



HAL
open science

Prédiction par calcul des observables de fission à partir d'expériences dédiées

Valentin Piau

► **To cite this version:**

Valentin Piau. Prédiction par calcul des observables de fission à partir d'expériences dédiées. Physique [physics]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2022. Français. NNT : 2022GRALY059 . tel-03992014

HAL Id: tel-03992014

<https://theses.hal.science/tel-03992014>

Submitted on 16 Feb 2023

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

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

École doctorale : PHYS - Physique

Spécialité : Physique Subatomique et Astroparticules

Unité de recherche : CEA Cadarache, Laboratoire d'Études de Physique (LEPh)

Prédiction par calcul des observables de fission à partir d'expériences dédiées

Predictive calculations of fission observables from dedicated experiments

Présentée par :

Valentin PIAU

Direction de thèse :

Olivier LITAIZE

Chercheur HDR, CEA Cadarache, Université Grenoble Alpes

Directeur de thèse

Stephan OBERSTEDT

Chercheur, European Commission, Joint Research Center, Geel

Co-encadrant de thèse

Abdelhazize CHEBBOUBI

Chercheur, CEA Cadarache

Co-encadrant de thèse

Thèse soutenue publiquement le **19 octobre 2022**, devant le jury composé de :

Mourad RAMDHANE

Professeur des Universités, Université Grenoble Alpes

Président du jury

Louise STUTTGÉ

Directrice de Recherche, CNRS, IPHC, Strasbourg

Rapporteuse

Olivier ROIG

Chercheur HDR, CEA DAM, Île de France

Rapporteur

Jonathan WILSON

Directeur de Recherche, CNRS, IJCLab, Orsay

Examineur

Thomas MATERNA

Chercheur HDR, CEA IRFU, Saclay

Examineur



Prédiction par calcul des observables de fission à partir d'expériences dédiées

Résumé

La fission nucléaire est un phénomène complexe au cours duquel un noyau lourd se divise en deux noyaux plus légers, aussi appelés fragments de fission. Après la scission du noyau composé, les fragments sont laissés dans un état fortement excité et vont alors émettre un certain nombre de particules promptes (neutrons, photons et électrons) lors de leur désexcitation. Les caractéristiques de ces particules promptes (spectres, multiplicités...) ainsi que les rendements des produits de fission et les rapports isomériques constituent des observables de fission. Dans le domaine de l'énergie nucléaire, ces données sont, au même titre que les sections efficaces de réaction, de première importance puisqu'elles caractérisent le nombre et l'énergie des particules issues de la réaction de fission.

Dans un premier temps, des mesures multi-paramètres de ces observables de fission seront présentées. Ces mesures ont été effectuées à l'aide du dispositif expérimental VESPA (VErsatile γ SPectrometer Array) de l'European Commission Joint Research Center (EC-JRC) de Geel, pour la fission spontanée du ^{252}Cf . Ce dispositif est formé d'un ensemble de scintillateurs $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$, permettant la mesure des spectres de γ prompts de fission (PFGS). Ces spectres sont ensuite déconvolués afin de déterminer la multiplicité moyenne et l'énergie totale des γ prompts de fission. Une double chambre d'ionisation à grilles de Frisch est également placée au centre du dispositif, et mesure simultanément l'énergie cinétique des deux fragments de fission (méthode 2E). Ainsi, les caractéristiques des γ prompts de fission ont pu être obtenues en fonction de la masse, de l'énergie cinétique totale, et de l'énergie d'excitation totale des fragments de fission. Le dispositif rend également possible l'analyse d'isomères de demi-vie courte (entre la nanoseconde et la microseconde), ce qui sera également discuté.

Dans un second temps, les développements effectués sur le code Monte-Carlo FIFRELIN, développé par le CEA Cadarache, seront présentés. Ce code modélise l'émission des particules promptes par les fragments, pour prédire les observables de fission. Pour cela, il intègre plusieurs modèles nucléaires qui définissent d'une part l'état initial des fragments de fission, par exemple la répartition de l'énergie d'excitation totale entre les deux fragments et leur moment angulaire total, et d'autre part le mécanisme d'émission des particules promptes via les densités de niveaux nucléaires ou les fonctions de force gamma, effectué au travers d'un algorithme de type Hauser-Feshbach. Récemment, de nouveaux modèles basés sur une description microscopique des noyaux (via la méthode Hartree-Fock-Bogoliubov par exemple), concurrencent les modèles phénoménologiques établis. Une part importante des développements réalisés sur FIFRELIN a ainsi été l'implémentation de tels modèles au sein de ce code. La confrontation des résultats obtenus à l'issue des calculs de FIFRELIN aux données expérimentales de VESPA permet alors de contraindre divers modèles nucléaires ainsi que leurs paramètres. Cette interaction entre approche expérimentale et approche théorique peut nous permettre de mieux comprendre le processus de fission, et d'améliorer la prédiction par FIFRELIN des observables de fission, et des données nucléaires associées.

Mots clés

FIFRELIN, Gamma, Fission, Prompt, LaBr_3

Predictive calculations of fission observables from dedicated experiments

Abstract

Nuclear fission is a complex phenomenon during which a heavy nucleus splits into two lighter nuclei, referred as fission fragments. During this process, as fission leaves the fragments in an excited state, prompt particles (neutrons, photons and electrons) will be emitted shortly after scission. The characteristics of these prompt particles, e.g., spectral distribution, multiplicity, as well as the fragment yields and the isomeric ratios, are called fission observables. For nuclear-energy applications, these data are of primary interest as they characterize the number and the energy of particles produced by the fission reaction.

First, multi-parameter measurements of such fission observables will be presented. Correlated data were acquired with the VESPA setup (VErsatile γ SPectrometer Array) at the European Commission Joint Research Center (EC-JRC) in Geel, using the spontaneous fission of ^{252}Cf . VESPA is made of several $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ scintillators, which are used to measure the prompt fission gamma-ray spectra (PFGS). A double Frisch-grid ionization chamber is mounted in the center of the setup to measure simultaneously the kinetic energy of both fission fragments (2E method). Thus, the PFGS have been obtained as a function of fission fragments characteristics, i.e., mass, total kinetic energy (TKE) and total excitation energy (TXE). These spectra are then unfolded to extract the mass-, TKE- and TXE- dependent average prompt fission γ -ray multiplicity and total energy. The study of short-lived isomers, with half-lives ranging from nanosecond up to a couple of microseconds, can also be performed with this setup and will be discussed.

Second, improvements of the Monte-Carlo code FIFRELIN, developed by the CEA Cadarache, will be presented. FIFRELIN simulates the prompt-particles emission from fission fragments to predict fission observables. For this purpose, it includes several nuclear models defining the initial state of the fragments on the one hand, as e.g. the total excitation energy sharing between the fragments and their total angular momentum, and on the other hand the prompt de-excitation mechanism through an Hauser-Feshbach algorithm, such as nuclear level densities, gamma strength function, etc. These models, previously highly phenomenological, are now including microscopic ones, e.g., based on the Hartree-Fock-Bogoliubov approach. The implementation of such models into FIFRELIN was one of the main developments carried out in this work. Finally, the comparison of the results from FIFRELIN calculations with the experimental data from VESPA helped constraining several nuclear models and their parameters. The presented interplay of experiment and theory may help to understand better the fission process, eventually improving FIFRELIN's predictability of fission observables and corresponding nuclear data.

Keywords

FIFRELIN, Gamma, Fission, Prompt, LaBr_3

Remerciements

Ce manuscrit est le résultat de trois années de travail, au cours desquelles de nombreuses personnes m’ont aidé et épaulé. Je souhaiterais donc prendre ici le temps de les en remercier.

Pour commencer, merci à Olivier Litaize, Stephan Oberstedt et Abdel Chebboubi de m’avoir donné l’opportunité d’effectuer cette thèse. Ce fut un réel plaisir de travailler et d’apprendre à vos côtés. Merci pour votre aide, vos précieux conseils et vos encouragements durant ces trois années. Des débuts de la thèse aux relectures du manuscrit et répétitions de la soutenance, en passant par l’analyse des données de VESPA et les développements sur FIFRELIN, merci pour tout, simplement.

I am very grateful to Alf Göök for all his help and advice about the data analysis, and for all the fruitful discussions we had. Thanks a lot, Alf!

I am also greatly indebted to Marzio Vidali, for all the assistance he provided me during this 6-month lockdown. Thanks to him and Stephan Oberstedt, I was able to continue my work in the best possible conditions given the situation. *Grazie mille*, Marzio!

Then, I am very thankful to the MONNET team, Cedric Bonaldi, Thierry Gamboni, Wouter Geerts, Ton van Dorst, Nico Sevenhans and Jef Goosens for their great kindness and joviality. *Heel erg bedankt!*

Merci également à Célia Venchiarutti, pour son extrême gentillesse.

I would also like to thank Milos Travar, for the nice discussions we had, and for his contribution to the data analysis.

Met dank aan Remy, Michele en Krzysztof, voor deze Nederlandse lessen.

Merci à Véronique Bellanger-Villard de m’avoir accueilli au sein du LEPH, et d’avoir toujours été disponible et à l’écoute quand j’avais besoin d’aide.

Je remercie l’ensemble des membres du LEPH, pour leur accueil et leur sympathie. En particulier, merci à Olivier Serot, Olivier Bouland et Grégoire Kessedjian pour les échanges toujours intéressants que nous avons pu avoir. Je n’oublie pas non plus que c’est aussi grâce à Grégoire que j’ai eu l’occasion d’effectuer cette thèse. I am also thankful to Achment Chalil for all the discussions we had during his stay at Cadarache.

Merci également à l’ensemble des doctorants et ex-doctorants du laboratoire : Jehaan, Carole, David, Fiona, François, Sidi, Maxime, Claire, Giorgos, Victor, Dorian, Mathias ; à Nicolas ainsi qu’aux nombreux stagiaires (ne m’en voulez pas, ce serait long de tous vous nommer...). Merci pour les moments agréables que nous avons pu partager au sein du labo, mais également à l’extérieur. Merci à mes co-bureaux, qui se sont succédé au gré des déménagements internes : Carole, Nicolas, Solène, Achment et Olivier.

Enfin, je tiens à remercier Claire Boucher, pour toute son aide.

I would also like to thank Andreas Oberstedt, for his interest in my work, and the many interesting discussions we had.

Je souhaiterais remercier les membres du jury, Thomas Materna, Mourad Ramdhane, Olivier Roig, Louise Stuttgarté et Jonathan Wilson pour l’intérêt qu’ils ont porté à ce travail. Je les remercie d’avoir pris le temps de lire ce manuscrit, ainsi que pour leurs remarques et conseils avisés.

Dans la mesure où la thèse est aussi l'aboutissement de nombreuses années d'études, je souhaiterais profiter de l'occasion pour remercier les professeurs bienveillants que j'ai eu la chance de rencontrer tout au long de mon parcours scolaire, et qui ont chacun d'une manière ou d'une autre contribué à me mettre sur la voie que j'emprunte finalement.

Pour finir, je voudrais adresser un merci tout particulier à Pierre, avec qui nous aurons fait souffrir tant et tant de mouches (métaphoriquement, bien entendu). Merci beaucoup pour ton soutien, ton humour, et bravo de m'avoir supporté pendant 2 ans ! Merci aussi à Élise, pour sa gaieté communicative (et pour les gâteaux!).

Merci également à Nicolas pour son amitié précieuse, les fous rires et les sessions de jeux ô combien salutaires pour s'aérer l'esprit après des journées parfois difficiles.

Enfin, un immense merci à toute ma famille, mes parents, mes frères, mes grands-parents, mes oncles et tantes, pour leur amour et leur soutien sans faille pendant toutes ces années.

« But then science is nothing but a series of questions
that lead to more questions. »

La Longue Terre, T. Pratchett et S. Baxter

Table des matières

Introduction générale	9
1 La fission nucléaire	11
1.1 Le processus de fission	11
1.1.1 Barrière de fission	11
1.1.2 Chronologie de la fission	13
1.1.3 Lois de conservation	15
1.2 Codes et modèles de la fission	16
1.2.1 Modélisation de la scission	16
1.2.2 Codes pour les observables de fission	19
1.3 Mesures multi-paramètres d'observables de fission	21
1.3.1 Méthode 2E	21
1.3.2 Méthode 2E-2v	22
1.3.3 Spectromètres de masse	23
1.3.4 Matrices de détecteurs	24
2 Description du dispositif expérimental VESPA	27
2.1 Présentation générale	27
2.2 Les scintillateurs au bromure de lanthane (III)	28
2.2.1 Principe de fonctionnement des scintillateurs inorganiques	29
2.2.2 Caractérisation des détecteurs	30
2.2.3 Bruit de fond intrinsèque	34
2.3 La double chambre d'ionisation	35
2.3.1 Présentation générale	35
2.3.2 Orientation des fragments de fission	37
2.3.3 Perte d'énergie des fragments	38
2.3.4 <i>Pulse Height Defect</i>	39
2.3.5 Méthode 2E	41
2.3.6 Résolution	42
2.4 Les scintillateurs organiques	43
2.4.1 Détection des neutrons	43
2.4.2 Discrimination neutron/ γ	44
2.5 Simulation sous Geant4	46
2.5.1 Motivations	46
2.5.2 Définition de la géométrie	47
2.5.3 Processus physiques	47
2.5.4 Vérification	48
3 Mesures d'observables de fission	51
3.1 Caractéristiques des fragments de fission	51
3.2 Spectres de gammas prompts de fission	54
3.2.1 Distribution temporelle des γ de fission	54
3.2.2 Déconvolution	56
3.2.3 Résultats	58

3.3	Mesures multi-paramètres	63
3.3.1	Corrélations directes	63
3.3.2	Méthode des aberrations Doppler	67
3.4	Étude des états isomériques des fragments de fission	71
3.4.1	Méthodologie	71
3.4.2	Identification des isomères	73
3.4.3	Détermination de la demi-vie	75
3.4.4	États isomères consécutifs	78
4	Le code de calcul FIFRELIN	83
4.1	Principes de fonctionnement	83
4.1.1	Échantillonnage des fragments de fission primaires	83
4.1.2	Émission des particules promptes	88
4.1.3	Fichiers de sortie	92
4.2	Modèles nucléaires	93
4.2.1	Spin cut-off des fragments primaires	93
4.2.2	Densités de niveaux nucléaires	95
4.2.3	Fonctions de force gamma	100
5	Résultats obtenus avec FIFRELIN	107
5.1	Détermination des paramètres libres	107
5.2	Comparaisons de modèles	110
5.2.1	Charge des fragments de fission	110
5.2.2	Moment angulaire total des fragments primaires	110
5.2.3	Densité de niveaux nucléaire	113
5.2.4	Fonction de force γ	115
5.3	Étude des observables de fission	117
5.3.1	Spectres de γ prompts de fission	117
5.3.2	Corrélations FF- γ	122
	Conclusion et Perspectives	133
A	Description microscopique du noyau	135
A.1	Approche Hartree-Fock : le champ moyen	135
A.2	Interactions effectives	136
A.3	Méthode Hartree-Fock-Bogoliubov	137
A.4	Au-delà du champ moyen	138
B	Méthode de pondération des γ prompts de fission	139
B.1	Effet Doppler et anisotropie	139
B.2	Pondération	141
B.3	Pertes d'énergie	142
B.4	Incertitudes	142
C	Schémas de niveaux nucléaires	145
D	Caractéristiques moyennes des PFGS obtenus avec VESPA	149
E	Remarques sur l'étude et le calcul de corrélations	151
	Bibliographie	155

Introduction générale

La fission nucléaire, découverte en 1938 par Otto Hahn (prix Nobel de Chimie en 1944) et Lise Meitner, consiste en la scission du noyau d'un atome en deux noyaux plus légers, que l'on appelle alors des fragments de fission. Cette réaction libère une importante quantité d'énergie, sous forme d'énergie cinétique des fragments de fission, mais aussi par l'émission de particules légères (neutrons et rayons γ) issues de la désexcitation de ces fragments. Cette réaction peut s'effectuer spontanément (comme c'est le cas du ^{252}Cf), ou résulter de l'interaction du noyau avec une particule incidente. En particulier, la fission de ^{235}U peut être induite par des neutrons. Il est ainsi possible de mettre en place une réaction en chaîne, où les neutrons issus de la fission d'un noyau d'uranium induisent à leur tour la fission d'un autre noyau. Les caractéristiques de cette réaction sont à la base des réacteurs électronucléaires. Pour simuler le comportement neutronique d'un réacteur, un certain nombre de données nucléaires sont nécessaires, telles que les sections efficaces de réactions, et les observables de fission, qui désignent les caractéristiques des fragments de fission (masses, charge, énergie) et les rendements associés, ainsi que la multiplicité et les spectres en énergie des neutrons et γ émis par cette réaction. En effet, les observables neutrons sont cruciales pour la réaction en chaîne et les dommages à la cuve, et les γ peuvent être à l'origine d'échauffement nucléaire dans les matériaux de structure des réacteurs.

