémentaire est donc nécessaire pour déterminer avec une meilleure confiance E_{II} . Pour cela, nous allons comparer la cumulée, et donc les pentes des courbes, du nombre théorique d'états pour chaque séquence avec celui du nombre d'états de classe II identifiés. Les treize comparaisons graphiques (correspondant aux treize séquences partielles) sont disponibles en Annexe 3.5.

Le premier constat pouvant être fait nous conduit à penser que les courbes ne sont comparables qu'au maximum sur les 10 à 15 premiers keV de l'observation. On peut donc conclure qu'au-dessus de cette énergie, certains états sont déjà manqués (les plus faibles en magnitude). En effet, lorsque la voie « d » s'ouvre à 20 keV, nous pouvons remarquer sur la Figure 1 - 5 que celle-ci s'ouvre progressivement. Les états ont alors une magnitude faible et sont susceptibles de ne pas être observés.

Ensuite, nous notons que seulement certaines courbes QPVRLD (à E_{II} donnée) concordent avec nos observations expérimentales. Les valeurs de E_{II} de 2.00 MeV, 1.85 MeV, 1.65 MeV, 1.45 MeV et 1.40 MeV peuvent être assurément rejetées (voir Annexe 3.5).

Les trois meilleurs accords sont reportés ci-après Figure 3 - 19, correspondants aux valeurs de E_{II} de 1.95 MeV, 1.90 MeV et 1.55 MeV. Les courbes correspondantes aux valeurs de E_{II} de 1.80 MeV, 1.75 MeV et 1.70 MeV, 1.60 MeV et 1.50 MeV, bien que moins cohérentes que les trois précédentes, restent acceptables.





Figure 3 - 19 : Courbes comparant la cumulée des états de classe II observés dans ce travail (bleue) avec celle des états de classe II prédits par AVXSF (rouge) pour $E_{II} = 1.95$ MeV (haut), $E_{II} = 1.90$ MeV (milieu), $E_{II} = 1.55$ MeV (bas). (échelle linlog).

Afin de vérifier la plausibilité de la séquence d'états d'excitation simulée par AVXSF-LNG, une comparaison avec des calculs RIPL-3 (calculs HFB-BCS également par combinatoire) a été effectuée en cumulée (nombre d'états en fonction de l'énergie d'excitation) et en densité de niveaux. Cette comparaison est présentée Figure 3 - 20. Cette validation repose sur deux observables : la densité de niveaux totale $\left(\rho_{tot}^{(U)} = \sum_{J} \sum_{\pi} \rho(J, \pi, U)\right)$ et la densité de niveaux partielle $\rho(\frac{1}{2}, +, U)$ limitée aux états de spin $J^{\pi} = \frac{1}{2}^{+}$ possiblement observés (Figure 3 - 20 bas). Le nombre d'états cumulés associés à ces quantités est dessiné sur la Figure 3 - 20 haut.

Nous pouvons remarquer que les prédictions AVXSF-LNG et RIPL-3 des états 0.5^+ sont similaires jusqu'à environ 3.3 MeV d'excitation à S_n ($E_{II} = 1.7$ MeV). AVXSF prédit ensuite moins d'états que RIPL-3. En ce qui concerne le nombre d'états tout J^{π} confondu, les prédictions sont comparables en dessous de 3 MeV (AVXSF prédit légèrement plus d'états que RIPL-3 jusqu'à 1.5 MeV puis inversement). Au-dessus de 3 MeV d'excitation, RIPL-3 prédit plus d'états (nombre total) que AVXSF (jusqu'à environ un facteur 5 à 5.5 MeV). Nous pouvons dans tous les cas conclure qu'aux énergies de notre étude, les résultats des deux prédictions sont en accord et la séquence de AVXSF peut servir de référence à notre étude. Néanmoins, l'intervalle d'incertitude relatif ($\rho(J^{\pi}=0.5^+)$) à notre connaissance de D_{II}^{obs} (= 900 eV), dessiné sur la Figure 3 - 20 (rectangle) pour la valeur de $E_{II} = 1.7$ MeV, est plus favorable à la simulation AVXSF que RIPL-3.



Figure 3 - 20 : Comparaison de la prédiction d'états du deuxième puits de fission pour le ²⁴³Pu formé par AVXSF-LNG (courbes rouges) et par RIPL-3 (courbes bleues) avec la cumulée des états (haut) et la densité de niveaux (bas). Le rectangle noir rappelle l'incertitude actuelle sur E_{II} (±0.3 MeV). (NB : N(U, $J^{\pi}=1/2^+$) n'est pas disponible pour RIPL-3).

Les deux études successives d'espacements moyens et de cumulées des niveaux peuvent indiquent sans certitude une valeur de E_{II} de 1.90 MeV. Cependant, quatre autres valeurs de E_{II} (1.80 MeV, 1.75 MeV, 1.70 MeV et 1.55 MeV) restent tout à fait possibles. Cette première partie de travail permet donc de réduire le champ d'investigation des énergies du fond du deuxième puits de fission (qui semblent être supérieure ou égale à la valeur de la littérature) mais ne permet pas de donner une valeur avec certitude. De plus, il a été montré que le nombre d'états de classe II observés est supérieur au nombre réel en dessous de 10 keV, des amas d'états de classe I ayant été classifiés classe II. Même si notre étude permet de rejeter certaines valeurs de E_{II} , elle reste biaisée par la classification erronée des états. Affirmer que E_{II} est supérieure ou égale à 1.7 MeV est donc prématuré avec uniquement cette étude.

Pour approfondir encore notre investigation, ce travail se poursuit avec le support de la loi de température constante comme proposée par le CGCM [207, 223]. En effet, pour une plage d'énergie d'excitation limitée (U* < 4 MeV) telle que cela est vérifié pour le deuxième puits (U* = (S_n - E_{II}) < 4 MeV), le nombre d'états ne correspond pas à une loi statistique (modèle de gaz libre). Mais il peut être reproduit par un simple modèle de température constante (CTM) si l'énergie d'excitation est supérieure à l'énergie d'appariement de deux protons pour un noyau pair-impair comme le ²⁴³Pu (U* > $2\Delta_p$).

3.4.2 Loi de température constante

Pour prédire le nombre d'états de classe II à partir de la loi de température constante, repartons des bases. Soit U l'énergie d'excitation et N(U) le nombre d'états entre le fond du puits et U, en décomposant N(U), on a alors :

$$N(U) = N(E_{II} \rightarrow S_n) + N(S_n \rightarrow E_N)$$
(3.03)

Avec E_n l'énergie du neutron incident. On peut alors utiliser la loi de température constante :

$$\rho(U) = \frac{1}{T} e^{\frac{U-U_0}{T}}$$
(2.37)

Avec ici T la température du deuxième puits de fission et U_0 est une variable d'ajustement du modèle. En combinant (3.03) et (2.37), on a alors :

$$N(U) = \int_{a}^{b} \rho(U) dU = \int_{a}^{b} \frac{1}{T} e^{\frac{U-U_{0}}{T}} dU = \left[e^{\frac{U-U_{0}}{T}} \right]_{a}^{b}$$
(3.04)

En considérant $a = E_{II}$ et $b = S_n + E_n$, il est possible d'intégrer comme suit :

$$N(U) = e^{\frac{S_n + E_n - U_0}{T}} - e^{\frac{E_{II} - U_0}{T}}$$
(3.05)

En combinant (3.05) avec (3.03) :

$$N(E_{II} \rightarrow S_n) + N(S_n \rightarrow E_n) = e^{\frac{-U_0}{T}} \left[\frac{e^{\frac{S_n + E_n}{T}}}{e^{\frac{E_{II}}{T}}} - 1 \right]$$
(3.06)

En appelant N($E_{II} \rightarrow S_n$) N_{II}, et N($S_n \rightarrow E_n$) N(E_n) on obtient :

$$N(E_{n}) = e^{\frac{-U_{0}}{T}} \left[e^{\frac{S_{n} + E_{n} - E_{II}}{T}} - 1 \right] - N_{II}$$
(3.07)

Soit l'équation de prédiction du nombre d'états :

$$N(E_{n}) = e^{\frac{-U_{0}}{T}} \left[e^{\frac{E_{n} - (E_{II} - S_{n})}{T}} - 1 \right] - N_{II}$$
(3.08)

Cette équation nécessite la connaissance de certains paramètres. E_n est l'énergie du neutron incident et varie dans notre étude de 0 à 20 keV. E_{II} est déterminée selon la séquence étudiée entre 1.40 et 1.991 MeV et S_n vaut 5.034 MeV. La procédure de recherche des autres paramètres est la suivante. Tout d'abord, N_{II} est le nombre d'états sous S_n . Pour obtenir ce nombre, AVXSF a généré la séquence d'états totale de 0 à 3.734 MeV d'énergie d'excitation. N_{II} peut ainsi être fixé pour chacune des 13 séquences dépendantes de E_{II} .

Les paramètres les plus difficiles à obtenir sont T (la température du deuxième puits) et U_0 , l'énergie de décalage (paramètre d'ajustement). Pour obtenir la température du deuxième puits, le Tableau I - 5 indique que les propriétés du puits 2 sont plus proches de celles du puits 1 que de celles des barrières. Des valeurs possibles des températures de la littérature pour les puits 1 et puits 2 sont disponibles :

- RIPL-3 [223] propose comme température du puits 1 (onglet Levels sur le site Internet RIPL-3) 0.43133 ± 0.03750 MeV. Cet onglet fourni également une valeur de U₀ de -0.70050 ± 0.11588 MeV.
- Selon RIPL-3 [223], la température du puits 2 (onglet Fission sur le site Internet RIPL-3) est la même que celle des deux barrières et vaut 0.369 MeV à 3 MeV d'énergie d'excitation et 0.412 MeV à 3.75 MeV d'énergie d'excitation. Il a été vérifié avec les valeurs intermédiaires fournies qu'une interpolation linéaire était possible pour ajuster la température à chaque séquence.
- La valeur ajustée par TALYS pour la température du puits 1 est **0.37291 MeV** (aucune valeur communiquée pour le puits 2).

Comme il n'est pas possible de trancher sur la valeur exacte de la température, nous avons comparé les courbes des treize séquences pour chacune des trois températures citées ci-dessus Pour chacune des sous-parties suivantes, un tableau récapitulant les paramètres utilisés (Tableau III - 8 à Tableau III - 10) et la meilleure courbe obtenue (Figure 3 - 21 à Figure 3 - 23) seront présentés. Les autres courbes des séquences partielles sont disponibles dans l'annexe indiquée (Annexe 3.6 à Annexe 3.8). Les courbes seront présentées entre 0 et 7 keV pour deux raisons. 1 - la différence principale se fait sur les 2 à 3 premiers keV. 2 - lorsqu'une différence de niveaux asymptotiques est constatée entre les deux courbes, ces dernières restent quasiparallèles entre 3 keV et 100 keV. Ces courbes sont normalisées sur le premier état de la séquence AVXSF. Nous soulignons que dans cette étude, toutes les séquences d'états sont prises dans leur intégralité. Aucune discrimination des états par J^{π} n'a été faite.

3.4.2.1 T = 0.43133 MeV, U₀ ajustée

Paramètres utilisés :

Séquence	E _{II}	E _{II} -S _n	Т	N _{II}	U_0
1	2.00	-3.043	0.43133	30 693	-1.41332910
2	1.95	-3.084	0.43133	33 723	-1.41290181
3	1.90	-3.134	0.43133	37 831	-1.41244430
4	1.85	-3.184	0.43133	42 350	-1.41108120
5	1.80	-3.234	0.43133	47 410	-1.40973265
6	1.75	-3.284	0.43133	53 006	-1.40782987
7	1.70	-3.334	0.43133	59 183	-1.40535100
8	1.65	-3.384	0.43133	65 901	-1.40170579
9	1.60	-3.434	0.43133	73 206	-1.39703000
10	1.55	-3.484	0.43133	81 219	-1.39181560
11	1.50	-3.534	0.43133	90 043	-1.38628707
12	1.45	-3.584	0.43133	99 481	-1.37926823
13	1.40	-3.634	0.43133	109 886	-1.37216352

Tableau III - 8 : Tableau récapitulant les paramètres utilisés pour un ajustement de U_0 pour T = 0.43133 MeV.

Meilleure courbe obtenue pour $E_{II} = 1.70 \text{ MeV}$:



Figure 3 - 21 : Meilleure courbe obtenue pour $E_{II} = 1.70$ MeV avec ajustement de U_0 pour T = 0.43133 MeV.

Courbes disponibles en Annexe 3.6.

Dans cette étude, la meilleure adéquation entre la séquence générée par le module QPVRLD et la loi de température constante est obtenue pour une énergie du fond du deuxième puits E_{II} valant 1.7 MeV ; valeur de la littérature. Cependant, la valeur de U₀ est deux fois supérieure (en

valeur absolue) à celle prédite dans la littérature (environ -1.4 MeV ajustée contre -0.7 MeV publiée).

3.4.2.2 T = 0.369 MeV interpolée, U₀ ajustée

Paramètres utilisés :

Tableau III - 9 Tableau récapitulant les paramètres utilisés pour un ajustement de U_0 pour T = 0.369 MeV ajustée à l'énergie d'excitation par interpolation linéaire.

Séquence	E _{II}	E _{II} -S _n	Т	N _{II}	U_0
1	2.00	-3.043	0.372	30 693	-0.79573370
2	1.95	-3.084	0.374	33 723	-0.81535810
3	1.90	-3.134	0.377	37 831	-0.83996940
4	1.85	-3.184	0.380	42 350	-0.86446940
5	1.80	-3.234	0.383	47 410	-0.88965654
6	1.75	-3.284	0.386	53 006	-0.91354256
7	1.70	-3.334	0.389	59 183	-0.93684280
8	1.65	-3.384	0.392	65 901	-0.95969967
9	1.60	-3.434	0.394	73 206	-0.98221447
10	1.55	-3.484	0.397	81 219	-1.00482108
11	1.50	-3.534	0.400	90 043	-1.02771640
12	1.45	-3.584	0.403	99 481	-1.04979664
13	1.40	-3.634	0.406	109 886	-1.07235320

Meilleure courbe obtenue pour $E_{II} = 1.75 \text{ MeV}$:



Figure 3 - 22 : Meilleure courbe obtenue pour $E_{II} = 1.75$ MeV pour un ajustement de U_0 pour T = 0.369 MeV ajustée à l'énergie d'excitation par interpolation linéaire.

Courbes disponibles en Annexe 3.7.

Dans cette étude, la meilleure adéquation entre la séquence générée par le module QPVRLD et l'ajustement de la loi de température constante est obtenue pour une énergie du fond du deuxième puits E_{II} valant 1.75 MeV, valeur proche de celle de la littérature. Bien qu'un peu plus forte pour les E_{II} inférieures à 1.90 MeV, les valeurs de U₀ ne sont pas trop éloignées de celle prédite par la littérature. La cohérence des courbes pour E_{II} valant 1.70 MeV est la seconde meilleure (voir Annexe 3.7).

3.4.2.3 T = 0.37291 MeV, U₀ ajustée

Paramètres utilisés :

Séquence	EII	E _{II} -S _n	T	NII	U ₀
1	2.00	-3.043	0.37291	30 693	-0.80947840
2	1.95	-3.084	0.37291	33 723	-0.80357400
3	1.90	-3.134	0.37291	37 831	-0.79642440
4	1.85	-3.184	0.37291	42 350	-0.78849387
5	1.80	-3.234	0.37291	47 410	-0.78057217
6	1.75	-3.284	0.37291	53 006	-0.77216962
7	1.70	-3.334	0.37291	59 183	-0.76326755
8	1.65	-3.384	0.37291	65 901	-0.75335579
9	1.60	-3.434	0.37291	73 206	-0.74255157
10	1.55	-3.484	0.37291	81 219	-0.73128116
11	1.50	-3.534	0.37291	90 043	071973791
12	1.45	-3.584	0.37291	99 481	-0.70690535
13	1.40	-3.634	0.37291	109 886	-0.69399775

Tableau III - 10 : Tableau récapitulant les paramètres utilisés pour un ajustement de U_0 pour T = 0.37291 MeV.

Meilleure courbe obtenue pour $E_{II} = 1.75 \text{ MeV}$:



Figure 3 - 23 : Meilleure courbe obtenue pour $E_{II} = 1.75$ *MeV pour un ajustement de* U_0 *pour* T = 0.37291.

Courbes disponibles en Annexe 3.8.

Dans cette étude, la meilleure adéquation entre la séquence générée par le module QPVRLD et l'ajustement de la loi de température constante est obtenue à nouveau pour l'énergie de fond du deuxième puits E_{II} valant 1.75 MeV. Cette fois, toutes les valeurs de U_0 sont comprises dans l'intervalle d'incertitudes prédit par la littérature. La cohérence des courbes pour E_{II} valant 1.70 MeV est la seconde meilleure (voir Annexe 3.8).

La synthèse de notre étude sur trois températures indique une énergie du fond du deuxième puits E_{II} entre 1.70 et 1.75 MeV. Pour avoir une valeur cohérente de U_0 avec la littérature, la température la plus probable est proche de 0.37 MeV ; température prédite par TALYS. Enfin, la valeur de $E_{II} = 1.75$ MeV ayant été rejetée au cours de notre étude des espacements moyens, nos convergeons vers une valeur identique à celle de la littérature : 1.70 MeV.

Nous nous proposons de vérifier nos résultats en comparant la séquence AVXSF du puits II sous S_n avec la loi de température constante ajustée (intégration de l'équation (2.37)) dans le projet RIPL sur plusieurs milliers de noyaux pour leur puits d'équilibre [223, équation (10)] :

$$N(U) = e^{\frac{U-U_0}{T}}$$
(3.09)

Trois études ont à nouveau été réalisées sous S_n . La température a d'abord été fixée à 0.37291 MeV et U_0 a été ajusté. La valeur U_0 de la littérature a ensuite été fixée et la température ajustée. Enfin, les deux valeurs température et U_0 ont été ajustées simultanément afin d'obtenir deux courbes au mieux superposées. L'ajustement couvre la plage de la première brisure de paire (1.2 MeV) à 3 MeV.

3.4.2.4 Sous S_n : T = 0.37291 MeV, U_0 ajustée

Lors de cet ajustement, la valeur de U_0 obtenue vaut -0.818 MeV, valeur légèrement supérieure à l'intervalle d'incertitudes donné par la littérature. Les courbes obtenues sont :





Figure 3 - 24 : Courbes de prédiction obtenues sous S_n : comparaison de la séquence AVXSF sous S_n avec les résultats obtenus par (3.09) pour T = 0.37291 MeV fixée et $U_0 = -0818$ MeV ajustée.

L'excellente cohérence entre les courbes de la séquence sous S_n fournie par AVXSF et de l'équation (3.09) ajustée est ici notable. Cela confirme une température T proche de 0.37 MeV. La valeur de U_0 étant tout de même un peu élevée, étudions les résultats obtenus en la fixant à la valeur de la littérature (premier puits).

3.4.2.5 Sous S_n : U₀ = -0.70050 MeV, T ajustée

La valeur de T obtenue lors de cet ajustement est 0.357 MeV. Cette valeur semble un peu basse par rapport à tous les autres indicateurs. Les courbes obtenues sont :



Figure 3 - 25 : Courbes de prédiction obtenues sous S_n : comparaison de la séquence AVXSF sous S_n avec les résultats obtenus par (3.09) pour $U_0 = -0.70050$ MeV fixée et T = 0.357 MeV ajustée.

Dans cette étude, une faible déviation des courbes au-dessus de 2.8 MeV peut être remarquée. Bien que l'ajustement soit tout à fait satisfaisant, il est tout de même moins bon que celui de l'étude précédente.

3.4.2.6 Sous S_n : T et U₀ ajustées

Dans cet ajustement, la valeur obtenue pour la température est 0.371 MeV et celle pour U_0 vaut -0.80 MeV. Les courbes obtenues sont :





Figure 3 - 26 : Courbes de prédiction obtenues sous S_n : comparaison de la séquence AVXSF sous S_n avec les résultats obtenus par (3.09) pour T = 0.371 MeV et $U_0 = -080$ MeV ajustées.

Pour cet ajustement, les valeurs obtenues pour T et U_0 sont très proches de celles obtenues pour l'étude dont la température était fixée par TALYS et la superposition des courbes est similaire.

En conclusion, nous pouvons affirmer d'après les études ci-dessus que la valeur la plus probable de l'énergie du fond du puits reste dépendante de la température choisie. Pour une température assez élevée (0.43 MeV – RIPL-3[223]), E_{II} se rapproche de 1.7 MeV ; valeur de la littérature. La valeur de U₀ vaut alors le double (en absolu) de celle indiquée dans la littérature. Pour une température plus faible (comprise entre 0.37 et 0.39 MeV), E_{II} se rapproche de 1.75 MeV et les valeurs de U₀ sont plus cohérentes avec la littérature. L'étude en dessous de S_n confirme une température proche de 0.37 MeV avec U₀ valant un peu moins de -0.8 MeV. La deuxième meilleure courbe correspond toujours à $E_{II} = 1.70$ MeV.

En confrontant cette étude avec celles de 1 - l'espacement moyen (paragraphe 3.4.1) reposant sur les états discriminés par J^{π} en fonction de leur énergie ; 2 - la comparaison entre la prédiction AVXSF et l'observation (pour rappel, les valeurs les plus probables de E_{II} étaient 1.90 MeV, 1.80 MeV, 1.75 MeV, 1.70 MeV et 1.55 MeV), la valeur de E_{II} semble incontestablement comprise entre 1.70 MeV et 1.75 MeV. Rappelons que l'observation ne permet pas de déterminer avec certitude l'origine des états observés dans le URR. Certains amas d'états de classe I ont pu être comptés comme classe II et les états de classe II les plus faibles ont pu ne pas être observés.

<u>Ainsi, une valeur de E_{II} faisant consensus serait intermédiaire entre 1.70 MeV et 1.75 MeV</u>. De cette étude qui peut toujours être contestée, nous avons montré des arguments confirmant la valeur expérimentale du fond du puits quottée dans la littérature et en affinant ses incertitudes. Nous proposons donc $E_{II} = (1.7 \pm 0.25)$ MeV, à mettre en perspective avec la valeur proposée par la littérature de (1.7 ± 0.3) MeV. En ce qui concerne la température la plus probable pour une loi à température constante (CTM), notre étude suggère une valeur comprise entre 0.37 et 0.39 MeV. Cette valeur, inférieure à celle du puits I du projet RIPL qui repose sur une étude exhaustive de plusieurs milliers de noyaux, ne nous surprend pas. En effet les valeurs des phonons de vibrations collectives reportées dans le Tableau I - 5 pour le puits II sont compatibles avec celles du puits I mais la valeur de la constante rotationnelle dans le puits II (3.5 keV) est plus faible que celle du puits I (6.5 keV). Nous nous attendions donc à une densité de niveaux plus forte due au tassement des bandes rotationnelles induisant alors une température plus faible. Nous rappelons que le CTM repose sur une température unique et constante et donc applicable à une plage d'énergie restreinte. La plage de RIPL était plutôt centrée sur l'observation des « Low Lying Levels » de 300 keV à 1 MeV tandis que la nôtre portait de l'énergie de brisure de paire à 3 MeV.

3.5 Continuum

L'idée motrice de ce travail de thèse était d'une part de pouvoir confirmer expérimentalement la présence d'une structure résonante « géante » autour de 1.1 MeV avec notamment le développement d'un nouveau détecteur gazeux (le DGPR, voir chapitre 5), mais aussi de trouver l'explication théorique de cette structure. Dans ce chapitre, nous avons commencé à investiguer la structure nucléaire du système composé ²⁴³Pu (pair en Z et impair en N) du second puits de fission (les états de classe II) qui pouvait être la cause de cette structure résonante. Grâce au module QPVRLD du code AVXSF, nous disposons d'une séquence réaliste d'états de classe II qui contient pour une énergie d'excitation inférieure à $2\Delta_P$ (i.e. 2 fois l'énergie de brisure de paire de protons, $U \le 1.2$ MeV) seulement des états quasi-particulesneutrons couplés à des excitations collectives (cf chapitre 1.3) puis progressivement des états de plus en plus complexes. A 1.1 MeV au-dessus de S_n (soit U \approx 4.4 MeV pour E_{II} = 1.7 MeV), déjà plus de 400 000 états d'excitation possibles peuvent être peuplés (Figure 3 - 20) suivant le type de spectroscopie avec notamment 1138 états/MeV à S_n pour $J^{\pi} = 0.5^+$. Nous avons vu qu'à S_n , seulement des résonances de type « s » peuvent être observées (i.e. $J^{\pi} = 0.5^+$) et en dessous de 100 keV, seulement des résonances de type s, p et d. D'après les données de Weigmann et al. [103], la structure s'étale de 0.991 MeV à 1.276 MeV d'énergie neutron. A ces énergies neutron, une grande variété de spin et parité peut être peuplée en spectroscopie neutronique avec un espacement moyen tout spin/parité confondu de $1/900000 \approx 1$ eV (U = 4.4 MeV, Figure 3 - 20). Sachant que lorsque l'espacement moyen diminue avec l'énergie d'excitation, la largeur totale de la résonance augmente (i.e. la durée de vie de l'état diminue), il est peu probable que le fort recouvrement des résonances de classe II dans le continuum neutronique soit responsable de la structure observée.

En observant que cette structure se situe au franchissement du seuil de la fission de première chance, une hypothèse plausible serait que son origine soit reliée aux paramètres fondamentaux des barrières (hauteurs et courbures) et/ou aux états d'excitation (les états de transition ou de Bohr) construits sur chaque barrière fondamentale.

Il nous est apparu intéressant d'étudier d'abord la sensibilité de la section efficace aux paramètres des barrières. En effet, peut-être que l'un de ces paramètres (ou plusieurs) peuvent être responsable de cette structure et que celle-ci n'est pas modélisée uniquement à cause d'un choix inadéquate de leur valeur.

3.5.1 <u>Etude de la sensibilité de la section efficace de fission aux paramètres des</u> barrières fondamentales (hauteurs et courbures)

En reprenant la modélisation du continuum avec TALYS suggérée par G. Noguère, les valeurs choisies des paramètres étaient les suivantes :

- $V_A = 5.95 \text{ MeV}$
- $\hbar\omega_A = 0.45 \text{ MeV}$
- $V_B = 5.45 \text{ MeV}$
- $\hbar\omega_B = 0.50 \text{ MeV}$

Avec V la hauteur de la barrière et $\hbar \omega$ sa courbure. Le symbole « A » correspond à la première barrière et le « B » à la seconde. Bien sûr, ces valeurs dépendent de la modélisation choisie. Pour démonstration, avec un formalisme de matrice R étendu à la dimension de l'élongation du noyau, Bouland, Lynn et Talou [221] ont trouvé les valeurs suivantes :

- $V_A = 5.83 \text{ MeV}$
- $\hbar\omega_A = 0.85 \text{ MeV}$
- $V_B = 5.48 \text{ MeV}$
- $\hbar\omega_B = 0.50 \text{ MeV}$

L'incertitude sur la valeur de la hauteur de chaque barrière est classiquement de ± 200 keV [222, Table XXXII]. Pour étudier la sensibilité de la section efficace de fission, nous ferons varier chaque hauteur individuellement jusqu'à V_f ± 0.15 MeV par pas de 0.05 MeV.

Les résultats de l'étude de sensibilité de la section efficace de fission à la hauteur de la première barrière V_A avec le code TALYS sont illustrés Figure 3 - 27. Soulignons que les états de classe II fictifs (n°70 du Tableau III - 4) ont été conservés afin de préserver le niveau global de la section efficace. Toutes les structures observables dans cette analyse proviennent de ces états fictifs (aux énergies : 0.6 ; 0.7 ; 0.8 ; 2.0 ; 2.88 et 4.5 MeV). Il ne faudra pas en tenir compte. Notons également que la structure que nous étudions a été auparavant modélisée par G. Noguère grâce à un jeu d'états de transition modifiés artificiellement. Notre souhait maintenant est de la reproduire non pas par un jeu de paramètres nucléaires ajusté mais issu directement de la théorie.



Figure 3 - 27 : Etude de la sensibilité de la section efficace de fission du ²⁴²Pu à la hauteur de la première barrière V_A . Référence : données de Weigmann et al. (+ rouge) [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas) (échelle lin-lin).

Nous pouvons remarquer que le niveau de la section efficace sous barrière est très sensible à la hauteur de la première barrière (la plus haute). Celle-ci influe particulièrement sur la pente du seuil mais ne semble que peu modifier le niveau du plateau. Plus la hauteur de la barrière diminue, plus la section efficace sous-seuil est élevée et plus la pente du seuil est faible. On remarque, pour les valeurs de hauteur de barrière les plus petites, qu'une structure se dessine mais elle semble uniquement provenir de la pente faible du seuil (à cause du niveau haut sous le seuil). Cette petite structure s'étend sur une plus grande plage d'énergie, indiquant une origine différente que celle observée expérimentalement.

Les résultats de l'étude de sensibilité de la section efficace de fission à la hauteur de la deuxième barrière V_B sont donnés Figure 3 - 28.



Figure 3 - 28 : Etude de la sensibilité de la section efficace de fission du 242 Pu à la hauteur de la deuxième barrière V_B. Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas) (échelle lin-lin).