L'évaluation de ces données nucléaires est ainsi réalisée à partir de données expérimentales d'une part, et des estimations théoriques fournies par des codes de calculs d'autre part, comme le code FIFRELIN, développé par le CEA. Ce code repose sur un certain nombre de modèles nucléaires, qui gèrent le mécanisme d'émission des particules promptes, afin de prédire les observables de fission d'intérêt pour la physique des réacteurs. Du point de vue de la physique nucléaire, les calculs FIFRELIN, et plus généralement les observables de fission, peuvent également nous renseigner sur des aspects plus fondamentaux du processus de fission, qui sont inaccessibles à la mesure directe. Par exemple, les neutrons et γ prompts de fission sont la signature de l'énergie d'excitation et du moment angulaire des fragments de fission. Cependant, les mécanismes régissant le partage de l'énergie d'excitation et l'acquisition du moment angulaire des fragments sont pour l'heure encore toujours débattus parmi la communauté des physiciens. La méconnaissance de ces phénomènes physiques se traduit par l'existence de différents modèles nucléaires parfois contradictoires, et limite ainsi notre capacité à prédire de façon fiable les observables de fission.

Des mesures multi-paramètres peuvent donc permettre de mieux contraindre les modèles nucléaires utilisés dans FIFRELIN et d'améliorer notre connaissance du processus de fission, afin de mieux prédire les données nucléaires associées. Le principe de ces mesures multi-paramètres est d'accéder simultanément à différentes observables de fission, afin de pouvoir établir des corrélations entre celles-ci. Par exemple, la multiplicité des γ , ou l'énergie déposée par ces rayonnements γ , possèdent une distribution bien précise en fonction de la masse et de l'énergie cinétique des fragments de fission. De telles expériences ont donc une granulométrie plus fine que les mesures standards, et sont donc particulièrement adaptées pour contraindre les modèles nucléaires et leurs paramètres utilisés dans FIFRELIN.

L'enjeu de la thèse est alors d'améliorer la prédiction des observables de fission en contraignant les modèles nucléaires et leurs paramètres utilisés par FIFRELIN, à partir de mesures multi-paramètres dédiées. Ces mesures ont été réalisées à l'*European Commission - Joint Research Center* de Geel (EC-JRC), en utilisant le dispositif expérimental VESPA (*VErsatile γ SPectrometer Array*), pour la fission spontanée du ^{252}Cf . Ce dispositif, composé d'une double chambre d'ionisation à grille de Frisch, de scintillateurs $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ et EJ-301, peut simultanément

mesurer les caractéristiques des fragments de fission, ainsi que les γ et les neutrons prompts. Dans le cadre de cette thèse, nous avons principalement étudié les observables liées aux γ prompts, et leurs corrélations avec les fragments de fission.

Le présent manuscrit est divisé en cinq parties. Dans le Chapitre 1, nous présentons l'état actuel de nos connaissances concernant la fission, et nous verrons quels sont les modèles et les dispositifs expérimentaux actuellement développés pour tenter d'affiner notre connaissance de ce phénomène.

Le Chapitre 2 est consacré au dispositif VESPA et à la description des détecteurs qui le composent. L'accent sera en particulier mis sur la caractérisation des scintillateurs LaBr_3 et les propriétés de la chambre d'ionisation, qui sont les détecteurs utilisés dans ce travail.

Les observables de fission ainsi obtenues expérimentalement sont présentées dans le Chapitre 3. En particulier, les données des γ prompts mesurés par le dispositif en corrélation avec les fragments de fission sont analysées afin d'obtenir d'une part les spectres et les multiplicités γ , et d'isoler d'autre part les isomères produits par la fission spontanée du ^{252}Cf .

Le Chapitre 4 est dédié à la description du code FIFRELIN et des modèles qui y sont intégrés. En particulier, l'intégration de modèles microscopiques de densités de niveaux nucléaires et de fonctions de force γ effectuée pendant cette thèse est présentée.

Enfin, les résultats obtenus avec FIFRELIN sont confrontés aux mesures de VESPA dans le Chapitre 5. Cette comparaison permet de contraindre certains modèles nucléaires, mais montre également les limites actuelles du code. Nous montrons également comment FIFRELIN peut être utilisé pour interpréter plus finement les résultats expérimentaux.

La fission nucléaire

Sommaire

1.1	Le processus de fission	11
1.1.1	Barrière de fission	11
1.1.2	Chronologie de la fission	13
1.1.3	Lois de conservation	15
1.2	Codes et modèles de la fission	16
1.2.1	Modélisation de la scission	16
1.2.2	Codes pour les observables de fission	19
1.3	Mesures multi-paramètres d'observables de fission	21
1.3.1	Méthode 2E	21
1.3.2	Méthode 2E-2v	22
1.3.3	Spectromètres de masse	23
1.3.4	Matrices de détecteurs	24

En 1938, Hahn et Strassmann établissent expérimentalement que du baryum ($Z = 56$) est produit à l'issue de l'irradiation d'un échantillon d'uranium ($Z = 92$) avec des neutrons [1]. Une explication de ce phénomène est alors proposée par Meitner et Frisch, qui introduisent le concept de fission nucléaire [2]. La réaction est celle d'un noyau lourd qui, sous l'effet de mouvements collectifs des nucléons qui le composent [3], se divise en deux noyaux plus légers, à la manière d'une goutte d'eau liquide. Un tel processus implique que les fragments ainsi formés soient accélérés par répulsion coulombienne, atteignant une énergie cinétique de l'ordre de plusieurs dizaines de MeV. C'est en observant expérimentalement ce phénomène que Frisch a ainsi pu confirmer l'existence de la réaction de fission [4].

Dans ce chapitre, nous discutons des principaux aspects de la fission nucléaire (Section 1.1), puis nous présenterons différents modèles (Section 1.2) et dispositifs expérimentaux (Section 1.3) actuellement développés pour mieux comprendre ce phénomène.

1.1 Le processus de fission

La première description théorique complète du phénomène de fission a été proposée en 1939 par Bohr et Wheeler [5]. Depuis, des avancées théoriques et de nombreuses campagnes expérimentales ont permis d'affiner la compréhension que les physiciens ont de ce processus, dont nous allons présenter les principales caractéristiques dans cette section.

1.1.1 Barrière de fission

La modélisation du processus de fission initialement proposée par Bohr et Wheeler [5] reposait sur une description du noyau composé à partir du modèle macroscopique de la goutte liquide (LDM, pour *Liquid Drop Model*). Dans ce formalisme, le noyau est assimilé à un fluide incompressible uniformément chargé. Dans ce cas, l'énergie du noyau E_{LDM} s'exprime comme la somme de l'énergie coulombienne E_c et d'un terme surfacique $E_s \propto A^{2/3}$. Cependant, ce modèle

ne permet pas d'expliquer le caractère asymétrique de la fission, c'est-à-dire le fait que les deux fragments de fission n'ont nécessairement pas la même masse [6]. Cette difficulté a été résolue par Strutinsky, qui complète le modèle de la goutte liquide en y ajoutant des effets de couche et d'appariement [7,8]. L'énergie totale du noyau est alors donnée par :

$$E = E_{LDM} + \delta E_{\text{shell}} + \delta E_{\text{pairing}} \quad (1.1)$$

Cette méthode est qualifiée d'approche macro-micro, dans la mesure où elle consiste à ajouter des composantes microscopiques à un modèle macroscopique. Avec une telle approche, on obtient une surface d'énergie potentielle $V(\mathbf{q})$ qui rend compte de l'asymétrie de la fission, comme représenté en Figure 1.1. \mathbf{q} désigne alors un ensemble de variables collectives utilisées pour décrire le noyau. La surface d'énergie potentielle (SEP) peut également être calculée à partir de modèle purement microscopique, reposant sur la résolution de l'équation de Schrödinger en utilisant l'hypothèse du champ moyen : c'est l'approche Hartree-Fock-(Bogoliubov) décrite en Annexe A.

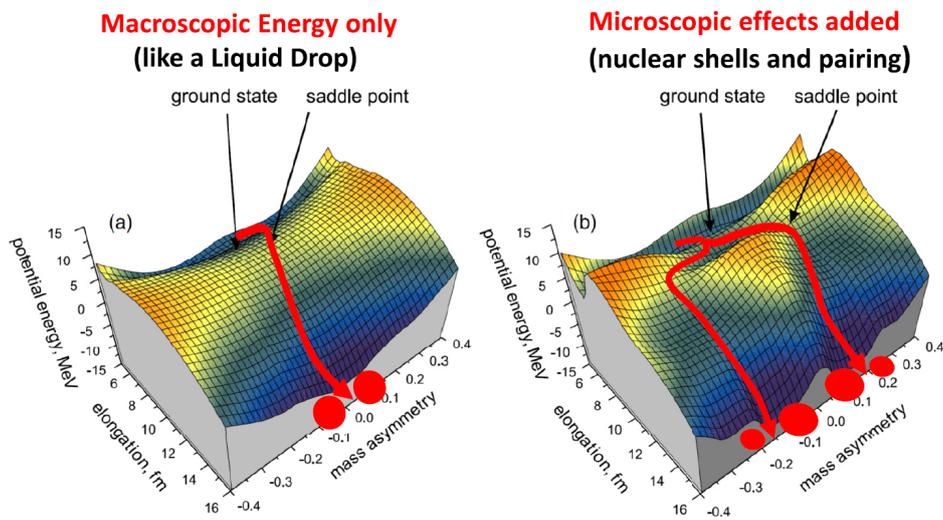


FIGURE 1.1 – Surface d'énergie potentielle de l' ^{238}U et fragmentation associée, pour un modèle de goutte liquide simple (gauche) et un modèle macro-micro (droite), en fonction de l'élongation du noyau et de l'asymétrie de masse. Figure extraite de [9, 10].

La projection de la surface d'énergie potentielle macro-micro sur un axe β (qui décrit une déformation quadrupolaire par exemple) représente la barrière de fission à une dimension. Pour les actinides, cette barrière de fission B_f présente une structure à deux bosses, comme illustré en Figure 1.2. Cette structure permet notamment d'expliquer l'existence des isomères de fission, qui sont des états métastables pouvant fissionner spontanément [6].

Pour qu'une fission ait lieu, le noyau composé doit franchir cette barrière de fission. Pour la fission spontanée, la barrière est franchie sans apport extérieur d'énergie, par effet tunnel. La demi-vie associée à cette réaction dépend alors des paramètres de la barrière de fission.

Dans le cadre d'une fission induite par neutron, comme c'est le cas dans un réacteur nucléaire, l'absorption du neutron va fournir suffisamment d'énergie au noyau composé (NC) pour que celui-ci franchisse la barrière de fission :

$$E_{NC}^* \simeq S_n + E_n \quad (1.2)$$

où E_n désigne l'énergie du neutron incident dans le référentiel du laboratoire et S_n l'énergie de liaison du neutron dans le noyau composé (de masse $A + 1$). E_{NC}^* est alors l'énergie d'excitation de ce noyau composé. Dans le cas où $B_f < S_n$, la fission est énergiquement possible quelle que soit l'énergie du neutron incident : le noyau cible est dit fissile.

La fission peut également être induite par un photon (on parle alors de photofission), ou par une particule chargée [6]. Dans tous les cas, la barrière de fission joue un rôle déterminant dans le calcul de la section efficace de fission, qui quantifie la probabilité que le noyau composé fissionne.

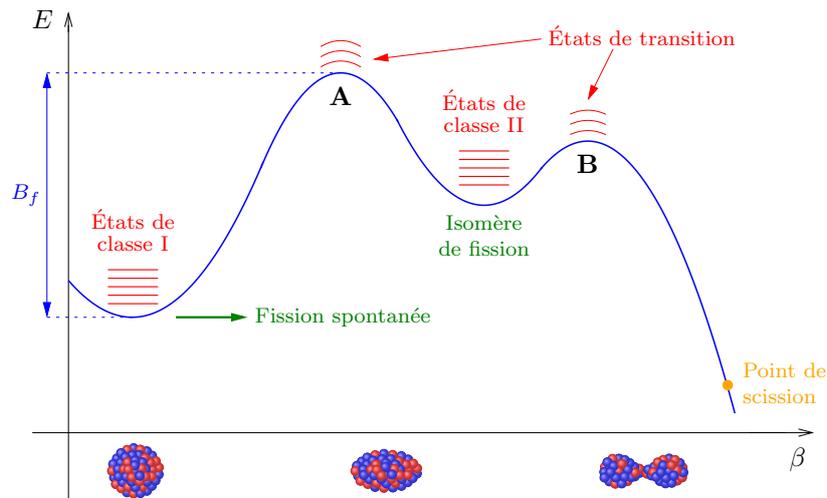


FIGURE 1.2 – Schéma de principe de la barrière de fission à une dimension, en fonction de la déformation, d'après [11].

1.1.2 Chronologie de la fission

Les principales étapes constituant le processus de fission sont représentées en Figure 1.3. Les échelles temporelles indiquées dans cette figure sont extraites de [6].

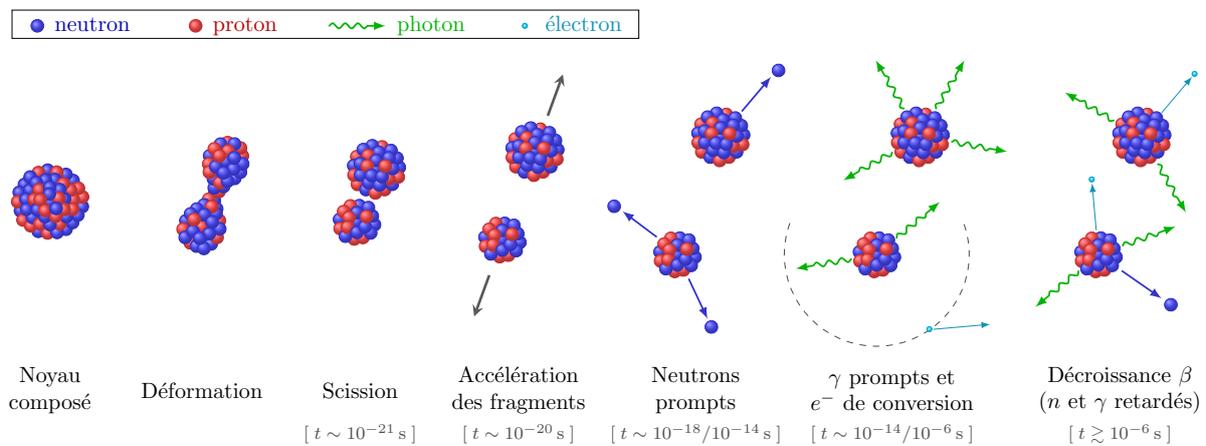


FIGURE 1.3 – Représentation schématique du processus de fission.

Le premier stade de la fission est la descente de potentiel depuis le point selle jusqu'au point de scission. Le point selle (*saddle point*), qui est par exemple représenté en Figure 1.1, est le point à partir duquel le processus de fission devient irréversible. Le noyau composé se déforme à tel point que deux proto-fragments émergent, séparés par un col. À la rupture du col, deux fragments déformés sont générés : c'est la scission. Comme cela a été évoqué précédemment, la fission est généralement asymétrique, et on distingue alors le fragment léger L (*Light*) et le fragment lourd H (*Heavy*).

Dans la surface de potentiel $V(\mathbf{q})$, plusieurs chemins sont possibles pour atteindre le point de scission. Ces chemins sont responsables de différentes formes que peut prendre le noyau composé avant la rupture du col. Dans le modèle de Brosa [12], différents modes de fission sont ainsi identifiés, et sont représentés en Figure 1.4. On définit alors deux modes asymétriques (*Standard 1* et *Standard 2*) et un mode symétrique (*Super Long*). Des modes supplémentaires sont parfois nécessaires pour reproduire les données expérimentales avec ce modèle [13].

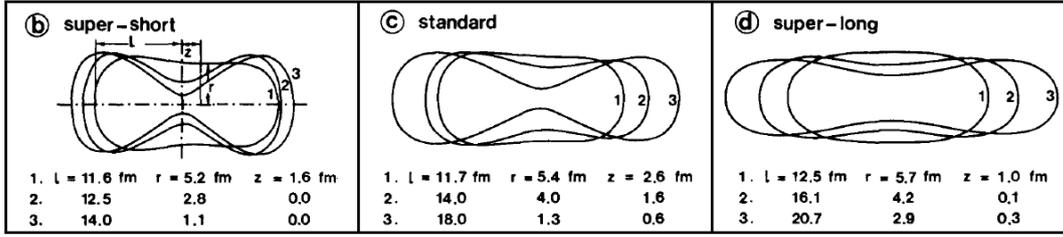


FIGURE 1.4 – Présentation des modes de fission, extraits de [12].

À l'issue de la scission, les fragments de fission, chargés positivement et séparés d'une distance d , vont être accélérés sous l'effet de la répulsion coulombienne :

$$E_{\text{coul}} \simeq \frac{Z_L Z_H e^2}{4\pi\epsilon_0 d} \quad (1.3)$$

En négligeant la contribution des forces nucléaires quand les fragments sont encore proches, il faut environ 10^{-20} s pour que les fragments atteignent 90% de leur énergie cinétique finale [6]. L'énergie cinétique totale du système après l'accélération complète des fragments est notée TKE, pour *Total Kinetic Energy*.