Nous remarquons que la section efficace est très peu sensible à la hauteur de la deuxième barrière. Le seuil ne varie pas du tout. Cependant la hauteur du plateau varie légèrement. Plus la hauteur de la barrière est élevée, plus la hauteur du plateau diminue, faisant ainsi apparaître une faible structure. Cependant, pour que cette structure soit indiscutable, la section efficace après le seuil devrait chuter trop fortement par rapport à ce que nous suggèrent les mesures.

La hauteur des barrières peut engendrer une faible structure au-dessus du seuil avec le décalage de la séquence d'états de transition. Pour approfondir cette piste, nous raffinons l'étude de sensibilité de la section efficace précédente. Cette fois, la hauteur de la première barrière varie par pas de 0.01 MeV de 5.91 à 5.95 MeV pour une hauteur figée de deuxième barrière à 5.48 (valeur de [221]) et 5.60 MeV (valeur testée engendrant la plus grande fluctuation). Les résultats sont présentés Figure 3 - 29.







Figure 3 - 29 : Etude fine de la sensibilité de la section efficace à la hauteur de la première barrière V_A pour $V_B = 5.48$ MeV (haut) et $V_B = 5.60$ MeV (bas). Référence : données de Weigmann et al. (+ rouges) [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (sous chaque courbe générale, échelle lin-lin).

Il est possible ici de noter la présence d'une structure faiblement dessinée correspondant à celle étudiée. Cependant, aucune des courbes présentées ne décrit les données expérimentales. En effet, le niveau de la section efficace du seuil est (toujours) trop haut et celui du plateau, au bon niveau voire trop faible. La conjonction de ces deux niveaux ne peut que créer une structure à l'endroit où le niveau de la modélisation croise celui des données expérimentales. Enfin, rappelons que la modélisation proposée par G. Noguère comportait une structure dont l'origine est une combinaison d'états de classe II et d'états de transition qu'il n'a pas été possible de gommer. Les structures dessinées dans cette étude semblent n'être qu'une translation de cette structure modifiée par l'influence de V_A. La sensibilité de la section efficace à la hauteur des barrières n'est pas une explication suffisante pour comprendre la structure expérimentalement observée. Nous démontrons donc bien que nous devons chercher une autre origine à cette structure.

Commençons par vérifier l'impact de la courbure des barrières. Nous ferons varier chaque courbure individuellement jusqu'à $\hbar\omega \pm 0.15$ MeV par pas de 0.05 MeV. Les résultats de l'étude de sensibilité de la section efficace de fission à la courbure de la première barrière $\hbar\omega_A$ sont donnés Figure 3 - 30.



Figure 3 - 30 : Etude de la sensibilité de la section efficace de fission du ²⁴²Pu à la courbure de la première barrière $\hbar\omega_A$. Référence : données de Weigmann et al. [103] (+ rouges) normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas, échelle lin-lin).

Tout comme pour l'étude de sensibilité à la hauteur de la première barrière, nous pouvons remarquer que la section efficace est très sensible à la courbure de la première barrière. Celleci influe particulièrement sur la pente du seuil mais ne semble que peu modifier la hauteur du plateau. La pente du seuil est inversement proportionnelle à la courbure de cette barrière. On remarque que peu importe les valeurs de la courbure, aucune structure ne se dessine. La courbure de la première barrière n'est donc pas à l'origine de la structure étudiée.

Enfin, les résultats de l'étude de sensibilité de la section efficace de fission à la courbure de la deuxième barrière $\hbar\omega_B$ sont illustrés Figure 3 - 31.

Cette fois, la section efficace semble ne pas être sensible à la courbure de la deuxième barrière. Le seuil et la hauteur du plateau ne varient pas du tout. Aucune structure ne se dessine. La courbure de la deuxième barrière n'est donc pas à l'origine de la structure étudiée.

Avec cette étude de sensibilité, nous pouvons noter que la section efficace est très sensible aux paramètres de la première barrière – barrière la plus haute qui détermine l'ouverture « complète » de la fission de première chance – mais ne l'est que très peu aux paramètres de la deuxième barrière – barrière la plus basse aisément franchie. L'origine de la structure ne semble pas provenir de la courbure des barrières ni de leur hauteur. Une autre explication est donc à trouver.



Figure 3 - 31 : Etude de la sensibilité de la section efficace de fission du ²⁴²Pu à la courbure de la deuxième barrière $\hbar\omega_B$. Référence : données de Weigmann et al. [103] (+ rouges) normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas, échelle lin-lin).

3.5.2 Insertion des états de transition tête de bande prédits pas AVXSF

En maintenant l'hypothèse que la structure observée autour de 1 MeV provient des caractéristiques de la barrière de fission, nous pouvons considérer qu'elle tienne son origine des états d'excitation présents au-dessus des deux barrières : les états de transition. Dans le code TALYS, un fichier d'entrée liste les états de transition tête de bande et leur spectre de rotation est automatiquement créé par TALYS. Dans la modélisation par G. Noguère, un jeu standard de RIPL-3 ces états tête de bande ont été ajoutés puis ajustés manuellement afin de reproduire la section efficace de fission observée. Ces états sont au nombre restreint de 38 de 0 à 0.2 MeV pour chaque barrière (avec le zéro de l'énergie d'excitation correspondant au niveau fondamental de la barrière) et sont disponibles en Annexe 3.9. Comme expliqué au chapitre précédent, l'utilisateur fournit l'énergie de début de continuum (E_{start}), l'énergie de raccordement (E_{rac}) et l'énergie maximale de fin de continuum (E_{max}) pour continuer la modélisation des états d'excitation individuels par une densité de niveau. Cette dernière énergie est indiquée dans le même fichier que les états tête de bande et vaut 2.0 MeV pour chaque barrière. Les deux autres énergies (fichier « input ») valent respectivement 0.05 MeV et 0.10 MeV pour la première barrière et 0.80 MeV et 0.90 MeV pour la deuxième barrière.

Dans le but de rendre la modélisation toujours plus physique, le premier travail est donc d'utiliser des états tête de bande plus réalistes. Pour cela, nous utilisons le code AVXSF pour générer une séquence d'états tête de bande pour chaque barrière. Nous dénombrons 297 états de 0 à 1.09 MeV d'énergie d'excitation pour la première barrière et 123 de 0 à 1.5 MeV pour la deuxième barrière. Comme le code TALYS est limité à 200 états par barrière, la première séquence est coupée à 0.94 MeV. Ces deux séquences sont disponibles en Annexe 3.10. Pour obtenir une modélisation de la section efficace non biaisée et convenable, il a suffi dans un premier temps de modifier légèrement la valeur des paramètres de la première barrière de fission avec $V_A = 5.93$ MeV, $\hbar\omega_A = 0.45$ MeV, $E_{start} = 0.10$ MeV et $E_{rac} = 0.20$ MeV. Les résultats obtenus sont présentés Figure 3 - 32 (courbe bleue).





Figure 3 - 32 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu en utilisant les états de transition tête de bande des deux barrières fournis par le code AVXSF. Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas, échelle lin-lin).

Nous pouvons remarquer sur cette figure que la structure reproduite par G. Noguère est presque totalement gommée lorsque les états de transition fournis par AVXSF sont utilisés. Cependant, maintenant que la section efficace est modélisée avec ces états plus réalistes, il faut corriger le début du continuum pour utiliser le jeu d'états tête de bande d'AVXSF au niveau de la structure, comme expliqué chapitre 2, paragraphe 2.3.3. En effet, avec les paramètres cités ci-dessus, le continuum (et donc la loi de densité de niveaux de type CGCM) débute pour la première barrière à $E_n = 0.2 + 5.93 - 5.034 = 1.096$ MeV et pour la deuxième barrière à $E_n = 0.9 + 5.45 - 5.034 = 1.316$ MeV. Ainsi, le continuum débute bien avant le début de la structure pour les états de la première barrière. Or, cette modélisation monotone lisse les états, ce qui ne permet pas de modéliser une structure. Il faut donc augmenter Estart et Erac pour cette barrière afin d'avoir des niveaux discrets pris en compte jusqu'au-dessus de l'énergie de la structure recherchée. Ces valeurs seront respectivement fixées à 0.35 MeV et 0.45 MeV (soit $E_n = 1.346$ MeV pour une structure se terminant à $E_n = 1.276$ MeV). Rappelons que ces valeurs correspondent à l'énergie d'excitation au-dessus de la barrière fondamentale. Cela signifie pour la première barrière que le début du continuum des états de transition a pour énergie d'excitation $U_{rac} = E_{rac} + V_A = 0.45 + 5.93 = 6.38$ MeV, soit 1.346 MeV d'énergie neutrons. Les résultats obtenus sont disponibles Figure 3 - 33.





Figure 3 - 33 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu en utilisant les états de transition tête de bande des deux barrières fournis par le code AVXSF et en augmentant les valeurs de E_{start} et E_{rac} . Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas, échelle lin-lin).

Nous pouvons remarquer sur cette figure que l'augmentation de l'énergie du début du continuum ne permet pas de modéliser cette structure qui est alors totalement **gommée**. Elle n'est donc pas générée par les états discrets de transition. Nous pouvons donc en déduire que les états de transition ne sont pas à l'origine de cette structure. Cette dernière ne semble donc pas liée aux barrières de fission. Nous continuons alors notre investigation.

3.5.3 <u>Recherche d'une origine indirecte de la structure</u>

Les études précédemment menées n'indiquent pas que la structure étudiée soit liée aux barrières de fission. Il semble donc qu'il faille chercher une origine indirecte à cette structure.

Pour introduire une autre explication possible, il faut d'abord se replonger dans la physique de l'interaction neutronique. Lorsqu'un flux de neutrons heurte une cible de ²⁴²Pu, il y a création d'un certain nombre de noyaux composés excités. Ce nombre dépend de la quantité de noyaux de ²⁴²Pu présents dans la cible, du nombre de neutrons heurtant la cible et de leurs énergies et finalement, de la section efficace de création du noyau composé équilibré σ_{NC} en ce qui concerne la voie de fission (postulat). Une fois qu'un noyau composé est créé, il doit se désexciter telle que la somme des voies de sortie soit égale à σ_{NC} . On peut alors écrire :

$$\sigma_{\rm NC}(E_{\rm n}) = \sigma_{\rm f} + \sigma_{\rm n,n}^{\rm NC} + \sigma_{\rm n,n'}^{\rm NC} + \sigma_{\rm \gamma}^{\rm NC}$$
(3.10)

Avec $\sigma_f, \sigma_{n,n}^{NC}, \sigma_{n,n'}^{NC}$ et σ_{γ}^{NC} respectivement les sections efficaces de fission, de diffusion élastique, de diffusion inélastique et de capture radiative après création du noyau composé. $\sigma_{n,n}^{NC}$ et σ_{γ}^{NC} décroissent rapidement avec l'énergie et deviennent négligeables au-dessus d'une centaine de keV. La σ_{NC} dans le continuum se résume donc à :

$$\sigma_{\rm NC}(E_{\rm n} = 1 \,{\rm MeV}) \approx \sigma_{\rm f} + \sigma_{\rm n,n'}^{\rm NC}$$
(3.11)

L'équation (3.11) indique que les sections efficaces de fission et de diffusion inélastique par réaction composée sont indirectement liées par la conservation du flux de création du noyau composé. Cela signifie que lorsque l'une des deux sections efficaces diminue localement, l'autre section efficace augmente à cette même énergie réciproquement.

Cette hypothèse indirecte plausible doit être investiguée. Pour cela, il faut se replacer dans le cadre théorie. Reprenons le schéma Figure 1 - 2. Lorsqu'un neutron d'une énergie E_n de 1 MeV heurte un noyau de ²⁴²Pu, le noyau composé équilibré est créé avec une énergie d'excitation $U^{CN} = E_n + S_n = 6.034$ MeV. Lors d'une diffusion neutronique inélastique, un neutron d'une énergie inférieure à celle de l'énergie incidente E_n est émis. En émettant ce neutron, le noyau composé perd également l'énergie de liaison du neutron S_n . Le noyau résiduel a donc une énergie d'excitation $U^{res} < E_n$. Ce noyau résiduel est créé avec une énergie d'excitation correspondant à un état d'excitation du puits fondamental. Lorsque E_n est inférieure à quelques MeV, l'énergie d'excitation du noyau résiduel correspond à un état appartenant aux états d'excitation discrets de basse énergie dits Low Lying Levels (LLL). Pour que la voie de sortie inélastique soit ouverte, il faut que E_n soit supérieure à l'énergie de l'état le plus bas des Low Lying Levels (environ 44.5 keV pour le ²⁴²Pu). La Figure 3 - 34 illustre nos propos.



Figure 3 - 34 : Schéma des puits de potentiel illustrant la réaction de diffusion inélastique neutronique du ²⁴²Pu au travers du processus de formation d'un noyau composé.

Par opposition aux études précédentes, nous devons ici nous focaliser sur les propriétés de la structure nucléaire du noyau résiduel (alias la cible) et non pas celle du noyau composé (²⁴³Pu*). Ainsi, les énergies d'excitation concernées seront beaucoup plus faibles $U_{max} \equiv 1.3$ MeV et les états concernés seront les états discrets (LLL) en dessous de 1 MeV et un continuum d'état audessus représenté par une loi de densité de niveaux. La liste des états LLL du ²⁴²Pu selon ENSDF [234] est disponible en Annexe 3.11. Il faut à nouveau s'intéresser aux énergies Estart et E_{rac} mais cette fois ces paramètres décrivent la jonction états discrets-continuum du noyau résiduel. Dans les études précédentes faites avec TALYS, ces deux énergies restent fixées respectivement à 0.60 MeV et 0.80 MeV. Avec ce choix, les états discrets couvrant la structure résonante autour de 1.1 MeV ne sont pas pris en compte. Ces énergies sont donc augmentées à 1.082 et 1.182 MeV respectivement (1.182 MeV correspondant à un niveau discret de basse énergie). Cette dernière énergie n'est pas prise au hasard car elle correspond à un état discret. Les résultats de la modélisation obtenus sont présentés Figure 3 - 35. Ces calculs s'inscrivent dans une démarche de description toujours plus réaliste des paramètres de structure nucléaire en conservant les améliorations précédentes. Ainsi, les états de transition fournis par AVXSF et l'énergie augmentée de début de continuum des états de transition de la première barrière sont conservés.





Figure 3 - 35 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu après augmentation de l'énergie de début de continuum du puits fondamental du ²⁴²Pu (noyau résiduel atteint par diffusion inélastique). Référence : données de Weigmann et al. (+ rouges) [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas, échelle lin-lin).

Nous pouvons remarquer sur cette figure que la courbe bleue, correspondant à cette dernière amélioration, dessine une structure au-dessus du seuil de fission (comparée à la courbe marron de la modélisation précédente réalisée). Il semble donc que l'hypothèse d'une origine indirecte soit vérifiée. Les états discrets introduits dans TALYS sont ceux recommandés par ENSDF [234]. Cependant, le calcul AVXSF indique que cinq états discrets sont manquants car non observés. Ces cinq états ont été interpolés car ils manquaient à la bande de rotation observée. Ils sont indiqués aux positions énergétiques suivantes :

- 1.061 MeV, $J^{\pi} = 7^{-1}$
- 1.078 MeV, $J^{\pi} = 4^+$
- 1.141 MeV, $J^{\pi} = 3^+$
- 1.182 MeV, $J^{\pi} = 6^{-1}$
- 1.193 MeV, $J^{\pi} = 4^+$

En ajoutant ces cinq états dans le fichier d'entrée de TALYS, nous obtenons la courbe de section efficace de fission bleue présentée Figure 3 - 36.





Figure 3 - 36 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu après augmentation de l'énergie de début de continuum du puits fondamental du ²⁴²Pu (noyau résiduel de la diffusion inélastique) et ajout des états discrets manquants prédits par AVXSF. Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas, échelle lin-lin).
La courbe bleue de cette dernière figure représente cette dernière étape. La structure apparue avant l'ajout des états manquants prédits par AVXSF est encore plus marquée après cet ajout, ce qui renforce l'hypothèse d'une origine indirecte.

Comme la prise en compte des nombreux états de transition discrets de la première barrière fournis par AVXSF semble plutôt gommer cette structure, une ultime modélisation est réalisée avec les énergies E_{start} et E_{rac} de cette barrière remis à la valeur initiale optimisée par G. Noguère pour reproduire au mieux la section efficace de fission sur-barrière. Les résultats ainsi obtenus avec un zoom sur la structure sont présentés Figure 3 - 37.





Figure 3 - 37 : Modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu après augmentation de l'énergie de début de continuum du puits fondamental du ²⁴²Pu (noyau résiduel de la diffusion inélastique), ajout des 5 états discrets manquants prédits par AVXSF et rabaissement à l'énergie initiale du début du continuum des états de transition de la première barrière. Référence : données de Weigmann et al. [103] normalisées selon [208] (échelle log-log). Zoom sur la structure (bas, échelle lin-lin).

La dernière courbe, agrandie autour de 1.1 MeV, confirme l'origine indirecte de la structure par la diffusion inélastique et donc notre intuition. En effet, la structure est totalement reproduite et la hauteur du plateau après seuil est fidèle à l'observation. Nous pouvons alors confronter les résultats obtenus avec d'autres données expérimentales en Figure 3 - 38.



Figure 3 - 38 : Comparaison des résultats obtenus avec des données expérimentales : Weigmann et al. normalisées (+ rouges) [103], Auchampaugh et al. (points bleus) [102], Tovesson et al. normalisées (losanges violets) [106], Marini et al. (carrés verts) [109] et Kögler et al. (triangles marrons) [110] (échelle lin-lin).

Nous pouvons noter sur la Figure 3 - 38 que nos résultats obtenus sont en accord avec les données expérimentales. Cependant, il est à noter que la structure apparue est un peu plus importante que celle des différentes mesures mais respecte les incertitudes des mesures (voir Annexe 3.12).

Pour compléter notre illustration, la Figure 3 - 39 représente la section efficace de diffusion inélastique calculée par TALYS en complément de la section efficace de fission telle que correspondante à notre meilleur calcul TALYS. Aucune comparaison n'est malheureusement possible avec des données expérimentales, les seuls jeux disponibles étant des mesures partielles de la section efficace de diffusion inélastique ([118] et [119]).





Figure 3 - 39 : Comparaison de la dernière modélisation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu et de la section efficace de la section de diffusion inélastique (obtenue par la soustraction de la directe inélastique à la totale inélastique). Zoom sur la structure. Référence : données de fission de Weigmann et al. [103] non normalisées (échelle lin-lin).

Il est à noter sur cette figure la diminution locale de la section efficace de diffusion inélastique réciproquement à la structure résonante de fission étudiée selon TALYS. Nous pouvons donc affirmer que l'origine recherchée est indirecte et provient d'une diminution locale de la section efficace de diffusion inélastique générée par une séquence d'états discrets de basse énergie (LLL) du noyau résiduel. Nous pouvons cependant noter que selon les quelques points expérimentaux disponibles, la section efficace calculée par TALYS ne correspond pas aux données expérimentales.

3.6 Conclusion du chapitre

Nous avons tout d'abord travaillé dans le RRR avec les états de classe I tabulés dans le fichier ENDF. Grâce à ce fichier, nous avons identifié les états de classe II du RRR que nous avons ajoutés explicitement dans CONRAD. Nous avons ensuite identifié les états de classe II dans le URR ; jeu que nous avons utilisé pour compléter la description résonnante dans un calcul TALYS. Nous avons ensuite travaillé avec une séquence d'états de classe II plus fiable fournie par le code AVXSF. Grâce aux états de classe II dans le RRR et dans le URR identifiés, à la séquence correspondante fournie par AVXSF et à une loi de température constante, nous avons pu comparer les résultats et ainsi débattre autour de la valeur du fond du second puits suggérée par la littérature.

Nous avons enfin travaillé dans le continuum neutronique (E_n > quelques centaines de keV) pour rechercher l'origine de la structure résonnante observée au-dessus du seuil de fission. Pour cela, nous avons d'abord étudié la sensibilité de la section efficace de fission à différents paramètres de base des barrières de fission – hauteurs et courbures responsables du seuil de fission. Nous avons ensuite remplacé dans TALYS la séquence d'états de transition tête de bande a priori (proposée par G. Noguère) par la séquence respective prédite par le module QPVRLD du code AVXSF de chaque barrière. Nous avons enfin recherché une origine indirecte en étudiant la sensibilité de la section efficace à l'énergie du début de continuum des états d'excitation du puits fondamental du noyau résiduel (²⁴²Pu). L'ajout d'états discrets prédits par AVXSF a permis de renforcer l'origine indirecte de la structure observée.

Cependant, la courbe de fission calculée reste encore perfectible avec un raffinement des paramètres du calcul. Néanmoins, notre calcul encore préliminaire reste dans les barres d'incertitudes des expériences dont le niveau et la forme résonnante sont en désaccord hors renormalisation. En ce qui concerne la structure résonnante autour de 1 MeV, une mesure précise centrée autour de celle-ci reste toujours d'actualité. C'est l'objet de notre chapitre expérimental qui commence par une revue des différentes techniques de mesures disponibles.

Chapitre 4 Techniques de mesures de sections efficaces de fission, état de l'art pour ²⁴²Pu(n,f)

Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, l'analyse théorique des sections efficaces a pour référence les mesures expérimentales. Il faut donc connaître les techniques ayant servi à réaliser la mesure de la section efficace. De nombreuses techniques de mesures existent. La technique adoptée dépend de la section efficace mesurée mais également de l'objectif de la mesure et de la précision recherchée.

Pour réaliser une mesure de section efficace partielle, comme par exemple une section efficace de fission, différentes décisions doivent être prises. Tout d'abord, il faut choisir le flux de neutrons. Deux types de flux existent. L'un délivre des neutrons avec plusieurs énergies, groupés en pulse. Ces neutrons sont plus ou moins ralentis et leur temps d'arrivée est mesuré pour remonter à leur vitesse et donc à leur énergie. C'est la technique de mesure par temps de vol (TOF, acronyme de Time Of Flight). Le second délivre un flux continu quasi mono-énergétique de neutrons. Ensuite, il faut choisir comment mesurer le flux de neutrons traversant la cible. Pour cela, on utilise une section efficace de référence. En effet, alors qu'une section efficace totale pourra être mesurée de manière absolue en mesurant le flux de neutrons avant et après la cible, une section efficace partielle l'est toujours de manière relative. On peut ici donner deux exemples de références couramment utilisées : les standards primaires et les standards secondaires. Les standards primaires sont connus avec une très bonne précision alors que les standards secondaires sont eux-mêmes connus relativement à un standard primaire et ont donc une moins bonne précision.

Une fois que nous connaissons les différentes techniques de mesures, il est intéressant de prendre connaissance des mesures déjà existantes et des différentes techniques choisies pour chaque mesure. Dans notre cas, nous avons donc besoin d'un état de l'art des mesures de la section efficace de fission du ²⁴²Pu. Cet état de l'art permettra non seulement de connaître les techniques utilisées mais aussi les différences et les divergences entre les mesures. Ceci pointera les forces et faiblesses de l'ensemble des données existantes et permettra ainsi de cibler la partie de la section efficace nécessitant plus de mesures.

Au cours de ce chapitre, les différents types de flux de neutrons existants pour les mesures de la section efficace de fission du ²⁴²Pu seront présentés. Nous nous intéresserons ensuite au choix de la référence en analysant les avantages et les inconvénients de chacune. Enfin, nous recenserons les mesures existantes de la section efficace de fission du ²⁴²Pu.

4.1 Choix du flux de neutrons

4.1.1 Mesure par temps de vol

La technique de mesure par temps de vol est la technique la plus utilisée pour la mesure de sections efficaces. Cette technique est souvent choisie car elle permet de réaliser des mesures précises simultanées sur une large gamme d'énergie grâce à la production d'un spectre blanc de neutrons. Voyons d'abord son principe puis étudions les différentes manières de créer le flux de neutrons.

4.1.1.1 Principe de la technique

Dans cette technique, l'énergie des neutrons est mesurée par le temps mis pour parcourir la distance séparant le point d'émission et le point de détection. Le principe est alors de générer un pulse de neutrons en un temps $\Delta \tau$ le plus court possible (incluant parfois un temps de ralentissement pour produire des neutrons de basse énergie) et de mesurer au bout d'une distance L les réactions nucléaires induites par ces neutrons. Comme les neutrons les plus énergétiques ont un temps de parcours plus faible, les réactions qu'ils engendrent seront détectées en premier. Une fois que la réaction du neutron le plus lent a été détectée, un nouveau pulse est émis [202]. Au besoin, les neutrons les plus lents peuvent être coupés pour augmenter la fréquence de répétition. En général, les lignes d'installation mesurent entre plusieurs mètres à plusieurs centaines de mètres. En dessous de 10-20 MeV, il est possible de négliger les effets relativistes. L'énergie du neutron vaut alors :

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}\mathbf{m}\mathbf{v}^2\tag{4.01}$$

Avec $v = \frac{L}{t}$, L étant la longueur de la ligne de vol en m et t étant le temps de parcours du neutron valant (pour t en µs et E en eV) [202] :

$$t = \frac{72.296L}{\sqrt{E}} \tag{4.02}$$

La précision du temps de parcours t du neutron dépend des précisions de l'instant de départ du neutron, lié à la largeur $\Delta \tau$ de l'impulsion, et de l'instant d'arrivée du neutron. Une fois l'incertitude du temps de parcours connue, il faut ajouter celle de la longueur de vol L pour connaître la précision de l'énergie du neutron, appelée résolution énergétique.

Pour connaître le nombre de neutrons ayant un temps de parcours t, un sélecteur de temps enregistre un taux de comptage. Ce système électronique ouvre et ferme successivement un grand nombre de canaux centrés sur t et de largeur Δt . Ceci permet de connaître la variation du nombre de neutrons observés en fonction du temps. Pour avoir une précision statistique satisfaisante dans chaque canal, il faut de nombreux pulses de neutrons. La précision statistique du comptage des neutrons variant en $\frac{\Delta t}{L^2}$, un compromis doit être fait entre la précision statistique et la précision de l'énergie du neutron.

Maintenant que nous avons revu le principe de cette technique, intéressons-nous à la méthode permettant de créer le flux de neutrons.

4.1.1.2 Source de neutrons

Il y a de nombreuses manières de créer un flux de neutrons, y compris des détonations des bombes nucléaires (plus utilisées de nos jours). D'autres méthodes ont été adoptées pour réaliser un spectre blanc de neutrons. Comme un grand nombre d'impulsions est requis pour réaliser des mesures précises, il est important d'utiliser des sources donnant des impulsions récurrentes de neutrons.

Le spectre blanc de neutrons peut être créé de deux manières différentes. Soit la source de neutrons produit directement un spectre blanc, soit les neutrons sont produits à une énergie définie et un matériau modérateur est placé en aval de la source. Dans ce cas, certains neutrons traverseront le film sans collision, d'autres en réaliseront une ou plusieurs avec des angles différents. Ces collisions ralentissent les neutrons, donnant toutes les énergies du spectre. Donnons quelques exemples pour créer un flux de neutrons :

- Utilisation du flux sorti d'un réacteur [202] : ces flux donnent une source très intense et continue de neutrons thermiques. Un obturateur rotatif constitué de plaques neutrophages est alors placé devant le flux permettant de le hacher.
- Utilisation d'une cible de ²³⁸U [103], une partie des neutrons peut être ralentie par un matériau hydrogéné (exemple : polyéthylène).
- Faisceau pulsé de protons très énergétiques (800 MeV) heurtant des cibles de noyaux lourds (Tungstène [105,106], Plomb). Cette méthode crée par spallation un spectre blanc de neutrons de haute énergie (d'environ 100 keV à plusieurs centaines de MeV). Avec un modérateur adéquat, des mesures peuvent être réalisées du domaine subthermique à plusieurs centaines de MeV.
- Accélérateur linéaire d'électrons [110, 202] : des tubes à ondes progressives accélèrent les électrons jusqu'à une centaine de MeV. A cette énergie, les électrons sont relativistes. Ils vont alors bombarder une cible de matériau lourd (tantale, uranium 238, plomb). Les électrons vont violemment ralentir et émettre un rayonnement X de freinage (bremsstrahlung) très intense et énergétique. Ces photons vont réagir avec le noyau lourd et créer des neutrons par la réaction (X,n) ou (X,f). Le pulse de neutrons est généré grâce aux dispositifs électroniques qui permettent d'obtenir de manière périodique des impulsions d'électrons de très faible durée (jusqu'à une ns avec des systèmes de compression de pulse). L'intensité du faisceau étant élevée, il est possible de travailler avec une grande longueur de ligne de vol (L = 100 m) et une petite largeur de pulses ($\Delta t=10^{-8}$ s). Un modérateur hydrogéné est utilisé pour travailler dans les domaines de basses énergies (RRR). La résolution énergétique obtenue étant très bonne, ce type d'accélérateur est l'une des sources de neutrons les plus performantes pour les énergies entres 1 eV et quelques MeV.
- Accélérateur électrostatique [202] : utilisé pour obtenir des neutrons avec un maximum du flux plus énergétique que celui produit par les accélérateurs linéaires d'électrons. Ce type d'accélérateurs utilise des réactions nucléaires entre des particules chargées et des noyaux légers pour obtenir des neutrons d'une énergie de l'ordre de 20 MeV. Les accélérateurs électrostatiques les plus connus sont les Van de Graaff (fréquemment utilisés pour la technique par flux de neutrons quasi mono-énergétique).

La gamme d'énergie des neutrons dépend donc de la technique utilisée par l'accélérateur pour produire ces neutrons.