Pendant l'accélération, les fragments, qui sont initialement très déformés, vont reprendre une forme proche de leur état fondamental. Lors de cette phase de relaxation, l'énergie de déformation des proto-fragments se transforme en énergie d'excitation. L'énergie d'excitation totale du système, notée TXE (*Total Excitation Energy*), est donc :

$$TXE = E_{\text{sc}}^* + E^{\text{def}} + E^{\text{rot}} \quad (1.4)$$

où E_{sc}^* est l'énergie d'excitation intrinsèque à la scission, E^{def} l'énergie de déformation et E^{rot} l'énergie collective (rotation et vibration du noyau).

Après la phase d'accélération et de relaxation des fragments, ceux-ci possèdent une énergie d'excitation et un moment angulaire importants. Ils vont donc se désexciter en émettant des particules promptes (neutrons, rayons γ et électrons de conversion). Les temps caractéristiques (τ) associés aux neutrons et gammas prompts sont estimés à partir des largeurs de transitions (Γ) via la relation : $\tau = \hbar/\Gamma$. On remarque alors que les temps correspondant aux neutrons sont plus courts que ceux associés aux transitions électromagnétiques : les neutrons prompts sont généralement émis avant les γ prompts. On distingue alors les fragments de fission primaires ou pré-neutrons (avant émission des neutrons prompts), des fragments de fission secondaires ou post-neutrons (après émission du dernier neutron prompt). Des rayons γ prompts plus tardifs peuvent être émis, à cause des états isomères de certains fragments de fission, dont la demi-vie peut dépasser la microseconde.

À l'issue de cette désexcitation prompte, les fragments de fission sont généralement instables car riches en neutrons, et vont donc subir plusieurs désintégrations β^- successives, pour former ce que l'on appelle les produits de fission. Ces désintégrations β sont notamment responsables de l'émission des particules dites retardées, comme les neutrons retardés, qui sont des éléments essentiels pour le pilotage des réacteurs nucléaires [14] (on parle alors de désintégration β^-n).

Hypothèses simplificatrices

La description du processus de fission proposée ci-dessus inclut plusieurs hypothèses simplificatrices sous-jacentes. Ces hypothèses ont été considérées tout au long du travail de thèse, et vont désormais être explicitées.

Tout d'abord, nous considérons uniquement la fission binaire, qui correspond à l'émission de deux fragments de fission. Néanmoins, dans certains cas une troisième particule chargée plus légère peut également être émise (une particule α dans la majorité des cas) [6]. On parle alors

de fission ternaire. Pour la fission spontanée du ^{252}Cf , la probabilité d'émission d'une particule ternaire est inférieure à 0.3% [15], et peut donc raisonnablement être négligée.

Ensuite, nous supposons que les neutrons prompts sont exclusivement émis par les fragments de fission après leur accélération complète. S'il s'agit de la source principale de neutrons prompts, d'autres sources de neutrons sont parfois évoquées. Il peut s'agir de neutrons émis avant l'accélération complète des fragments ($t \lesssim 10^{-20}$ ns), ou bien de neutrons de scission, émis par le noyau composé lors de son passage du point selle au point de scission, ou lors de la scission [16]. Cependant, la caractérisation expérimentale ou théorique de ces sources de neutrons supplémentaires reste un problème ouvert [17].

1.1.3 Lois de conservation

La fission binaire du noyau composé respecte les lois de conservation usuelles :

- Conservation de la masse (pré- et post-neutron) :

$$A_{NC} = A_L + A_H = A_{L,post} + A_{H,post} + \nu \quad (1.5)$$

où ν désigne le nombre total de neutrons prompts émis à l'issue de la fission.

- Conservation de la charge nucléaire :

$$Z_{NC} = Z_L + Z_H \quad (1.6)$$

- Conservation de la quantité de mouvement dans le centre de masse :

$$A_L \vec{v}_L + A_H \vec{v}_H = \vec{0} \quad (1.7)$$

Cette équation implique alors que les fragments de fission sont émis le long d'un même axe, appelé axe de fission. On suppose ici que le noyau composé est statique, ce qui n'est par exemple pas le cas pour une fission induite par une particule très énergétique, ou en cinématique inverse.

- Conservation de l'énergie totale du système :

$$Q + S_n + E_n = KE_L + KE_H + E_L + E_H = TKE + TXE \quad (1.8)$$

où Q est la chaleur de réaction, et KE et E désignent respectivement l'énergie cinétique et l'énergie d'excitation des fragments. Dans le cas d'une fission spontanée, S_n et E_n sont nuls.

- Conservation du moment angulaire total :

$$\vec{J}_{NC} = \vec{J}_L + \vec{J}_H + \vec{\Lambda} \quad (1.9)$$

où $\vec{\Lambda}$ désigne le moment angulaire relatif entre les fragments.

Dans cette section, le processus de fission a été présenté qualitativement. Dans la section suivante, nous verrons quels sont les modèles qui permettent de décrire plus quantitativement ce phénomène complexe. Nous nous intéresserons en particulier à la déformation et à la scission du noyau composé d'une part, et à la désexcitation prompte des fragments de fission d'autre part.

1.2 Codes et modèles de la fission

Les modèles actuellement utilisés pour modéliser la fission ne permettent actuellement pas de décrire le processus depuis la descente du point selle au point de scission, jusqu'à la formation des produits de fission. De fait, les modèles peuvent être divisés en deux catégories spécialisées. D'une part, divers modèles sont développés afin de décrire la scission du noyau composé et ainsi de calculer les rendements pré-neutrons des fragments de fission : $Y(A, Z, TKE)$. Les différentes approches actuellement étudiées sont brièvement exposées dans la Section 1.2.1. D'autre part, plusieurs codes, dont fait partie FIFRELIN, sont utilisés pour modéliser la désexcitation des fragments de fission primaires par émission de particules promptes (neutrons, γ). Ces codes sont décrits dans la Section 1.2.2.

1.2.1 Modélisation de la scission

La scission du noyau composé en deux fragments de fission est un phénomène extrêmement complexe, dans la mesure où l'objet d'étude est un noyau atomique composé de $N + Z$ nucléons qui subit d'importantes déformations collectives. Une résolution exacte de l'équation de Schrödinger associée n'est pas envisageable, et différents modèles ont donc été développés (ces modèles sont notamment détaillés dans [17]). Récemment, l'amélioration des capacités de calculs a permis l'essor de méthodes microscopiques plus complexes que ce qui était permis jusqu'à présent.

Méthodes classiques ou semi-classiques

Une première approche, proposée initialement par Wilkins [18], consiste à décrire de manière statique le système formé des deux fragments de fission juste après la scission. On parle alors de modèle statistique du point de scission. Le code SPY2 propose une implémentation récente de ce modèle, à partir de données microscopiques [19]. Dans ce code, toutes les configurations possibles (masse, charge, énergie et déformation des fragments) sont calculées à partir de l'énergie potentielle totale du système, et pondérées afin d'obtenir les observables moyennes, par exemple les rendements de fission $Y(A, Z)$. Un exemple de résultats obtenus avec ce code est proposé en Figure 1.5. Un tel modèle possède l'avantage d'être numériquement peu coûteux, mais ne prend pas en compte la dynamique de la fission, c'est-à-dire l'évolution du noyau entre le point selle et le point de scission.

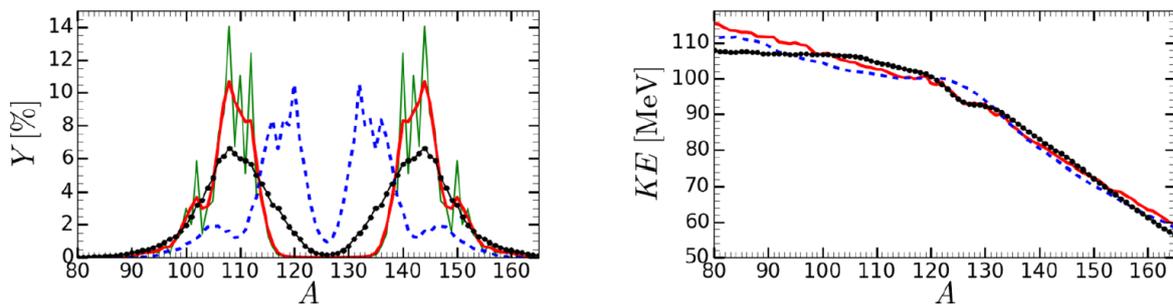


FIGURE 1.5 – Distributions $Y(A)$ et $\langle KE \rangle(A)$ obtenues avec le modèle de point de scission SPY2 (en rouge) comparées aux distributions expérimentales (en noir), pour la fission spontanée de ^{252}Cf . La courbe verte correspond aux rendements de fission sans prise en compte de la résolution expérimentale, et la courbe bleue à la version antérieure du modèle (SPY). Figure extraite de [19].

Pour pallier cette limite, il est alors nécessaire d'utiliser des modèles plus complexes afin de calculer les trajectoires qui permettent d'atteindre un point de scission à partir du point selle : c'est l'approche dynamique. Une de ces méthodes consiste alors à définir N coordonnées collectives q_i (N est généralement compris entre 3 et 5) pour décrire le noyau composé, et de résoudre

les équations couplées de Langevin à N dimensions associées à ce système [20]. L'ingrédient principal de ces équations est la surface d'énergie potentielle $V(\mathbf{q})$, souvent calculée à partir d'une méthode macro-micro. La résolution de ces équations nécessite de connaître le tenseur d'inertie et le tenseur de friction du système, dépendants aussi des coordonnées q_i . Différentes méthodes existent pour calculer ces tenseurs, voir par exemple [21, 22]. Enfin, les équations de Langevin font intervenir une force aléatoire, et doivent donc être résolues de manière stochastique afin d'échantillonner plusieurs trajectoires du noyau composé dans le potentiel V , et donc d'obtenir les distributions relatives à la fission (voir Figure 1.6). Cette méthode est parfois dénommée méthode de dissipation-fluctuation.

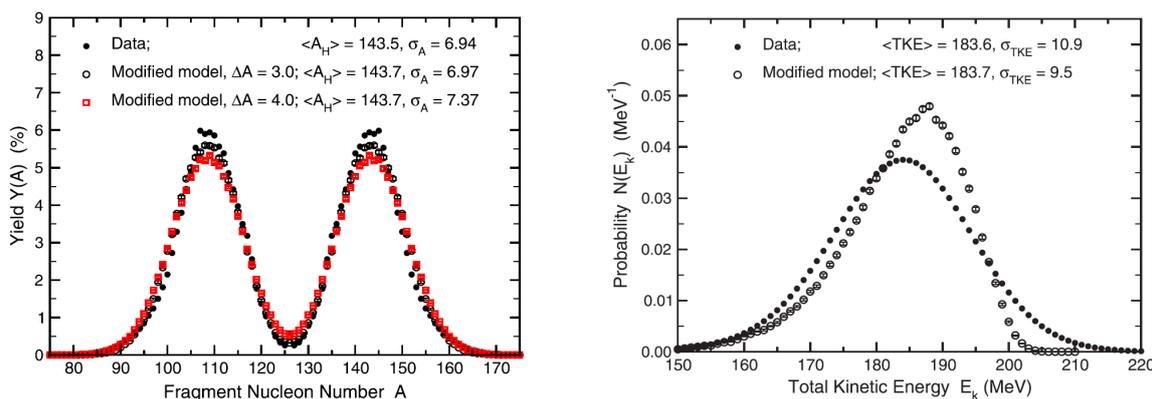


FIGURE 1.6 – Rendements en masse et en TKE (pré-neutron) pour la fission spontanée du ^{252}Cf obtenus par résolution des équations de Langevin. Figures extraites de [22].

Une méthode alternative à la résolution des équations de Langevin consiste à supposer que le tenseur d'inertie est négligeable (mouvement très amorti). L'équation ainsi obtenue décrit un mouvement brownien, et peut donc être résolue en échantillonnant une marche aléatoire dans le potentiel [23, 24].

Méthodes microscopiques

Dans le cadre de la description de la fission, les méthodes microscopiques [25] désignent les méthodes liées à la théorie du champ moyen auto-cohérent, qui s'exprime par l'équation de Hartree-Fock (HF) ou Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) (voir Annexe A). Ces méthodes font appel à une interaction nucléaire effective, contrairement aux méthodes *ab initio* qui utilisent l'interaction nucléon-nucléon dérivée de la QCD. Ces méthodes sont également appelées DFT, pour *Density Functional Theory*.

Une première approche consiste à utiliser l'hypothèse adiabatique, qui suppose que les excitations collectives et intrinsèques ne sont pas couplées. Ainsi, seules les excitations collectives sont prises en compte, et évoluent dynamiquement. Cette hypothèse est justifiée par le fait que l'évolution collective du noyau est lente par rapport au mouvement individuel des nucléons. En effet, le temps caractéristique associé à la descente du point selle jusqu'au point de scission est de l'ordre de 10^{-21} s.

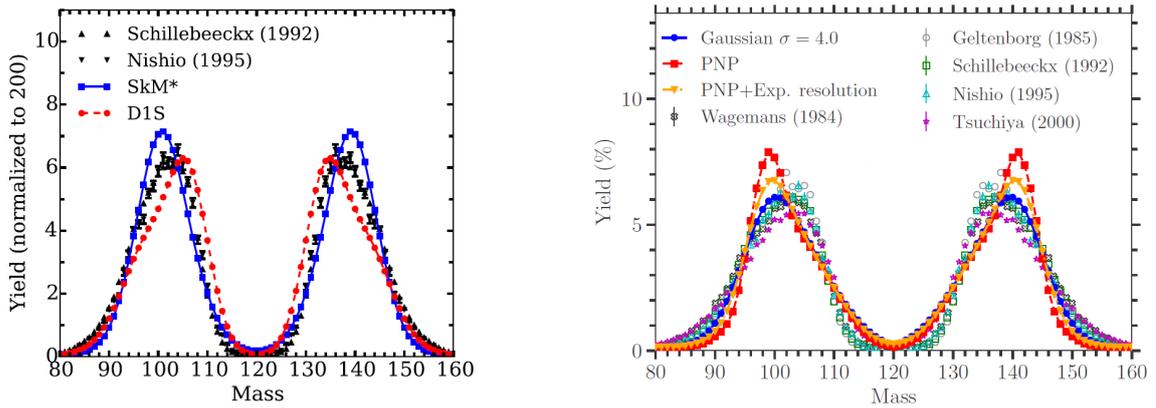
Le modèle TDGCM (*Time-Dependent Generator Coordinate Method*), communément utilisé pour décrire la fission et brièvement décrit en Annexe A.4, est par exemple basé sur cette hypothèse adiabatique. Dans ce modèle, les états du noyau sont paramétrés par un nombre réduit N de coordonnées collectives, qui sont généralement les moments quadrupolaire q_{20} et octupolaire q_{30} ($N = 2$). Ainsi, la surface de potentiel $V(q_{20}, q_{30})$ est calculée à partir de l'équation HFB (statique), puis l'équation GCM dépendante du temps est résolue. Finalement, en intégrant les probabilités de chaque configuration le long de la ligne de scission (si $N = 2$), il est possible d'obtenir les rendements de fission en masse et en charge. Ces rendements sont

TABLEAU 1.1 – Caractéristiques principales des différentes approches utilisées pour décrire la scission, d’après [35].

Méthode	Effets quantiques	Description	Coût du calcul
Point de scission	Partiels	Statique	Faible
SEP + Langevin	Partiels	Statique + Dynamique	Faible
DFT + TDGCM	Complets	Statique + Dynamique	Modéré
TDDFT	Complets	Dynamique	Important

généralement convolués par une fonction gaussienne [26, 27]. Récemment, une méthode basée sur la projection du nombre de particules (PNP) a été mise en place afin de remplacer cette correction phénoménologique [28]. Les rendements obtenus par ces deux méthodes sont représentés en Figure 1.7.

Cependant, le modèle TDGCM présente certaines limitations, dont la plus importante concerne l’hypothèse adiabatique elle-même, qui semble invalide pour décrire l’évolution du noyau composé jusqu’à la scission [29–31]. Afin de se passer de cette hypothèse, une généralisation de la méthode TDGCM prenant en compte les excitations individuelles a été proposée [32].


 FIGURE 1.7 – Rendements en masse obtenus par calculs TDGCM (code FELIX [33]) pour la fission induite par neutron du ^{239}Pu , comparés aux données expérimentales. Les figures sont extraites de [27] (gauche) et de [28] (droite).

Une seconde approche microscopique, est l’approche purement dynamique TDDFT (*Time Dependent Density Functional Theory*), qui présente l’avantage de ne pas faire appel à l’hypothèse adiabatique. L’enjeu est alors la résolution des équations relatives au champ moyen dépendantes du temps. Il peut par exemple s’agir de l’équation HF, qui ne prend pas en compte l’appariement (modèle TDHF) [29]. À partir des équations TDHF, des corrélations d’appariement peuvent être intégrées en utilisant le modèle BCS (modèle TDHF+BCS, ou TDBC) [34]. Enfin, l’équation TDHFB, qui prend naturellement en compte l’appariement, peut être utilisée (approche nommée TDSLDA par ses auteurs) [30]. Néanmoins, les calculs associés sont très coûteux numériquement [25]. De plus, ces méthodes ne vont pas au-delà de l’hypothèse du champ moyen, et sous-estiment donc les fluctuations quantiques. Ainsi, elles permettent d’obtenir les valeurs moyennes d’observables de fission (e.g. $\langle TKE \rangle$), mais pas les distributions complètes (e.g. $Y(TKE)$, ou les rendements de fission $Y(A)$) [17].