La technique par temps de vol permet de mesurer une section efficace à toutes les énergies (spectre blanc) de manière très précise. Cela explique son grand succès pour réaliser une mesure. Cependant, il existe un faible nombre de lignes permettant de réaliser ces mesures. En Europe par exemple, il existe l'installation GELINA au JRC Geel (Belgique), nELBE (Allemagne) et l'installation nTOF au CERN (Suisse). Or, les mesures réalisées sur une même installation sont corrélées, les erreurs systématiques existantes liées aux installations se retrouvant dans chacune des mesures. Il est alors primordial de réaliser des mesures par une autre technique de flux de neutrons afin d'obtenir des mesures non corrélées par l'installation. Intéressons-nous à la technique par flux de neutrons quasi mono-énergétique.

4.1.2 Mesure par flux de neutrons quasi mono-énergétique

4.1.2.1 Principe de la technique

Dans cette technique, tous les neutrons heurtant la cible ont quasiment la même énergie. Dans ce cas, il n'est pas nécessaire d'avoir des impulsions, le flux est donc continu. Le principe est qu'un flux continu quasi mono-énergétique de neutrons va heurter la cible et le taux de réactions nucléaires va être mesuré pour cette énergie uniquement. Cette technique réalise donc une mesure à une énergie définie. Il faut alors modifier plusieurs fois l'énergie du flux de neutrons pour obtenir plusieurs points sur la section efficace. Cette technique ne permet donc pas de réaliser une mesure de la section efficace sur une large gamme d'énergie mais plutôt de vérifier certains points à certaines énergies.

Voyons maintenant comment est créé ce flux de neutrons.

4.1.2.2 Source de neutrons

Tout comme la technique des neutrons par temps de vol, il y a plusieurs méthodes pour créer un flux de neutrons mono-énergétique. Cependant, toutes ces méthodes sont similaires. Un flux de neutrons mono-énergétique est créé à partir d'un faisceau de noyaux d'hydrogène mono-énergétique (protons ou deutons) produit par exemple par un Tandem ou Singletron. Ce faisceau heurte une cible et la réaction engendre des neutrons dans 4π . L'énergie de ces neutrons dépend de l'énergie apportée par le projectile et de l'angle auquel chaque neutron est émis. Voyons les principales cibles possibles :

- Cible de titane tritié (TiT) [303, 109] : les cibles de titane tritié, avec un ratio T/Ti autour de 1.7, produisent des neutrons par deux réactions différentes selon le faisceau. Un faisceau de deutons produira, par la réaction ³H(d,n)⁴He, des neutrons d'environ 14 MeV. Un faisceau de protons, par la réaction ³H(p,n)³He, produira des neutrons d'énergies intermédiaires entre 1 à 2 MeV selon l'énergie des protons.
- Cible de ⁷Li : les cibles de ⁷Li produisent des neutrons par la réaction ⁷Li(p,n)⁷Be. Cette réaction montre une résonnance à 2.3 MeV produisant des neutrons d'environ 60 keV. Cette cible peut produire des neutrons d'une énergie entre une centaine de keV et 1.5 MeV.
- Cible de deutérium (D) gazeuse : avec un faisceau de deutons (d), on obtient la réaction D(d,n)³He. Ce faisceau fournit des neutrons d'une énergie typique entre 4 et 6 MeV.

La cible, que ce soit de ⁷Li ou de TiT, est potentiellement tournante pour optimiser son utilisation. En outre, les particules chargées perdant de l'énergie dans la cible, un neutron produit au début de la cible aura une énergie supérieure à un neutron produit à la fin de la cible. On a donc un élargissement du « pic » neutron dépendant de l'épaisseur et de l'homogénéité de cette épaisseur. Enfin, l'énergie des neutrons est toujours donnée pour un angle à 0°. La cible dont on veut mesurer la section efficace n'étant pas ponctuelle, une différence d'énergie existe entre les neutrons arrivant au centre de la cible et ceux arrivant à la périphérie. Toutes ces raisons justifient l'utilisation du « quasi » dans le nom de la technique qui fournit des résultats avec une résolution énergétique inférieure à ceux de la technique par temps de vol. Cependant, comme nous l'avons dit dans la sous-partie précédente, il existe peu d'installations permettant de réaliser des mesures par temps de vol et ces mesures sont corrélées. Au contraire, il existe de nombreuses infrastructures permettant d'avoir un flux continu de neutrons mono-énergétique et les mesures obtenues ne sont pas corrélées à celles réalisées par temps de vol.

Pour changer l'énergie des neutrons, plusieurs méthodes sont possibles :

- Changer l'angle du dispositif : ceci est très rapide à réaliser mais peut poser des problèmes de précision (géométrie plus complexe, distance à la source non ponctuelle difficile à évaluer etc.) et conduire à une incertitude plus grande de la section efficace mesurée.
- Changer l'énergie du faisceau-projectile : ceci est assez long et oblige à retravailler le faisceau pour l'amener de la source au point de production de neutrons.

Pour cette technique comme pour la technique TOF, il faut non seulement connaître précisément le nombre de réactions nucléaires ayant eu lieu mais également le nombre de neutrons ayant heurté la cible. Maintenant que nous avons revu les différents flux de neutrons, nous avons besoin de compter le nombre de neutrons arrivant sur la cible. Ceci est réalisé grâce à une section efficace de référence très bien connue. Le choix de cette section efficace de référence de neutrons de la précision finale souhaitée et de la complexité de la mesure.

4.2 Choix de la référence

Il existe plusieurs références répertoriées en deux catégories : les standards primaires et les standards secondaires. Un standard primaire est une section efficace mesurée sans référence, de manière absolue. Sa précision est donc excellente. Un standard secondaire est une section efficace mesurée relativement à un standard primaire. Cette section efficace est connue avec une précision moins bonne qu'un standard primaire mais son incertitude doit tout de même être très faible. Voyons plus en détails chacune de ces catégories.

4.2.1 Utilisation d'un standard secondaire

Le standard secondaire est souvent la référence choisie en raison de la simplicité de la mesure. Par exemple, pour mesurer une section efficace de fission, les standards secondaires généralement utilisés sont, selon la gamme d'énergie, les sections efficaces ²³⁵U(n,f), ²³⁸U(n,f) ou ²³⁷Np(n,f). Le flux neutronique est alors mesuré indirectement via le nombre de fissions du standard secondaire : le même type de dispositif sert à mesurer la section efficace et la référence. Prenons comme exemple la section efficace de fission du ²³⁵U. C'est la section efficace de

fission la plus mesurée et la mieux connue, sa précision variant entre 0.5% et 5% selon l'énergie. Pour mesurer la section efficace de fission du ²⁴²Pu en fonction de celle du ²³⁵U, il suffit de soumettre ces deux cibles au même flux de neutrons et de compter le nombre de fissions de chacune d'entre elles. La section efficace du ²⁴²Pu vaut alors :

$$\sigma_{f}({}^{242}_{94}Pu) = k \frac{N_{f}({}^{242}_{94}Pu)}{N_{f}({}^{235}_{92}U)} \sigma_{f}({}^{235}_{92}U)$$
(4.03)

Avec N_f le nombre de fissions mesurées pour chaque cible et k un facteur dépendant du nombre de noyaux présents dans chaque cible, des efficacités et des angles solides des détecteurs choisis. Les détecteurs couramment utilisés pour mesurer N_f sont les chambres d'ionisation (appelées chambres à fissions). Les cibles sont soit placées dos-à-dos dans une chambre double, soit dans deux chambres différentes. Les fragments de fission produits lors d'une fission vont ioniser le gaz présent dans la chambre et ainsi être détectés. Ceci explique alors la simplicité du dispositif et de l'analyse donnant des résultats tout de même précis et justifie le choix privilégié de cette technique.

La Figure 4 - 1 schématise le dispositif expérimental lors de l'utilisation d'un standard secondaire et de chambres d'ionisation pour la mesure d'une section efficace de fission.



Figure 4 - 1 : Schéma représentant le dispositif expérimental couramment utilisé pour réaliser une mesure de section efficace de fission en référence à un standard secondaire.

Cependant, toutes les mesures d'une section efficace par rapport à un standard secondaire identique sont corrélées, dépendant toutes de la précision et de la normalisation de ce standard. C'est pourquoi il est important de mesurer cette section efficace relativement à d'autres standards. Il est alors possible de faire appel à la technique des protons de recul.

4.2.2 Utilisation d'un standard primaire : technique des protons de recul

La technique des protons de recul permet de mesurer une section efficace relativement à un standard primaire : la section efficace de diffusion élastique du neutron sur l'hydrogène ¹H(n,n)p. Dans la littérature, cette section efficace est couramment appelée par les expérimentateurs H(n,p). Cette section efficace est connue avec une précision de 0.2% à 0.5% sur une large gamme d'énergie (de 0 à 20 MeV) [317, 318]. C'est également une section efficace qui peut être reproduite par un calcul *ab initio*, ce qui explique son excellente précision.

De plus, cette section efficace est sans structure. Cette technique a donc l'avantage considérable que les structures observées sur la section efficace de fission ne sont corrélées à aucune autre structure. Lorsque l'objectif est de mesurer précisément une structure, comme dans notre cas, cet avantage prime sur le fait que le dispositif expérimental et l'analyse pour obtenir la section efficace sont plus complexes. La Figure 4 - 2 compare la section efficace de fission du ²³⁵U et celle de la diffusion élastique du neutron sur l'hydrogène. Nous pouvons aisément remarquer les structures présentes sur la première alors que la seconde est totalement monotone.





Figure 4 - 2 : Comparaison de la section efficace de fission du ²³⁵U (haut) et de la section efficace de diffusion élastique du neutron sur l'hydrogène (bas) de 10⁻⁵ eV à 20 MeV (échelle log-log). Données : JEFF3.3 [240].

Le principe de cette technique est d'obtenir le flux neutronique en le convertissant en flux de protons puis en mesurant ce dernier. Il existe différentes manières pour cela, décrites ciaprès. Celle choisie pour cette thèse convertit le flux de neutrons en flux de protons via un radiateur (par exemple un film de polypropylène (PP)). La section efficace de fission vaut alors :

$$\sigma_{f} \begin{pmatrix} {}^{242}_{94} Pu \end{pmatrix} = \overline{\sigma_{H(n,n)p}} \ \frac{N_{f} \begin{pmatrix} {}^{242}_{94} Pu \end{pmatrix}}{N_{p}} \ \frac{\varepsilon_{p}}{\varepsilon_{f}} \frac{N_{H}}{N_{Pu}} \frac{\Omega_{R_{H}}}{\Omega_{Pu}}$$
(4.04)

Où :

- $\overline{\sigma_{H(n,n)p}}$ est la section efficace de diffusion élastique moyennée sur la gamme d'énergie

 $-\frac{N_{f}\binom{242}{94}Pu}{N_{p}}$ est le rapport des quantités détectées de produits de fission et de protons

 $-\frac{\epsilon_p}{\epsilon_F}$ est le rapport des efficacités totales du détecteur de protons de recul et du détecteur de fission

 $-\frac{N_{H}}{N_{Pu}}$ est le rapport de la quantité de matière d'hydrogène présente dans le radiateur et de la quantité de noyaux de ²⁴²Pu présents dans la cible

 $-\frac{\Omega_{R_{H}}}{\Omega_{Pu}}$ est le rapport des angles solides entre le radiateur d'hydrogène et la cible de ²⁴²D₁₁

La mesure de N_H est délicate car elle ne peut se faire par spectrométrie α comme pour les standards secondaires. Une technique possible est par micro-pesée. Le radiateur d'hydrogène doit impérativement être très fin (de 1 μ m à quelques μ m selon l'énergie des neutrons) afin que la perte d'énergie des protons de recul dans la feuille de PP reste inférieure à 10%. Ceci permet d'éviter une trop grande dispersion en énergie et d'obtenir un pic proton bien visible ce qui est essentiel pour réaliser des mesures précises. Il faut connaître parfaitement l'épaisseur, la masse et la taille de la feuille pour connaitre le nombre d'atomes d'hydrogène présents par unité de surface dans la feuille. La mesure de la masse s'effectue par la micro-pesée d'un échantillon choisi qui doit être représentatif de celui utilisé lors de la mesure. Plus la taille de l'échantillon est grande, plus l'erreur sur la surface est petite. Cependant, si la taille est trop grande, l'hypothèse d'homogénéité peut ne pas être valable et l'échantillon n'est donc plus représentatif. Un compromis doit alors être fait entre ces deux principales sources d'erreur. Enfin, une contamination aux poussières, aux huiles de pompes ou une mauvaise pause du radiateur modifiera le N_H initial et pourra même rendre l'expérience caduque.

Les termes N_{Pu} , ϵ_p , ϵ_f , Ω_{RH} et Ω_{Pu} sont soit obtenus par le fabriquant de la cible, soit par simulations.

Pour mesurer N_f , il est d'usage d'utiliser des chambres à fissions mais il est également possible d'utiliser des cellules photovoltaïques qui détectent l'énergie déposée par un fragment de fission.

Pour mesurer N_p , le nombre de protons de recul, il existe de nombreux détecteurs, chacun ayant été créé pour une raison particulière, par exemple les diagnostiques de sources de plasma chaud, la mesure de flux de haute énergie, ou au contraire de basse énergie. Parmi tous les détecteurs existants, le plus communément utilisé pour mesurer des protons de recul pour des neutrons avec une énergie incidente comprise entre 1 MeV et 70 MeV est la jonction silicium, détecteur semi-conducteur [319, 320]. Ces détecteurs ont beaucoup d'avantages, le premier étant la simplicité du système de détection. Celui-ci permet de déterminer l'efficacité de détecteur est de 100%), condition nécessaire pour réaliser une mesure précise de section efficace. De plus, le signal obtenu ne dépend que du nombre de protons ayant interagi avec la surface. Une réponse typique de ce détecteur est présentée en Figure 4 - 3.



Figure 4 - 3 : Taux de comptage des protons en fonction de l'énergie de ces protons. Détection par une jonction silicium pour des neutrons ayant une énergie de 1.6 MeV [302].

Nous voyons sur la Figure 4 - 3 que le détecteur silicium fournit un « pic proton » très facilement discernable du bruit de fond et permet donc de mesurer précisément le flux de protons qui rentre dans ce détecteur. L'énergie des protons émis par le radiateur vaut :

$$E_p = E_n \cos^2\theta \tag{4.05}$$

Avec E_n l'énergie du neutron ayant produit le proton de recul détecté et θ l'angle auquel est émis le proton par rapport à la direction incidente du neutron. Détecter des protons ayant la même énergie que les neutrons, comme c'est le cas sur la Figure 4 - 3, permet de discriminer les protons de recul d'autres protons diffusés. Pour cela, il faut donc limiter θ pour éviter un élargissement du pic proton. Un compromis avec la statistique doit être fait pour ne pas augmenter l'incertitude globale.

Pour des énergies neutrons supérieures au MeV, la Figure 4 - 4, repris de la référence [109], schématise le dispositif expérimental lors de l'utilisation de la technique des protons de recul pour la mesure d'une section efficace.



Figure 4 - 4 : Schéma représentant le dispositif expérimental pour réaliser une mesure de section efficace de fission en utilisant la technique des protons de recul [109].

Même si les jonctions silicium sont les meilleurs candidats entre 1 et 70 MeV, pour réaliser une mesure précise par protons de recul à plus basse énergie, ces détecteurs ne peuvent être utilisés. En effet, en dessous de 1 MeV le détecteur silicium ne permet pas de distinguer clairement le pic proton du bruit de fond, comme nous pouvons l'observer sur la Figure 4 - 5.



Figure 4 - 5 : Taux de protons en fonction de l'énergie déposée après soustraction du bruit de fond obtenu avec un détecteur silicium d'épaisseur 50 µm pour des énergies de neutrons de a) 1.6 MeV, b) 1.1 MeV, c) 0.9 MeV, d) 0.7 MeV, e) 0.5 MeV [302].

La disparition progressive du pic proton observée sur les figures c) à e) de la Figure 4 - 5 s'explique simplement : le détecteur silicium est sensible au bruit des électrons (issus des gammas, eux-mêmes produits par des neutrons). Un proton va déposer beaucoup d'énergie par unité de longueur sur une faible distance, déposant au final toute son énergie. Un électron, au contraire, va déposer peu d'énergie par unité de longueur mais sur toute l'épaisseur du silicium. Plusieurs épaisseurs de détecteur silicium existent. Pour limiter le bruit de fond lié aux électrons, il faut choisir l'épaisseur la plus faible compatible avec le parcours des protons.

Pour réaliser une mesure de section efficace de fission à plusieurs énergies, il est alors envisageable d'adapter l'épaisseur à l'énergie des neutrons incidents et donc à l'énergie des protons de recul. Par exemple, un silicium de 50 μ m semble tout indiqué [109, 302] au-dessus de 1 MeV et il serait possible d'en utiliser un de 25 μ m en dessous. Malheureusement, pour des neutrons d'énergies inférieures au MeV, les études réalisées ont montré que l'amélioration du signal due à la diminution de l'épaisseur du silicium n'était pas suffisante pour permettre des mesures précises à quelques centaines de keV [302].

Un détecteur de type silicium, convenant parfaitement au-dessus de 1 MeV devient donc difficilement utilisable pour des énergies plus faibles. Il existe alors d'autres types de détecteurs pouvant être utilisés. Le premier est le scintillateur plastique [307]. Les neutrons vont réagir sur

l'hydrogène présent dans le plastique et le proton détecté va émettre de la lumière. Cependant, ce type de détecteurs a plusieurs points négatifs pour la mesure d'une section efficace [308-311]. Tout d'abord, les neutrons doivent êtres discriminés des γ , ce qui impose généralement un seuil de détection élevé. De plus, les réactions des neutrons sur le ¹²C doivent pouvoir être discriminées de celles sur l'hydrogène. De même, la quantité de lumière scintillée en sortie du détecteur n'est pas linéaire. Enfin, l'efficacité de ces détecteurs est difficilement calculable précisément. Ces détecteurs ne semblent donc pas indiqués pour réaliser des mesures précises.

Un autre détecteur est le compteur proportionnel [313-315]. Celui-ci contient du gaz riche en hydrogène. Lorsqu'un neutron entre dans le détecteur, il va diffuser sur un proton qui ionisera le gaz. Le recul s'effectue dans le gaz avec tous les angles. Il faut alors reconstruire l'efficacité par simulation. En outre, d'autres points doivent être pris en compte : le potentiel d'ionisation du gaz, l'énergie de la particule ionisante, les effets de bord et les interférences liées aux photons et au recul du carbone. A cause de toutes ces contraintes, la détermination précise du flux de neutrons repose principalement sur des simulations [312, 313, 316]. Ceci ne nous semble pas souhaitable pour réaliser une mesure précise du flux de neutrons.

Il semble donc qu'il n'existe actuellement aucun détecteur qui réponde aux critères requis pour mesurer précisément un flux de neutrons avec une énergie inférieure à 1 MeV.

Nous connaissons maintenant les différentes techniques de flux de neutrons, les références existantes ainsi que les détecteurs permettant de mesurer le nombre de fissions créées et le nombre de neutrons heurtant la cible. Nous pouvons nous intéresser aux différentes mesures ayant été faites pour la section efficace de fission du ²⁴²Pu ainsi que les techniques utilisées pour chacune d'entre elles.

4.3 <u>Etat de l'art des mesures de la section efficace de fission</u> du ²⁴²Pu

De nombreuses mesures de la section efficace de fission du ²⁴²Pu ont été réalisées. Selon la librairie des données de réactions nucléaires expérimentales EXFOR, les auteurs suivants ont réalisé des mesures :

- D.W. Bergen, R.R. Fullwood 1971 [101] (de 50 eV à 5 keV et de 100 keV à 3 MeV)
- G.F. Auchampaugh, J.A. Farrell, D.W. Bergen 1971 [102] (de 20 eV à 10 MeV)
- H. Weigmann, J.A. Wartena, C. Bürkholz 1985 [103] (de 2 eV à 10 MeV)
- P. Staples, K. Morley 1998 [105] (de 0.5 MeV à 400 MeV)
- F. Tovesson et al. 2009 [106] (de 1 eV à 200 MeV)
- P. Salvador-Castiñeira et al. 2015 [107] (de 0.3 MeV à 3 MeV)
- C. Matei et al. 2017 [108] (de 1 MeV à 2.5 MeV)
- P. Marini et al. 2017 [109] (de 1 MeV à 2 MeV)
- T. Kögler et al. 2019 [110] (de 0.5 MeV à 10 MeV)
- T. Iwasaki et al. 1990 [111] (de 0.597 MeV à 6.759 MeV)
- V.M. Kupriyanov et al. 1979 [112] (de 0.127 MeV à 1.8 MeV)
- J.W. Meadows (de 397 keV à 9.92 MeV et [104] 1988 à 14.74 MeV)
- B.I. Fursov et al.
- G.D. James
- E.F. Fomushkin et al.
- D.K. Butler

D.L. Shpak

Dans cette liste, lorsque les auteurs ne sont pas suivis de la référence de leur article, c'est que ces derniers n'ont pas pu être trouvés. L'analyse des données ne sera donc faite qu'à partir des articles disponibles. Nous citerons les références plutôt que le nom des auteurs.

Intéressons-nous tout d'abord aux résultats des mesures. La Figure 4 - 6 représente la section efficace de fission du ²⁴²Pu en fonction de l'énergie pour les onze jeux de données disponibles cités précédemment. Nous pouvons remarquer sur cette figure plusieurs informations importantes. Tout d'abord, il existe peu de mesures sous le seuil et aucune n'est disponible dans EXFOR en dessous de 50 eV. Ensuite, nous remarquons que presque toutes les mesures sont en accord concernant la position et la pente du seuil mais la structure en haut du seuil et la hauteur du plateau sont différentes entre certaines mesures. Cependant, le travail réalisé par V. Huy et al. [208] montre que les mesures [103], [105] et [106] fournissent les mêmes résultats à un facteur de normalisation près. En divisant respectivement chacune de ces mesures par 1.09, 1.01 et 1.04, les plateaux sont concordants. Une même normalisation par 1.10 peut être faite pour la référence [102].

Nous pouvons tout de même remarquer que malgré une normalisation donnant un plateau cohérent, aucune mesure n'est en accord concernant la structure autour de 1 MeV. Par exemple, [103] propose une structure importante alors que [107] ne la représente pratiquement pas. Il devient donc intéressant de s'attarder sur la présence et la taille de cette structure. Réaliser une nouvelle mesure précise centrée sur cette structure permettrait de valider un jeu de données plutôt qu'un autre.



Figure 4 - 6 : Mesures existantes de la section efficace de fission du ²⁴²Pu. Les lignes continues sont les mesures par temps de vol, les symboles sont les mesures avec flux de neutrons mono-énergétique.

La précision des mesures est très importante. Le Tableau IV - 1 recense l'incertitude systématique, statistique et totale de chacune des mesures référencées lorsque celles-ci sont disponibles dans l'article.

Référence	Incertitude systématique	Incertitude statistique	Incertitude totale
Bergen [101]	5.8% pour E _n >100 keV 4.4% pour E _n <5 keV		
Auchampaugh [102]		Uniquement sur graphiques	>4%
Weigmann [103]	3%	0.11%-1.24%	2.92%-3.25%
Staples [105]	1.8%-2.5%	0.64%-3.49%	1.4%-4.3%
Tovesson [106]	4% (3% liés à la normalisation)		
Salvador- Castiñeira [107]	<5%	0.5%	<5%
Matei [108]	2.9%-3.8%	0.8%	3%-3.9%
Marini [109]	3.6%-4.5%	1.0%-1.7%	3.7%-4.8%
Kögler [110]	2.7%	4.9%	5.6%
Iwasaki [111]	>1.4%	1.1%-2.3%	1.8%-2.7%
Kupriyanov [112]	2%	0.5%	2.2-%2.8%

Tableau IV - 1 : Précision des mesures fournies dans les articles référencés.

Maintenant que nous connaissons les mesures existantes, intéressons-nous aux techniques utilisées. Le Tableau IV - 2 répertorie la technique et la référence choisie pour mesurer le flux de neutrons.

	Technique		Référence		
Référence	Temps de vol	Neutrons quasi mono- énergétiques	²³⁵ U(n,f)	H(n,n)	Autre
Bergen [101]	Х		X		
Auchampaugh [102]	Х		au-dessus de 100 keV		⁶ Li(n,t) ⁴ He en dessous de 100 keV
Weigmann [103]	Х		Х		
Staples [105]	Х		Х		
Tovesson [106]	Х		Х		
Salvador- Castiñeira [107]		Х	Х		²³⁸ U(n,f), ²³⁷ Np(n,f) (pour vérifier les résultats obtenus avec ²³⁵ U(n,f))
Matei [108]		Х			²³⁸ U(n,f)
Marini [109]		Х		Х	
Kögler [110]	Х		X		
Iwasaki [111]		Х	X		
Kupriyanov [112]		Х	Х		

Tableau IV - 2 : Technique utilisée pour chaque mesure et référence choisie pour mesurer le flux de neutrons.

Pour résumer, sur les onze mesures réalisées étudiées, plus de la moitié utilisent la technique par temps de vol, l'autre moitié utilisent un flux de neutrons mono-énergétique. Cependant, à l'exception des mesures [108] et [109] (réalisée par le groupe ACEN du CENBG), toutes les mesures utilisent la section efficace de fission du ²³⁵U comme référence. Nous pouvons donc en déduire que toutes ces mesures sont corrélées par l'utilisation de ce standard secondaire. On comprend donc l'importance de réaliser une mesure totalement décorrélée pour trancher la question de la structure autour de 1 MeV. C'est dans ce but qu'a été réalisée la mesure [109] avec un flux de neutrons mono-énergétique. Cependant, nous avons vu précédemment que l'utilisation d'un détecteur silicium dans cette technique n'est possible que de 1 à 70 MeV. Une mesure précise de la structure implique d'intégrer le seuil commençant à environ 400 keV et de finir autour de 2 MeV. Nous avons vu qu'aucun détecteur existant actuellement ne pourrait répondre aux attentes requises d'une mesure précise. Il devient alors incontournable de développer un nouveau détecteur à protons de recul pouvant réaliser des mesures précises entre 400 keV et 2 MeV. Un tel détecteur est actuellement à l'état de prototype au CENBG et son développement a continué au cours de ce travail de thèse et fait l'objet du chapitre suivant.

4.4 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons vu que pour réaliser une mesure de section efficace, beaucoup de choix doivent être faits. Il faut tout d'abord choisir le flux de neutrons : mono-énergétique ou par temps de vol. Ce dernier permet de réaliser des mesures très précises à toutes les énergies. Cependant, comme peu d'installations permettent d'utiliser cette technique, les mesures sont corrélées : elles ont les mêmes incertitudes/erreurs liées à l'installation (longueur de la ligne, sélecteurs de temps etc). Il est donc important de réaliser également des mesures par flux de neutrons quasi mono-énergétique dont les erreurs liées aux installations nombreuses ne seront pas corrélées à celles réalisées par temps de vol.

Une fois que le flux de neutrons est choisi, il faut choisir la référence. En effet, seule la section efficace totale peut être mesurée de manière absolue. Toutes les sections efficaces partielles sont mesurées relativement à une autre section efficace. Pour la mesure d'une section efficace de fission, la référence habituellement utilisée est le standard secondaire ²³⁵U(n,f). Cependant choisir une même référence implique des corrélations entre mesures. Il est donc important de réaliser des mesures avec diverses références.

Nous avons enfin analysé les mesures réalisées pour la section efficace de fission du ²⁴²Pu. Nous avons pu noter que la moitié des mesures utilisent la technique des neutrons par temps de vol, l'autre moitié, un flux de neutrons mono-énergétique. Cependant, à l'exception de la mesure [108] et de celle [109] réalisée par le CENBG, toutes les mesures sont relatives à la référence ²³⁵U(n,f). Pour rendre les données [102], [103], [105] et [106], il faut les normaliser. Une fois la correction de normalisation réalisée, toutes ces mesures sont cohérentes au niveau du seuil et du plateau de la section efficace entre 200 keV et 3 MeV. Cependant, une structure est observée à la fin du seuil, autour de 1 MeV, et chacune des mesures fournit une hauteur de structure différente. Pour connaître précisément la hauteur de cette structure, une nouvelle mesure, totalement décorrélée des précédentes, est requise.

Le CENBG a choisi de réaliser cette mesure entre 200 keV et 2.5 MeV avec un flux de neutrons mono-énergétique et avec la technique des protons de recul. Le détecteur habituellement utilisé pour cette technique est la jonction silicium. Mais cette jonction ne peut fournir des résultats précis en dessous de 1 MeV d'énergie neutron. Le CENBG a alors choisi de développer un nouveau détecteur : le Détecteur Gazeux à Protons de Recul. Une fois ce détecteur opérationnel, les mesures réalisées permettront d'obtenir des résultats avec une précision visée de 3%. Le développement de ce nouveau détecteur a continué pendant ce travail de thèse et est présenté au chapitre suivant.

Chapitre 5 Développement du Détecteur Gazeux à Protons de Recul

Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'il existe de nombreuses techniques pour réaliser une mesure de section efficace de fission. En ce qui concerne celle du 242 Pu, la plupart des mesures sont faites avec la technique des neutrons par temps de vol avec comme référence le standard secondaire 235 U(n,f). Si un peu moins de la moitié des mesures réalisées le sont grâce à un flux de neutrons quasi mono-énergétique, la référence reste le même standard secondaire. Il devient alors indispensable de réaliser une nouvelle mesure qui ne soit corrélée aux anciennes sur aucun point.