1.2.2 Codes pour les observables de fission

Les codes modélisant l'émission des particules promptes à l'issue de la fission permettent d'une part de mieux appréhender les processus physiques à l'œuvre, mais également d'estimer des grandeurs d'intérêts pour l'évaluation des données nucléaires, quand les données expérimentales sont manquantes.

Ces observables de fission sont notamment les spectres et les multiplicités des neutrons et γ prompts de fission. Ces grandeurs sont en effet importantes pour la physique des réacteurs, car les particules promptes émises à l'issue de la fission vont interagir avec les matériaux de structure des réacteurs, ce qui peut engendrer diverses problématiques, telles que les dommages à la cuve et l'échauffement γ , par exemple. Ainsi, l'objectif des codes décrits ci-après est de prédire le plus fidèlement possible l'émission de particules promptes à l'issue de la fission.

Les résultats obtenus par ces codes sont généralement confrontés à des observables de fission obtenues expérimentalement. Dans ce cadre, il est nécessaire que les rendements de fission primaires $Y(A, TKE)$ utilisés pour reconstruire ces observables soient cohérents avec l'expérience. Pour cette raison, ces codes utilisent généralement des distributions pré-neutrons expérimentales, ou des modèles empiriques [17]. De plus, dans la plupart des cas la décroissance β des produits de fission n'est pas modélisée, dans la mesure où il s'agit d'un processus différent de la désexcitation prompte des fragments de fission.

Les principales caractéristiques des codes les plus fréquemment rencontrés sont résumées ci-dessous (voir également la Figure 1.8).

	Stochastique	Déterministe
Modèle de Weisskopf	GEF FREYA	PbP
Modèle de Hauser-Feshbach	FIFRELIN CGMF	CoH/BeoH

FIGURE 1.8 – Classification des principaux codes utilisés pour la modélisation de la désexcitation des fragments de fission.

PbP – L'approche PbP (Point-by-Point), développée par Tudora (Université de Bucarest) [36], est une méthode déterministe visant à décrire l'émission séquentielle des neutrons prompts. Ce modèle est une version améliorée du modèle de Madland-Nix [37] (aussi appelé *Los Alamos Model*). Dans ces modèles, l'émission des neutrons prompts par les fragments de fission est traitée en utilisant la théorie statistique de Weisskopf [38], qui permet de décrire le spectre en énergie des neutrons dans le centre de masse selon :

$$\phi(\epsilon_n, T) = K(T)\sigma_c(\epsilon_n)\epsilon_n \exp(-\epsilon_n/T) \quad (1.10)$$

où T est la température du noyau résiduel (de masse $A - 1$), et σ_c la section efficace du processus inverse, c'est-à-dire de formation du noyau composé (de masse A). $K(T)$ est une constante de normalisation. Les sections efficaces σ_c des fragments sont généralement calculées en utilisant des modèles de potentiel optique. Le spectre défini en (1.10) est convolué par une distribution en température résiduelle $P(T)$ afin d'obtenir le spectre intégral :

$$\Phi(\epsilon_n) = \int_0^{T_{max}} P(T)\phi(\epsilon_n, T) dT \quad (1.11)$$

La répartition de l'énergie d'excitation s'effectue en supposant que les deux fragments sont à l'équilibre à la scission, et donc de température égale : $T_L = T_H$.

À partir de ces calculs, effectués pour tous les fragments sélectionnés, le modèle PbP produit les matrices multi-paramètres $q(A, Z, TKE)$ pour les valeurs d'intérêt q , comme détaillé dans [36, 39]. En utilisant des rendements expérimentaux $Y(A, Z, TKE)$, il est alors possible de déterminer un certain nombre d'observables : $\langle q \rangle$, $\bar{q}(A)$, $\bar{q}(TKE)$, etc. Le modèle PbP ne simule cependant pas l'émission des γ prompts de fission.

FREYA – Le code FREYA est développé par Randrup (Lawrence Berkeley National Laboratory) et Vogt (Lawrence Livermore National Laboratory) [40, 41]. Il s'agit d'un code stochastique au sein duquel l'évaporation des neutrons est basée sur le modèle de Weisskopf, avec une section inverse constante :

$$\phi(\epsilon_n, T) = \frac{\epsilon_n}{T^2} \exp(-\epsilon_n/T) \quad (1.12)$$

Le moment angulaire du noyau résiduel est estimé classiquement, à partir des équations de conservation [42]. L'émission des neutrons se poursuit tant que l'énergie du fragment est supérieure à une certaine énergie de coupure au-dessus de S_n . Ensuite, l'émission des γ prompts est modélisée à partir d'un spectre de Weisskopf modulé par un facteur de forme lorentzien correspondant à la résonance dipolaire géante (voir Section 4.2.3). Cette émission statistique se poursuit jusqu'à atteindre le schéma de niveaux discrets de la base de données RIPL-3 [43], à partir duquel les transitions discrètes seront échantillonnées [44]. Contrairement aux autres codes présentés ici, FREYA prend en compte la conservation du moment angulaire (eq. (1.9)), comme détaillé dans [45]. L'énergie d'excitation intrinsèque ($E - E^{\text{rot}}$) est partagée entre les fragments en supposant $T_L = T_H$ en moyenne. Cette répartition est ensuite ajustée en multipliant l'énergie moyenne du fragment léger par un facteur $x > 1$.

CGMF – Le code CGMF est développé par Talou *et al.* (Los Alamos National Laboratory) [46, 47], et décrit la désexcitation des fragments de fission en utilisant le formalisme de Hauser-Feshbach [48]. Dans ce formalisme, détaillé en Section 4.1.2.2, les largeurs partielles de toutes les transitions possibles sont calculées après chaque émission de particule, ce qui permet de prendre naturellement en compte la compétition neutron/ γ . De plus, le calcul de ces largeurs partielles fait notamment intervenir le moment angulaire emporté par les particules, et permet donc une description plus physique de la désexcitation des fragments excités. Pour la détermination des caractéristiques des γ prompts émis lors de la désexcitation, CGMF utilise les schémas de niveaux discrets de la base de données RIPL-3 [43]. Au-delà, un continuum est décrit en utilisant un modèle de densité de niveaux. La répartition de l'énergie d'excitation s'effectue en utilisant un rapport de température $R_T(A_H) = T_L/T_H$, soit pris constant, soit paramétré masse par masse afin de reproduire $\bar{\nu}(A)$. Enfin, CGMF prend en compte les fissions de chances multiples en utilisant les probabilités d'émission de neutrons pré-fission et leurs caractéristiques calculées au préalable avec le code Hauser-Feshbach CoH₃, également développé au LANL [49, 50].

BeoH – Le code BeoH [51], récemment développé au LANL par Kawano *et al.*, propose une approche déterministe de la désexcitation des fragments de fission. Le code consiste en l'utilisation de CoH₃ pour les calculs pré-scission (probabilités des fissions de chances multiples), et du modèle HF³D (*Hauser-Feshbach Fission Fragment Decay*) [52] pour la désexcitation des fragments de fission, et inclut également la décroissance β des produits de fission. Le modèle HF³D est similaire à l'algorithme utilisé dans CGCM mais repose sur une approche déterministe plutôt que stochastique. Cette approche est particulièrement adaptée au calcul des rendements de fission (rendements indépendants et cumulés), dans la mesure où contrairement à un calcul Monte-Carlo, aucune incertitude statistique n'est induite. Cependant, un tel calcul déterministe ne permet pas d'établir de corrélation entre les observables de fission.

FIFRELIN – Enfin, le code FIFRELIN est développé au CEA Cadarache par Litaize *et al.* [53,54]. Comme CGMF, FIFRELIN est basé sur le formalisme Hauser-Feshbach et les schémas de niveaux discrets de RIPL-3 [43]. Une première différence entre ces deux codes concerne la répartition de l'énergie d'excitation. Dans FIFRELIN, la relation $R_T(A)$ n'est définie que par 2 paramètres (voir Figure 4.3) afin de reproduire $\bar{\nu}$ ou $\{\bar{\nu}_L; \bar{\nu}_H\}$, et n'est pas appliquée à l'énergie d'excitation totale, mais à l'énergie d'excitation intrinsèque ($E - E^{\text{rot}}$), comme détaillé en Section 4.1.1.2. De plus, le schéma de niveaux utilisé dans FIFRELIN comporte une zone intermédiaire entre les niveaux discrets expérimentaux et le continuum. Dans cette zone, le schéma de niveau discret est complété par des niveaux théoriques comme décrit en Section 4.1.2.3.

Le principe de fonctionnement général de FIFRELIN et les différents modèles nucléaires qui y sont utilisés seront présentés en détail dans le Chapitre 4.

GEF – Le code semi-empirique GEF est développé par Schmidt et Jurado [55]. Il s'agit d'un code stochastique dont l'objectif est de modéliser la fission dans son ensemble, à partir d'un certain nombre de modèles et de plusieurs dizaines de paramètres ajustés aux données expérimentales disponibles [55, 56]. Les rendements pré-neutrons sont ainsi calculés par GEF, en utilisant la décomposition en modes de fission, initialement introduite par Brosa [12]. L'énergie d'excitation intrinsèque totale disponible à la scission est partagée entre les deux fragments, comme décrit dans [57]. La désexcitation des fragments primaires ainsi produits s'effectue en utilisant le modèle statistique de Weisskopf pour les neutrons. La compétition neutron-gamma est prise en compte par une loi empirique. Contrairement aux autres codes présentés ci-dessus, GEF n'utilise pas de schémas de niveaux expérimentaux. Afin de reproduire les structures visibles dans le spectre de γ prompts de fission (voir Section 3.2), le code utilise une paramétrisation de l'énergie des γ dits discrets, issus de transitions E2. Dans le modèle GEF, seuls ces γ discrets emportent le moment angulaire des fragments de fission.

Au cours des sections précédentes, le phénomène de fission a été décrit, et nous avons passé en revue les diverses approches qui permettent de le modéliser plus finement. Chacun de ces modèles repose sur un nombre variable d'hypothèses et de simplifications, et présente ses propres limites et domaines d'application.

Une approche complémentaire est donc l'étude expérimentale de la fission nucléaire, qui consiste en la mesure d'un certain nombre d'observables de fission : rendements indépendants et cumulés, spectre de neutrons et de gammas prompts, etc. Ces observables sont autant d'indices sur la physique de la fission, et sont essentielles pour contraindre les modèles présentés précédemment.

1.3 Mesures multi-paramètres d'observables de fission

Dans cette section, nous allons présenter certaines expériences récentes dédiées à l'étude de la fission nucléaire. Nous allons plus particulièrement nous intéresser aux mesures multi-paramètres, qui cherchent à explorer les corrélations entre différentes observables de fission. Les dispositifs associés sont donc plus complexes, dans la mesure où plusieurs systèmes de détection différents sont requis, mais les observables ainsi mesurées permettent une compréhension plus fine du processus de fission. Précisons enfin que la description que nous proposons n'est pas exhaustive.

1.3.1 Méthode 2E

Une manière simple de détecter les fragments de fission est d'utiliser une chambre d'ionisation. L'utilisation d'une chambre double, formée de deux chambres partageant une même cathode centrale sur laquelle est déposée la source de fission, permet de détecter en coïncidence les deux fragments. D'une part, ce dispositif fournit un *fission trigger*, qui définit l'instant de la fission. D'autre part, cela permet de mesurer l'énergie cinétique des deux fragments de fission.

À partir des équations de conservation de la masse (1.5) et de la quantité de mouvement (1.7), la masse pré-neutron des fragments peut être déduite de l'énergie cinétique pré-neutron :

$$A_{L,H} = A_{NC} \times \frac{E_{H,L}}{E_H + E_L} \quad (1.13)$$

Cependant, l'énergie mesurée dans la chambre d'ionisation correspond à l'énergie post-neutron. La détermination de l'énergie pré-neutron nécessite la connaissance *a priori* du nombre de neutrons émis. En pratique, cette méthode 2E (double énergie cinétique) nécessite donc la distribution de la multiplicité des neutrons prompts en fonction de la masse des fragments : $\bar{\nu}(A)$. La détermination de la masse s'effectue alors par une résolution itérative. Plus de détails concernant cette méthode sont fournis dans la Section 2.3.5.

Une telle chambre d'ionisation double est généralement utilisée en complément de détecteurs dédiés à la détection des neutrons et/ou des γ prompts de fission, afin d'obtenir les observables associés en fonction des caractéristiques des fragments de fission (masse et énergie cinétique) [58–61]. Nous allons ici présenter deux dispositifs du JRC Geel utilisant cette méthode.

SCINTIA – Dans le dispositif SCINTIA, la chambre d'ionisation est entourée de scintillateurs organiques pour la détection des neutrons prompts de fission [58]. Ce dispositif permet ainsi de mesurer les spectres de neutrons prompts de fission (PFNS), ainsi que la multiplicité et l'énergie moyenne des neutrons prompts en fonction de la masse des fragments et du TKE. Le dispositif a également pour objectif d'étudier ces observables pour les fissions induites aux résonances ($E_n = E_{\text{résonance}}$). Les neutrons incidents sont produits par l'accélérateur linéaire GELINA.

VESPA – Le dispositif VESPA, utilisé pendant la thèse, est composé de scintillateurs LaBr_3 pour la détection des gammas prompts de fission, ainsi que de scintillateurs organiques pour les neutrons prompts. Ainsi, le dispositif permet de mesurer les spectres de γ prompts de fission (PFGS), pour différentes fragmentations. De plus, la réponse en temps des scintillateurs LaBr_3 permet d'étudier les isomères produits par fission ayant une demi-vie comprise entre la dizaine de nanosecondes et la microseconde. Ce dispositif, et les observables qu'il permet de mesurer, seront présentés en détail dans les Chapitres 2 et 3, respectivement.

1.3.2 Méthode 2E-2v

La principale limitation de la méthode 2E réside dans le fait que la masse des fragments de fission doit être déduite itérativement, en utilisant une distribution externe, dont les résultats seront par conséquent dépendants. De plus, cette méthode induit une résolution supplémentaire sur la masse des fragments de fission [62]. Pour ces raisons, des dispositifs plus complexes ont été développés, afin de mesurer simultanément l'énergie et la vitesse des fragments de fission. La méthode associée, appelée 2E-2v, permet alors d'accéder directement à la masse pré- et post-neutrons des fragments de fission, en utilisant respectivement les mesures de la vitesse et de l'énergie cinétique des deux fragments. Il est alors possible d'en déduire la multiplicité des neutrons prompts $\bar{\nu}(A)$.

Nous allons maintenant présenter plusieurs concepts récents de tels dispositifs basés sur la méthode 2E-2v. Ces dispositifs peuvent différer dans les choix technologiques concernant la mesure de la vitesse des fragments (longueur du temps de vol, détecteurs *start* et *stop*) et la mesure de leur énergie. Ces caractéristiques sont résumées dans le Tableau 1.2 pour chaque dispositif.

FALSTAFF – Dans le dispositif FALSTAFF [63, 64], développé au CEA-Saclay, l'énergie des fragments de fission est mesurée à l'aide de chambres d'ionisation simples placées à l'extrémité de chacun des deux bras du dispositif. Les signaux *start* et *stop* sont fournis dans chaque bras par des MWPC (*Multi-Wire Proportional Chamber*) distants de 50 cm, qui sont des détecteurs gazeux d'électrons. Ici, il s'agit d'électrons secondaires formés par le passage des fragments dans des feuilles minces de Mylar.

SPIDER – Le dispositif SPIDER [65, 66] du laboratoire de Los Alamos a un fonctionnement très similaire à FALSTAFF. En effet, ce dispositif utilise également des chambres d'ionisation simples pour la mesure de l'énergie des fragments. Cependant, dans SPIDER les électrons secondaires sont produits par une feuille de carbone, et sont détectés par des détecteurs MCP solides (*MicroChannel Plate*). Dans SPIDER, la longueur de vol est de 70 cm.

STEFF – Le dispositif STEFF [67, 68] est développé par l'Université de Manchester, et a été utilisé au CERN (n_TOF) ou à l'Institut Laue-Langevin (ILL) pour la mesure des γ prompts issus de la fission induite par neutron du ^{235}U et du ^{239}Pu . Ce dispositif est composé d'une chambre centrale équipée d'un détecteur *start* (feuille de forvmar+Al et MCP), et de deux bras contenant un détecteur MWPC pour le signal *stop* et une chambre d'ionisation. Deux bras supplémentaires sont placés à 45° et 135° , afin d'augmenter l'efficacité géométrique. Ces bras contiennent un détecteur MCP et une chambre d'ionisation simple, pour la mesure de l'énergie du fragment. Enfin, la chambre centrale est entourée de scintillateurs inorganiques (NaI ou LaBr₃) pour la mesure des γ prompts de fission.