Nous avons également vu qu'une fois un problème de normalisation (peut-être à la référence) résolu, pratiquement toutes les mesures sont en accord sur le seuil et sur la hauteur du plateau. Il existe néanmoins une structure visible sur toutes les mesures en haut du seuil et aucune des mesures ne donne une hauteur de structure identique. Certaines mesures la dessinent à peine alors que d'autres voient au contraire une structure très prononcée. Il serait alors intéressant de centrer une nouvelle mesure très précise sur cette structure. Pour cela, il faudrait démarrer la mesure à une énergie correspondante au début du seuil et la terminer au niveau du plateau, c'est-à-dire de 200 à 400 keV jusqu'à 2 ou 3 MeV.

Nous avons en outre vu que le groupe ACEN du CENBG souhaite réaliser une telle mesure non corrélée avec l'utilisation d'un standard primaire : la section efficace de diffusion élastique du neutron sur l'hydrogène. Pour cela, le groupe utilise la technique des protons de recul. Pour détecter ces protons, l'utilisation d'une jonction silicium est le meilleur choix possible entre 1 MeV et 70 MeV. Cependant, le seuil débutant à quelques centaines de keV d'énergie neutron, un détecteur silicium ne peut pas réaliser une mesure précise à si basse énergie.

D'autres détecteurs existent pour utiliser la méthode des protons de recul mais aucun n'a les exigences requises pour réaliser une mesure précise d'un flux neutronique. Il faut en effet absolument que le détecteur ait une efficacité intrinsèque de 100%. Si ce n'est pas le cas, l'incertitude sur l'efficacité est toujours telle que la mesure ne pourra pas atteindre la précision souhaitée. Il faut de plus que le détecteur se suffise à lui-même et que l'analyse des données ne repose pas principalement sur des simulations. Le détecteur doit bien sûr être également insensible au bruit des électrons. Enfin, un plus serait de permettre de remonter à l'énergie du neutron incident.

Pour toutes ces raisons, le CENBG développe un nouveau détecteur : le Détecteur Gazeux à Protons de Recul (DGPR) [301, 322] afin de mesurer le flux de neutrons avec une incertitude relative de l'ordre de 2-3%. Le choix d'un détecteur gazeux s'est justifié pour adapter la quantité de matière du détecteur à l'énergie des protons en adaptant la pression comme on adapterait l'épaisseur d'un silicium à plus haute énergie.

Dans ce chapitre, nous décrirons d'abord le principe et le fonctionnement du détecteur. Nous nous intéresserons ensuite au développement réalisé avec en ligne de mire de connaître précisément l'efficacité intrinsèque de ce détecteur.

5.1 Présentation du dispositif

5.1.1 Principe de fonctionnement

Un proton de 200 keV s'arrête dans 1.8 µm de matière solide (Si), un proton de 900 keV s'arrête dans 13.5 µm et un proton de 1.5 MeV a besoin de 29.7 µm pour s'arrêter. Si nous voulons adapter la quantité de matière à l'énergie des protons, le choix naturel est donc un détecteur gazeux où l'on peut adapter la pression du gaz en fonction de l'énergie du proton. Il faut alors choisir si la cible d'hydrogène est solide ou gazeuse. Dans le cas d'une cible gazeuse comme dans un compteur proportionnel, nous avons vu dans le chapitre précédent que les résultats finaux dépendent essentiellement de simulations. Comme nous voulons éviter cette contrainte, nous avons choisi une cible solide placée en amont du détecteur. La cible d'hydrogène pour nous est alors une feuille en polypropylène (PP) (ou un dépôt de tristéarine pour des épaisseurs très fines). Nous avons donc développé le Détecteur Gazeux à Protons de Recul (DGPR). Ce détecteur est composé de deux chambres d'ionisation, appelées ΔE et E, séparées par un collimateur. La chambre ΔE mesure 2 cm et la chambre E mesure 10 cm. Un champ électrique est produit entre une anode et une cathode, de 4 cm de largeur et espacées de 4 cm, délimitant ainsi la géométrie du détecteur : 4 cm x 4 cm x 12 cm. Une cage à dérive permet d'uniformiser le champ électrique. Un premier collimateur est placé à l'entrée du détecteur. Un disque en macor servant de support aux échantillons du film de PP se tient devant ce premier collimateur. Ce disque peut comporter jusqu'à sept échantillons et un emplacement vide, permettant de choisir l'épaisseur de la feuille en fonction de l'énergie des neutrons pour que la perte d'énergie des protons de recul dans la feuille de PP reste inférieure à 10%, ceci afin d'obtenir un pic proton. Comme nous l'avons expliqué lorsque nous voyions la technique des protons de recul, ceci est le point noir de cette technique car la feuille de PP doit être très fine tout en déterminant précisément la quantité d'hydrogène qui la compose.

Le flux de neutrons mono-énergétique va donc heurter la feuille de PP et les protons de recul doivent alors passer dans le premier puis dans le second collimateur avant d'être détectés dans la chambre E. Le but est de minimiser l'angle des protons pour que leur énergie soit la plus proche possible de celle des neutrons qui les ont produits comme nous l'avions vu avec l'équation (4.05). La présence de ces deux collimateurs permet également de définir la géométrie du détecteur et de séparer physiquement les deux chambres ΔE et E.

La Figure 5 - 1 est une photo légendée de ce détecteur avec un schéma simplifiant son principe.



Figure 5 - 1 : Photo légendée du détecteur DGPR (haut) et schéma de principe du fonctionnement du détecteur (bas).

Le DGPR est constitué d'une cathode polarisée à -2 000V parallèle au plan de détection de type Micromégas qui représente l'anode à 0V. Lorsque le gaz est ionisé par une particule, les électrons dérivent sous l'effet du champ électrique vers l'anode. Cependant, dans un gaz peu d'électrons primaires sont générés. Il est donc primordial d'augmenter le gain de détection. Ceci est fait par l'intermédiaire d'une grille située 125µm au-dessus de l'anode et polarisée à -450V. Le champ électrique entre la cathode et la grille est d'environ 400 V/cm alors que celui entre la grille et l'anode est d'environ 40 000V/cm. Cette amplification du champ électrique fait acquérir aux électrons une très grande vitesse qui leur permet d'arracher au passage d'autres électrons, ce qui génère une cascade d'électrons. Le schéma de principe plus détaillé du DGPR, utilisant la technologie Micromégas, est disponible en Figure 5 - 2.



Figure 5 - 2 : Schéma détaillé du principe de fonctionnement du DGPR utilisant la technologie Micromégas.

L'objectif est que ce détecteur soit relativement insensible au bruit des électrons. C'est généralement le cas d'un détecteur gazeux, et cela a pu être vérifié sous flux de neutrons [301,

322]. Mais il ne faut pas que ce bruit soit remplacé par du bruit électronique qui dépend de la surface de détection. En effet, l'amplitude du signal est le rapport entre l'énergie reçue par la plaque de détection (dépendant de l'énergie déposée et du gain du détecteur) et la capacité. Donc, plus la surface de détection est grande, plus l'amplitude est faible et donc noyée dans le bruit. Notre plaque de détection mesure 12 cm sur 4 cm. Nous avons alors choisi d'améliorer le plus possible l'amplitude du signal en augmentant le gain et en segmentant le plan de détection en pad pour que l'amplitude du signal ne dépende que de la capacité d'un pad au lieu de la plaque complète. En plus de réduire la capacité et donc d'augmenter le signal, cette segmentation permet de reconstruire la trajectoire de la particule via les pads activés ce qui permet de discriminer les protons provenant de la feuille de PP de ceux provenant de toute autre source ou endroit. Le plan de détection choisi est alors un plan de type Micromégas segmenté en 64 pads comme le montre la Figure 5 - 3.



Figure 5 - 3 : Photo agrandie du plan de détection Micromégas segmenté en 64 pads. Les lignes rouges correspondent aux emplacements des deux collimateurs. Les grands et petits pads carrés font 1 cm 5 mm de côté respectivement. Les pads rectangulaires mesurent 1 cm sur 5 mm.

Chacun des 64 pads collectera un signal individuel. Cette segmentation avait permis de mettre en évidence la déformation du champ électrique. En effet, avant la présence de la cage à dérive, les électrons n'atteignaient pas les premiers et derniers pads du plan de détection. Des simulations de champ électrique ont été réalisées avant ce travail de thèse afin de l'uniformiser de la meilleure manière possible [301, 322].

Il est maintenant possible de vérifier la trajectoire des protons. Si le proton détecté dans la chambre E n'est pas d'abord passé par le premier collimateur puis par la chambre ΔE et enfin par le second collimateur, ce proton ne vient pas de la feuille de PP et l'évènement doit être rejeté. Il se peut en effet que certains protons soient diffusés par d'autres éléments que la feuille de PP. Pour limiter cela au maximum, le détecteur est conçu avec le moins de matière possible et les collimateurs et le disque d'échantillons sont fabriqués en macor, matériau céramique ne contenant pas d'hydrogène. Une contamination des structures par des éléments hydrogénés (eau, graisse) est cependant toujours possible.

Il faut également choisir un gaz ne contenant pas d'hydrogène. Il faut alors investiguer quel gaz choisir. Il influe en effet sur les tensions de claquage et donc les tensions de polarisation

utilisable des différentes électrodes et il détermine également le gain et la vitesse de dérive des électrons.

5.1.2 Gaz utilisé : tension de claquage, gain et vitesse de dérive

Souvent, le gaz utilisé pour les détecteurs gazeux est du P10 (90% d'argon, 10% de méthane) ou de l'isobutane (C₄H₁₀). Comme nous l'avons vu précédemment, il est primordial que les protons détectés proviennent de la feuille de polypropylène. Comme le flux de neutrons traverse ensuite le détecteur, ce dernier ne doit contenir d'hydrogène ni dans sa structure, ni dans son gaz. Nous ne pouvons donc pas utiliser un de ces gaz ni aucun autre contenant de l'hydrogène pour éviter de détecter des protons qui ne proviendraient pas du radiateur. Cependant, il existe de nombreux gaz répondant à ce critère. Notre premier choix a été du CF₄ car c'est un gaz rapide permettant d'évacuer les électrons primaires créés en peu de temps. Après les premiers tests sous irradiation et la validation de la faible sensibilité du DGPR au γ et électrons, des gaz plus lents, l'Aligal 12 (80% de N₂ et 20% de CO₂) puis l'Aligal 13 (70% de N₂ et 30% de CO₂) ont été essayés. Pour choisir le gaz répondant le plus à nos attentes, il faut analyser d'autres critères.

Tout d'abord, nous avons vérifié le nombre de protons émis dans l'Aligal 13 lié à la réaction ${}^{14}N(n,p){}^{14}C$. Comme celui-ci est faible (1 proton/minute pour un flux de neutrons de 2.1 MeV, augmente à 5.1 protons/minute pour un flux de 70 keV) par rapport aux environ 1 proton de recul/seconde attendus dans le DGPR, et comme ces protons peuvent être discriminés (cf 5.3.3), cette réaction n'est pas rédhibitoire pour utiliser l'Aligal 13.

De plus, le gaz utilisé doit permettre une bonne amplification du signal, entre autres par l'application d'une forte tension (HV pour High Voltage) et donc d'une faible tendance du gaz au claquage.

5.1.2.1 Tension de claquage

En considérant un gaz comme un isolant, la tension de claquage représente la tension électrique minimale qui rend le gaz conducteur. Une décharge auto-entretenue se produit alors sous forme d'arc électrique entre les deux électrodes produisant le champ électrique (ou ici entre la grille et l'anode). Pour qu'un détecteur fonctionne correctement, il est impératif que la tension appliquée soit inférieure à la tension de claquage.

Un champ électrique E est formé lorsque l'on applique une tension V aux bornes d'électrodes. Dans notre cas, elles sont parallèles et séparées d'une distance d. Le champ électrique vaut alors E = V/d (en approximant la grille à une plaque plane). Lorsqu'un proton entre dans le détecteur, il ionise le gaz. Sous l'effet du champ électrique, les électrons créés sont accélérés et se déplacent vers l'anode alors que les cations vont eux vers la cathode.

Comme nous souhaitons fonctionner à une pression relativement faible (quelques dizaines à quelques centaines de millibars), les claquages que le détecteur peut subir sont de type Townsend : des émissions d'électrons secondaires se font par impacts des cations à la cathode. L'augmentation du courant peut alors se faire de façon exponentielle. Ces électrons dérivent à leur tour et ioniseront le gaz, ce qui génère de nouveaux cations.

La loi de Paschen définit de manière empirique la condition de claquage [321] :

$$V_{\text{claquage}} = \frac{\text{BPd}}{\text{C+ln}(\text{Pd})}$$
(5.01)

Avec C = ln
$$\left(\frac{A}{\ln\left(1+\frac{1}{\gamma}\right)}\right)$$
 (5.02)

Où $V_{claquage}$ est la tension de claquage, A et B sont des constantes expérimentales dépendant du gaz, P est la pression du gaz, d la distance entre les électrodes et γ est le second coefficient de Townsend. Les constantes A et B ne nous sont cependant pas accessibles pour les gaz étudiés.

Nous allons donc repartir des conditions de claquage pour étudier les tensions de claquage. Les électrons vont se déplacer de la cathode vers l'anode (séparées d'une distance d), et sous l'effet d'un fort champ électrique, engendrer une cascade d'électrons. Le premier coefficient de Townsend α , ou coefficient d'ionisation de Townsend, représente le nombre d'électrons générés par unité de longueur. On a ainsi un courant I_{an} :

$$\mathbf{I}_{an} = \mathbf{I}_0 \, \mathbf{e}^{\alpha \mathbf{d}} \tag{5.03}$$

Avec I_0 le courant dû aux électrons primaires générés et I_{an} , le courant qui atteint l'anode après multiplication par un facteur $e^{\alpha d}$.

Or, les cations générés par l'ionisation vont se déplacer vers la cathode et la bombarder, provoquant alors l'émission de nouveaux électrons appelés électrons secondaires. Le second coefficient de Townsend γ représente la fraction d'ions contribuant à créer des électrons secondaires par bombardement de la cathode. Ces électrons vont alors dériver vers l'anode et engendrer de nouvelles cascades. L'équation (5.03) devient alors :

$$I_{an} = I_0 \frac{e^{\alpha d}}{1 - \gamma(e^{\alpha d} - 1)}$$
(5.04)

La condition de claquage pour un gaz pur non électronégatif se définit alors par :

$$\alpha_{\text{claquage}} d = \ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right)$$
(5.05)

Comme E = $\frac{V}{d}$,

$$V_{\text{claquage}} = \frac{E}{\alpha_{\text{claquage}}} \ln\left(1 + \frac{1}{\gamma}\right)$$
(5.06)

Nous allons maintenant essayer de déterminer le second coefficient de Townsend γ par (5.07) ou (5.08) issue de [304] pour en déduire α afin d'avoir notre condition de claquage :

$$\gamma = 0.032(0.78\varepsilon_{\rm i} - 2\Phi_{\rm m}) \tag{5.07}$$

Avec ε_i le potentiel d'ionisation en eV et Φ_m le travail de sortie de la cathode (dépendant de son matériau).

$$\gamma = \frac{0.2}{\varepsilon_{\rm F}} \left(0.8\varepsilon_{\rm i} - 2\Phi_{\rm m} \right) \tag{5.08}$$

Avec ε_F l'énergie du niveau de Fermi. Dans ce travail, les γ sont calculés à partir de (5.08) plutôt que (5.07) car les résultats sont plus en accord avec les données expérimentales.

Nous pouvons ainsi déduire $\alpha_{claquage}$ par (5.05) qui dépend du gaz et du champ électrique.

Pour calculer V_{claquage}, il ne nous manque plus que la valeur de E correspondante à ce $\alpha_{claquage}$. Celle-ci peut s'obtenir à partir du logiciel Bolsig qui permet d'obtenir des α en fonction du champ électrique et des caractéristiques du gaz. Pour cela, il nous faut en données d'entrée le gaz utilisé, le champ électrique réduit (en Townsend (Td)) et la densité du gaz (que nous appellerons N, en at/cm³).

Bolsig nous fournit en sortie le premier coefficient de Townsend réduit α/N en fonction de E/N. A partir de $\alpha_{claquage}$ calculé avec (5.05), nous pouvons réaliser une interpolation pour obtenir E_{claquage} et finalement V_{claquage}.

Pour calculer la tension de claquage, nous faisions l'hypothèse que ces claquages-ci ont lieu entre l'anode et la grille, là où le champ électrique est le plus fort. Après plusieurs essais, nous avons remarqué que la tension calculée n'était pas la même que celle de différentes courbes trouvées dans la littérature [304, 305]. En effet, le γ obtenu est très (trop) grand, un trop grand nombre d'électrons secondaires sont générés et la décharge intervient trop rapidement. Nous en déduisons que nous pourrons utiliser les courbes obtenues de manière qualitative mais pas quantitative.

Nous avons appliqué notre méthode au gaz N_2 -CO₂ pour différentes quantités de CO₂ dans le N_2 , les tensions de claquage calculées sont présentées sur la Figure 5 - 4.



Figure 5 - 4 : Tensions de claquage calculées pour un mélange gazeux N2-CO2 pour différentes teneurs en CO2.

Nous pouvons remarquer que les courbes obtenues correspondent globalement aux courbes de Paschen attendues : elles présentent une diminution depuis la pression atmosphérique jusqu'à un minimum avant de remonter aux très basses pressions. Malheureusement, cette

remonté n'est pas décrite dans les points que nous avons choisis. En effet, nous ne pouvons pas trouver α dans le tableau proposé par Bolsig à et en dessous de 0.125 torr.cm en raison de l'impossibilité de claquage.

Nous pouvons également remarquer sur cette courbe qu'il semble qu'une plus forte proportion de CO_2 dans le mélange entraine une plus faible tension de claquage.

Nous avons donc réalisé nous-même l'expérience avec notre détecteur. Nous avions pour cela à disposition de l'Aligal 13 (70% N_2 – 30% CO₂). Bien que le P10 (90% Ar - 10% CH₄) ne soit pas utilisé à cause de son hydrogène, c'est un gaz que nous avions à disposition et nous avons voulu faire les tests de claquage à titre de comparaison. Les résultats sont disponibles sur la Figure 5 - 5. Au regard des distances et des champs électriques, les claquages qui ont lieux se situent entre la plaque de détection (anode) et la grille polarisée, espacées de 125 µm, comme nous nous y attendions.



Figure 5 - 5 : Comparaison des tensions de claquage calculées théoriquement et mesurées avec le DGPR pour de l'Aligal 13 et du P10. Les barres verticales représentent les incertitudes des tensions.

Nous observons sur cette figure de droite à gauche (Pd diminuant) une descente suivie d'une remontée puis une seconde descente. Les deux premières variations sont représentatives de toutes courbes de Paschen. Cependant, lors d'une expérience avec deux plaques parallèles pour l'anode et la cathode, nous ne devrions pas observer une seconde diminution. Notre montage est plus complexe et il se peut que nous ayons un second couple tension/distance, par exemple entre la cathode et la masse, pouvant faire un claquage. Ceci expliquerait qu'un second minimum soit observé à très basse pression, celui-ci ressemblant à une translation de l'autre.

Si nous comparons nos résultats expérimentaux et théoriques représentés sur la Figure 5 - 4 et la Figure 5 - 5, nous remarquons que les courbes théoriques sont plus faibles d'un facteur 1.5

à 2 par rapport aux observations expérimentales. L'ordre de grandeur du minimum de Paschen est tout de même similaire (entre 0.4 et 0.8 Torr.cm). La hiérarchie des tensions est également la même, le P10 ayant des tensions de claquage inférieures. Enfin, la forme générale des courbes est similaire, bien que plus prononcée dans les calculs (les courbes théoriques remontent très légèrement plus rapidement aux Pd plus élevés que les courbes expérimentales).

5.1.2.2 Gain

Après avoir étudié les tensions de claquage expérimentalement, il a alors été possible de remonter au gain potentiel du détecteur. Ce gain est directement donné par l'équation (5.03) et est représenté en Figure 5 - 6 pour le P10 et l'Aligal 13 à différentes pressions.



Figure 5 - 6 : Gain potentiel calculé du détecteur en fonction de la pression pour les gaz Aligal 13 et P10. Les courbes en pointillés correspondent aux gains obtenus pour une tension de polarisation de la grille de 450 V et les courbes continues représentent les gains aux tensions de claquage expérimentales.

Nous pouvons remarquer sur la Figure 5 - 6 que les gains pour les deux gaz étudiés présentent un maximum à 200 et 100 mbar respectivement. A tension constante, le gain du P10 est très supérieur (jusqu'à un facteur 100). Mais si l'on se place aux tensions de claquage mesurées expérimentalement, la situation s'inverse. Les gains obtenus avec l'Aligal 13 sont de l'ordre de plusieurs milliers sur une large gamme de pressions.

Pour des concentrations plus élevées de CO_2 dans le N_2 (non représentées ici), le gain augmente significativement à tension constante. Cependant, les tensions de claquage montrées sur la Figure 5 - 4 semblant inférieures, des expériences devront être menées pour définir expérimentalement ces tensions et déterminer les performances réelles d'autres mélanges CO_2 - N_2 .

5.1.2.3 Vitesse de dérive

La vitesse de dérive des électrons est la vitesse moyenne à laquelle les électrons se déplacent dans le gaz sous l'effet du champ électrique.

Il faut que cette vitesse soit assez importante pour que les électrons ne se recombinent pas avant d'arriver sur le plan de détection. Nous n'avons fait que très peu de recherche sur ce problème physique car les réponses expérimentales étaient évidentes. Comme dit précédemment, le gaz utilisé avant le début de cette thèse était du CF₄, gaz rapide. Les expérimentateurs ont affirmé que tous les pads du détecteur réagissaient pratiquement en même temps. Lorsque nous avons commencé à utiliser de l'Aligal 13, nous avons pu observer un décalage temporel entre la réponse des différents pads, donnant accès à une nouvelle information : l'éloignement ou le rapprochement de la particule par rapport à l'anode. Cette information donne donc accès à la 3^{ème} dimension du détecteur. Nous en avons déduit que le CF₄ est un gaz qui évacuait trop rapidement les charges pour donner accès à une information temporelle exploitable. La Figure 5 - 7 compare les vitesses de dérive des différents gaz testés (gaz Aligal 12 testé : contenant 20% de CO₂, les résultats avec l'Aligal 13 sont similaires).



Figure 5 - 7 : Comparaison des vitesses de dérive pour les gaz P10, Aligal 12 et CF₄. Pour une pression de 100 mbar, $E/P \approx 5$ V/cm/torr.

Nous avons tout de même vérifié qu'aucune information n'était perdue en fonction de la trajectoire de la particule. En effet, avec un gaz lent, les électrons peuvent potentiellement se recombiner avant d'atteindre la plaque de détection. L'amplitude pour chaque pad de différentes traces s'éloignant ou se rapprochant du plan de détection ont été relevées et les amplitudes moyennes pour chaque pad ont été comparées selon la trajectoire de la particule α . Les résultats de l'étude sont disponibles Figure 5 - 8 avec une source 3α .



Chapitre 5 : Développement du DGPR

Figure 5 - 8 : Amplitudes moyennes des pads en fonction de la trajectoire de la particule.

Nous pouvons remarquer sur cette figure que les amplitudes des pads sont comparables entre des particules s'éloignant ou se rapprochant du plan de détection. Nous pouvons également noter que pour le pad de la dernière colonne, l'amplitude chute pour les particules s'éloignant du plan de détection. Cela prouve que le champ électrique n'est pas encore parfaitement uniforme sur les extrémités du détecteur qui sont trop proches du fond conducteur de la chambre. Les électrons générés proche du plan de détection ont donc plus de chance de l'atteindre que des électrons générés proche de la cathode.

Compte tenu de ses différents avantages et absence d'inconvénient, l'Aligal 13 représente un gaz très adapté à notre détecteur. D'autres proportions de CO₂ dans le N₂ permettront peutêtre d'optimiser encore cela.

Un test plus poussé pourra être mené avec un faisceau de protons (voir 5.4.2) pour quantifier d'éventuelles différences des dépôts d'énergie en fonction de sa localisation.

5.2 Système d'acquisition

Une fois le signal collecté sur le plan de détection, celui-ci sera traité par le système électronique et d'acquisition « Single AGET Module » (SAM) développé par le service électronique du CENBG. Pour cela, le signal est envoyé via une nappe à trois cartes électroniques successives : la Zap, la SAM et la ZedBoard. Ces trois cartes, servant d'interface hardware, vont tour à tour traiter le signal reçu. Ensuite, la troisième carte va envoyer le signal à un ordinateur qui le rendra lisible à l'utilisateur grâce au logiciel (software) Cobo.

5.2.1 Rôle des cartes électroniques

Même si la première carte électronique n'a pas un rôle clef dans le traitement du signal, sa fonction est non négligeable : elle sert à protéger les autres cartes, particulièrement des claquages. D'ailleurs, quand cette thèse a repris le développement du détecteur, plusieurs pads du plan de détection n'étaient plus fonctionnels. En changeant cette carte, ces pads étaient à

nouveau opérationnels, preuve qu'elle a subi des dommages lors des campagnes de tests précédents.

La seconde carte, la SAM, contient entre autres le chip AGET de 64 canaux pour les 64 pads. Chaque canal AGET contient un préamplificateur sensible à la charge avec quatre gammes de charge dynamiques de 120 fC, 240 fC, 1 pC et 10 pC. L'utilisateur peut choisir la gamme voulue en la sélectionnant sur l'interface graphique du logiciel d'acquisition. Un shaper avec 16 temps « peaktime » (de 50 ns à 1 μ s) filtre la sortie du préamplificateur pour améliorer le rapport signal sur bruit. Il est également ajustable par l'interface graphique, tout comme les fréquences du filtre de 1 MHz à 100 MHz. Tous ces paramètres ajustables permettent de travailler avec du gaz rapide ou lent, avec différentes tensions de polarisation. Le signal filtré est échantillonné dans une mémoire analogique de 512 cellules. Il est également envoyé dans un discriminateur. Celui-ci compare le signal reçu au seuil de discrimination. Un seuil de multiplicité est également indiqué. Pour que le signal reste enregistré dans les 512 cellules, le nombre de pads notés comme trigger dont le signal est supérieur au seuil doit être supérieur ou égal au seuil de multiplicité indiqué. Le seuil, le seuil de multiplicité et les triggers sont des paramètres également réglables dans l'interface graphique.

Si le signal reste enregistré, il est ensuite transféré par deux lignes à l'ADC qui envoient des signaux digitaux au block contrôle AGET de la ZedBoard. A l'intérieur de cette dernière carte est intégré un serveur qui contrôle les fonctions digitales de la SAM. La carte ZedBoard est composée principalement de quatre blocs connectés au serveur. Le premier de ces quatre blocs est un contrôleur AGET qui gère la configuration du chip et l'acquisition du signal analogique provenant de AGET. Il réduit la taille des données et prépare leur transfert. Le second bloc contrôle l'ADC, envoie l'évènement et le timing des signaux. Le troisième bloc gère le générateur de pulses d'injection de charge par un circuit convertissant le digital en analogique. Enfin, le quatrième bloc contrôle la transmission à l'utilisateur des informations sur l'environnement et de débogage par une ligne d'inspection.

Le temps de réponse de tout le système est d'une dizaine de nanosecondes par cellule, correspondant au temps de comparaison des signaux avec le seuil et le seuil de multiplicité demandés. Le temps mort total de l'électronique et du système d'acquisition pour la lecture d'un canal (signal d'un pad) est de 20.5µs. Il est donc de 1.4 ms pour la lecture des 64 canaux.

5.2.2 Logiciel

Le software est le logiciel Cobo développé par le CEA Saclay. Celui-ci permet d'avoir une interface graphique pour :

- Régler les paramètres ajustables choisis par l'utilisateur ;
- Démarrer et arrêter l'acquisition ;
- Voir on-line un échantillon des évènements avec les 64 courbes correspondantes aux réponses des 64 pads sur 512 canaux.

Cependant, ce logiciel était un logiciel de développement (et non d'utilisateur). Il contient encore des « bugs » qu'il faudrait résoudre par une collaboration avec les services l'ayant développé au CEA. De plus, le firmware du chip, développé à l'époque au Michigan State University, pourrait lui-même contenir des « bugs » qu'il serait beaucoup plus difficile de corriger.

Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, de nombreux paramètres sont ajustables par l'utilisateur. Ceux que nous avons le plus souvent utilisés sont les triggers, la gamme de charge, le seuil et le seuil de multiplicité.

Tout d'abord, les triggers sont les pads qui participent au déclenchement de l'acquisition. Les signaux des autres pads seront enregistrés mais ne seront pas pris en considération pour le choix de conserver ou non le signal. Une fois que les pads à considérer sont choisis, il faut définir un seuil. C'est un seuil digital : un seuil grossier allant de 0 à 7 et un seuil fin, de 0 à 15, sont à renseigner dans les paramètres. La carte SAM va alors comparer l'amplitude des signaux des triggers au seuil. Enfin, le seuil de multiplicité est à renseigner pour que la carte SAM vérifie que le nombre de triggers « valides » est supérieur ou égal au seuil de multiplicité renseigné. Si tel est le cas, le signal est enregistré, traité et envoyé au système d'acquisition. Sinon, il est supprimé. Enfin, la gamme de charge donnera l'amplitude du signal et du seuil. Réduire la gamme permet d'avoir une différence plus importante entre le pic du signal et la base de la courbe. Cependant, modifier la gamme modifie le seuil de la même façon, c'est pour cela que ce paramètre n'est pas pris en compte dans le choix des signaux à conserver.