VERDI – Dans le dispositif VERDI [69], développé au JRC Geel, les électrons secondaires pour le signal *start* ne sont pas générés par le passage dans une feuille mince, mais directement par le support en nickel. Ces électrons sont ensuite détectés par un détecteur MCP. Le signal *stop* et l'énergie des fragments sont déterminés à partir de détecteurs silicium planaires (PIPS) disposés autour de la source de fission. Les principaux avantages d'un tel dispositif sont une efficacité géométrique accrue, et une perte d'énergie minimale des fragments de fission avant leur détection. Cependant, l'utilisation de détecteurs silicium possède quelques limites, à cause de la création d'un plasma dans le détecteur, qui augmente le temps de vol mesuré, et dont l'estimation est délicate [70].

TABLEAU 1.2 – Récapitulatif des principales caractéristiques des dispositifs 2E-2v, d'après [64].

	FALSTAFF	SPIDER	STEFF	VERDI
Longueur de vol (m)	0.5	0.7	1	0.5
Détecteur t_{start}	MWPC	MCP	MCP	MCP
Détecteur t_{stop}	MWPC	MCP	MWPC	PIPS
Détecteur E	CI	CI	CI	PIPS

1.3.3 Spectromètres de masse

Dans un spectromètre de masse, la sélection des fragments de fission (qui sont des ions positifs) se fait en utilisant des champs électromagnétiques. Sous l'effet d'un champ magnétique \vec{B} perpendiculaire à son déplacement, un fragment de masse A , de charge ionique q et de vitesse v formera une trajectoire circulaire de rayon ρ telle que :

$$B\rho = \frac{Av}{q} \quad (1.14)$$

Ce principe physique est commun aux trois spectromètres de masse dédiés à l'étude de la fission que nous allons présenter.

LOHENGRIN – LOHENGRIN est le spectromètre de masse situé auprès du réacteur à haut flux ($\phi \sim 5 \times 10^{14}$ n/cm²/s au niveau de la source) de l'ILL de Grenoble, utilisé pour l'étude de la fission induite par neutron. Il est composé d'un aimant (champ magnétique) et d'un condensateur (champ électrique). Ces deux éléments permettent une sélection des fragments selon les rapports A/q et KE/q . L'utilisation d'une chambre d'ionisation pour la mesure de l'énergie cinétique permet alors de déterminer la masse des fragments. Ce dispositif permet de mesurer les rendements post-neutron $Y(A, Z, KE)$, et d'étudier les rapports isomériques de plusieurs noyaux, en fonction de l'énergie cinétique, ce qui permet d'étudier la distribution du moment angulaire des fragments de fission [71–73].

SOFIA – Le spectromètre SOFIA [74, 75] de l'institut GSI de Darmstadt est utilisé pour l'étude de la fission en cinématique inverse, en utilisant un faisceau relativiste d'²³⁸U (~ 650 MeV/A) sur une cible active (fission par excitation coulombienne). Les fragments de fission ainsi produits ont une vitesse importante, et par conséquent la charge ionique q est égale à la charge nucléaire Z (ions totalement épluchés). Cette quantité peut alors être déterminée avec une bonne résolution en mesurant la perte d'énergie $\Delta E \propto Z^2$ des fragments le long d'une chambre d'ionisation double. Après cette chambre, le champ magnétique produit par l'aimant ALADIN courbe la trajectoire des fragments de fission selon la relation (1.14). La courbure ρ est déterminée à l'aide de MWPC placés de part et d'autre de l'aimant. Enfin, la vitesse des fragments est mesurée par un temps de vol, ce qui permet de déduire la masse des fragments. Le spectromètre SOFIA a récemment été couplé au détecteur de neutrons NeuLAND, pour mesurer les distributions des multiplicités des neutrons prompts de fission [76].

VAMOS – Le spectromètre VAMOS [77–79], utilisé au GANIL fonctionne également en cinématique inverse. Cependant, le faisceau utilisé est bien moins énergétique (~ 6 MeV/A) et les fissions sont alors produites par transfert de nucléon ou par fusion. Par conséquent, plusieurs systèmes peuvent être produits à l'issue de la réaction inverse. L'identification du système fissionnant, et de son énergie d'excitation, est réalisée en mesurant la perte d'énergie du projectile émis par la réaction de transfert dans un détecteur annulaire en silicone nommé SPIDER. Les fragments de fission sont identifiés par le spectromètre VAMOS. La rigidité magnétique $B\rho$ est déduite de la position des fragments mesurée dans des chambres d'ionisation placées en sortie du dipôle et des quadropoles magnétiques. À partir d'une mesure de la vitesse des fragments par temps de vol, la quantité A/q est déterminée à partir de l'équation (1.14). Indépendamment, la masse des fragments est déterminée à partir de leur vitesse et de leur énergie cinétique. À partir de ces deux quantités A et A/q , une nouvelle valeur de la masse est reconstruite, possédant une résolution supérieure à la valeur initialement mesurée. Enfin, la charge nucléaire Z est déterminée à partir de la perte d'énergie des fragments, en étudiant les corrélations $\Delta E-E$.

1.3.4 Matrices de détecteurs

Nous allons présenter ici trois dispositifs expérimentaux principalement dédiés à la mesure des particules promptes émises lors de la fission. Le point commun à ces dispositifs est l'utilisation d'un nombre important de détecteurs, ce qui permet de maximiser l'efficacité de détection.

NEUANCE – Le dispositif NEUANCE du laboratoire de Los Alamos est un ensemble de 21 scintillateurs organiques (stilbene) pour la détection de neutrons prompts de fission, disposés en cylindre au centre du dispositif DANCE [80]. DANCE est formé de 160 scintillateurs rapides BaF₂ pour la détection des γ prompts de fission, en géométrie 4π [81]. Ainsi, le dispositif NEUANCE

peut être utilisé pour la mesure des corrélations neutrons-gammas, particulièrement intéressantes dans le cadre de l'étude du processus de désexcitation prompt des fragments de fission.

ν -ball – Le spectromètre hybride ν -ball, développé à l'IJCLab, est composé de détecteurs semi-conducteurs au Germanium, de scintillateurs BGO et de scintillateurs LaBr₃, pour la mesure des γ prompts de fission [82]. Cette configuration permet de combiner les avantages propres à chaque système de détection. Les détecteurs au Germanium présentent une excellente résolution énergétique, ce qui rend possible l'identification des noyaux émetteurs par spectroscopie γ . Les scintillateurs BGO servent de blindage anti-Compton pour les détecteurs Germanium. Enfin, les scintillateurs LaBr₃ sont utilisés pour leur très bonne résolution temporelle. Les neutrons prompts peuvent également être détectés par diffusion dans les scintillateurs LaBr₃ [83].

Chi-Nu – Le dispositif Chi-Nu de Los Alamos désigne deux matrices de détecteurs pour les neutrons prompts de fission [84]. La première est constituée de 22 détecteurs Lithium/verre pour la détection des neutrons prompts de basse énergie ($E \lesssim 1.6$ MeV). La seconde contient 54 scintillateurs organiques EJ-309, qui permettent la détection des neutrons dont l'énergie est supérieure à 0.9 MeV. Ces scintillateurs peuvent également détecter les γ prompts de fission, et les discriminer des neutrons prompts (voir par exemple Section 2.4.2). Ainsi, la seconde configuration du dispositif Chi-Nu permet l'étude des corrélations entre neutrons et γ prompts de fission [85].

Conclusion

Durant ce chapitre, le processus de fission a été détaillé, et les modèles visant à en décrire certaines étapes particulières ont été présentés. Des dispositifs expérimentaux actuellement développés pour l'étude multi-paramètres de la fission ont également été brièvement décrits. Le développement conjoint de ces dispositifs, qui permettent d'accéder à des observables de fission plus fines, et de modèles théoriques plus performants est nécessaire pour mieux comprendre certains aspects de la fission, par exemple la répartition en énergie d'excitation, ou le moment angulaire initial des fragments de fission.

L'objectif de ce travail de thèse s'inscrit dans ce cadre. Il s'agit en effet de contraindre les modèles nucléaires utilisés dans le code FIFRELIN, présenté en détail dans le Chapitre 4. Pour cela, des mesures d'observables multi-paramètres, notamment les corrélations entre fragments et γ prompts de fission, ont été réalisées à l'aide du dispositif VESPA. Ce dispositif est détaillé dans le Chapitre 2, et les résultats obtenus sont exposés dans le Chapitre 3. Finalement, dans le Chapitre 5, les prédictions de FIFRELIN sont comparées aux mesures effectuées avec VESPA.

Description du dispositif expérimental VESPA

Sommaire

2.1	Présentation générale	27
2.2	Les scintillateurs au bromure de lanthane (III)	28
2.2.1	Principe de fonctionnement des scintillateurs inorganiques	29
2.2.2	Caractérisation des détecteurs	30
2.2.3	Bruit de fond intrinsèque	34
2.3	La double chambre d'ionisation	35
2.3.1	Présentation générale	35
2.3.2	Orientations des fragments de fission	37
2.3.3	Perte d'énergie des fragments	38
2.3.4	<i>Pulse Height Defect</i>	39
2.3.5	Méthode 2E	41
2.3.6	Résolution	42
2.4	Les scintillateurs organiques	43
2.4.1	Détection des neutrons	43
2.4.2	Discrimination neutron/ γ	44
2.5	Simulation sous Geant4	46
2.5.1	Motivations	46
2.5.2	Définition de la géométrie	47
2.5.3	Processus physiques	47
2.5.4	Vérification	48

2.1 Présentation générale

Le dispositif VESPA, pour *VErsatile γ SPectrometer Array*, consiste en un ensemble de détecteurs pour la mesure multi-paramètres d'observables de fission au JRC Geel. Comme son nom l'indique, il est composé de plusieurs scintillateurs inorganiques ($\text{LaBr}_3(\text{Ce})$) dédiés à la mesure des γ prompts de fission (Section 2.2). Une double chambre d'ionisation (Section 2.3) pour la mesure de l'énergie cinétique des fragments de fission est placée au centre du dispositif. Enfin, un ensemble de scintillateurs organiques (Section 2.4) pour la détection des neutrons vient compléter le dispositif. L'analyse des signaux de sortie de tous ces détecteurs se fait au moyen d'un digitaliseur multicanal ADQ14 (SP Devices). Une photographie du dispositif complet est donnée en Figure 2.1. Au centre de la chambre d'ionisation se trouve un support en Nickel sur lequel est déposée une source de ^{252}Cf . Cet élément, de demi-vie $T_{1/2} = 2.6$ ans fissionne spontanément avec un rendement $Y_{SF} = 3.1\%$ [86].

L'objectif de la thèse n'étant pas le déploiement du dispositif, la mise en place du dispositif, la programmation du digitaliseur et le développement de l'analyse de données ont été réalisés préalablement à mon arrivée par A. Göök, W. Geerts, M. Vidali et S. Oberstedt. Ma contribution

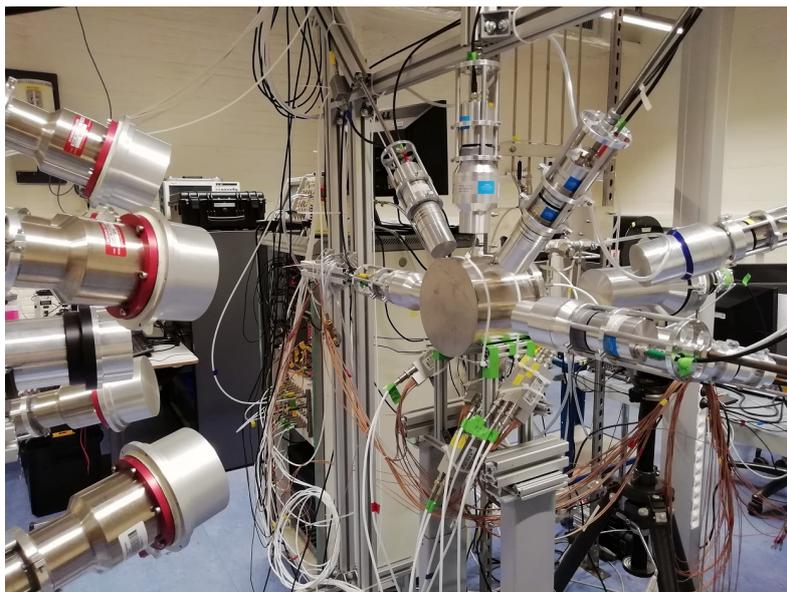


FIGURE 2.1 – Photographie du dispositif VESPA.

au développement de VESPA a consisté en l'étalonnage et la caractérisation des scintillateurs inorganiques (détaillés en Section 2.2.2), au développement de la simulation GEANT4 décrite en Section 2.5 et en la participation à l'analyse des données (dont les résultats sont présentés en Chapitre 3).

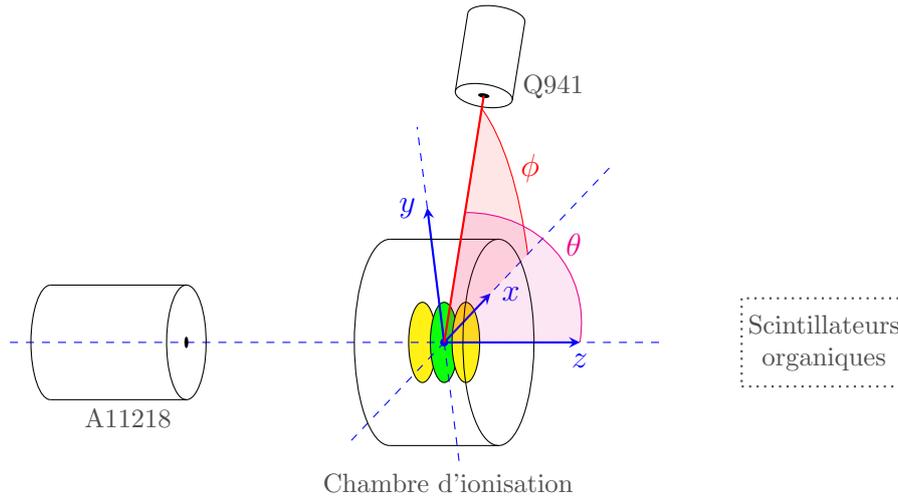
2.2 Les scintillateurs au bromure de lanthane (III)

Les détecteurs gammas utilisés dans le dispositif VESPA sont des scintillateurs inorganiques au bromure de lanthane dopés au Ce^{3+} à hauteur de 5%, que l'on notera $LaBr_3(Ce)$ ou plus simplement $LaBr_3$. Ces détecteurs sont assez récents, dans la mesure où ils ont été développés au début des années 2000 [87–89]. Ils sont actuellement produits par l'entreprise Saint-Gobain Crystals¹. Les caractéristiques (taille des cristaux et la position relative à la source de californium) des 8 scintillateurs cylindriques $LaBr_3$ qui composent le dispositif VESPA sont indiquées dans le Tableau 2.1, et leur orientation est schématisée en Figure 2.2.

TABLEAU 2.1 – Caractéristiques des scintillateurs $LaBr_3$ dans VESPA.

Indice	Nom	Dimensions du cristal (diamètre × longueur, en mm)	Distance à la source (cm)	Orientation (θ , ϕ)
0	A11218	88.9×203.2	32.44	(180° , 106°)
1	Q489	50.8×50.8	13.98	(90° , 139°)
2	Q491	50.8×50.8	13.12	(90° , 41°)
3	5414	50.8×50.8	13.33	(89° , 91°)
4	5415	50.8×50.8	13.43	(88° , -2°)
5	5416	50.8×50.8	14.58	(90° , 180°)
6	IKDA ^a	76.2×76.2	31.02	(150° , 27°)
6	A14401 ^b	76.2×76.2	31.02	(150° , 27°)
7	A14400	76.2×76.2	31.64	(150° , -29°)

^a jusqu'en septembre 2019^b à partir de mars 20201. Saint-Gobain Crystals, <https://www.crystals.saint-gobain.com/>

FIGURE 2.2 – Système de coordonnées utilisé pour le placement des détecteurs LaBr_3 .

2.2.1 Principe de fonctionnement des scintillateurs inorganiques

Les scintillateurs inorganiques sont des cristaux, qui possèdent une structure en bandes (bande de valence et bande de conduction). Quand un rayon gamma interagit avec le cristal, l'énergie apportée va faire migrer des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction, créant des paires électrons-trous. L'ajout d'impuretés au cristal génère des états énergétiques situés entre la bande de conduction et la bande de valence appelés états activateurs, comme représenté en Figure 2.3. Les trous créés par le rayon gamma vont migrer vers les états activateurs et les ioniser (2). Ces états ionisés vont alors capturer les électrons présents dans la bande de conduction, et seront alors laissés dans un état excité (3). Un autre phénomène qui peut mener à l'excitation de l'activateur est la formation d'excitons autopiégés, qui sont des états électrons-trous liés piégés dans le cristal, qui peuvent ensuite transmettre leur énergie à l'activateur [90, 91]. Dans tous les cas, l'état activateur va se désexciter en émettant un photon dont la longueur d'onde se situe dans le spectre visible : c'est la luminescence [92, 93] (4). Dans les scintillateurs LaBr_3 , ce sont les ions Ce^{3+} qui jouent ce rôle de centre de luminescence [88, 92]. Le rendement de scintillation de ces détecteurs est de 63 photons de scintillations par keV du γ incident. Le temps de décroissance associé est de l'ordre de 16 ns [94], bien inférieur au temps de décroissance caractéristique d'un scintillateur $\text{NaI}(\text{Tl})$, qui est de l'ordre de 230 ns [92].