Une fois l'acquisition terminée, CoBoFrameViewer permet de relire les fichiers enregistrés et donc de visualiser graphiquement les 64 courbes des 64 pads de n'importe quel évènement de n'importe quelle acquisition. Il permet également de traiter une acquisition évènement par évènement en sélectionnant les pads désirés. La Figure 5 - 9 montre un évènement enregistré durant l'acquisition ne montrant que la réponse des pads sélectionnés par l'utilisateur. L'abscisse des courbes correspond aux 512 cellules de la mémoire analogique et représente une durée de 5 120 ns.



Figure 5 - 9 : Exemple d'un évènement enregistré. Seule la réponse de pads choisis par l'utilisateur est visible. (1 point toutes les 10 ns).

Maintenant que nous avons vu le principe du détecteur et le système d'acquisition, voyons son fonctionnement et quelles sont les conditions de fonctionnement optimales.
5.3 <u>Conditions de fonctionnement et acquisitions obtenues</u>

Notre premier travail est de vérifier les fonctionnalités du détecteur. Rappelons que nous avons décidé de travailler avec de l'Aligal 13. Avec ce gaz, nous devons étudier à quelle pression et quelle tension il est le plus intéressant de travailler. Il faut également vérifier s'il est bien possible de reconstruire les trajectoires des particules. Mais avant toute chose, il faut choisir avec quelles particules travailler.

5.3.1 Particules utilisées pour travailler

Pour réaliser une étude avec des protons, il faut impérativement travailler sur un accélérateur. Soit l'accélérateur produit un faisceau de protons qui va directement dans le détecteur, soit il produit un flux de neutrons qui vont diffuser sur le PP et ce seront alors des protons de recul qui entreront dans le détecteur. Des expériences par protons de recul ont été réalisées sur AIFIRA avant le début de cette thèse. Pour des raisons pratiques, les tests ont débuté dans le laboratoire du groupe ACEN avec une source 3α . Celle-ci est composée de ²³⁹Pu, de ²⁴¹Am et de ²⁴⁴Cm. Les α principalement produits ont respectivement une énergie de 5.155 MeV, 5.486 MeV et 5.806 MeV. Les α produits par cette source sont donc plus de cinq à vingt fois plus énergétiques que les protons de recul sensés entrer dans le détecteur. En outre, les particules α ont une charge 2+ alors que les protons ont une charge 1+. Pour cette raison, pour une même énergie initiale, les α s'arrêtent plus vite dans la matière, donc dans le gaz, que les protons. Nous devons prendre ces deux aspects en compte pour nos tests. Une fois les conditions optimales du DGPR obtenues avec une source 3α , il est primordial de vérifier ces conditions avec un faisceau de protons, que ces derniers soient directs ou de recul.

5.3.2 Pressions utilisées, tension de polarisation et paramètres utilisés

Lorsque nous travaillons avec des protons de recul, la pression utilisée dépend de l'énergie de la particule, l'objectif étant que le proton s'arrête dans le détecteur. Pour pouvoir vérifier sa trace avec le plus de pads possibles, il faut alors que le proton s'arrête le plus loin possible dans le détecteur. Cependant, comme le champ électrique n'est pas parfaitement uniforme, le signal récupéré par les derniers pads n'est pas toujours représentatif de la réalité. Nous préférons donc que le proton s'arrête environ 9 à 10 cm après avoir passé le premier collimateur (pour rappel, le détecteur mesure 12 cm de longueur). Il est alors important d'étudier le pic de Bragg.

Lorsqu'une particule chargée comme un proton ou un α traverse la matière, elle lui transmet de l'énergie et ionise les atomes. Au cours de son trajet, l'énergie de la particule diminue, augmentant sa section efficace d'interaction. Juste avant que la particule ne s'arrête, on observe alors le pic de Bragg correspondant au pic d'énergie déposée. Dans notre cas, il suffit d'étudier, grâce par exemple au logiciel Lise++ [323], le parcours de la particule en fonction de la pression pour savoir à quelle pression le pic de Bragg se situera 9-10 cm après le premier collimateur comme souhaité. Lorsque l'on utilise la source 3α , ces derniers sont beaucoup plus énergétiques et l'intérêt de les arrêter dans le détecteur est moindre et peu représentatif des protons de recul.

Grâce au logiciel Lise++, nous pouvons calculer que des protons de 200 keV s'arrêtent au bout de 10 cm si la pression vaut 30 mbar alors que ceux de 1 MeV ont besoin d'une pression de 220 mbar. Les α de notre source, quant à eux, ont besoin de 350 à 420 mbar pour s'arrêter à l'endroit voulu, ils ne s'arrêteront dans le détecteur que pour une seule pression de notre étude.

Nous avons commencé par réaliser des tests à 30, 50, 70, 100, 150, 200 et 500 mbar à différentes tensions de polarisation. Tous ces tests nous ont permis d'acquérir une bonne connaissance du détecteur et de comprendre sa plage de bon fonctionnement.

Nous avons ensuite vérifié, pour un même temps d'acquisition, dans quelles conditions le détecteur détectait le plus de bons évènements, le moins de mauvais évènements et avait les meilleures amplitudes des signaux. Nous avons alors remarqué plusieurs évènements notables.

En dessous de 50 mbar d'Aligal 13, les courbes n'ont pas la même forme qu'aux autres pressions. Les pads semblent rester activés, comme si leur décharge persistait dans le temps. Ce problème avait été observé avant le début de cette thèse avec des protons de recul et du gaz CF_4 à 30 mbar. Une hypothèse pourrait être qu'un mécanisme lors de la cascade engendre l'arrachement de nouveaux électrons primaires. Ceci viendrait alors à produire un signal retardé sur le plan de détection. Ce problème devra être investigué. Un exemple sur deux évènements enregistrés est disponible Figure 5 - 10.



Figure 5 - 10 : Exemple d'évènements enregistrés pour une pression de 50 mbar. Evènement correspondant à un α (haut) mais avec des problèmes de retour à la décharge. Mauvais évènement (bas) d'origine inconnue (1 point toutes les 10 ns).

Nous avons également testé le détecteur polarisé aux tensions de claquage. Dans ce cas, nous remarquons qu'environ deux tiers des évènements enregistrés ne sont pas des traces de particules mais des saturations de pads. Un exemple est visible sur la Figure 5 - 11.



Figure 5 - 11 : Exemple d'évènement enregistré à 100 mbar pour une tension de polarisation de la grille de 450 V, représentant la tension de claquage (1 point toutes les 10 ns).

Nous avons remarqué que ce problème disparait totalement lorsque l'on descend 20 V en dessous de la tension de claquage. Nous en avons déduit que des micro-claquages doivent avoir lieu dans le détecteur lorsque la tension de polarisation est trop proche de la tension de claquage. Ces micro-claquages ne sont pas assez importants pour que la sécurité de notre module HV (High Voltage) dépolarise le détecteur mais tout de même assez pour être détectés.

Nous avons également noté que nous ne pouvons pas utiliser la gamme de 120 fC avec le seuil de 1.0. Lorsque ces deux conditions sont réunies, le bruit de fond n'est pas filtré par le seuil et donc le détecteur déclenche dans le bruit. Nous avons ainsi pu réaliser une étude du nombre d'évènements maximum pouvant être enregistrés par le détecteur et nous obtenons la Figure 5 - 12. Nous avons remarqué que ce nombre diminue considérablement au fur et à mesure des acquisitions. Nous avons d'abord pensé à un échauffement de l'électronique. Nous avons donc réalisé un arrêt de 15 minutes entre deux acquisitions pour voir si le nombre d'évènements par seconde ré-augmentait, et ce n'était pas le cas. Nous avons alors redémarré la carte électronique et le nombre d'évènements par seconde a redémarré à sa valeur nominale avant de diminuer à nouveau. Nous avons pu alors en déduire que le buffer sature progressivement lors d'acquisitions successives sans redémarrage de carte, ce dernier vidant le buffer.



Figure 5 - 12 : Investigation du nombre de coups par minute maximum enregistré par le système d'acquisition.

Le bruit de fond étant constant, dès qu'un signal est traité, le suivant est enregistré. Lorsque le buffer est vide, le nombre de coups enregistrés est d'environ 80 coups/seconde. Cela signifie que le temps mort du détecteur vaut au minimum 12.5 ms (en supposant qu'un évènement de bruit intervient immédiatement après que l'acquisition est de nouveau opérationnelle). Cette valeur est supérieure d'un facteur dix au temps mort indiqué par l'électronique (paragraphe 5.2.1). Lorsque le buffer est rempli, le temps mort augmente alors jusqu'à plus de 60 ms. Ce problème est en cours d'investigation par le service électronique du CENBG.

Nous avons également pu vérifier qu'à 500 mbar, les α s'arrêtent tous dans le détecteur. Les pads de la dernière colonne restent désactivés pour tous les évènements enregistrés, les pads en amont indiquent la présence logique du pic de Bragg. Enfin, nous avons déduit que les meilleures conditions pour réaliser nos prochains tests étaient à 100 mbar pour une tension de polarisation de 430 V, un seuil grossier de 2, un seuil fin de 0 (que nous noterons maintenant 2.0), la gamme de 120 fC, un seuil de multiplicité de 1 et l'utilisation des trois colonnes après le collimateur comme trigger. La valeur du seuil de multiplicité à rentrer dans le logiciel a d'ailleurs fait l'objet d'études. En effet, le logiciel demande un nombre qui ne correspond pas à une valeur naturelle à écrire comme par exemple 1 pour un seuil de multiplicité de 1. Les valeurs pour le logiciel sont répertoriées sur le Tableau V - 1.

<i>I doleda V - I</i> . Valeurs de seuli de malliplicite à renseigner dans le logiciel pour le seuli de malliplicite soundile.							
Multiplicité ≥	1	2	3	4	5	6	7
Valeur à renseigner	154	212	272	332	402	463	523

Tableau V - 1 : Valeurs de seuil de multiplicité à renseigner dans le logiciel pour le seuil de multiplicité souhaité

Cette valeur de seuil de multiplicité à renseigner n'est pas exactement fixe et change légèrement en fonction des paramètres. Afin d'être sûr de choisir le seuil de multiplicité voulu, il est préférable de rajouter environ 15 à la valeur indiquée dans ce tableau.

Nous avons donc travaillé avec un seuil de multiplicité 170 et des tests ont également été réalisés avec la valeur 230 entrée, correspondant à un seuil de multiplicité réel de 2.

En réalisant ces tests, nous avons pu remarquer qu'un grand nombre de pads n'étaient jamais activés. Une investigation a alors été menée. Trois origines ont été identifiées pour le non-fonctionnement de ces pads. La première raison était liée à une détérioration de la nappe électronique interne reliant le détecteur aux cartes électroniques. En changeant cette nappe, quatre pads ont fonctionné à nouveau. La seconde raison identifiée était une détérioration de la carte ZAP. Enfin, quatre pads ne fonctionnent toujours pas actuellement. La plaque de détection a été remplacée et ces pads restent toujours inactifs. Un endommagement d'une des deux autres cartes est envisagé. Ces cartes coûtant plusieurs milliers d'euro, il n'est pas possible de les remplacer juste pour valider cette hypothèse. Les tests suivants ont donc été réalisés en connaissance de cause. Le seul pad inutilisable vraiment contraignant est le numéro 34, situé 2 cm (3^e colonne) après le deuxième collimateur. Nous avons alors fait le choix d'utiliser comme trigger le pad numéro 35 à sa place lorsque c'était nécessaire.

Maintenant que nous connaissons les conditions qui semblent optimales pour le détecteur, nous devons vérifier qu'il est possible de reconstruire la trajectoire de la particule avec les pads activés.

5.3.3 Reconstruction de trajectoire

Rappelons que chaque pad activé est un pad qui a reçu des électrons. Cela signifie que la particule a ionisé le gaz en face de ce pad. Si cela fonctionne correctement, il est alors possible de reconstruire la trajectoire de la particule. Rappelons que reconstruire ces trajectoires est très utile pour vérifier l'origine de la particule. En effet, si les α avec lesquels nous travaillons peuvent difficilement ne pas provenir de la source, les protons de recul peuvent eux être émis par de nombreux matériaux, ou même être émis par le radiateur à partir de neutrons eux-mêmes diffusés (et donc d'énergie inférieure). Les trajectoires de protons provenant de neutrons diffusés pourraient ne pas avoir une ligne droite passant par les deux collimateurs. Il est alors essentiel de vérifier la coïncidence des chambres ΔE -E pour discriminer les protons détectés non voulus. Une autre manière de discriminer ces protons est de comparer les amplitudes des courbes. En effet, un proton provenant d'un neutron diffusé aura une énergie plus faible. Son pic de Bragg sera plus tôt et il s'arrêtera avant les autres protons dans le détecteur.

Vérifions tout d'abord la reconstruction de trajectoire. Prenons comme exemple l'évènement en Figure 5 - 13.





Figure 5 - 13 : Evènement utilisé pour reconstruire la trajectoire de la particule (1 point toutes les 10 ns).



Reconstruisons sa trajectoire sur la Figure 5 - 14 :

Figure 5 - 14 : Reconstruction de la trajectoire de l'évènement Figure 5 - 13 sur le plan de détection. Rappel : les lignes rouges représentent l'emplacement des deux collimateurs.

Nous pouvons, grâce à la Figure 5 - 14, déduire que la particule α responsable de l'évènement Figure 5 - 13 est bien passé par les deux collimateurs et est allée tout droit, suffisamment droit pour alimenter les deux rangées de pads (à l'exception du pad 34, défectueux comme indiqué précédemment) Un autre évènement que le DGPR peut détecter est présenté Figure 5 - 15 avec sa reconstruction de trajectoire. Nous apparentons ce type d'évènements à des cosmiques. Ces exemples illustrent la possibilité de discriminer les évènements non voulus grâce à la reconstruction de trajectoires.



Figure 5 - 15 : Reconstruction de trajectoire pour un évènement parasite (cosmique). Evènement (haut) et reconstruction sur le plan de détection (bas). Rappel : les lignes rouges représentent l'emplacement des deux collimateurs (1 point toutes les 10 ns).

La reconstruction 2D grâce au plan de détection peut être améliorée par l'analyse des temps de dérive des électrons, pour obtenir alors une reconstruction 3D de la trace. Rappelons que nous avons choisi d'utiliser l'Aligal 13 qui est un gaz lent permettant d'obtenir une information temporelle qu'un gaz rapide comme le CF₄ permet plus difficilement d'obtenir. Si nous comparons la Figure 5 - 9 à la Figure 5 - 13, nous pouvons remarquer que sur la première, les maximums des courbes sont alignés alors qu'ils sont décalés sur la seconde. Rappelons que l'abscisse correspond aux 512 cellules de la mémoire analogique et représente une abscisse de temps. On peut alors en déduire que la particule responsable de l'évènement Figure 5 - 9 a traversé le détecteur parallèlement aux électrodes. En ce qui concerne l'évènement Figure 5 - 13, nous pouvons observer que les pads de l'entrée du détecteur ont été activés avant ceux de la fin du détecteur (la courbe bleu foncé facilement discernable sur l'image correspond au pad 64 situé en bout de détecteur. Le maximum de cette courbe est le dernier de toutes les courbes des pads activés). Des α de plus de 5 MeV mettent moins de 10 ns à traverser le détecteur, ce

qui correspond à moins d'un canal. On peut donc considérer qu'ils traversent le détecteur en un temps négligeable par rapport au temps de dérive des électrons (de l'ordre de la μ s). Ce décalage n'est donc pas lié au sens de la traversée de la particule. Si tout le gaz est ionisé en même temps, l'explication réside alors dans le fait que les électrons primaires créés en fin du détecteur ont mis plus de temps à atteindre la plaque de détection que ceux créés à l'entrée du détecteur. Ils ont donc eu plus de distance à parcourir, la particule α s'est éloignée de la plaque de détection comme le schématise la Figure 5 - 16. On peut alors reconstruire la 3^{ème} dimension. Cela fait du DGPR une **TPC** (Time Projection Chamber) **miniature**.



Figure 5 - 16 : Reconstruction de la 3^{ème} dimension de l'évènement de la Figure 5 - 13.

Nous avons donc la possibilité de reconstruire la trajectoire des particules permettant de discriminer les protons en fonction de leur provenance. Cette reconstruction permet également de déterminer plus précisément la longueur de trace du proton. Par le biais des tables de pertes d'énergie, on peut ainsi remonter à l'énergie déposée par le proton. Compte tenu des difficultés autour de l'uniformisation du champ électrique et des gains des pads, cette méthode est probablement plus précise que de sommer l'énergie déposée sur chaque pad. Ainsi, on pourra reconstruire un spectre proton similaire à ceux obtenus avec un détecteur Si et isoler le pic proton en utilisant la même méthodologie (soustraction d'un spectre de bruit de fond, coupure pour éviter les protons dus aux neutrons diffusés...).

Une étude de bruit de fond en amont de ce travail de thèse a été réalisée. Le détecteur a été placé sous irradiation neutron et le bruit de fond restait tout à fait convenable. Ce détecteur répond donc à toutes les conditions exposées dans le chapitre précédent. Une seule de ces conditions n'a pas encore été vérifiée : pour réaliser une mesure précise, le détecteur doit impérativement avoir une efficacité intrinsèque de 100%. Vérifions cette dernière condition.

5.4 Efficacité du détecteur

Pour réaliser une mesure précise, toutes les particules valides (protons de recul provenant de neutrons directs) qui entrent dans le détecteur doivent être détectées, ce qui signifie une efficacité intrinsèque valant 100%. Pour mesurer cette dernière, il faut savoir exactement combien de particules entrent dans le détecteur et combien sont détectées pour connaître ensuite le taux qui est détecté. Pour cela, il faut connaître l'efficacité de détection et l'efficacité géométrique du détecteur :

$$\varepsilon_{\text{intrinsèque}} = \frac{\varepsilon_{\text{détection}}}{\varepsilon_{\text{géométrique}}}$$
(5.09)

Les premières expériences sont réalisées avec une source 3α . Une fois que l'on a vérifié que l'efficacité intrinsèque vaut 100% pour des α , les résultats seront vérifiés avec un faisceau de protons directs.

5.4.1 Mesure avec une source 3α

Dans le cas de l'utilisation d'une source 3a, l'efficacité de détection vaut :

$$\varepsilon_{\text{détection}} = \frac{N}{A_{\text{source}}*t}$$
(5.10)

Avec N, le nombre d'évènements détectés durant l'acquisition, t la durée de l'acquisition total et A_{source} l'activité de la source 3α . Ne connaissant pas les caractéristiques temporelles de l'acquisition, nous cherchons l'efficacité de détection incluant le temps mort. Avant de réaliser une acquisition, il faut alors connaître deux paramètres précisément : l'activité de la source et l'efficacité géométrique du détecteur. Cette dernière peut être calculée par une simulation adéquate. Une mesure de l'activité de la source peut être réalisée avec un détecteur silicium. Une fois ces paramètres connus, l'efficacité de détection peut se mesurer par une acquisition et donner ainsi l'efficacité intrinsèque du détecteur.

5.4.1.1 Calcul de l'efficacité géométrique

Pour obtenir l'efficacité géométrique du DGPR, nous avons réalisé une simulation Monte-Carlo en C. L'utilisation du détecteur avec les α doit se faire dans les mêmes conditions et nous détectons donc les α après le 2^{ème} collimateur. Nous avons pris un disque pour représenter la source et un autre pour représenter le second collimateur. Les particules sont émises dans 4π aléatoirement. Pour ces simulations, nous devons connaître précisément certaines mesures ainsi que leurs incertitudes. Nous avons également réalisé des calculs pour connaître la sensibilité de l'efficacité géométrique pour les trois données d'entrée du code : le rayon de la source, le rayon du collimateur et la distance entre la source et le second collimateur. Le

Tableau V - 2 répertorie ces mesures, leurs incertitudes absolues ainsi que la sensibilité de l'efficacité géométrique à chaque valeur :

Paramètres	Valeur (mm)	Incertitude absolue	Sensibilité (%/mm)
		(mm)	
Rayon du collimateur	5.00	0.01	38.91
Rayon de la source 3α	4.10	0.25	0.82
Distance source- collimateur	26.2	0.5	7.33

Tableau V - 2 : Paramètres mesurés pour calculer l'efficacité géométrique du DGPR.

Les simulations donnent donc une efficacité géométrique du DGPR pour les mesures avec une source 3α de (0.87 ± 0.03) %.

Nous pouvons noter dans ce tableau la forte sensibilité de l'efficacité au rayon du collimateur. Fort heureusement, celui-ci est donné par son fabriquant avec une très grande précision. Seule la distance source-collimateur peut alors être problématique. Nous pouvons en effet remarquer que la distance source-collimateur a une incertitude absolue élevée et la sensibilité de l'efficacité géométrique à cette valeur est non négligeable. Cette distance a été mesurée plusieurs fois de deux manières différentes pour en diminuer l'incertitude. Cette grande incertitude affectera de la même manière l'efficacité avec des protons de recul (film d'hydrogène sur le disque au lieu de la source). Cette difficulté de mesure est directement liée à la géométrie-même du DGPR et aux solutions techniques retenues pour sa réalisation. Rappelons cependant que le DGPR est actuellement un prototype. Une nouvelle version sera donc fabriquée lorsque les tests sur la version actuelle seront aboutis. La géométrie compacte du détecteur étant un point limitant ici, la conception du nouveau détecteur devra intégrer cette contrainte et ses dimensions devront être réalisées de manière très précise, industrielle.

Nous connaissons donc l'efficacité géométrique du dispositif, il faut maintenant réaliser une mesure précise de l'activité de la source 3α .

5.4.1.2 Mesure de l'activité de la source 3α

Pour réaliser une mesure de l'activité de la source 3α , nous avons choisi d'utiliser un détecteur silicium qui a une efficacité intrinsèque de 100%. Nous avons alors réalisé le montage schématisé Figure 5 - 17 pour cette mesure :



Figure 5 - 17 : Schéma du dispositif expérimental pour la mesure de l'activité de la source 3a.

Dans ce montage, nous avons placé le détecteur silicium aussi loin que possible de la source 3α afin de minimiser l'erreur géométrique et de rendre négligeable le temps mort, ce qui réduit la statistique. Celle-ci est alors compensée par une durée d'acquisition plus longue.

L'efficacité géométrique de ce dispositif est déterminée par la même simulation Monte-Carlo adaptée à ce montage. Le Tableau V - 3, analogue au

Tableau V - 2, répertorie les mesures de ce montage.

Paramètres	Valeur (mm)	Incertitude absolue (mm)	Sensibilité (%/mm)
Rayon du collimateur	7.50	0.01	26.60
Rayon de la source 3α	4.10	0.25	0.03
Distance source- collimateur	122.3	0.5	1.63

Tableau V - 3 : Paramètres mesurés pour calculer l'efficacité géométrique du détecteur silicium.

L'efficacité géométrique simulée de ce dispositif est de (0.0947 ± 0.0008) %.

Il ne nous reste plus qu'à réaliser des acquisitions pour mesurer l'activité de la source. Pendant ces mesures, des acquisitions de bruits de fond ont également été réalisées. En effet, le détecteur silicium utilisé avait préalablement été contaminé par du ²⁵²Cf et le bruit de fond négligé lors d'une première mesure a faussé la valeur de l'activité trouvée et donc la valeur de l'efficacité intrinsèque du DGPR mesurée.

La valeur finale de l'activité de la source 3α mesurée est : $(517.9 \pm 4.4^{sys} \pm 1.9^{stat})$ Bq. L'incertitude reprend la sensibilité de l'efficacité géométrique du détecteur silicium aux paramètres avec les incertitudes correspondantes de ces paramètres ainsi que l'incertitude statistique.

Nous connaissons maintenant l'efficacité géométrique du DGPR et l'activité de la source 3α . Pour mesurer l'efficacité intrinsèque du DGPR, il ne manque plus que la mesure du taux de comptage (paramètre $\frac{N}{t}$ de (5.10)).

5.4.1.3 Mesure de l'efficacité intrinsèque du DGPR

Maintenant que nous connaissons l'efficacité géométrique du détecteur et l'activité de la source, nous pouvons connaître le nombre théorique d' α entrant dans le second collimateur du détecteur par seconde. D'abord, nous allons utiliser les conditions qui nous semblent optimales : une pression à 100 mbar, la grille polarisée à -430 V, la cathode à -2000 V, la gamme de 120 fC, le seuil à 2.0 et le seuil de multiplicité à 1. La cage à dérive est réglée de telle sorte à homogénéiser au maximum le champ électrique. Les pads servant de trigger sont ceux situés dans les 3 premières colonnes après le second collimateur.

L'expérience fournit 6187 évènements en 20 minutes. Après analyse, 5 372 évènements sont bons, soit un taux de mauvais évènements de 13.2%. Nous obtenons ainsi 4.48 évènements par seconde. Selon l'activité de la source mesurée avec le détecteur silicium et selon l'efficacité géométrique du dispositif calculée, le taux de comptage attendu est de 4.51, nous obtenons une efficacité intrinsèque de 99.2%. Soit en repartant de (5.09) et (5.10) :

 $\varepsilon_{\text{intrinsèque}} = \frac{N}{A_{\text{source}*T*\varepsilon_{géométrique}}} = \frac{5372}{517.9*20*60*0.0087}$ (5.11)

$$\varepsilon_{\text{intrinsèque}} = (99.2 \pm 3.7^{\text{sys}} \pm 1.1^{\text{stat}})\%$$

Dans cette mesure, l'incertitude reprend la sensibilité de l'efficacité géométrique du DGPR aux paramètres avec les incertitudes correspondantes de ces paramètres, l'incertitude de l'activité de la source ainsi que l'incertitude statistique.

Nous pouvons donc conclure que le DGPR a une efficacité intrinsèque d'environ 100%. Cependant, l'incertitude est beaucoup trop importante pour affirmer que cette mesure est précise. Un effort pour réduire l'incertitude géométrique, incertitude principale de cette mesure, est donc nécessaire lors de la conception de la prochaine version du détecteur.

Ce résultat n'a pas été trouvé dès la première expérience. Un problème a été identifié ne venant pas d'erreurs expérimentales. En effet, après avoir sollicité le service électronique du CENBG, celui-ci a remarqué que le programme firmware dans la carte SAM ne traitait en réalité qu'un signal sur 2, divisant l'efficacité de détection par 2. Ce problème a pu être résolu et a amené à la conclusion que le DGPR a environ une efficacité intrinsèque de 100%.

Une fois que l'efficacité intrinsèque a été connue dans les conditions optimales, nous avons fait varier plusieurs paramètres un par un pour connaître leur influence sur l'efficacité. Tout d'abord, nous avons fait varier le seuil de 2.0 à 4.0. Nous trouvons une efficacité de $(99.2 \pm 3.7^{sys} \pm 1.9^{stat})$ %. Nous pouvons en déduire que la modification du seuil n'influence pas l'efficacité du détecteur lorsque l'amplitude des signaux est assez importante. Cependant, cela influe sur le taux de mauvais frames, passant de 13.2% à 11.8%. D'autres études ont montré que les seuils grossiers 4 et 5 sont ceux avec les taux de mauvais évènements les plus bas.

Nous avons également fait varier le seuil de multiplicité pour déclencher l'enregistrement de l'évènement, passant de 1 à 2. Nous trouvons une efficacité de $(96.0 \pm 3.7^{sys} \pm 1.9^{stat})$ %. Même si les incertitudes rendent cette valeur compatible avec une efficacité de 100%, le fait d'avoir toujours la même erreur systématique (corrélation totale) permet d'affirmer qu'il a y une baisse de l'efficacité par rapport aux conditions optimales. Le taux de mauvais évènements, quant à lui, devient alors 3.2%, soit une diminution très importante.

Nous avons enfin fait varier la gamme, passant de 120 fC à 240 fC. Cette gamme permet l'utilisation d'un seuil 1.0. Encore une fois, les résultats obtenus avec les deux seuils sont identiques. L'efficacité vaut alors $(93.1 \pm 3.7^{sys} \pm 1.3^{stat})$ %. Nous pouvons affirmer que la gamme choisie influe sur l'efficacité du détecteur. Le taux de mauvais évènements est alors de 11.3 % soit une très faible diminution par rapport aux conditions optimales.

Toutes ces mesures ont été réalisées avec la source 3α . Une mesure avec un faisceau de protons directs doit être réalisée pour tester des conditions expérimentales plus proches des protons de recul.

5.4.2 Etude avec un faisceau de protons directs.

Maintenant que nous avons pu constater qu'avec une source 3α, le DGPR a une efficacité intrinsèque d'environ 100% et que nous connaissons l'influence de différents paramètres sur cette efficacité, nous pouvons vérifier que les résultats sont les mêmes avec un faisceau de protons directs. Comme nous l'avons évoqué précédemment, une étude avec un faisceau de protons ne peut être réalisée que sur accélérateur. Pour réaliser notre mesure, nous avons utilisé l'accélérateur AIFIRA du CENBG. Voyons dans un premier temps les caractéristiques de cet accélérateur puis réalisons l'étude.

5.4.2.1 L'accélérateur AIFIRA [306]

AIFIRA est un accélérateur de proton de type Singletron situé sur le site du CENBG (Gradignan-Gironde). Sa tension maximale est de 3,5 MV. Le flux maximal de protons généré est 10¹³ protons/s. Le flux couramment utilisé est autour de 10¹⁰ protons/s. Ce flux est défini par le courant généré par l'accélérateur.

L'énergie des protons est définie par l'application d'une tension d'accélération et par la faisceaulogie. La précision sur l'énergie vaut $\frac{\Delta E}{E} = 10^{-5}$ ce qui est une valeur dite très bonne. La stabilité sur le temps du faisceau et de l'énergie du faisceau est dite « excellente ».

L'accélérateur comporte cinq lignes de faisceaux dédiées à des expériences spécifiques : la physique, la ligne micro irradiation cellulaire, la ligne nano, la ligne macro et la ligne faisceau extrait. Pour notre expérience, nous utilisons la ligne physique. Cette ligne est dédiée à la caractérisation des détecteurs et à la production de champs de neutrons mono-énergétiques. Elle n'est cependant pas adaptée aux microfaisceaux et l'encombrement du détecteur proscrit l'utilisation des lignes proposant des microfaisceaux (à cause des dispositifs déjà en place sur ces lignes). Nous avons pourtant besoin que seulement quelques protons par seconde passent dans le détecteur. Pour obtenir ce microfaisceau, le faisceau est d'abord défocalisé puis passe à travers un collimateur de diamètre $20 \,\mu$ m.

Lors de l'expérience, le courant généré par l'accélérateur est 1.5 pA. Après passage par le micro-collimateur, quelques protons par seconde entrent dans le détecteur. Le taux de protons par seconde a été modifié plusieurs fois au cours de l'expérience. Ceci est possible en modulant le courant. Cela peut se faire soit en défocalisant plus ou moins le faisceau, soit en utilisant des fentes de définition pour ajuster le courant de faisceau en l'interceptant.

Plusieurs expériences de caractérisation du détecteur avec cet accélérateur sont prévues. La première avait pour objectif de vérifier que le détecteur avait une efficacité intrinsèque de 100% avec un faisceau de protons, comme nous l'avions mesurée avec une source 3a. D'autres expériences seront réalisées par exemple pour vérifier la réponse du détecteur à basse pression avec des protons moins énergétiques ou pour analyser la résolution spatiale du détecteur.

5.4.2.2 Conception d'une chambre expérimentale dédiée

Pour réaliser une expérience sur accélérateur avec un faisceau de protons directs, une chambre a été spécialement dessinée et est schématisée Figure 5 - 18.



Figure 5 - 18 : Schéma de la chambre spécialement dessinée pour cette expérience.

Cette chambre a été conçue pour répondre à de nombreux objectifs. Tout d'abord, la chambre doit être connectée à la ligne de faisceau AIFIRA. Une fenêtre fabriquée en mylar aluminisé d'épaisseur 6 µm placée dans le tube (à gauche sur la Figure 5 - 18) sépare le vide de l'accélérateur de la chambre remplie de gaz. Le DGPR doit également tenir dans la chambre, être connecté aux cartes électroniques (hublot dédié à cet effet) et être aligné avec le faisceau. Il doit également pouvoir être déplacé transversalement pour tester sa résolution spatiale. Un dispositif a alors été conçu pour que le DGPR puisse être déplacé à l'intérieur de la chambre pour envoyer le faisceau à différents endroits du détecteur sans avoir à ouvrir la chambre. Enfin, un détecteur silicium peut être fixé et connecté au fond de la chambre afin qu'il compte le nombre de protons traversant le DGPR.

Comme le nombre de protons entrant dans le détecteur doit être faible et que la défocalisation du faisceau n'est pas suffisante pour obtenir un microfaisceau, un collimateur de 20 μ m est placé à l'entrée de la chambre (pour des raisons techniques, devant la fenêtre). Signalons que des interactions des protons du faisceau avec les bords biseautés du collimateur et avec la fenêtre ont lieu, ce qui dévie les protons de leur trajectoire. Ceux-ci peuvent alors traverser le DGPR de biais, sans impacter le détecteur Si derrière. Pour éliminer ce problème, un second collimateur (de 2 mm) a donc été placé en entrée de détecteur, permettant à tout proton traversant le DGPR d'être détecté par le Si.

Tout ce dispositif permet une analyse beaucoup plus précise du comportement et de la reproductibilité des événements qu'avec une source 3α grâce à un faisceau de protons monodirectionnel et mono-énergétique.

5.4.2.3 L'expérience

La réalisation de l'expérience s'est faite en connectant la chambre comportant le DGPR à la ligne physique d'AIFIRA. La pression à l'intérieur de la chambre est définie grâce à une pompe à vide et à une unité de régulation du gaz connecté à une bouteille du gaz souhaité. Le

microfaisceau de protons arrive dans la chambre, traverse le DGPR et s'arrête ensuite dans un détecteur silicium situé à l'arrière de la chambre. La Figure 5 - 19 est une photo légendée du dispositif.



Figure 5 - 19 : Dispositif de l'expérience avec un microfaisceau de protons directs.

Plusieurs pressions de gaz dans la chambre sont utilisées : 300 mbar, 200 mbar 100 mbar. Les acquisitions ont été réalisées avec des tensions de polarisation de la cathode à -2 000 V et à la grille de -580 V à 300 mbar, -500 V à 200 mbar et -430 V à 100 mbar. Les paramètres choisis dans le système d'acquisition correspondent aux conditions optimales identifiées.

Une seule énergie de protons de 3 MeV a été choisie pour des raisons de facilité de réglage de l'accélérateur (faisceau très défocalisé). Aux pressions mentionnées précédemment, ces protons déposent donc 45, 30 et 14 keV par grand pad (1x1 cm) respectivement. À titre de comparaison, des protons de recul de 500 keV dans une pression de 80 mbar (adaptée pour avoir le pic de Bragg avant la fin du détecteur) déposent 45 keV dans les premiers grands pads et 80 keV au niveau du pic de Bragg. Les énergies déposées par les protons directs lors de cette

expérience sont donc égales ou très inférieures à celles déposées par des protons de recul dans la gamme d'énergie d'intérêt.

Grâce à ce faisceau de protons micro-collimaté et mono-énergétique, les signaux obtenus lors de l'expérience sont très clairs et les amplitudes des pics largement supérieures aux fluctuations du bruit de fond. Cependant, en comparaison des expériences en protons de recul réalisées avant cette thèse, ces fluctuations sont beaucoup plus faibles. Il faut donc rester prudents sur la capacité du DGPR à détecter de faibles énergies déposées lors d'expérience aussi "propres".

La trajectoire des protons est donc droite et bien définie grâce aux deux collimateurs. Cela signifie que tout proton qui passe dans le DGPR va dans le détecteur silicium. Pour mesurer l'efficacité, une comparaison est faite entre le nombre de protons détectés par le DGPR et détectés par le détecteur silicium. Les résultats sont analysés pour ne pas compter les rares évènements parasites (de l'ordre de 1%). Lorsque le flux de protons dans le détecteur est inférieur à 3 protons/s, l'efficacité intrinsèque de celui-ci vaut 100%, comme on pouvait l'espérer. Cependant, un flux supérieur diminue l'efficacité jusqu'à 7% pour 366 protons/s, flux maximal testé. Les signaux transmis par le DGPR étant clairs et la diminution de l'efficacité s'intensifiant avec la fréquence, la raison pour laquelle le DGPR manque des évènements ne vient pas d'un problème de seuil.

Pour comprendre ce problème, nous avons décidé de changer le mode de déclenchement du DGPR, le trigger est alors donné par le silicium : lorsque celui-ci détecte un proton, il ordonne au DGPR d'enregistrer l'évènement (appelé mode trigger externe). Si l'origine du problème est le processus de trigger, nous pouvons alors nous attendre à ce que le nombre d'évènements enregistrés pour chaque détecteur soit le même. Ce n'est pourtant pas le cas, comme le montrent les résultats représentés sur la Figure 5 - 20.



Figure 5 - 20 : Graphique de l'efficacité du DGPR en fonction du taux de protons détectés dans le silicium pour un trigger interne et externe.

Sur cette figure, nous pouvons remarquer que le mode trigger externe ne résout pas significativement le problème identifié. Le temps mort du détecteur est légèrement plus faible

lorsque l'ordre d'enregistrer l'évènement ne vient pas du traitement du signal du détecteur luimême. En moyenne, une efficacité de 50% correspond à un taux de 38 protons/s. Cela correspond à un temps mort du détecteur de 26 ms, bien supérieur aux 1.4 ms annoncées partie 5.2.1 ou même aux 12.6 ms obtenues avec l'étude du bruit de fond partie 5.3.2.

Rappelons que les mesures réalisées avec la source 3α correspondent à un taux de $4.48\alpha/s$ dans le détecteur. L'efficacité valait alors (99.2 ± 3.9) %. En regardant la Figure 5 - 20, nous pouvons remarquer que ce taux correspond déjà à une faible diminution de l'efficacité et nous demander si la diminution éventuelle observée avec un seuil de multiplicité 2 ne peut pas être dû à une faible augmentation du temps mort.

Des études plus poussées doivent être menées pour comprendre l'origine de ce temps mort.

5.4.3 Etudes avec un banc de test (réalisé après mon départ du CENBG)

Pour réaliser ces études plus poussées, un banc de test a été utilisé. La carte électronique du DGPR est connectée à ce système qui envoie une impulsion électrique à une fréquence donnée. Des tests sont réalisés pour des fréquences de 10 Hz, 100 Hz et 1000 Hz avec le mode trigger interne et trigger externe. Les résultats de l'efficacité du détecteur sont disponibles dans le Tableau V - 4.

55 1			
	Trigger interne	Trigger externe	
10 Hz	100%	100%	
100 Hz	38.3%	51.5%	
1000 Hz	2.6%	6.5%	

Tableau V - 4 : Efficacité du détecteur pour les fréquences 10, 100 et 1000 Hz avec les modes trigger interne et externe.

Les résultats de ces tests montrent que lorsque le DGPR fonctionne en mode trigger interne, son temps mort est de 38 ms. Celui-ci est plus faible et vaut 15 ms en mode trigger externe. Ces résultats sont tout de même beaucoup trop élevés et une investigation est actuellement en cours par le service électronique du CENBG pour comprendre la raison d'un temps mort si important.

Ces études, bien qu'ayant été réalisées par quelqu'un d'autre après mon départ du CENBG, confirment les résultats expérimentaux obtenus par l'expérience avec le faisceau de protons directs.

5.5 Conclusion du chapitre

Le Détecteur Gazeux à Protons de Recul est un prototype actuellement développé au CENBG. Son but est de mesurer précisément un flux de neutrons en le convertissant en flux de protons pour ensuite détecter ces derniers. Les énergies neutrons visées pour ce détecteur sont entre 0.2 MeV et 2 MeV, permettant ainsi de cibler le seuil et la structure de la section efficace de fission du ²⁴²Pu.

Les conditions d'utilisation de ce détecteur ont été investiguées. Il est possible de reconstruire la trajectoire d'un proton en 2D grâce au plan de détection de technologie Micromégas. Cette reconstruction permet de discriminer les protons en fonction de leur origine. L'utilisation d'un gaz lent permet d'avoir accès à la 3^e dimension, ce qui fait du DGPR une TPC miniature.

L'efficacité intrinsèque de ce détecteur a ensuite été mesurée. Avec une source 3α ayant une activité de 518 Bq (soit pour 4.5 α par seconde entrant dans le détecteur), cette efficacité vaut 100%. Cette efficacité a ensuite été vérifiée avec un faisceau de protons, un détecteur silicium placé en aval du détecteur servant de référence. Il a alors été montré que l'efficacité du DGPR vaut 100% à bas taux de comptage mais que le temps mort de ce détecteur est anormalement élevé ce qui réduit l'efficacité réelle dès lors que plusieurs protons par seconde arrivent dans le détecteur. Des études sur un banc de test ont alors été menées et ont confirmé l'hypothèse d'un temps mort rédhibitoire. La valeur de ce temps mort varie de plus d'un facteur deux entre l'option trigger interne, où le DGPR doit analyser le signal puis décider de l'enregistrer ou non, et l'option trigger externe où une source extérieure impose au DGPR quand enregistrer un évènement. Une investigation est actuellement menée par le service électronique du CENBG pour expliquer et résoudre ce problème de temps mort.

Une fois que ces problèmes seront résolus, d'autres expériences seront menées avec un faisceau de protons directs sur l'accélérateur AIFIRA pour étudier la réponse du DGPR à basse pression avec des protons autour de 500 keV à 1 MeV ainsi que pour vérifier la résolution spatiale du détecteur.

Enfin, n'oublions pas que le DGPR est toujours un prototype au stade d'étude. Une fois que les problèmes identifiés auront été résolus, le DGPR sera redesigné. Une attention particulière sera alors portée aux différentes distances du détecteur, point faible actuellement pour réaliser une mesure précise de l'efficacité géométrique. Si ce détecteur est dédié aux mesures de protons de recul de 0.2 à 2 MeV, son développement lui permettra peut-être de réaliser des mesures précises sur une gamme d'énergie et de particules positives plus étendue. La première mesure de section efficace pour laquelle ce détecteur sera utilisée est 242 Pu(n,f).

Conclusion et perspectives

Au cours de ce travail de thèse, nous avons étudié la section efficace de fission du ²⁴²Pu selon les deux aspects complémentaires de la physique : l'expérience et la théorie. La théorie doit reproduire l'expérimentation qui lui sert de référence et les observations expérimentales imposent des connaissances théoriques. Nous signalons néanmoins que les progrès théoriques récents permettent des prédictions raisonnables dans certains cas. C'est pourquoi il est important d'étudier ces deux volets, ce qui a été fait successivement au cours de ce travail de thèse.

Pour présenter le travail réalisé, nous avons tout d'abord revu les bases théoriques nécessaires à ce travail. Nous avons ainsi pu rappeler qu'en structure nucléaire, l'étude traite du système composé ; le ²⁴³Pu dans ce manuscrit. Nous avons aussi rappelé que le processus de fission passe par l'étape de noyau composé équilibré (postulat). Nous avons également appréhendé la notion de puits de potentiel du noyau en déformation, caractéristique du processus de fission. Dans la dimension de l'élongation du noyau fissionnant, le minimum de potentiel de déformation présente classiquement deux puits et deux barrières de fission (démontré par Strutinsky [225]). Sur ce minimum de potentiel oscillant sont présents des états d'excitation virtuels décrits par leur énergie et leurs nombres quantiques. Au-dessus des bosses, les états d'excitation intrinsèques dits de transition (ou de Bohr) contribuent à l'accroissement continu de la probabilité de fission en plus de la barrière fondamentale. A l'opposé, les états construits dans la dimension de l'élongation (ceux du 2^e puits de fission en particulier, dits états de classe II) concourent à une augmentation localisée, au voisinage de leur énergie, de la probabilité des états de classe I de se désexciter par fission. Les états de classe II ont fait particulièrement l'objet de notre étude. Pour prendre en compte explicitement ces états dans la modélisation de la section efficace de fission, il est possible d'utiliser une approximation de forme Lorentzienne de la barrière globale, englobant ces états et incluant empiriquement la variation locale de la pénétrabilité. Les états d'excitation du chemin de fission peuvent être simulés par une méthode de combinatoire. Celle qui a servi de référence au cours de cette partie théorique a été implémentée dans le programme AVXSF par E. Lynn et repose sur la théorie des quasi-particules avec jusqu'à dix configurations de brisures de paires de quasi-neutrons et quasi-protons.

Une fois cette théorie décrite, nous nous sommes intéressés à la forme de la section efficace de fission du ²⁴²Pu. Nous avons de ce fait retrouvé les quatre régions énergétiques définissant la section efficace neutronique d'un noyau lourd : le domaine thermique, la région des résonances résolues (RRR), la région des résonances non résolues (URR) et le continuum neutronique. Chaque région comporte des spécificités : il n'y a aucun pic de résonance dans le domaine thermique conventionnellement. Dans le RRR les résonances provenant des états de classe I et II sont individuellement identifiables. Lorsque l'énergie d'excitation augmente, la largeur des états augmente et leur espacement moyen diminue, les états discrets laissant petit à petit place à un continuum, introduisant la notion de densité de niveaux. Lorsque l'espacement entre les résonances de classe I devient trop faible pour les identifier individuellement, l'URR commence (1.15 keV choisi pour le ²⁴²Pu) où des amas de résonances de classe I restent visibles. Dans ce domaine, les résonances de classe II sont toujours individuellement observables. Enfin, lorsqu'il n'est plus possible d'observer individuellement les états de classe II ni les amas de

Conclusions et perspectives

classe I, seule une variation globale de la section efficace est visible, c'est le continuum neutronique (historiquement choisi au seuil de l'inélastique pour des raisons pratiques ; vers 40 keV pour le ²⁴²Pu). C'est également dans cette dernière région que se matérialise le seuil de fission du ²⁴²Pu témoignant de son caractère fertile. Nous nous sommes alors concentré sur la reproduction (la modélisation) de la section efficace dans ces différentes régions et nous avons repris les différents modèles mathématiques adaptés à l'énergie du neutron. Le RRR répond à la théorie de la matrice R, modèle mathématiquement exact. Comme ce modèle est exhaustif, la variété de ses paramètres reste difficile à évaluer sur une base expérimentale limitée. Classiquement, cette approche idéale est approximée. Les approximations communément rencontrées sont le Multi-Level Breit-Wigner (MLBW, au sens ENDF) et Reich-Moore (RM). Nous avons alors choisi d'utiliser le code maison CONRAD pour modéliser plus précisément la section efficace de fission du ²⁴²Pu dans le RRR. Dans le URR et dans le continuum, nous avons choisi d'utiliser un modèle unique reposant sur le modèle Hauser-Feshbach alimenté par le code de modèle optique ECIS-06 au travers du système de codes TALYS. Enfin nous avons rappelé dans ce chapitre la définition d'une évaluation. Elle nécessite à la fois des mesures expérimentales servant de référence et des modèles mathématiques adaptés au besoin de l'évaluateur, incluant une procédure d'ajustement performante. L'objectif de la partie théorique de cette thèse était d'apporter plus de physique à l'évaluation de la section efficace de fission du ²⁴²Pu tout en permettant d'acquérir une méthodologie qui pourra être facilement utilisable avec les autres noyaux fertiles. C'est ce que nous avons détaillé dans le chapitre 3.

Avant cette étape, un état de l'art de la connaissance sur le ²⁴²Pu fissionnant s'imposait. Trois remarques peuvent être relevées : le fichier JEFF3 repose sur l'approximation MLBW qui est technologiquement obsolète, l'évaluation JEFF3.3 est assez rudimentaire dans le URR et une structure importante dont l'origine est inconnue est visible au franchissement du seuil de fission, autour de 1.1 MeV d'énergie neutron. Ce sont ces trois points que nous avons développés. Nous avons tout d'abord adapté les paramètres ENDF-MLBW au formalisme RM avec des hypothèses réalistes compensant le manque d'information. Nous avons ensuite caractérisé les deux états de classe II présents dans le RRR. En extrayant les paramètres les décrivant (énergie, largeur et amplitude), il a été possible de traiter toujours empiriquement mais explicitement la pénétrabilité de la barrière de fission et les états de classe II grâce à l'approximation de forme Lorenztienne implémentée dans le code CONRAD par P. Tamagno. Ainsi, des largeurs et amplitudes de fission plus physiques et moins phénoménologiques ont été obtenues en « retirant » l'influence des états de classe II sur les états de classe I. Nous avons ensuite identifié pour la première fois soixante-huit états de classe II dans le URR. Parmi ces états identifiés, certains sont probablement des amas de classe I mais aucune mesure actuelle d'une autre section efficace ne permet de les discriminer. En obtenant leurs paramètres, ces états ont pu être explicitement décrits pour un calcul TALYS élaboré et ainsi proposer une modélisation de la section efficace bien plus fine que celle de JEFF3.3 dans le URR comme nous le démontre la Figure 3 - 16.

A partir des différentes investigations menées autour de la densité de niveaux des états du second puits (prédictions de AVXSF-QPVRLD, analyse expérimentale et loi de température constante), la valeur du fond du puits a pu être débattue. Ainsi, la valeur de (1.7 ± 0.3) MeV proposée par la littérature a été confirmée mais avec une incertitude réduite : $E_{II} = (1.7 \pm 0.1)^{0.2}$ MeV.



Figure 3 - 16 : Modélisation de la section efficace obtenue dans l'URR après ajustement des résonances de classe II identifiées dans le paragraphe 3.2.2 (courbe verte). Référence du travail : données de Auchampaugh et al. (croix noires) [102] renormalisées.

Enfin, nous avons étudié la sensibilité des paramètres des barrières de fission (hauteur, courbure, états de transition) sur la forme de la section efficace de fission calculée (notre objectif). Après avoir démontré que l'origine de la structure phare de notre travail ne provient pas de la barrière de fission (classe II, états de transition) à l'aide d'une méthode combinatoire pour la génération d'états excités (module QPVRLD du code AVXSF), bien qu'elle se situe juste au franchissement du seuil, nous avons envisagé une origine indirecte. Pour cela, nous avons étudié l'influence des niveaux de basse énergie (les Low Lying Levels) du ²⁴²Pu, noyau résiduel de la réaction de diffusion inélastique, et sommes parvenus à reproduire cette structure par la théorie. Ainsi, nous pouvons affirmer l'origine indirecte de cette structure liée à la réaction prépondérante à cette énergie. Nous n'avons cependant pas encore pu modéliser exactement la forme et hauteur mesurée, cette dernière ayant des différences de 10 à 15% entre les différentes mesures. Une nouvelle mesure précise et centrée sur cette structure est donc nécessaire, justifiant la partie expérimentale de cette thèse, comme le montre la Figure 0 - 5, reprise des Figure 3 - 37 et Figure 4 - 6.



Figure 0 - 5 : Comparaison des meilleurs résultats obtenus avec TALYS (Figure 3 - 37) avec les données expérimentales (non normalisées) [101, 102, 103, 105, 106, 107, 108, 109, 110, 111, 112] et leurs incertitudes (Figure 4 - 6). Zoom sur la structure étudiée à 1.1 MeV.

Nous avons rappelé au chapitre 4 de manière non exhaustive les différents accélérateurs de particules et les réactions impliquées pour fournir des flux de neutrons. Nous avons également fait une analyse critique dans ce chapitre des mesures de la section efficace de fission du ²⁴²Pu déjà réalisées et publiées ainsi que des méthodes choisies pour chacune d'entre elles. Il existe deux types de méthodes, permises par la nature des flux de neutrons, pour réaliser une mesure de section efficace : la méthode par temps de vol avec un spectre blanc de neutrons et la méthode par flux de neutrons quasi-mono-énergétique. C'est cette seconde méthode que nous avons choisie comme solution à une proposition de nouvelle mesure. Nous rappelons que pour mesurer une section efficace de fission, deux détecteurs sont nécessaires, l'un pour compter le nombre de fissions, l'autre pour mesurer le flux de neutrons. Pour le premier comptage, le détecteur couramment utilisé est une chambre d'ionisation, également appelée chambre à fission. Nous avons fait le choix d'utiliser des cellules photovoltaïques. Le flux de neutrons, quant à lui, se mesure indirectement grâce à une section efficace de référence très bien connue. Celle habituellement utilisée est la section efficace de fission du ²³⁵U, corrélant alors toutes les mesures entre elles. Un moyen d'avoir une mesure non corrélée est la technique des protons de recul, technique que nous avons choisie. Le flux de neutrons pourra ainsi être mesuré en rapport à la section efficace évaluée la plus précise (standard AIEA) : la section efficace de diffusion élastique du neutron sur l'hydrogène H(n,n)p. Le détecteur couvrant la plage d'énergie neutron de 1 et 70 MeV couramment utilisé pour cette technique est le détecteur silicium. Celui-ci aurait parfaitement répondu à nos exigences si la structure résonnante observée n'était située aux alentours de 1 MeV d'énergie neutron. Mais une mesure auto-cohérente doit couvrir la zone de 200 keV à 2 MeV afin de l'englober. Les détecteurs silicium étant sensibles au bruit de fond

Conclusions et perspectives

des électrons, il n'est pas possible de réaliser une mesure précise avec ce type de détecteurs en dessous de 1 MeV, le pic protons se noyant dans le bruit de fond. D'autres détecteurs comme les scintillateurs ou les compteurs proportionnels permettent aussi de détecter des neutrons par protons de recul, mais aucun d'entre eux ne répond à toutes nos exigences. Nous avons alors choisi de développer un nouveau détecteur nommé Détecteur Gazeux à Protons de Recul (DGPR) dont le principe a été détaillé au chapitre 5 et dont la figure suivante en donne les principales lignes.



Figure 5 - 1 : Photo légendée du détecteur DGPR (haut) et schéma de principe du fonctionnement du détecteur (bas).

Le détecteur gazeux à protons de recul est un détecteur qui a été pensé et conçu au sein du groupe ACEN du CENBG et dont le but est la mesure précise d'un flux de neutrons en le convertissant en flux de protons puis en détectant les protons. A mon arrivée dans ce groupe, ce détecteur était déjà sous forme de prototype et la tenue sous irradiation ainsi que la nonsensibilité au bruit des électrons avaient déjà été investiguées et validées. Le DGPR utilise la technologie Micromegas comme plan de détection. Le principe du micromegas est d'amplifier le gain grâce à la présence d'une grille polarisée 125 µm au-dessus de l'anode multipliant par cent le champ électrique. Les électrons dérivent vers l'anode qui correspond au plan de détection. Celui-ci est segmenté en soixante-quatre pads, permettant ainsi la reconstruction de la trajectoire de la particule en deux dimensions. L'utilisation d'un gaz lent donne accès à la troisième dimension grâce à la faible vitesse de dérive des électrons, faisant du détecteur une TPC miniature (Time Projection Chamber). La reconstruction de la trajectoire permet de discriminer les particules détectées en fonction de leur provenance. Il est alors possible d'écarter les trajectoires des protons ne provenant pas du film riche en hydrogène présent en amont du détecteur. Les conditions d'utilisation de ce détecteur ont été investiguées dans le cadre de cette thèse : tensions de polarisation, pressions et paramètres du système d'acquisition. Cela a permis d'établir les conditions optimales de fonctionnement du détecteur et ainsi de vérifier un point capital pour une mesure précise de section efficace : une efficacité intrinsèque maximale et

Conclusions et perspectives

parfaitement connue, c'est-à-dire de 100%. Cette dernière a d'abord été mesurée à l'aide d'une source 3α avec le niveau de 100% espéré. Une vérification in situ avec un faisceau de protons directs de l'installation AIFIRA (CENBG) a permis de vérifier cette efficacité mais aussi de mettre en lumière un problème du système d'acquisition engendrant un temps mort trente fois supérieur à celui attendu. Ce dernier problème est en cours d'investigation. Le DGPR sera ensuite redessiné afin de gommer les points faibles identifiés liés à sa géométrie compacte. Une fois complètement fonctionnel, ce détecteur permettra de mesurer précisément un flux de neutrons de quelques centaines de keV à environ 2 MeV, autorisant des objectifs d'incertitudes expérimentales totales réduites à 3%.

Ainsi, deux nouvelles campagnes de mesures de la section efficace de fission du ²⁴²Pu sont programmées à l'aide de la technique des protons de recul : la première devrait avoir lieu en 2022 et utilisera un détecteur silicium. La seconde sera réalisée dès que le développement du DGPR sera achevé (objectif : 2023-2024).

En ce qui concerne les perspectives du travail théorique mené pendant cette thèse, la méthodologie utilisée pour identifier les états de classe II pourra être généralisée et utilisée pour tous les actinides fertiles, permettant l'insertion de paramètres physiques au lieu de phénoménologiques dans les évaluations, notamment pour les largeurs de fission réduites (γ_f). Il faut tout de même garder à l'esprit que la modélisation physique ne permet pas encore d'introduire toutes les caractéristiques des barrières de fission et des états de classe II correspondants et ce, même avec la pénétrabilité Lorentzienne (Pf). En effet, l'approximation Lorentzienne de barrières est construite à partir d'une hypothèse de forme de barrières schématiquement rectangulaire. Idéalement, une barrière (voire une somme de barrières) de forme plus représentative, numérique, résolue, avec les états de classe II résultants devrait être utilisée. Plus communément pour le continuum neutronique, des barrières paraboliques (modèle de Hill-Wheeler) avec des puits inversement paraboliques analytiquement solvables sont utilisées. L'analyse avant été faite avec la formule Lorentzienne dans le résonnant permet maintenant d'obtenir une largeur de fission réduite plus physique qu'auparavant. Nous soulignons qu'aucune indication explicite de la nature de la barrière de fission est faite hormis le fait qu'elle implique une première bosse et une deuxième bosse de spin-parité (J^{π}) identique à celui de l'état de classe II. Modéliser plus précisément les barrières de fission est la prochaine étape, et notamment la prise en compte de la nature collective ou individuelle de la barrière de fission à franchir.

Nous avons démontré dans l'analyse du RRR et du URR du ²⁴²Pu cible que de nouvelles mesures des sections efficaces partielles du ²⁴²Pu en dessous de 100 keV sont nécessaires à la progression de l'analyse théorique dans ces régions, comme nous le suggère la Figure 3 - 18 reprise ci-dessous. Une nouvelle mesure de transmission de haute précision pour la section efficace totale serait également appréciée.



Figure 3 - 18 : Comparaison des sections efficaces de fission, de capture et totale du ²⁴²Pu mesurées dans le RRR et dans l'URR. [101, 102, 106, 113, 114, 116, 117].