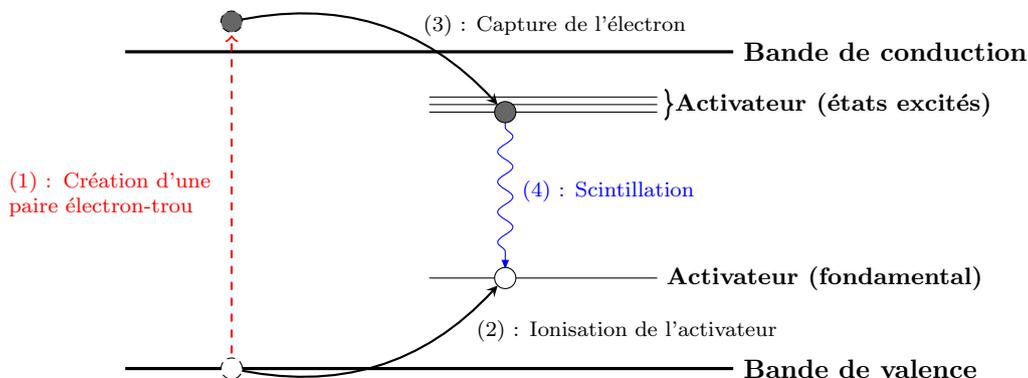


FIGURE 2.3 – Structure en bande d'un scintillateur inorganique, d'après [92, 93].

Le cristal est entouré d'un réflecteur, afin de diriger la lumière émise vers le photomultiplicateur (PMT) dont le rôle est de la transformer en signal électrique. Un schéma de ce dispositif est présenté en Figure 2.4. Le premier élément du PMT est une fenêtre transparente en verre sur

laquelle est déposée une fine couche de matériau semi-transparent qui constitue la photocathode. L'interaction de la lumière de scintillation avec cette photocathode va générer des photo-électrons. On appelle alors efficacité quantique le rapport entre le nombre de photons incidents et le nombre de photo-électrons produit par cette photocathode. Les scintillateurs de VESPA sont équipés de PMT ayant une photocathode en super-bialkali (CsKSb)², pour laquelle le maximum d'efficacité est d'environ 35%, et se situe autour de 400 nm. Cette photocathode est donc particulièrement adaptée aux scintillateurs LaBr₃(Ce), dont la longueur d'onde du maximum d'émission est de 380 nm. Les électrons ainsi produits par la photocathode sont ensuite démultipliés par des dynodes successives, ce qui amplifie le signal électrique en sortie du PMT.

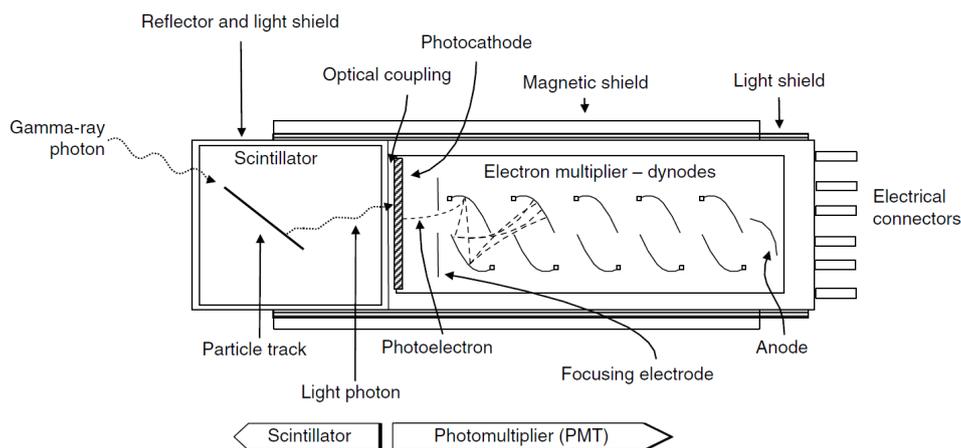


FIGURE 2.4 – Principe de fonctionnement d'un scintillateur couplé à un photomultiplicateur. Figure extraite de [93].

2.2.2 Caractérisation des détecteurs

L'ensemble des détecteurs LaBr₃ du dispositif VESPA ont été étalonnés courant 2020 en utilisant diverses sources produisant des rayons gammas allant de 81 keV (¹³³Ba) à 9 MeV (⁵⁸Ni(*n*, γ)). Ces mesures permettent par ailleurs d'étudier les différentes caractéristiques de ces détecteurs : résolution énergétique, résolution temporelle, efficacité. À titre d'exemple, la Figure 2.5 représente les spectres obtenus avec 3 des sources d'étalonnage utilisées.

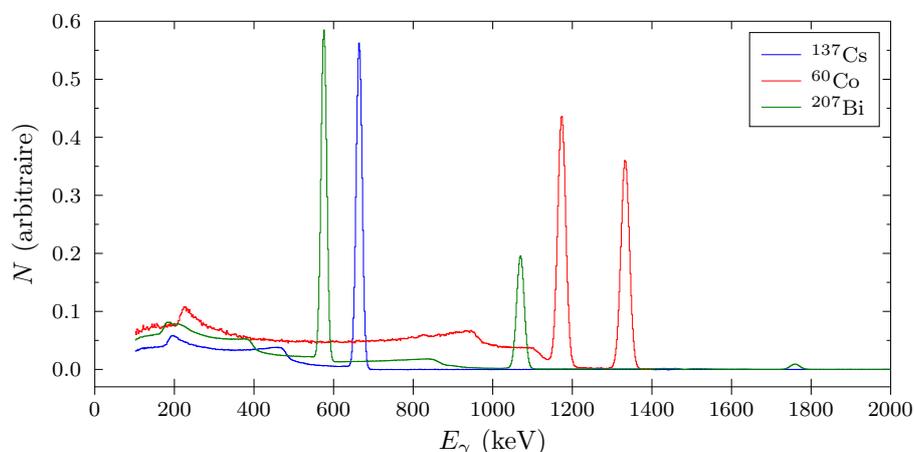


FIGURE 2.5 – Spectres obtenus avec le détecteur 5415, pour 3 sources d'étalonnage différentes.

2. Hamamatsu Photonics, <https://www.hamamatsu.com/>

2.2.2.1 Résolution énergétique

Si l'on suppose que les pics ont une distribution gaussienne, la résolution d'un détecteur à l'énergie E est définie comme :

$$R = \frac{\text{LMH}}{E} = \frac{2.355 \times \sigma}{E} \quad (2.1)$$

où σ est l'écart-type de la distribution et LMH la largeur à mi-hauteur du pic. Dans un scintillateur, cette résolution énergétique peut être décomposée en plusieurs contributions [92, 93, 95] :

$$R = R_{stat} + R_{np} + R_c + R_{tr} \quad (2.2)$$

où R_{stat} est la résolution liée à la statistique de Poisson du nombre de photo-électrons collectés ($N_{phe} \propto E$) : $R_{stat} = 2.355\sqrt{(1 + \epsilon)/N_{phe}}$ avec ϵ la variance associée au gain électronique (environ égale à 0.3 pour les PMT utilisés avec VESPA [96]). R_{np} est la contribution liée à la non-proportionnalité du rendement de scintillation à l'énergie du γ incident. R_c est la résolution liée aux éventuels défauts présents dans le cristal et la non-homogénéité des conditions de réflexion autour du détecteur. Enfin, R_{tr} est la résolution de transfert, qui quantifie la variation de la probabilité qu'un photon de scintillation en sortie du cristal produise un photo-électron, due par exemple à la non-homogénéité de la photocathode. En pratique, les deux dernières contributions ne dépendent pas de l'énergie, et la résolution de transfert est généralement considérée comme étant négligeable. R_{np} peut être une contribution importante à la résolution totale, mais dépend moins fortement de l'énergie que R_{stat} . Ainsi, la résolution totale peut prendre la forme empirique [93] :

$$R(E) = \frac{a}{\sqrt{E}} + b \quad (2.3)$$

La résolution des scintillateurs de VESPA a donc été mesurée pour diverses énergies, et les résultats obtenus sont représentés en Figure 2.6. On remarque sur cette figure que la résolution est légèrement meilleure pour les détecteurs les moins volumineux. Ce phénomène peut s'expliquer par une plus forte inhomogénéité du cristal, et du réflecteur qui l'entoure (terme R_c dans l'équation (2.2)) pour les détecteurs plus volumineux. Dans tous les cas, cette résolution est bien meilleure que la résolution typique d'un scintillateur NaI(Tl), qui est d'environ 7 % à 662 keV [92], représentée par un carré gris en Figure 2.6. Ce résultat s'explique d'une part par un meilleur rendement de scintillation [87] (diminution de R_{stat}) et d'autre part par une diminution de la non-proportionnalité des cristaux de LaBr₃ par rapport au NaI [97].

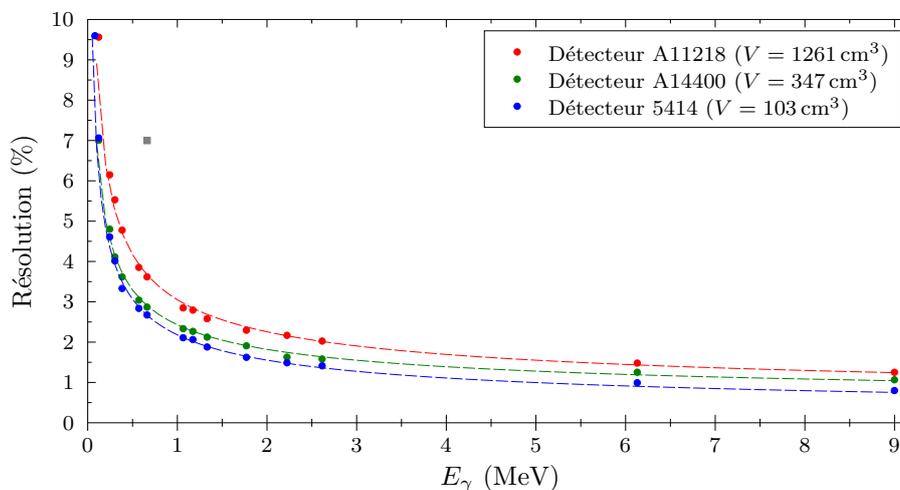
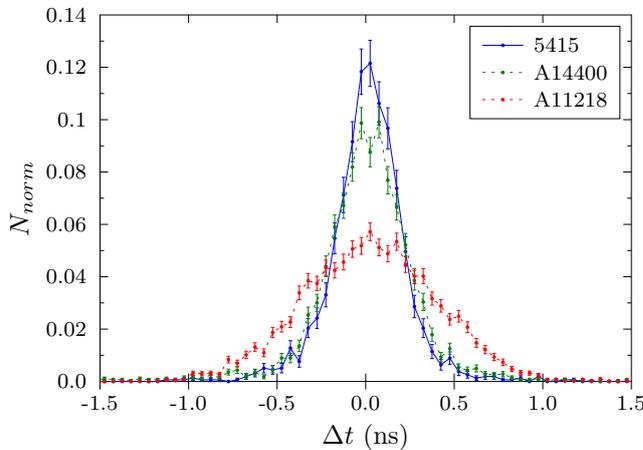


FIGURE 2.6 – Évolution de la résolution des scintillateurs LaBr₃ en fonction de l'énergie. Les courbes en pointillés sont des régressions obtenues en utilisant l'équation (2.3).

2.2.2.2 Résolution temporelle

La seconde caractéristique intéressante des scintillateurs au bromure de lanthane est leur très bonne résolution temporelle. Cette propriété dépend de plusieurs paramètres, parmi lesquels les temps caractéristiques de montée et de décroissance de la scintillation, la géométrie du cristal et la fluctuation du temps de transit des électrons [98]. Ainsi, la résolution temporelle dépend en premier lieu de la nature du cristal. Dans le cas du $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$, les constantes de temps sont $\tau_r = 0.7 \text{ ns}$ (montée) et $\tau_d = 16 \text{ ns}$ (décroissance), ce qui fait de ce détecteur un scintillateur rapide, par comparaison aux scintillateurs $\text{NaI}(\text{Tl})$ ou BGO.

En utilisant la coïncidence $\gamma\gamma$ d'une source de ^{60}Co , qui génère 2 photons de 1173 et 1332 keV, il a été possible de quantifier la résolution temporelle des détecteurs de VESPA. Pour cela, un détecteur de référence est utilisé, dont le rôle est de définir le temps t_r qui correspond à la détection du photon de 1332 keV (pic photoélectrique). Pour chacun des autres détecteurs, si le second photon est détecté, la quantité $\Delta t = t - t_r$ est calculée. Les résultats ainsi obtenus en utilisant le détecteur 3 (5414) comme référence sont indiqués en Figure 2.7.



Détecteur	LMH _{coinc}
0	902 ± 9 ps
1	564 ± 10 ps
2	569 ± 10 ps
4	523 ± 9 ps
5	520 ± 11 ps
6	671 ± 9 ps
7	674 ± 9 ps
HPGe	12.8 ± 0.3 ns

FIGURE 2.7 – Distributions temporelles normalisées et largeurs à mi-hauteur associées (à droite), obtenues en coïncidence avec le détecteur 5414 en utilisant une source de ^{60}Co ($E_\gamma > 1 \text{ MeV}$).

Sur cette figure, on remarque que la résolution dépend bien de la taille des cristaux : plus ce dernier est volumineux, plus la résolution temporelle est dégradée. Cet effet s'explique par une plus grande dispersion du temps de parcours des photons de scintillation jusqu'à la photocathode, et de l'accroissement de la probabilité d'auto-absorption. Néanmoins, on observe également une légère différence entre les détecteurs Q489 et Q491 (1 et 2) par rapport aux détecteurs de même volume (4 et 5). Cela peut être dû à l'utilisation de PMT différents, ou au fait que ces détecteurs sont moins récents.

La distribution Δt obtenue en Figure 2.7 peut être approchée comme une gaussienne dont l'écart-type σ_{coinc} est alors :

$$\sigma_{coinc}^2 = \sigma_{r+i}^2 = \sigma_r^2 + \sigma_i^2 \quad (2.4)$$

où $\text{LMH}_i = 2.355 \times \sigma_i$ est la résolution temporelle du détecteur i . Les détecteurs ont été réunis en groupes pour lesquels la résolution temporelle est supposée identique ($\{1,2\}$, $\{3,4,5\}$ et $\{6,7\}$). Ces résolutions ont alors été estimées en utilisant l'équation (2.4), et sont indiquées dans le Tableau 2.2.

TABLEAU 2.2 – Résolutions temporelles des LaBr_3 estimées pour la coïncidence $\gamma\text{-}\gamma$ du ^{60}Co .

Détecteur	A11218	Q489	Q491	5414	5415	5416	A14401	A14400
LMH _i (ps)	823 ± 10	431 ± 10			369 ± 5			562 ± 8

Ces estimations de la résolution temporelle ne sont valables que pour $E_\gamma \gtrsim 1$ MeV. Or, la résolution temporelle des détecteurs dépend de l'énergie des photons incidents. En effet, les photo-électrons suivent une distribution de Poisson, et la prise en compte de cette dispersion dans les modèles induit une dépendance en $1/\sqrt{N_{phe}}$ [98]. Ainsi, au premier ordre, on peut écrire $\sigma_t \propto 1/\sqrt{E}$. Une telle dépendance est illustrée en Figure 2.8, qui représente l'évolution de la largeur à mi-hauteur de la distribution temporelle des γ prompts de fission en fonction de l'énergie mesurée par le scintillateur. Dans ce cas, le temps de référence est donné par la chambre d'ionisation quand une fission est détectée : $t_r = t_{fission}$. Par conséquent, la largeur à mi-hauteur obtenue en Figure 2.8 ne correspond pas exactement à la résolution temporelle intrinsèque des scintillateurs LaBr₃, mais contient une contribution indépendante de l'énergie qui correspond à la résolution temporelle de la chambre d'ionisation, comme indiqué dans l'équation (2.4). De plus, il s'agit dans cette figure d'une dépendance à l'énergie déposée, et non pas à l'énergie réelle. De ce fait, un certain nombre de photons issus de la diffusion Compton sont inclus, ce qui peut détériorer la résolution obtenue.