Enfin, le format ENDF de fichiers évalués est trop restreint pour prendre en compte ces nouveaux paramètres de classe II identifiés dans les évaluations. La nouvelle génération de « format » de fichiers pour le stockage des paramètres évalués nommé GND (pour Generalized Nuclear Data) propose un format beaucoup plus flexible, permettant de partager à tous des paramètres actuellement non conventionnels avec l'espoir que les codes de traitement tels que NJOY [246], PREPRO [247] ou encore GALILEE [248] puissent rapidement intégrer la capacité de les utiliser.

Conclusions et perspectives

Bibliographie

Mesures de sections efficaces du ²⁴²Pu

[101] D.W. Bergen, R.R. Fullwood, *Neutron-induced fission cross section of*²⁴²*Pu*, Nuclear physique A163 577-582, 1971

[102] G.F. Auchampaugh, J.A. Farrell, D.W. Bergen, Neutron-induced fission cross sections of ²⁴²Pu and ²⁴⁴Pu, Nuclear physique A171, 31-43, 1971

[103] H. Weigmann, J.A. Wartena, C. Bürkholz, *Neutron-induced fission cross section of* ²⁴²*Pu*, Nuclear physique A438, 333-353, 1985

[104] J.W. Meadows, *The fission cross sections of of* ²³⁰*Th*, ²³²*Th*, ²³³*U*, ²³⁴*U*, ²³⁶*U*, ²³⁸*U*, ²³⁷*Np*, ²³⁹*Pu* and ²⁴²*Pu relative to* ²³⁵*U at* 14.74 *MeV neutron energy*, Ann. Nucl Energy, Vol.15, No.8, pp.421-429, 1988

[105] P. Staples, K. Morley, *Neutron-induced fission cross section ratios for* ²³⁹*Pu*, ²⁴⁰*Pu*, ²⁴²*Pu*, and ²⁴⁴*Pu relative to* ²³⁵*U from 0.5 to 400 MeV*, Nuclear Science and engineering:129, 149-163 (1998)

[106] F. Tovesson et al., *Neutron induced fission of*^{240,242}*Pu from 1 eV to 200 MeV*, Physical Review C 79, 014613 (2009)

[107] P. Salvador-Castiñeira et al., *Neutron-induced fission cross sections of*²⁴²*Pu from 0,3 MeV to 3 MeV*, Physical Review C 92, 044606, 2015

[108] C. Matei et al., Absolute cross section measurements of neutron-induced fission of ²⁴²Pu from 1 to 2.5 MeV, Physical Review C 95, 024606, 2017

[109] P. Marini et al., ²⁴²Pu neutron-induced fission cross section measurement from 1 to 2 *Mev*, Physical Review C 96, 054604 (2017)

[110] T. Kögler et al., Fast-neutron-induced fission cross section of ²⁴²Pu measured at the neutron time-of-flight facility nELBE, Physical Review C 99, 024604, 2019

[111] T. Iwasaki et al. Measurement of fast neutron induced fission cross section ratios of Pu-240 and Pu-242 relative to U-235Measurement of fast neutron induced fission cross section ratios of Pu-240 and Pu-242 relative to U-235, Journal of Nuclear Science and Technology, pp 885-898 (1990)

[112] V.M. Kupriyanov et al., *Measurement of the* ²⁴⁰*Pu*/²³⁵*U and* ²⁴²*Pu*/²³⁵*U fission cross section ratios for 0.127-7.4 MeV neutrons*, Plenum Publishing Corporation (1979)

[113] T.E. Young, S.D. Reeder, *Total neutron cross section of*²⁴²*Pu*, Nuclear Science and Engineering, Volume 40, issue 3, 1970

[114] G.F. Auchampaugh, C.D. Bowman, M.S. Coops, S.C. Fultz, *Neutron total cross section of* ²⁴²*Pu*, Physical Review 146, 840, 1966

[115] M.S. Moore et al., C, 79KNOX, 703, 1979

[116] M.Q. Buckner et al., Absolute measurement of the ²⁴²Pu neutron-capture cross section, Physical Review C 93, 044613, 2016

[117] Hockenbury et al., C, 75WASH, 2, 584, 197503

Bibliographie

[118] G. Haout et al., *Neutron scattering Cross Sections for* ²³²*Th*, ²³³*U*, ²³⁵*U*, ²³⁸*U*, ²³⁹*Pu*, and ²⁴²*Pu between 0.6 and 3.4 MeV*, Nuclear Science and Engineering, 491-511, 2017

[119] D.M. Drake et al. R, LA-7855, 1979

Partie théorie

[201] F.H. Frohner, *Evaluation et analyse des données relatives aux résonances nucléaires*, Rapport JEFF18

[202] Henri Tellier, Réactions nucléaires induites par des neutrons, INSTN CEA Saclay, 1989

[203] A. Nizigama, *Approche novatrice de l'évaluation des réactions nucléaires par une modélisation multivoie unificatrice*, 2019 (PhD)

[204] P. Tamagno, *Challenging fission cross section simulation with long standing macromicroscopic model of nucleus potential energy surface*, 2016 (PhD)

[205] C. Morariu, Modelisation of the fission cross section, 2013 (PhD)

[206] G. Noguere, Mesure de la section efficace de capture neutronique et détermination des paramètres de résonances de I-127 et I-129, 2003 (PhD)

[207] E. Leal-Cidoncha, P. Tamagno, O. Bouland, communication interne CEA, 2018

[208] V. Huy, Np237, Pu242 and Am241 fission cross section assessment with integral trends coming from FCA absolute fission chamber measurements, CEA Cadarache, 2017 (PhD)

[209] H. Weigmann, O. Bouland, *Experimental and evaluated subthreshold fission*, Conference WONDER, 2006

[210] A. Gilbert, A.G.W. Cameron, *A composite nuclear-level density formula with shell corrections*, Canadian Journal of Physics, Volume 43 (1965)

[211] G. Noguère, *Contributions to the study of the unresolved resonance range of neutroninduced reactions*, 2014 (HDR)

[212] A. Koning, S. Hilaire, S. Goriely, TALYS-1.95 A nuclear reaction program, User Manual, 2019

[213] P. Tamagno, A CONRAD Manual, CEA Cadarache, 2020

[214] J. Raynal, Notes on ECIS94, CEA Saclay Report No. CEA-N-2772, 1994.

[215] C.W. Reich, E. Moore, Physical Review 49 519, 1936

[216] W.Hauser, H.Feshbach, the inelastic scattering of neutrons, Physical Review 87 366, 1952

[217] A. Rizzo, Amélioration de la precision du formulaire DARWIN2.3 pour le calcul du bilan matière en evolution, 2018 (PhD)

[218] N. Bohr, Neutron capture and nuclear constitution, Nature 137 344, 1936.

[219] A. Oprea et al., Differential cross section evaluation in (n,α) reaction with fast neutrons using Hauser – Feshbach formalism, Conference: ISINN-19 - Volume: 19, 2011

[220] G.F. Auchampaugh, C.D. Bowman, *Parameters of the subthreshold fission structure* in ²⁴²Pu, Physical Review C, Volume 7 number 5, 1972

[221] O. Bouland, J.E. Lynn et P. Talou, *R-matrix analysis and prediction of low-energy neutron induced fission cross sections for a range of Pu isotopes*, Physical Review C 88, 054612, 2013

[222] S. Bjornholm et J.E. Lynn, *The double-humped fission barrier*, Reviews of modern physics, Volume 52, Issue 4, 1980

[223] R. Capote et al., *RIPL – Reference Input Parameter Library for Calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations*, Nuclear Data Sheets, Volume 110, Issue 12, 2009

[224] M. Larson, Update user's guide for SAMMY: multilevel R-Matrix fits to neutron data using Bayes' equations, 2008

[225] V. M. Strutinsky, *Shell effects in cuclear masses and deformation energies*, Nuclear Physics A95, 420-442, 1967

[226] P. Möller et al., Heavy-element fission barriers, Physical Review C 79, 064304, 2009

[227] A. Bohr and B. R. Mottelson, Nuclear Structure, Vol. 1 (Benjamin, New York), 1969

[228] J.E. Lynn, Modern Fission Theory for Criticality, LA-14098, 2004

[229] N. Bohr, Reviews of Modern Physics, 1938

[230] O. Sérot, Cours de physique nucléaire – Génie Atomique 2017-2018

[231] D. L. Hill and J. A. Wheeler, *Nuclear Constitution and the Interpretation of Fission Phenomena*, Physical. Review 89, 1102, 1953

[234] J. Tommasi, Flux et densité, spectres cellule 172 groupes

[233] A.J. Koning , et al., Nuclear data for sustainable nuclear energy, JRC report - EUR 23977, 2009

[234] ENSDF : <u>https://www.nndc.bnl.gov/ensdf/</u>

[235] O. Bouland, *Reexamining fission-probability data using R-matrix Monte Carlo simulations: Beyond the surrogate-reaction method*, Physical Review C 100, 064611, 2019

[236] L.D. Landau, The theory of a Fermi Liquid, Sov. Phys. JETP 3, 6, 920, 1957

[237] J.E. Lynn, P. Talou et O. Bouland, *Reexamining the role of the* $(n, \gamma f)$ process in the low-energy fission of ²³⁵U and ²³⁹Pu, Physical Review C 97, 064601, 2018

[238] S. Goriely, S. Hilaire et A.J. Koening, Improved microscopic nuclear level densities within the Hartree-Fock-Bogoliubov plus combinatorial method, Physical Review C 78, 064307, 2008

[239] C. de Saint Jean, P. Tamagno, P. Archier et G. Noguère, *CONRAD – a code for nuclear data modeling and evaluation*, EPJ Nuclear Sci. Technol. 7, 10, 2021

[240] Evaluation JEFF3.3 : <u>https://www.oecd-nea.org/dbdata/jeff/jeff33/index.html</u>

[241] M.W. Paris et G.M. Hale, *Resonance model for the three-body states of the A=6 reactions*, EPJ Web Conf., Volume 113, 2016

[242] O. Bouland, Amélioration du calcul de l'autoprotection des résonances résolues par un traitement quasi-exact du ralentissement des neutrons, 1994 (PhD)

[243] A. Bohr and B. R. Mottelson, *Rotational States in Even-Even Nuclei*, Phys. Rev. 90, 717, 1953

[244] M. Salvatores et R. Jacqmin, International Evaluation Co-operation - volume 26 Uncertainty and target accuracy assessment for innovative systems using recent covariance data evaluations, NEA/WPEC-26-OCDE, ISBN 987-92-64-99053-1, 2008 [245] G. Noguère, E. Dupont, J. Tommasi et D. Bernard, *Besoin en données nucléaires pour les actinides par comparaison avec des expériences de combustibles et d'échantillons irradiés*, Note Technique, CEA/SPRC/LEPh, 2005

[246] D.W. Muir, R.M. Boicourt et A.C. Kahler, *The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 2012*, LA-UR-12-27079 Rev, 2021

[247] E. Cullen, PREPRO 2019 2019 ENDF/B Pre-processing Codes (ENDF/B-VIII Verified), IAEA-NDS-229, 2019

[248] M. Coste, GALILÉE-1: a validation and processing system for ENDF-6 and GND evaluations, EPJ Conferences, 111:06005, 2016

[249] A. M. Lane and R. G. Thomas, *R-Matrix Theory of Nuclear Reactions*, Reviews of Modern Physics, 30, 257–353, 1958.

[250] Salvatores, NEA report No. 6090, 2006

Partie expérimentale

[301] P. Marini et al., *Development of a Gaseous Proton-Recoil Detector*, WONDER-2018, 2018

[302] Marini et al., Systematic investigation of background sources in neutron flux measurements with proton-recoil silicon detector, Nuclear Instruments and Methods in physics A 841 56-64, 2016

[303] F. Cambou, H. Rème, *Etude des cibles minces chargées de tritium utilisées dans les accélérateurs produisant des neutrons rapides par la réaction D-T*, Le journal de physique (1961)

[304] Fatiha Ghaleb, *Calcul de la courbe de Paschen et de la tension de claquage pour les décharges à gaz rare*, 2013 (PhD)

[305] Fares Sadaoui, Comparaison des caractéristiques électriques et optiques des décharges glissantes sur différents types d'isolateurs dans le CO2, le SF6, le N2 et leurs mélanges à différentes pressions, 2014 (PhD)

[306] P. Barberet et al., *AIFIRA : a light ion beam facility for ion beam analysis and irradiation*, The European Physical Journal Plus, 2020

[307] R. Beyer et al., *Proton-recoil detectors for time-of-flight measurements of neutrons with kinetic energies from some tens of keV to a few MeV*, Nuclear Instruments and Methods in physics A 575, 449, 2007

[308] M.W. Wu et al., *Absolute neutron fluence measurements between 0.5 and 3 MeV and their intercomparisons*, Nuclear Instruments and Methods in physics A 422, 79, 1999

[309] B. Daub et al., *Response of BC-418 plastic scintillator to low energy protons*, Nuclear Instruments and Methods in physics A 701, 171, 2013

[310] M. Kovash et al., ANIMMA 2011, PP 1-3, 2011

[311] D. Schmidt et al., *Characterization of liquid scintillation detectors*, Nuclear Instruments and Methods in physics A 476, 186, 2002

[312] R. Nolte, Detection of neutrons, Ecole Joliot Curie 2014, 2014

[313] T.H.R. Skyrme et al., A proportional counter for neutron flux measurements in the energy range 0.1 to 1 MeV, Review of Scientific Instruments 23, 204, 1952

[314] E.F. Bennett, *Proportional counter proton-recoil spectrometer with gamma discrimination*, Review of Scientific Instruments 33, 1153, 1962

[315] E.F. Bennett, T.J. Yule, A neutron spectrum map of the JANUS irradiation facility using proton-recoil proportional counters, Radiation Research Society 50, 219, 1972

[316] R. Babut, V Gressier, (*n*,*p*) reactions contribution in spherical proton recoil proportional counter responses, Journal of Instrumentation 2, P01005, 2007

[317] J.C. Hopkins, G. Breit, The ${}^{1}H(n,n){}^{1}H$ scattering observables required for highprecision fast-neutron measurements, Nuclear Data Tables A 9 137, 1971

[318] G.M. Hale et al., Proc. 17th Int. IUPAP, conf. on few-body problems in physics, Elsevier, Amsterdam pp S120-S122, 2004

Bibliographie

[319] S.J.Bame Jr et al., *Absolute determination of monoenergetic neutron flux in the energy range 1 to 30 MeV*, Review of Scientific Instruments 28, 997, 1957

[320] T. Ryves, Nuclear Instruments and Methods in physics 135, 455, 1976

[321] R. V. Latham, *High Voltage Vacuum Insulation: Basic concepts and technological practice*, Academic Press, London, 1995

[322] P. Marini et al., Development of a gaseous proton-recoil telescope for neutron flux measurements between 0.2 and 2 MeV neutron energy, Radiation Measurements 124, 9-12, 2019

[323] D. Bazin, O. Tarasov, M. Lewitowicz et O. Sorlin, *The program LISE: a simulation of fragment separators*, Nuclear Instruments and Methods in physics research, A 482 307-327, 2002

Bibliographie

Annexes

Annexe 2.1

Détails pratiques pour une utilisation optimisée du code CONRAD

Nous donnons maintenant les détails pratiques du code CONRAD. Le lecteur qui le souhaite peut se rentre directement au chapitre 2.2. Pour fonctionner, ce code a besoin de trois fichiers d'entrée ayant les extensions .cd, .th et .exp. Voyons d'abord chaque fichier avec les options possibles puis analysons les fichiers de sortie.

Fichier d'entrée crd.cd

Le premier fichier d'entrée possède l'extension .cd. Il est généralement nommé « crd.cd ». C'est le fichier appelé lors de l'exécution du programme. Ce fichier comporte au minimum trois lignes :

- « Calculation type » : cette ligne donne le type de calcul attendu par l'utilisateur. Le type le plus simple est « THEORY ». L'utilisateur peut également choisir « ANALYSIS », « BMC_ANALYSIS » pour les calculs Monte-Carlo, ou encore « AN_MARGINALIZATION » pour un calcul de propagation des incertitudes. Au cours de ce travail, seuls les types THEORY et ANALYSIS ont été utilisés.
- « Experiment » : contient le nom du fichier .exp qui sera appelé durant le calcul
- « Theory » : fournit le nom du fichier .th qui sera appelé durant le calcul

D'autres options peuvent être ajoutées dans ce fichier. Enumérons celles utilisées durant cette phase de travail :

- NumberOfProcess : donne le nombre de processus utilisés à des fins de parallélisation des calculs et d'accélération.
- GridPrecision : critère de précision de grille en énergie
- epsilon: critère de convergence entre deux points
- nbIterations : donne le nombre maximum d'itérations réalisées par le code pour obtenir la précision imposée par epsilon

Fichier d'entrée .th

Les fichiers .th peuvent être automatiquement générés par CONRAD à l'aide des fichiers ENDF. Leur nom est donc par défaut OutputENDF.th. Ces fichiers comportent de nombreuses informations. Les principales sont :

- NuclearModelType : permet de choisir si le calcul est réalisé avec l'approximation Multi-Level ou Reich-Moore par exemple
- Projectile : la nature du projectile (ici neutron)
- Reactions : les réactions nucléaires pouvant être observées par l'utilisateur (exemple : ELASTIC_SCATTERING, RADIATIVE_CAPTURE, FISSION)
- Target : le noyau cible
- Rmatrix : plusieurs lignes donnant les informations nécessaires à l'utilisation du formalisme de la matrice R comme par exemple la valeur du rayon de voie a_c.
- Les informations concernant les résonances que nous allons détailler.

A partir du fichier ENDF, cinq lignes par résonance sont générées. Chaque résonance est identifiée par son numéro. La première ligne est l'énergie de la résonance. Les lignes suivantes sont les largeurs de fission, gamma et de neutron. La dernière ligne donne le J^{π} de la résonance. Les quatre premières lignes contiennent toutes une valeur avec son incertitude et la possibilité d'ajuster ou non cette valeur si l'utilisateur a choisi par exemple le mode ANALYSIS (moteur d'ajustement Bayésien [239]).

Des lignes concernant les états de classe II peuvent être ajoutées par l'utilisateur. Il doit alors préciser le nombre d'états et, pour chacun d'entre eux, leur largeur, énergie, amplitude et J^{π} (voir équation (1.15)). Une fois de plus, en dehors des J^{π} , les valeurs sont suivies de leur incertitude et si elles doivent être ajustées ou rester constantes.

Fichier d'entrée .exp

Le fichier .exp permet de donner les informations expérimentales manquantes dans les deux autres fichiers. Dans le cas d'une analyse théorique, ce fichier permet de préciser l'énergie minimale et maximale pour l'étude, la fonction de CONRAD pour calculer la section efficace et ses dépendances (MACRO_CROSS_SECTION, MICRO_CROSS_SECTION, FREE_GAS), les observables, notamment en sortie la section efficace convoluée des température et résolution énergétique de l'expérience, etc. Dans le cas d'une reproduction de données expérimentales, ce fichier contient donc la fonction de résolution de l'expérience ainsi que les données expérimentales d'entrée : énergie, section efficace et incertitude absolue pour chaque point.

Maintenant que nous avons présenté succinctement les trois fichiers d'entrées, voyons les fichiers que CONRAD fournit en sortie.

Fichiers de sortie

Le premier fichier de sortie automatiquement généré s'appelle « conradExp0.asc ». Ce fichier comporte sept colonnes. La première colonne est la grille d'énergie générée automatiquement avec l'option GridPrecision ou fournie par l'utilisateur dans le fichier .exp (qui peut être la grille énergétique de la mesure). La seconde colonne est celle des données expérimentales d'entrée, avec en troisième colonnes les incertitudes expérimentales absolues fournies. La quatrième colonne correspond à la théorie calculée à partir des paramètres *a priori* avec ses incertitudes absolues en cinquième colonne. Enfin, la sixième colonne correspond aux résultats calculés *a posteriori*, c'est-à-dire aux résultats ajustés du calcul de CONRAD après convergence, avec en septième colonne les incertitudes absolues finales associées.

Lorsque certains paramètres dans le fichier .th doivent être ajustés (option **FITTED**), quatre autres fichiers sont générés : fittedParameters.initial, fittedParameters.postFit, matrixFittedParam.initial et matrixFittedParam.postFit. Le premier fichier répertorie les paramètres « a priori » devant être ajustés avant que le calcul ne soit réalisé (nom, valeur et incertitude absolue). Le second fichier répertorie ces mêmes paramètres « a posteriori » une fois ajustés par le calcul. Les deux autres fichiers donnent la matrice d'ajustement des mêmes paramètres avant ajustement et une fois ajustés.

Paramètres de classe I initiaux (ENDF) pour le calcul CONRAD

	Energie E_{λ} (eV)		Largeur fis	r fission $\Gamma_{\lambda f}$ (eV) Largeur gamma $\Gamma_{\lambda \gamma}$ (eV) Largeur neutron $\Gamma_{\lambda n}$ (ε		tron $\Gamma_{\lambda n}$ (eV)	π		
	Valeur	Incertitude abs	Valeur	Incertitude abs	Valeur	Incertitude abs	Valeur	Incertitude abs	J
1	-2,8300E+00	-1,4150E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,2000E+01	6,6000E-01	3,1000E+00	9,3000E-02	" 1/2+"
2	-1,1800E+00	-5,9000E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,2000E+01	6,6000E-01	1,7000E+00	5,1000E-02	" 1/2+"
3	2,6700E+00	1,3350E-02	2,0000E-03	6,0000E-05	2,5000E+01	7,5000E-01	2,0000E+00	6,0000E-02	" 1/2+"
4	1,4600E+01	7,3000E-02	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	6,1000E-02	1,8300E-03	" 1/2+"
5	2,2570E+01	1,1285E-01	1,0000E-02	3,0000E-04	2,0000E+01	6,0000E-01	2,8600E-01	8,5800E-03	" 1/2+"
6	4,0950E+01	2,0475E-01	1,0000E-02	3,0000E-04	2,9000E+01	8,7000E-01	4,5100E-01	1,3530E-02	" 1/2+"
7	5,3460E+01	2,6730E-01	1,9000E-03	5,7000E-05	2,3900E+01	7,1700E-01	5,2000E+01	1,5600E+00	" 1/2+"
8	6,7600E+01	3,3800E-01	4,4500E-02	1,3350E-03	2,2500E+01	6,7500E-01	4,5780E+00	1,3734E-01	" 1/2+"
9	8,8450E+01	4,4225E-01	3,8200E-02	1,1460E-03	2,4200E+01	7,2600E-01	6,4000E-01	1,9200E-02	" 1/2+"
10	1,0732E+02	5,3660E-01	4,9400E-02	1,4820E-03	2,1500E+01	6,4500E-01	1,6990E+01	5,0970E-01	" 1/2+"
11	1,3140E+02	6,5700E-01	6,3500E-02	1,9050E-03	3,0800E+01	9,2400E-01	6,1700E+00	1,8510E-01	" 1/2+"
12	1,4143E+02	7,0715E-01	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	1,1900E-01	3,5700E-03	" 1/2+"
13	1,4970E+02	7,4850E-01	5,5400E-02	1,6620E-03	2,5000E+01	7,5000E-01	1,4240E+01	4,2720E-01	" 1/2+"
14	1,6350E+02	8,1750E-01	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	5,3700E-01	1,6110E-02	" 1/2+"
15	2,0480E+02	1,0240E+00	5,4800E-02	1,6440E-03	2,0800E+01	6,2400E-01	5,2730E+01	1,5819E+00	" 1/2+"
16	2,1000E+02	1,0500E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	4,2400E-01	1,2720E-02	" 1/2+"
17	2,1530E+02	1,0765E+00	1,8400E-01	5,5200E-03	3,6000E+01	1,0800E+00	5,2000E+00	1,5600E-01	" 1/2+"
18	2,1930E+02	1,0965E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	2,9000E-01	8,7000E-03	" 1/2+"
19	2.3270E+02	1.1635E+00	1.3100E-01	3.9300E-03	2.8000E+01	8.4000E-01	4.9400E+00	1.4820E-01	" 1/2+"
20	2.6450E+02	1.3225E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	3.8100E-01	1.1430E-02	, " 1/2+"
21	2.7195E+02	1.3598E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	1.6500E-01	4.9500E-03	, " 1/2+"
22	2.7380E+02	1.3690E+00	1.0200E-01	3.0600E-03	2.3800E+01	7.1400E-01	1.5430E+01	4.6290E-01	" 1/2+"
23	2,7475F+02	1.3738F+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7,2600F-01	1,7000E-01	5,1000E-03	" 1/2+"
24	2,8105E+02	1,4053E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	1.3000E-01	3,9000E-03	" 1/2+"
25	2.9870E+02	1.4935E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.6000E+01	7.8000E-01	8.3100E+00	2.4930E-01	" 1/2+"
26	3.0360E+02	1.5180E+00	6.7000E-02	2.0100E-03	2.2500E+01	6.7500E-01	1.7420E+01	5.2260E-01	, " 1/2+"
27	3.1990E+02	1.5995E+00	1.7000E-02	5.1000E-04	2.3500E+01	7.0500E-01	2.2900E+02	6.8700E+00	" 1/2+"
28	3.2760E+02	1.6380E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	5.0000E-01	1.5000E-02	" 1/2+"
29	3.3240E+02	1.6620E+00	1.8000E-02	5.4000E-04	3.0500E+01	9.1500E-01	7.1000E+01	2.1300E+00	, " 1/2+"
30	3.7430E+02	1.8715E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	6.3800E+00	1.9140E-01	, " 1/2+"
31	3.7963E+02	1.8982E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	2.7000E-01	8.1000E-03	, " 1/2+"
32	3.8220E+02	1.9110E+00	8.4700E-02	2.5410E-03	2.3260E+01	6.9780E-01	4.4680E+01	1.3404E+00	, " 1/2+"
33	3.9610E+02	1.9805E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	2.5000E+00	7.5000E-02	, " 1/2+"
34	3.9990E+02	1.9995E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	1.6200E+00	4.8600E-02	" 1/2+"
35	4.1060E+02	2.0530E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	7.3300E+00	2.1990E-01	, " 1/2+"
36	4.2410E+02	2.1205E+00	1.8000E-01	5.4000E-03	2.4200E+01	7.2600E-01	4.1000E+00	1.2300E-01	, " 1/2+"
37	4.2515E+02	2.1258E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	2.8000E-01	8.4000E-03	, " 1/2+"
38	4.6840E+02	2.3420E+00	3.0000E+01	9.0000E-01	2.4200E+01	7.2600E-01	3.0000E-02	9.0000E-04	, " 1/2+"
39	4.7370E+02	2.3685E+00	3.2000E-01	9.6000E-03	2.4200E+01	7.2600E-01	9.6000E-01	2.8800E-02	, " 1/2+"
40	4.8250E+02	2.4125E+00	4.2000E-01	1.2600E-02	2.3400E+01	7.0200E-01	2.0900E+01	6.2700E-01	, " 1/2+"
41	4.9475E+02	2.4738E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	2.7000E-01	8.1000E-03	, " 1/2+"
42	5.0390E+02	2.5195E+00	1.8600E-01	5.5800E-03	2.4200E+01	7.2600E-01	1.5000E+02	4.5000E+00	, " 1/2+"
43	5,3660E+02	2,6830E+00	4,3000E-02	1,2900E-03	2,1000E+01	6,3000E-01	1,0000E+02	3,0000E+00	" 1/2+"
44	5,4860E+02	2,7430E+00	7,7000E-02	2,3100E-03	2,5000E+01	7,5000E-01	7,4000E+01	2,2200E+00	" 1/2+"
45	5.7610E+02	2.8805E+00	1.0000E-02	3.0000E-04	2.4200E+01	7.2600E-01	3.0000E+01	9.0000E-01	,
46	5.9500E+02	2.9750E+00	2.1100E-02	6.3300E-04	2.1000E+01	6.3000E-01	3.2040E+01	9.6120E-01	,
47	5.9980E+02	2.9990E+00	1.0200E-01	3.0600E-03	2.4200E+01	7.2600E-01	9.1100E+00	2.7330E-01	" 1/2+"
48	6,1080E+02	3,0540E+00	6,4000E-02	1,9200E-03	2,4200E+01	7,2600E-01	1,1950E+01	3,5850E-01	,_ " 1/2+"
49	6,3850E+02	3,1925E+00	4,0000E-02	1,2000E-03	2,4200E+01	7,2600E-01	4,4100E+00	1,3230E-01	'' 1/2+"
50	6,6500E+02	3,3250E+00	6,6000E-02	1,9800E-03	2,4200E+01	7,2600E-01	2,7000E+00	8,1000E-02	" 1/2+"