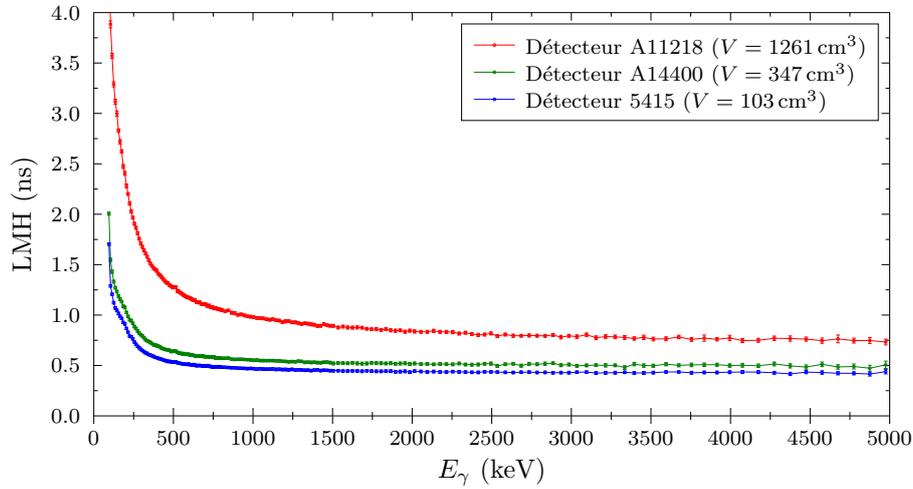


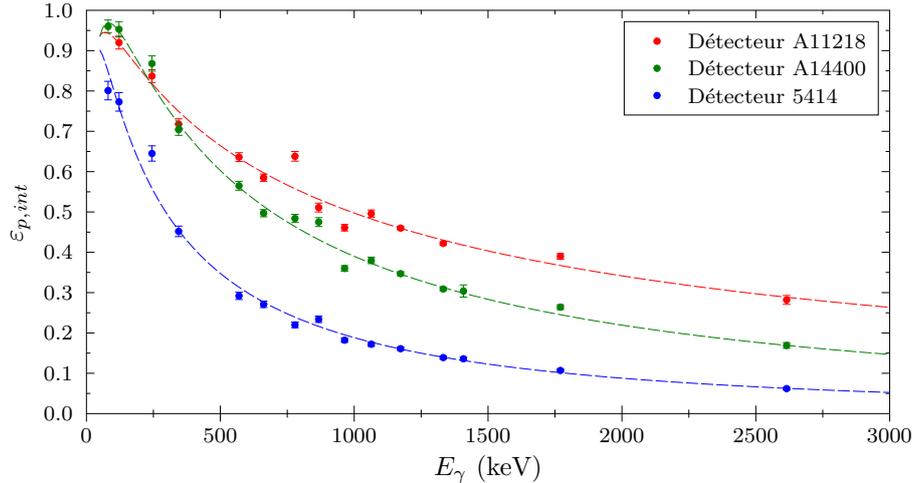
FIGURE 2.8 – Largeur à mi-hauteur du pic des γ prompts en fonction de l'énergie mesurée.

2.2.2.3 Efficacité photoélectrique

L'utilisation de sources d'activités connues a permis d'estimer l'efficacité photoélectrique des scintillateurs. L'efficacité photoélectrique totale pour un photon d'énergie E_γ est donnée par :

$$\varepsilon_{p,tot}(E_\gamma) = \frac{N_p}{\tau A I_\gamma} = \varepsilon_{p,int}(E_\gamma) \varepsilon_g \eta(E_\gamma) \quad (2.5)$$

où N_p est l'aire sous le pic photoélectrique, τ la durée de la mesure, A l'activité de la source et I_γ l'intensité de la transition. $\varepsilon_{p,int}$ désigne l'efficacité photoélectrique intrinsèque du détecteur, ε_g l'efficacité géométrique et η l'absorption des photons dans les matériaux entre la source et le détecteur. La grandeur qui caractérise le mieux les détecteurs est l'efficacité intrinsèque, dans la mesure où elle ne dépend pas de la position des sources d'étalonnage. Les paramètres ε_g et η ont été estimés à l'aide d'une simulation réalisée avec GEANT4 (voir Section 2.5). Un exemple des résultats ainsi obtenus est donné en Figure 2.9. Comme attendu, on remarque que l'efficacité photoélectrique diminue avec l'énergie des γ , et que les détecteurs les plus volumineux sont les plus efficaces, notamment à haute énergie.


 FIGURE 2.9 – Efficacités photoélectriques intrinsèques des scintillateurs LaBr₃.

2.2.3 Bruit de fond intrinsèque

Le principal inconvénient à l'utilisation des scintillateurs au bromure de lanthane est la présence d'un bruit de fond intrinsèque au détecteur. Ce bruit de fond est dû d'une part à la décroissance du ^{138}La , et d'autre part à la contamination en ^{227}Ac [99]. Le lanthane 138 décroît par désintégration β^- à hauteur de 34.5%, ce qui induit deux continus β dans le spectre, selon que le photon de 789 keV émis consécutivement à la décroissance (γ_1 dans la Figure 2.10) s'échappe du détecteur ou non. L'autre voie de désintégration est la capture électronique, qui provoque l'émission d'un photon de 1436 keV, labellisé γ_2 dans la Figure 2.10. Dans ce cas, un rayon X de réarrangement électronique est également émis, ce qui induit un décalage de 37 keV (couche K) ou de 5 keV (couche L) de l'énergie déposée dans le détecteur. On remarque dans le Tableau 2.3 que l'aspect de ce bruit de fond dépend de la taille des détecteurs : plus le détecteur est volumineux, plus la contribution des γ de désintégration du ^{138}La est importante. Il s'agit de l'effet attendu, dans la mesure où plus le détecteur est volumineux, moins la probabilité que les γ puissent s'en échapper est importante. De même, plus le cristal est grand, plus la quantité de lanthane radioactif est importante, et plus l'amplitude du bruit de fond augmente.

 TABLEAU 2.3 – Caractérisation du bruit de fond des détecteurs. Le taux de comptage de référence (détecteur A11218) est $N_{tot}^0 = 2.04 \times 10^3$ coups par seconde.

Intervalle (keV)	N_{tot}/N_{tot}^0 [100, 3000]	$N(\gamma_1)/N_{tot}$ [760, 1080]	$N(\gamma_2)/N_{tot}$ [1360, 1560]	$N(\alpha)/N_{tot}$ [1600, 3000]
A11218	1	21.1%	18.2%	3.1%
Q489	0.115	12.0%	6.1%	4.2%
Q491	0.116	11.9%	6.1%	3.9%
5414	0.115	11.8%	6.1%	3.4%
5415	0.114	11.9%	6.1%	3.4%
5416	0.116	11.8%	6.0%	5.4%
A14401	0.317	16.4%	11.5%	4.6%
A14400	0.317	16.5%	11.5%	6.1%

La contamination en ^{227}Ac est quant à elle responsable de la présence d'émetteurs α dans le cristal, issus de la chaîne de décroissance de cet élément [99, 100]. Les particules α ainsi émises vont déposer leur énergie dans le cristal, générant un bruit de fond entre 1600 et 2650 keV environ. L'énergie effective de ces interactions dépend de la réponse de chaque détecteur aux particules α et ne correspond donc pas à l'énergie réelle de ces particules, dans la mesure où les détecteurs

ont été étalonnés pour des rayons γ . D'après le tableau 2.3, l'importance relative de ce bruit de fond semble être difficile à estimer a priori, dans la mesure où elle dépend de plusieurs facteurs.

À ce bruit de fond intrinsèque s'ajoute le bruit de fond ambiant, lié à la radioactivité naturellement présente dans la pièce où s'effectue la mesure. La Figure 2.10 représente un spectre de bruit de fond obtenu avec un détecteur LaBr_3 et un détecteur germanium. Ce dernier détecteur offre l'avantage de ne pas être pollué par un bruit de fond intrinsèque et d'avoir une meilleure résolution que les scintillateurs. Il permet donc d'identifier les contributeurs au bruit de fond ambiant.

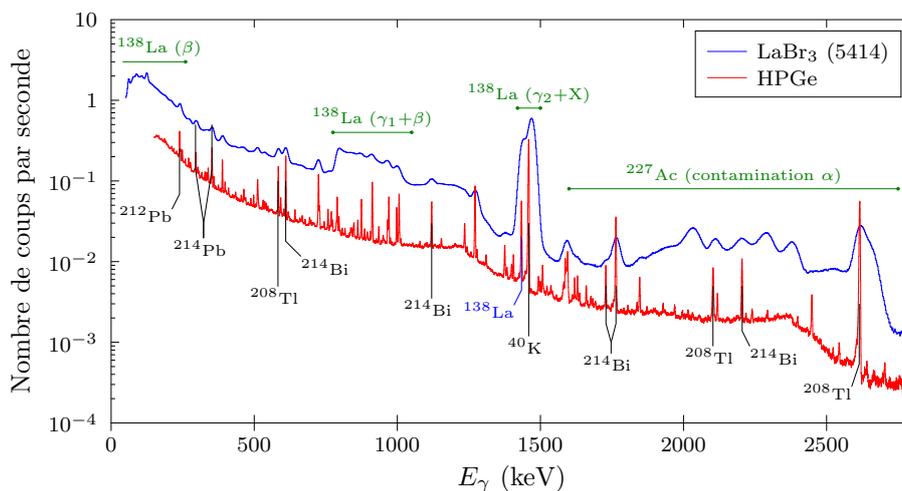


FIGURE 2.10 – Bruit de fond obtenu avec un détecteur LaBr_3 du dispositif VESPA, complété par un détecteur au germanium.

Ce bruit de fond intrinsèque n'est toutefois pas réellement problématique, étant donné que les mesures réalisées avec VESPA sont obtenues en coïncidence avec les événements de fission, ce qui permet d'éliminer une partie du bruit de fond, et également de générer des spectres d'anti-coïncidence afin d'estimer le bruit de fond résiduel (voir Chapitre 3).

2.3 La double chambre d'ionisation

2.3.1 Présentation générale

Le fonctionnement d'une chambre d'ionisation repose sur l'interaction entre les fragments émis à l'issue d'une fission et le gaz qu'elle contient. Les fragments, chargés positivement, vont ioniser le gaz et créer des paires électrons-ions (Figure 2.11). Les électrons libres ainsi générés vont migrer vers l'anode où ils seront collectés, créant ainsi un signal sous la forme d'une impulsion dont l'amplitude peut être directement reliée à l'énergie des fragments de fission. La chambre d'ionisation dans VESPA, conçue au JRC Geel, est une chambre double, c'est-à-dire composée de deux anodes de part et d'autre de la cathode centrale, au centre de laquelle une source de ^{252}Cf est déposée sur un support en nickel de 250 nm d'épaisseur. Les deux fragments de fission, émis dans des sens opposés, sont simultanément détectés dans chaque côté de la chambre d'ionisation, comme représenté en Figure 2.11. Le gaz utilisé dans la chambre d'ionisation de VESPA est du méthane (CH_4) sous une pression de 1.1 bar. L'avantage principal de ce gaz est qu'il permet d'obtenir d'importantes vitesses de dérive des électrons, sous les conditions adéquates de pression et d'intensité du champ électrique : $v_{e^-} \simeq 10 \text{ cm}/\mu\text{s}$ [92].

Des grilles de Frisch sont disposées de chaque côté de la chambre d'ionisation, entre la cathode et les anodes, afin d'obtenir un signal qui ne dépend pas du lieu de l'interaction entre les fragments

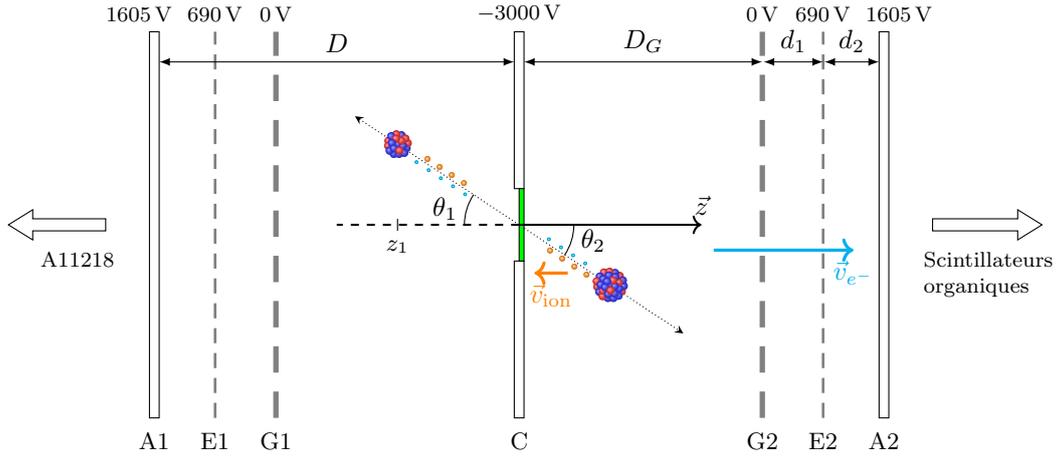


FIGURE 2.11 – Double chambre d’ionisation utilisée dans VESPA. Cette chambre est composée d’une cathode centrale (C) et de deux côtés indépendants possédant chacun une grille de Frisch (G), une électrode (E) pour la détermination de la position des fragments et une anode (A). Les distances entre les électrodes sont $D = 35$ mm, $D_G = 30$ mm, $d_1 = 2$ mm et $d_2 = 3$ mm [101].

et le gaz [102, 103]. En effet, d’après le théorème de Shockley-Ramo [104, 105], la charge induite dans une électrode par le mouvement d’une charge q à une distance z de celle-ci est donnée par :

$$Q = q \frac{z}{D} \quad (2.6)$$

où D est la distance entre l’anode et la cathode. Ainsi, en l’absence de grille de Frisch, la dérive des charges positives (ions lourds) dans le gaz va impacter le signal obtenu dans l’anode, comme illustré en la Figure 2.12a. Comme la vitesse de dérive des ions lourds est plus faible que celle des électrons, une fois que tous les électrons sont collectés, la charge totale est parasitée par ce courant de dérive, qui diminue au fur et à mesure que les ions sont collectés par la cathode [103]. L’ajout d’une grille de Frisch permet alors d’isoler l’anode des courants induits par les ions positifs, et d’obtenir un signal tel que représenté en Figure 2.12b.

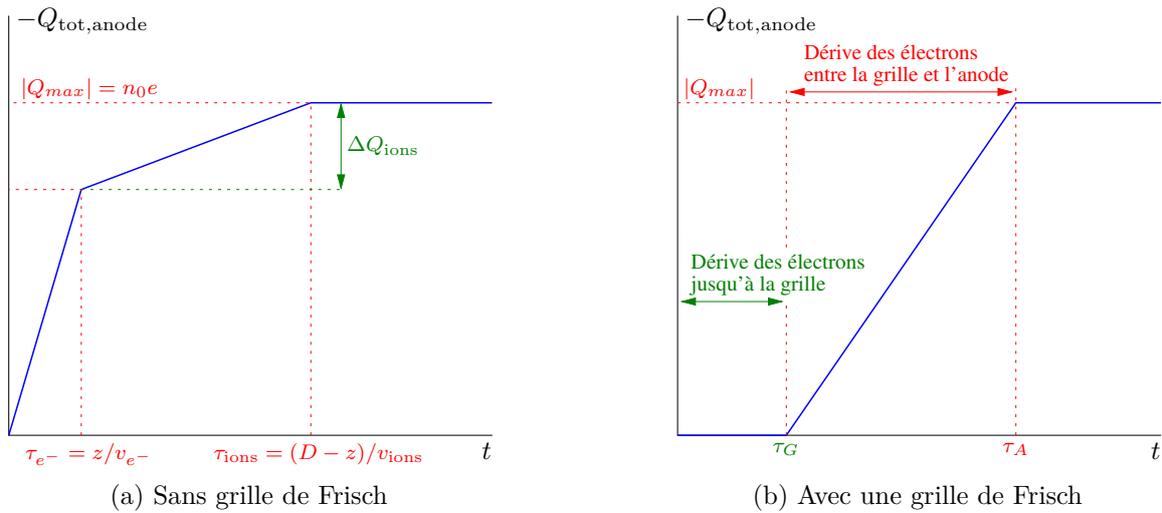


FIGURE 2.12 – Effet d’une grille de Frisch sur l’évolution temporelle de la charge collectée par l’anode d’une chambre d’ionisation, d’après [92].

Cependant, la grille de Frisch n’est pas un dispositif parfait, et est à ce titre caractérisée par

une inefficacité notée σ [103, 106], et la charge collectée par les anodes est alors donnée par :

$$Q_A^* = -n_0 e \left(1 - \sigma \frac{z}{D_G} \right) \quad (2.7)$$

où n_0 est le nombre de paires électrons-ions produites par le passage du fragment de fission dans le gaz, et D_G la distance grille-cathode.

Dans la suite de cette section, les étapes importantes de l'étalonnage de la chambre d'ionisation vont être présentées. Cet étalonnage, et les calculs qui y sont associés, sont préalables à la mesure des observables de fission, et ont été réalisés par les équipes du JRC Geel avant mon arrivée. Néanmoins, leur compréhension est nécessaire à l'analyse des données expérimentales obtenues par la suite.

2.3.2 Orientation des fragments de fission

Pour une fission binaire, l'axe de fission dans un plan est caractérisé par l'angle θ , comme illustré en Figure 2.11. On définit alors \bar{r} , qui est la distance entre la source et le centre de gravité de la trace d'ionisation [107, 108] :

$$\bar{r} = \frac{1}{n_0} \int_0^R r \rho(r) dr = z / \cos(\theta) \quad (2.8)$$

où R est le parcours du fragment de fission dans le gaz, ρ la densité d'ionisation et n_0 le nombre de paires ions-électrons créées.