51	6,6930E+02	3,3465E+00	5,1000E-02	1,5300E-03	2,4200E+01	7,2600E-01	1,3000E+01	3,9000E-01	" 1/2+"
52	6,9320E+02	3,4660E+00	2,4000E-01	7,2000E-03	2,2000E+01	6,6000E-01	3,5000E+01	1,0500E+00	" 1/2+"
53	7,1160E+02	3,5580E+00	1,6300E-01	4,8900E-03	1,9500E+01	5,8500E-01	1,2157E+02	3,6471E+00	" 1/2+"
54	7,2760E+02	3,6380E+00	5,0000E-02	1,5000E-03	2,4200E+01	7,2600E-01	3,1700E+00	9,5100E-02	" 1/2+"
55	7,3670E+02	3,6835E+00	4,5000E-01	1,3500E-02	2,4200E+01	7,2600E-01	1,0500E+02	3,1500E+00	" 1/2+"
56	7,5510E+02	3,7755E+00	1,5800E+00	4,7400E-02	2,1500E+01	6,4500E-01	1,3200E+02	3,9600E+00	" 1/2+"
57	7,6120E+02	3,8060E+00	4,4000E+02	1,3200E+01	2,4200E+01	7,2600E-01	5,6000E+00	1,6800E-01	" 1/2+"
58	7,8850E+02	3,9425E+00	1,6300E+00	4,8900E-02	2,4200E+01	7,2600E-01	6,4000E+01	1,9200E+00	" 1/2+"
59	7,9400E+02	3,9700E+00	4,3000E-02	1,2900E-03	2,4200E+01	7,2600E-01	2,0660E+02	6,1980E+00	" 1/2+"
60	8,2450E+02	4,1225E+00	2,0700E-01	6,2100E-03	2,4200E+01	7,2600E-01	4,6500E+00	1,3950E-01	" 1/2+"
61	8,3770E+02	4,1885E+00	4,1000E-02	1,2300E-03	2,0000E+01	6,0000E-01	3,7450E+01	1,1235E+00	" 1/2+"
62	8,5660E+02	4,2830E+00	9,3000E-02	2,7900E-03	2,2000E+01	6,6000E-01	3,5000E+01	1,0500E+00	" 1/2+"
63	8,6560E+02	4,3280E+00	4,3000E-02	1,2900E-03	2,4200E+01	7,2600E-01	1,0310E+01	3,0930E-01	" 1/2+"
64	8,7810E+02	4,3905E+00	2,7000E-02	8,1000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	5,8820E+01	1,7646E+00	" 1/2+"
65	8,8650E+02	4,4325E+00	1,5500E-02	4,6500E-04	2,9000E+01	8,7000E-01	2,2740E+01	6,8220E-01	" 1/2+"
66	9,2320E+02	4,6160E+00	2,9000E-02	8,7000E-04	1,8000E+01	5,4000E-01	5,9450E+01	1,7835E+00	" 1/2+"
67	9,3540E+02	4,6770E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	1,1000E+01	3,3000E-01	" 1/2+"
68	9,3960E+02	4,6980E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	1,0000E+01	3,0000E-01	" 1/2+"
69	9,4910E+02	4,7455E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,6000E+01	7,8000E-01	1,4000E+01	4,2000E-01	" 1/2+"
70	9,7790E+02	4,8895E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	1,4500E+01	4,3500E-01	" 1/2+"
71	1,0040E+03	5,0200E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	4,3000E+01	1,2900E+00	" 1/2+"
72	1,0300E+03	5,1500E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	4,6000E+01	1,3800E+00	" 1/2+"
73	1,0450E+03	5,2250E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	1,1800E+02	3,5400E+00	" 1/2+"
74	1,0625E+03	5,3125E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	3,3000E+01	9,9000E-01	" 1/2+"
75	1,0875E+03	5,4375E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	2,0000E+02	6,0000E+00	" 1/2+"
76	1,1170E+03	5,5850E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	5,0000E+00	1,5000E-01	" 1/2+"
77	1,1295E+03	5,6475E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	1,0000E+01	3,0000E-01	" 1/2+"
78	1,1480E+03	5,7400E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	3,0000E+02	9,0000E+00	" 1/2+"
79	1,1825E+03	5,9125E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	1,3000E+01	3,9000E-01	" 1/2+"
80	1,1970E+03	5,9850E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	9,5000E+01	2,8500E+00	" 1/2+"
81	1,2070E+03	6,0350E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	4,0000E+01	1,2000E+00	" 1/2+"
82	1,2480E+03	6,2400E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	9,0000E+00	2,7000E-01	" 1/2+"
83	1,2670E+03	6,3350E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	2,7000E+01	8,1000E-01	" 1/2+"
84	1,2860E+03	6,4300E+00	1,0000E-02	3,0000E-04	2,4200E+01	7,2600E-01	5,9000E+01	1,7700E+00	" 1/2+"
85	1,3050E+03	6,5250E+00	1,0000E-01	3,0000E-03	2,3905E+01	7,1714E-01	3,5000E-01	1,0500E-02	" 1/2+"
86	1,3780E+03	6,8900E+00	1,0000E-01	3,0000E-03	2,3905E+01	7,1714E-01	3,8000E-01	1,1400E-02	" 1/2+"
87	1,4560E+03	7,2800E+00	1,0000E-01	3,0000E-03	2,3905E+01	7,1714E-01	2,5000E-01	7,5000E-03	" 1/2+"

Paramètres de classe I obtenus après conversion en Reich-Moore

		Largeur de fission et			Largeur de fission et
N° résonance	Energie (eV)	signe de l'amplitude	N° résonance	Energie (eV)	signe de l'amplitude
		(eV)			(eV)
1	-2,83000E+01	-3,65338E-04	45	5,76102E+02	1,01165E-02
2	-1,18000E+01	1,16450E-02	46	5,95000E+02	-2,11000E-02
3	2,67053E+00	-1,97274E-03	47	5,99788E+02	-9,93318E-02
4	1,45995E+01	1,03972E-02	48	6,10779E+02	-6,12308E-02
5	2,25701E+01	-9,88499E-03	49	6,38500E+02	4,00000E-02
6	4,09477E+01	1,02773E-02	50	6,64963E+02	-6,25121E-02
7	5,34581E+01	-1,85943E-03	51	6,69317E+02	5,42653E-02
8	6,76004E+01	4,44219E-02	52	6,93185E+02	-2,24211E-01
9	8,84500E+01	-3,81962E-02	53	7,11602E+02	1,68423E-01
10	1,07319E+02	4,81485E-02	54	7,27612E+02	-4,74301E-02
11	1,31403E+02	-6,23078E-02	55	7,36684E+02	-4,09720E-01
12	1,41432E+02	-9,84571E-03	56	7,55017E+02	-1,53819E+00
13	1,49698E+02	-5,63076E-02	57	7,61218E+02	3,99319E+02
14	1,63523E+02	9,68595E-03	58	7,88523E+02	-1,47141E+00
15	2,04800E+02	5,47755E-02	59	7,94000E+02	-4,30000E-02
16	2,10046E+02	-1,15235E-02	60	8,24505E+02	-2,02832E-01
17	2,15305E+02	-2,01746E-01	61	8,37705E+02	-4,01397E-02
18	2,19246E+02	-9,72103E-03	62	8,56602E+02	-8,93004E-02
19	2,32700E+02	1,31000E-01	63	8,65600E+02	4,52467E-02
20	2,64520E+02	-1,00777E-02	64	8,78100E+02	-2,63465E-02
21	2,72001E+02	-9,92424E-03	65	8,86508E+02	1,63095E-02
22	2,73800E+02	-1,02942E-01	66	9,23200E+02	-2,78679E-02
23	2,74585E+02	-1,56146E-02	67	9,35406E+02	1,04957E-02
24	2,80982E+02	-1,18823E-02	68	9,39595E+02	-9,25281E-03
25	2,98714E+02	1,03583E-02	69	9,49102E+02	1,03816E-02
26	3,03597E+02	6,65994E-02	70	9,77900E+02	-9,60822E-03
27	3,19895E+02	-1,81149E-02	71	1,00400E+03	1,02646E-02
28	3,27673E+02	9,82829E-03	72	1,03000E+03	-9,87506E-03
29	3,32408E+02	1,77621E-02	73	1,04500E+03	1,00671E-02
30	3,74302E+02	-9,11479E-03	74	1,06250E+03	-9,88019E-03
31	3,79720E+02	-8,65992E-03	75	1,08750E+03	1,00996E-02
32	3,82195E+02	-8,63154E-02	76	1,11700E+03	-9,31968E-03
33	3,96135E+02	9,78337E-03	77	1,12952E+03	1,02651E-02
34	3,99909E+02	1,07662E-02	78	1,14802E+03	1,02331E-02
35	4,10601E+02	-9,82911E-03	79	1,15513E+03	8,45230E-03
36	4,24094E+02	-1,83131E-01	80	1,23593E+03	-7,79389E-03
37	4,24844E+02	-1,79995E-02	81	1,20907E+03	-9,32590E-03
38	4,68404E+02	3,19325E+01	82	1,25000E+03	-9,67535E-03
39	4,73676E+02	3,08552E-01	83	1,26861E+03	7,77702E-03
40	4,82496E+02	-4,51954E-01	84	1,29002E+03	-4,84532E-03
41	4,94929E+02	7,22174E-03	85	1,31578E+03	5,95466E-02
42	5,03902E+02	1,83271E-01	86	1,39522E+03	4,74135E-02
43	5,36626E+02	-4,45496E-02	87	1,46388E+03	7,54440E-02
44	5,48588E+02	-7,77556E-02			

Paramètres de classe I obtenus après ajout des Lorentziennes pour la prise en compte explicite des états de classe II

		Largeur de fission et			Largeur de fission et
N° résonance	Energie (eV)	signe de l'amplitude	N° résonance	Energie (eV)	signe de l'amplitude
		(eV)			(eV)
1	-3,13865E+01	2,08058E-01	40	4,82494E+02	3,26599E-03
2	-1,27411E+01	1,30116E-02	41	4,94607E+02	2,42279E-04
3	2,67059E+00	-1,69740E-02	42	5,03903E+02	-9,87133E-03
4	1,45987E+01	8,42710E-02	43	5,36632E+02	7,11291E-03
5	2,25709E+01	-7,90908E-02	44	5,48592E+02	1,87844E-02
6	4,09472E+01	7,38412E-02	45	5,76087E+02	4,68877E-03
7	5,34578E+01	-1,28830E-02	46	5,94964E+02	1,23908E-02
8	6,76001E+01	2,83131E-01	47	5,99817E+02	-7,03947E-02
9	8,84564E+01	-2,13140E-01	48	6,10794E+02	5,27954E-02
10	1,07319E+02	-2,45744E-01	49	6,38513E+02	-5,01180E-02
11	1,31401E+02	2,88155E-01	50	6,64995E+02	-1,11829E-01
12	1,41465E+02	-4,24767E-02	51	6,69296E+02	8,45947E-02
13	1,49698E+02	-2,16379E-01	52	6,93207E+02	-5,15406E-01
14	1,63529E+02	3,38497E-02	53	7,11580E+02	-4,14506E-01
15	2,04804E+02	1,47476E-01	54	7,27682E+02	1,34694E-01
16	2,10037E+02	-3,22992E-02	55	7,36711E+02	1,04871E+00
17	2,15286E+02	4,28306E-01	56	7,55050E+02	1,19297E+00
18	2,19393E+02	-1,65763E-02	57	7,61228E+02	-3,75027E+00
19	2,32706E+02	-2,74223E-01	58	7,88497E+02	-5,67509E+00
20	2,64529E+02	1,75131E-02	59	7,94218E+02	1,13915E-01
21	2,72064E+02	1,79230E-02	60	8,24511E+02	1,03530E+00
22	2,73799E+02	1,59048E-01	61	8,37690E+02	2,21111E-01
23	2,75033E+02	-1,65499E-03	62	8,56608E+02	-5,86003E-01
24	2,81122E+02	-1,28018E-02	63	8,65572E+02	-2,79184E-01
25	2,98691E+02	-1,16571E-02	64	8,78110E+02	1,78195E-01
26	3,03593E+02	7,10441E-02	65	8,86506E+02	-1,17008E-01
27	3,19902E+02	-1,31096E-02	66	9,23200E+02	2,35350E-01
28	3,27665E+02	7,70866E-03	67	9,35409E+02	-9,30505E-02
29	3,32405E+02	1,37122E-02	68	9,39598E+02	9,15144E-02
30	3,74344E+02	-3,10944E-03	69	9,49109E+02	-9,84559E-02
31	3,79764E+02	-3,21278E-03	70	9,77895E+02	1,05060E-01
32	3,82198E+02	-2,35615E-02	71	1,00400E+03	-1,20112E-01
33	3,96124E+02	2,12352E-03	72	1,02999E+03	1,22614E-01
34	3,99898E+02	2,00852E-03	73	1,04501E+03	-1,38528E-01
35	4,10605E+02	-1,33781E-03	74	1,06250E+03	1,38809E-01
36	4,24101E+02	-8,79589E-03	75	1,08750E+03	-1,61177E-01
37	4,24118E+02	-1,41710E-02	76	1,11702E+03	1,67158E-01
38	4,68433E+02	3,01472E-03	77	1,12947E+03	-1,76423E-01
39	4,73682E+02	-4,59919E-04	78	1,14803E+03	1,71671E-01

Modélisation de la section efficace obtenue dans l'URR après ajustement des résonances de classe II identifiées dans le paragraphe 2.2 (courbe verte). Référence du travail : données de Auchampaugh et al. [102] (croix noires) avec incertitudes



Courbes de comparaison des séquences QPVRLD (en rouge) et expérimentales (ce travail, en bleu)



Annexes



Annexes



Annexes



Annexes



Annexes





Courbes de comparaison AVXSF avec la loi de température constante au-dessus de $S_{\rm n}$ pour T=0.43133 MeV



Annexes



Annexes



Annexes



Annexes



Annexes





Courbes de comparaison AVXSF avec la loi de température constante au-dessus de S_n pour T=0.369 MeV ajustable par interpolation linéaire en fonction de l'énergie d'excitation



Annexes



Annexes



Annexes



Annexes



Annexes





Courbes de comparaison AVXSF avec la loi de température constante au-dessus de $S_{\rm n}$ pour T=0.37291 MeV



Annexes



Annexes



Annexes



Annexes



Annexes





Etats de transition de la modélisation proposée par G. Noguère

Barrière 1						
n° état	Energie (MeV)	J	π			
1	0.000000	3.5	1			
2	0.000000	0.5	1			
3	0.025000	0.5	-1			
4	0.025000	3.5	-1			
5	0.050000	0.5	-1			
6	0.050000	1.5	-1			
7	0.050000	1.5	1			
8	0.050000	2.5	1			
9	0.050000	2.5	-1			
10	0.050000	4.5	-1			
11	0.050000	1.5	1			
12	0.050000	5.5	1			
13	0.060000	0.5	1			
14	0.070000	1.5	1			
15	0.080000	2.5	1			
16	0.085000	0.5	-1			
17	0.095000	1.5	-1			
18	0.105000	2.5	-1			
19	0.110000	0.5	-1			
20	0.110000	1.5	-1			
21	0.110000	1.5	1			
22	0.110000	2.5	1			
23	0.120000	0.5	-1			
24	0.120000	2.5	-1			
25	0.120000	0.5	1			
26	0.120000	3.5	1			
27	0.130000	1.5	-1			
28	0.130000	3.5	-1			
29	0.130000	0.5	1			
30	0.130000	4.5	1			
31	0.150000	0.5	1			
32	0.150000	1.5	1			
33	0.175000	0.5	-1			
34	0.175000	1.5	-1			
35	0.200000	0.5	-1			
36	0.200000	1.5	-1			
37	0.200000	1.5	1			
38	0.200000	2.5	1			

Barrière 2						
n° état	Energie (MeV)	J	π			
1	0.000000	3.5	1			
2	0.050000	0.5	1			
3	0.100000	0.5	-1			
4	0.050000	3.5	-1			
5	0.100000	0.5	-1			
6	0.100000	1.5	-1			
7	0.150000	1.5	1			
8	0.150000	2.5	1			
9	0.050000	2.5	-1			
10	0.050000	4.5	-1			
11	0.100000	1.5	1			
12	0.100000	5.5	1			
13	0.196000	0.5	1			
14	0.580000	1.5	1			
15	0.500000	2.5	1			
16	0.246000	0.5	-1			
17	0.630000	1.5	-1			
18	0.550000	2.5	-1			
19	0.246000	0.5	-1			
20	0.246000	1.5	-1			
21	0.296000	1.5	1			
22	0.296000	2.5	1			
23	0.630000	0.5	-1			
24	0.630000	2.5	-1			
25	0.680000	0.5	1			
26	0.680000	3.5	1			
27	0.550000	1.5	-1			
28	0.550000	3.5	-1			
29	0.600000	0.5	1			
30	0.600000	4.5	1			
31	0.110000	0.5	1			
32	0.000000	1.5	1			
33	0.160000	0.5	-1			
34	0.050000	1.5	-1			
35	0.160000	0.5	-1			
36	0.160000	1.5	-1			
37	0.210000	1.5	1			
38	0.210000	2.5	1			
<u>Annexe 3.10</u>

Etats de transition fournis par le code AVXSF

Barrière 1				Barrière 2				
n° état	Energie (MeV)	J	π		n° état	Energie (MeV)	J	π
1	0.000000	1.5	1		1	0.000000	0.5	1
2	0.002811	1.5	-1		2	0.023227	3.5	1
3	0.006311	3.5	1		3	0.043807	0.5	1
4	0.006311	0.5	-1		4	0.069041	1.5	1
5	0.017402	1.5	-1		5	0.074960	4.5	1
6	0.033745	4.5	-1		6	0.100000	0.5	-1
7	0.110817	0.5	1		7	0.123227	3.5	-1
8	0.140000	0.5	1		8	0.143807	0.5	-1
9	0.140000	3.5	1		9	0.151895	1.5	1
10	0.142811	0.5	-1		10	0.169041	1.5	-1
11	0.142811	3.5	-1		11	0.174960	4.5	-1
12	0.146311	1.5	1		12	0.241118	2.5	1
13	0.146311	5.5	1		13	0.251895	1.5	-1
14	0.146311	1.5	-1		14	0.329978	1.5	1
15	0.146311	2.5	-1		15	0.341118	2.5	-1
16	0.157402	0.5	-1		16	0.402842	0.5	1
17	0.157402	3.5	-1		17	0.429978	1.5	-1
18	0.173745	2.5	-1		18	0.502842	0.5	-1
19	0.173745	6.5	-1		19	0.518837	5.5	1
20	0.221497	4.5	-1		20	0.550000	1.5	-1
21	0.250817	1.5	1		21	0.550000	0.5	-1
22	0.250817	2.5	1		22	0.573227	4.5	-1
23	0.332081	0.5	1		23	0.573227	2.5	-1
24	0.332081	2.5	-1		24	0.593807	1.5	-1
25	0.350000	2.5	1		25	0.593807	0.5	-1
26	0.350000	5.5	1		26	0.597633	3.5	1
27	0.352811	2.5	-1		27	0.618837	5.5	-1
28	0.352811	5.5	-1		28	0.619041	2.5	-1
29	0.356311	0.5	1		29	0.619041	0.5	-1
30	0.356311	7.5	1		30	0.624960	5.5	-1
31	0.356311	3.5	-1		31	0.624960	3.5	-1
32	0.356311	4.5	-1		32	0.697633	3.5	-1
33	0.361497	2.5	-1		33	0.701895	2.5	-1
34	0.361497	6.5	-1		34	0.701895	0.5	-1
35	0.367402	2.5	-1		35	0.791118	3.5	-1
36	0.367402	5.5	-1		36	0.791118	1.5	-1
37	0.383745	0.5	-1		37	0.800000	2.5	1
38	0.383745	8.5	-1		38	0.800000	1.5	1
39	0.410000	1.5	1		39	0.815446	1.5	1
40	0.412811	1.5	-1		40	0.823227	5.5	1
41	0.416311	3.5	1]	41	0.823227	1.5	1
42	0.416311	0.5	-1		42	0.843807	2.5	1

43	0.419234	2.5	1	43	0.843807	1.5	1
44	0.427402	1.5	-1	44	0.869041	3.5	1
45	0.443745	4.5	-1	45	0.869041	0.5	1
46	0.454494	2.5	1	46	0.874960	6.5	1
47	0.460817	3.5	1	47	0.874960	2.5	1
48	0.460817	4.5	1	48	0.879978	2.5	-1
49	0.472081	1.5	1	49	0.879978	0.5	-1
50	0.472081	2.5	1	50	0.900000	2.5	-1
51	0.472081	0.5	-1	51	0.900000	1.5	-1
52	0.472081	4.5	-1	52	0.915446	1.5	-1
53	0.480000	4.5	1	53	0.923227	5.5	-1
54	0.480000	7.5	1	54	0.923227	1.5	-1
55	0.482811	4.5	-1	55	0.943807	2.5	-1
56	0.482811	7.5	-1	56	0.943807	1.5	-1
57	0.486311	2.5	1	57	0.951895	3.5	1
58	0.486311	9.5	1	58	0.951895	0.5	1
59	0.486311	5.5	-1	59	0.952842	1.5	-1
60	0.486311	6.5	-1	60	0.952842	0.5	-1
61	0.497402	4.5	-1	61	0.969041	3.5	-1
62	0.497402	7.5	-1	62	0.969041	0.5	-1
63	0.513745	1.5	-1	63	0.974960	6.5	-1
64	0.520817	0.5	1	64	0.974960	2.5	-1
65	0.532225	0.5	-1	65	1.000000	1.5	1
66	0.559234	0.5	1	66	1.000000	0.5	1
67	0.559234	4.5	1	67	1.023227	4.5	1
68	0.560000	0.5	1	68	1.023227	2.5	1
69	0.560000	3.5	1	69	1.041118	4.5	1
70	0.562811	0.5	-1	70	1.041118	0.5	1
71	0.562811	3.5	-1	71	1.043807	1.5	1
72	0.566311	1.5	1	72	1.043807	0.5	1
73	0.566311	5.5	1	73	1.051895	3.5	-1
74	0.566311	1.5	-1	74	1.051895	0.5	-1
75	0.566311	2.5	-1	75	1.068837	6.5	-1
76	0.571497	0.5	-1	76	1.068837	4.5	-1
77	0.571497	8.5	-1	77	1.069041	2.5	1
78	0.577402	0.5	-1	78	1.069041	0.5	1
79	0.577402	3.5	-1	79	1.074787	2.5	1
80	0.585487	1.5	1	80	1.074960	5.5	1
81	0.590817	5.5	1	81	1.074960	3.5	1
82	0.590817	6.5	1	82	1.129978	3.5	1
83	0.593745	2.5	-1	83	1.129978	0.5	1
84	0.593745	6.5	-1	84	1.141118	4.5	-1
85	0.594494	0.5	1	85	1.141118	0.5	-1
86	0.594494	4.5	1	86	1.147633	4.5	-1
87	0.631497	4.5	-1	87	1.147633	2.5	-1
88	0.660000	1.5	1	88	1.151895	2.5	1
89	0.662811	1.5	-1	89	1.151895	0.5	1
90	0.666311	3.5	1	90	1.174787	2.5	-1

91	0.666311	0.5	-1
92	0.670817	1.5	1
93	0.670817	2.5	1
94	0.672225	1.5	-1
95	0.672225	2.5	-1
96	0.677402	1.5	-1
97	0.682081	3.5	1
98	0.682081	4.5	1
99	0.682081	1.5	-1
100	0.682081	6.5	-1
101	0.693745	4.5	-1
102	0.695000	2.5	1
103	0.695000	5.5	1
104	0.697811	2.5	-1
105	0.697811	5.5	-1
106	0.700000	1.5	-1
107	0.701311	0.5	1
108	0.701311	7.5	1
109	0.701311	3.5	-1
110	0.701311	4.5	-1
111	0.701497	1.5	-1
112	0.702811	1.5	1
113	0.706311	3.5	-1
114	0.706311	0.5	1
115	0.712402	2.5	-1
116	0.712402	5.5	-1
117	0.717402	1.5	1
118	0.720000	6.5	1
119	0.720000	9.5	1
120	0.722811	6.5	-1
121	0.722811	9.5	-1
122	0.725487	0.5	1
123	0.725487	3.5	1
124	0 726311	4 5	1
125	0 726311	7.5	-1
126	0 726311	8.5	-1
120	0.728745	0.5	-1
178	0 728745	85	_1
120	0 733745	45	1
130	0 737402	65	-1
121	0 737/02	95	_1
132	0.742081	0.5	-1
122	0.742081	25	_1
12/	0.742001	2.5	-1 _1
125	0.750745	1.5	-1 1
126	0.7602234	1.J	1
127	0.709234	0.5	1
120	0.770017	0.5 2 E	_1
ΔO	0.701497	2.5	-1

91	1.191044	2.5	1
92	1.202842	2.5	1
93	1.202842	1.5	1
94	1.229978	3.5	-1
95	1.229978	0.5	-1
96	1.241118	3.5	1
97	1.241118	1.5	1
98	1.246278	0.5	1
99	1.246644	2.5	1
100	1.258917	0.5	1
101	1.291044	2.5	-1
102	1.302842	2.5	-1
103	1.302842	1.5	-1
104	1.315233	3.5	1
105	1.318837	7.5	1
106	1.318837	3.5	1
107	1.329978	2.5	1
108	1.329978	0.5	1
109	1.346278	0.5	-1
110	1.346644	2.5	-1
111	1.358917	0.5	-1
112	1.365446	2.5	-1
113	1.365446	0.5	-1
114	1.397633	5.5	1
115	1.397633	1.5	1
116	1.402842	1.5	1
117	1.402842	0.5	1
118	1.415233	3.5	-1
119	1.418837	7.5	-1
120	1.418837	3.5	-1
121	1.497633	5.5	-1
122	1.497633	1.5	-1
123	1.500000	0.5	1

139	0.781497	6.5	-1
140	0.800000	0.5	-1
141	0.800000	2.5	-1
142	0.802811	0.5	1
143	0.802811	2.5	1
144	0.804494	1.5	1
145	0.804494	6.5	1
146	0.805817	3.5	1
147	0.805817	4.5	1
148	0.806311	2.5	-1
149	0.806311	4.5	-1
150	0.806311	0.5	1
151	0.806311	1.5	1
152	0.807474	0.5	-1
153	0.810817	0.5	-1
154	0.812081	5.5	1
155	0.812081	6.5	1
156	0.812081	3.5	-1
157	0.812081	8.5	-1
158	0.817402	0.5	1
159	0.817402	2.5	1
160	0.829234	2.5	1
161	0.830817	7.5	1
162	0.830817	8.5	1
163	0.833745	3.5	1
164	0.833745	5.5	1
165	0.840000	0.5	-1
166	0.840000	3.5	-1
167	0.842811	0.5	1
168	0.842811	3.5	1
169	0.846311	1.5	-1
170	0.846311	5.5	-1
171	0.846311	1.5	1
172	0.846311	2.5	1
173	0.857402	0.5	1
174	0.857402	3.5	1
175	0.864494	2.5	1
176	0.873745	2.5	1
177	0.873745	6.5	1
178	0.881497	4.5	-1
179	0.882225	3.5	-1
180	0.882225	4.5	-1
181	0.892081	1.5	1
182	0.892081	2.5	1
183	0.892081	0.5	-1
184	0.892081	4.5	-1
185	0.899234	3.5	1
186	0.899234	8.5	1

-			
187	0.910817	0.5	-1
188	0.910817	1.5	-1
189	0.916497	0.5	-1
190	0.916497	8.5	-1
191	0.921497	4.5	1
192	0.922580	6.5	1
193	0.934494	3.5	1
194	0.934494	8.5	1
195	0.935487	2.5	1
196	0.935487	5.5	1
197	0.940000	0.5	-1
198	0.940000	2.5	-1
199	0.940000	1.5	-1
200	0.940000	4.5	-1

Annexe 3.11

n° état	Energie (MeV)	J	π	n° état	Energie (MeV)	J	π
0	0.000000	0.0	1	30	1.401000	3.0	-1
1	0.044540	2.0	1	31	1.428000	2.0	-1
2	0.147300	4.0	1	32	1.431700	14.0	1
3	0.306400	6.0	1	33	1.501000	4.0	1
4	0.518100	8.0	1	34	1.517600	1.0	-1
5	0.778600	10.0	1	35	1.613000	3.0	1
6	0.780450	1.0	-1	36	1.638000	5.0	-1
7	0.832300	3.0	-1	37	1.650000	3.0	-1
8	0.865000	5.0	-1	38	1.683000	4.0	1
9	0.927000	5.0	-1	39	1.701000	6.0	1
10	0.956000	0.0	1	40	1.745100	7.0	-1
11	0.992500	2.0	1	41	1.776000	1.0	1
12	1.019500	3.0	-1	42	1.816700	16.0	1
13	1.039200	2.0	1	43	1.825800	4.0	1
14	1.061000	7.0	-1	44	1.871400	5.0	-1
15	1.064000	4.0	-1	45	1.874100	3.0	-1
16	1.078000	4.0	1	46	1.903600	9.0	-1
17	1.084400	12.0	1	47	1.949800	6.0	1
18	1.092100	6.0	1	48	1.969900	1.0	-1
19	1.102000	2.0	1	49	2.000000	4.0	1
20	1.122000	5.0	-1	50	2.091800	3.0	-1
21	1.141000	3.0	1	51	2.236000	18.0	1
22	1.151000	2.0	-1	52	2.246000	5.0	-1
23	1.154500	3.0	-1	53	2.331300	2.0	1
24	1.181600	2.0	1	54	2.437500	7.0	-1
25	1.182000	6.0	-1	55	2.686000	20.0	1
26	1.193000	4.0	1	56	3.163000	22.0	1
27	1.204000	1.0	-1	57	3.662000	24.0	1
28	1.259000	4.0	-1	58	4.172000	26.0	1
29	1.357200	7.0	-1				

Niveaux de basse énergie du 242Pu fournis dans le fichier ENSDF

Annexe 3.12

Comparaison du calcul TALYS final avec les données expérimentales