Le temps de dérive des électrons τ peut être directement relié à l'angle θ via la relation :

$$\tau = \frac{D - z}{v_{e^-}} = \frac{D - \bar{r} \cos(\theta)}{v_{e^-}} \quad (2.9)$$

où v_{e^-} est la vitesse de dérive des électrons, qui dépend du gaz, de la pression et du champ électrique [92]. Dans les conditions appliquées à la chambre d'ionisation de VESPA, on a $v_{e^-} \simeq 10 \text{ cm}/\mu\text{s}$. Ce temps de dérive ne peut pas être mesuré par le dispositif. En effet, il est seulement possible de calculer δt , qui est la différence de temps entre le signal de la cathode (fission) et celui de l'anode (collecte des électrons). On peut alors définir :

$$\cos(\theta) = \frac{v_{e^-}}{\bar{r}} \times (t_0 - \delta t) \quad (2.10)$$

où t_0 est le temps de dérive des électrons générés à $\cos \theta \ll 1$, c'est-à-dire au niveau de la cathode [108, 109]. Il s'agit donc du temps maximum dans la distribution des δt , en prenant en compte les corrections de résolution temporelle. Cet angle peut être estimé de chaque côté de la chambre, et la moyenne de ces deux angles θ_1 et θ_2 définit finalement l'angle θ entre l'axe de fission et la normale à la cathode. La distribution angulaire des fragments de fission ainsi obtenue est représentée en Figure 2.13. On observe alors une distribution quasi-uniforme, qui correspond à une émission isotrope des fragments dans le référentiel du laboratoire. Des déviations par rapport à une distribution purement uniforme sont néanmoins observées pour les angles rasants (i.e. pour les faibles valeurs de $\cos(\theta)$), du fait de l'importante perte d'énergie des fragments dans le support en nickel [109]. Les valeurs $\cos(\theta) > 1$ ou $\cos(\theta) < 0$ sont quant à elles dues à des effets de résolution angulaire. Cette résolution, qui traduit l'incertitude sur $\cos(\theta)$, peut être définie comme la moitié de la dispersion de la distribution $\Delta \cos$ représentée en Figure 2.14. En prenant en compte tous les fragments tels que $\cos \theta \geq 0$, on obtient alors 0.023. Cette résolution diminue à 0.017 si l'on exclut les fragments tels que $\cos(\theta) < 0.5$ ($\theta > 60^\circ$), pour lesquels la perte d'énergie dans le support en nickel est plus importante. Dans la procédure d'analyse des données de VESPA, seuls les fragments tels que $|\Delta \cos| < \Delta_{\max} = 0.078$ et $\cos(\theta) \geq 0.7$ ($\theta \leq 46^\circ$) sont acceptés.

La chambre d'ionisation présente dans VESPA possède également deux électrodes supplémentaires (dénotées E1 et E2 en Figure 2.11) composées d'un assemblage de fils de tungstène parallèles. Ce dispositif permet notamment d'affiner la valeur de l'angle θ , comme décrit dans [108].

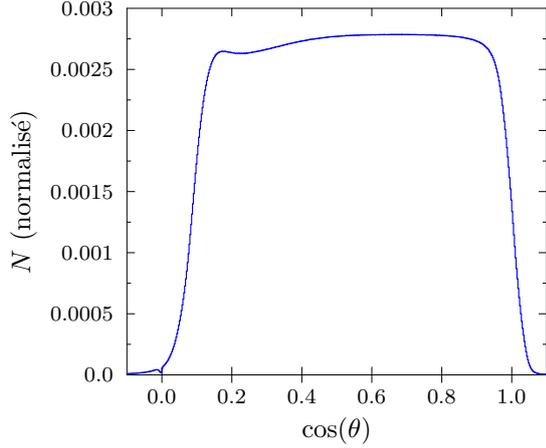


FIGURE 2.13 – Distribution angulaire des fragments de fission.

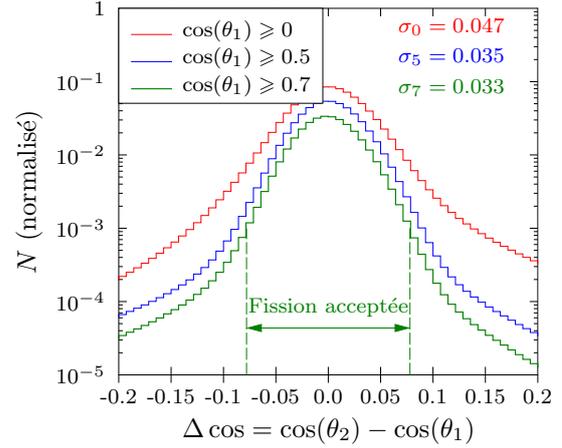


FIGURE 2.14 – Résolution angulaire de la chambre d'ionisation.

2.3.3 Perte d'énergie des fragments

La connaissance de $\cos\theta$ est importante, non seulement pour l'élaboration d'observables de fission, mais surtout parce qu'elle permet d'estimer la perte d'énergie des fragments dans le support en nickel. Comme cela a déjà été mentionné en Section 2.3.2, les fragments dont l'angle est trop rasant ne peuvent être inclus dans l'analyse. En plus de cela, quel que soit l'angle d'émission des fragments, une correction doit être apportée pour compenser la perte d'énergie des fragments dans l'échantillon avant leur interaction avec le gaz. Cette correction est d'autant plus importante pour les fragments détectés du côté 2, car ils doivent traverser le support en nickel, comme illustré en Figure 2.15.

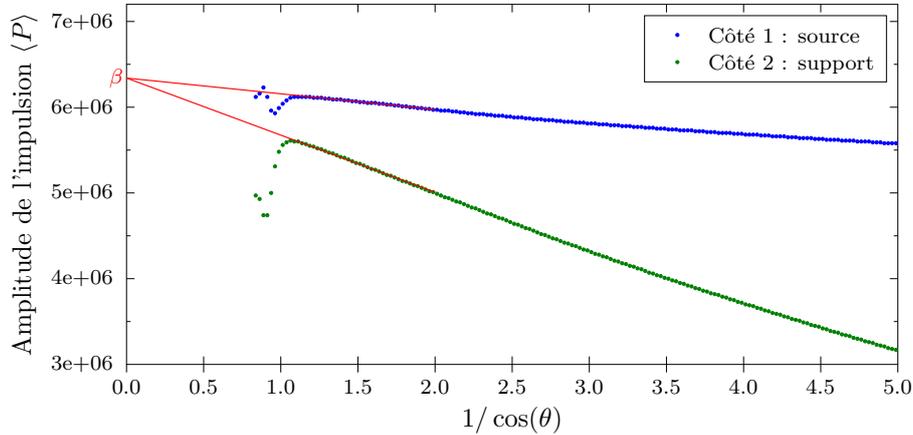


FIGURE 2.15 – Amplitudes moyennes des impulsions en sortie des anodes en fonction de l'angle d'émission des fragments de fission et régressions linéaires associées (en rouge).

Pour corriger ces effets de perte d'énergie, deux régressions linéaires ont été effectuées sur les distributions $\langle P_i \rangle / \cos\theta$. Les pentes α de ces distributions permettent de quantifier ces pertes d'énergies. On obtient alors $\alpha_1 \sim -2 \text{ MeV} \cos\theta$ et $\alpha_2 \sim -9 \text{ MeV} \cos\theta$. De plus, la même ordonnée à l'origine β a été imposée à ces deux régressions. Ce paramètre correspond alors à l'amplitude moyenne de l'impulsion dans le cas idéal où les fragments ne perdent pas d'énergie avant l'ionisation [110]. Les amplitudes corrigées sont alors données par :

$$P_i^* = P_i - \alpha_i / \cos\theta_i \quad (2.11)$$

On a donc, d'après cette équation : $\langle P_1^* \rangle = \langle P_2^* \rangle = \beta$. Ainsi, l'amplitude moyenne des impulsions ne dépend plus de l'angle des fragments ni du côté de la chambre d'ionisation. L'effet de cette correction est illustré en Figure 2.16.

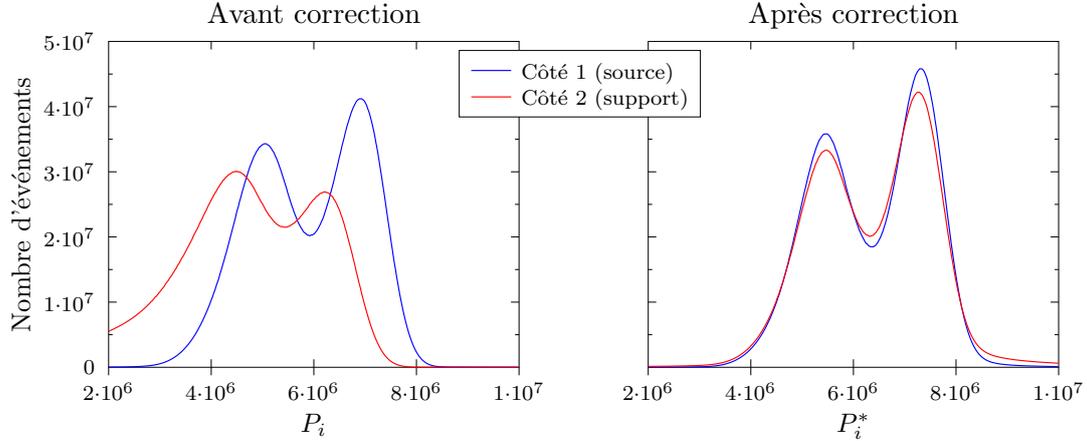


FIGURE 2.16 – Distribution des amplitudes des impulsions en sortie des anodes avant et après la correction de perte d'énergie.

On remarque alors que la correction est très satisfaisante, bien que des déviations plus faibles apparaissent toujours entre les deux côtés de la chambre. Ainsi, l'énergie mesurée e_m d'un fragment d'énergie E ne sera pas exactement la même selon le côté de la chambre dans lequel est détecté le fragment : $e_1(E) \neq e_2(E)$. Cet effet devra être pris en compte en tant qu'incertitude systématique sur les caractéristiques moyennes des fragments de fission. Pour un grand nombre d'événements isotropes, on peut considérer que l'énergie mesurée moyenne est donnée par :

$$\langle e_m \rangle \simeq \frac{1}{2} (\langle e_1 \rangle + \langle e_2 \rangle) \quad (2.12)$$

L'incertitude systématique associée à cette observable est alors :

$$\sigma_m = \frac{1}{2} |\langle e_1 \rangle - \langle e_2 \rangle| \quad (2.13)$$

2.3.4 *Pulse Height Defect*

Dans le cas d'une ionisation parfaite, l'amplitude de l'impulsion en sortie des anodes (i.e. la charge totale collectée) est proportionnelle à l'énergie cinétique des ions détectés. Cependant, dans le cas des ions lourds et des fragments de fission, plusieurs phénomènes (recombinaisons, collisions non ionisantes...) peuvent entrer en jeu et diminuer l'ionisation induite par le passage de l'ion dans le détecteur, générant ainsi un défaut d'amplitude d'impulsion, ou *Pulse Height Defect* (PHD). Ainsi, l'énergie mesurée e_m des fragments de fission et des ions lourds sera inférieure à leur énergie réelle E [111, 112] :

$$\text{PHD}(E, A, Z) = E - e_m \quad (2.14)$$

Cet effet, illustré en Figure 2.17, a en premier lieu été identifié dans les détecteurs solides en silicium [111–114]. Néanmoins, le PHD a également été observé dans les chambres d'ionisation, bien qu'il semble moins important [107, 115]. Il dépend alors de la nature du gaz présent dans la chambre d'ionisation, et certains des phénomènes qui en sont responsables peuvent être atténués en choisissant judicieusement la tension appliquée et la pression du gaz [116].

La fonction d'étalonnage la plus répandue pour le PHD est celle proposée par Schmitt pour les détecteurs silicium [113] :

$$E = a \times P^* + \text{PHD}(E, A) = (a + a'A) \times P^* + b + b'A \quad (2.15)$$

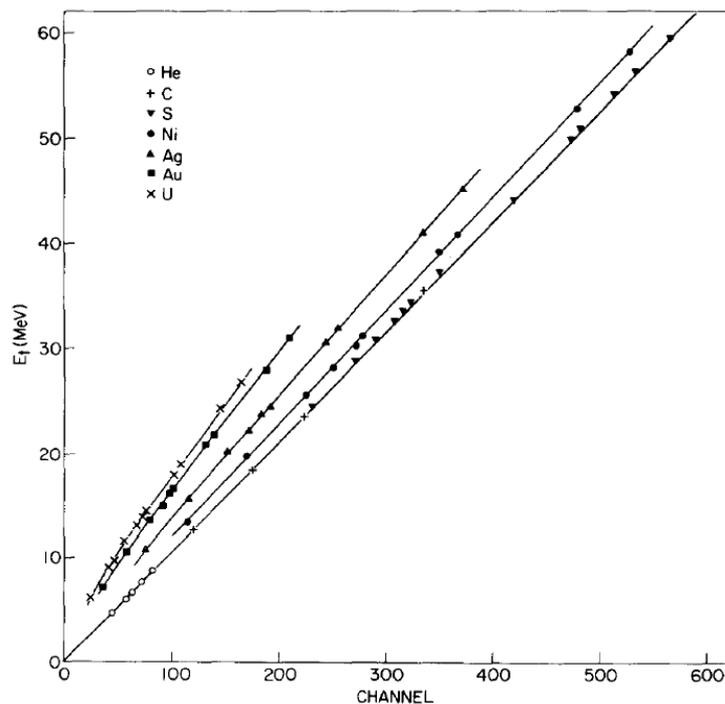


FIGURE 2.17 – Énergie réelle des ions en fonction de l’amplitude de l’impulsion obtenue avec un détecteur silicium pour différents ions ($Z=2, 6, 16, 28, 47, 79$ et 92). Figure extraite de [111].

où P^* est l’amplitude de l’impulsion (corrigée de la perte d’énergie), et $\{a, a', b, b'\}$ sont les paramètres de l’étalonnage. C’est cette forme phénoménologique qui a été choisie pour étalonner la chambre d’ionisation de VESPA. Pour cela, les paramètres de l’étalonnage ont été choisis afin de reproduire d’une part les valeurs du PHD mesurées pour le méthane dans [115], et d’autre part un $\langle TKE \rangle$ de référence ($\langle TKE \rangle = 184.1$ MeV, d’après [6]) [117].

La Figure 2.18 représente la distribution des corrections ainsi apportées aux énergies post-neutrons des fragments de fission détectés à l’un des côtés de la chambre d’ionisation. On voit que le PHD n’excède pas quelques MeV.

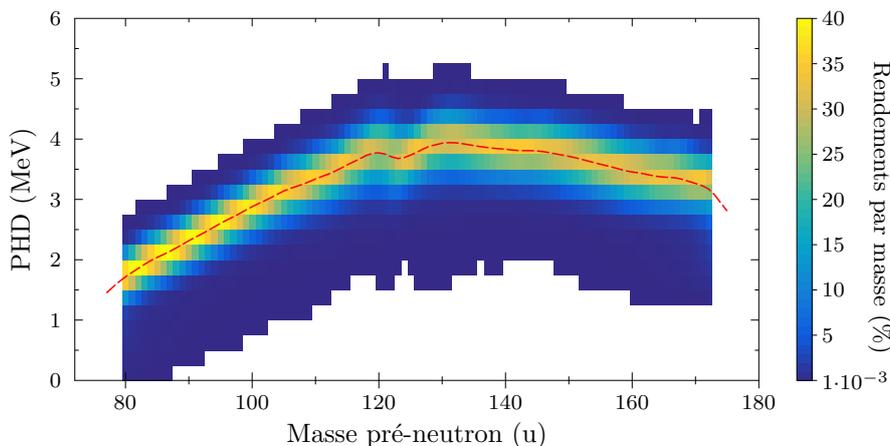


FIGURE 2.18 – Distributions des PHD en fonction des masses pré-neutron obtenues avec VESPA (normalisées à 100% pour chaque masse). La courbe rouge représente le PHD moyen : $\langle E_{post} - e_m \rangle_A$.

2.3.5 Méthode 2E

À l'issue d'un événement de fission, l'amplitude de l'impulsion en sortie de la chambre d'ionisation est liée à l'énergie cinétique post-neutrons des fragments léger et lourd, respectivement $E_{L,post}$ et $E_{H,post}$. Afin de déterminer les caractéristiques pré-neutron de ces fragments, il est possible d'utiliser une méthode itérative appelée 2E (double énergie cinétique), comme évoqué en Section 1.3.1. Nous allons ici présenter les points-clés de cette méthode.

L'initialisation de cette méthode itérative passe par la définition d'une "masse provisoire", généralement notée μ . Il s'agit d'une première approximation de la masse pré-neutron des fragments de fission obtenue à partir des énergies mesurées par la chambre d'ionisation, basée sur l'équation (1.13) :

$$A_{L,H} \simeq \mu_{L,H} = A_{NC} \times \frac{e_m^{H,L}}{e_m^H + e_m^L} \quad (2.16)$$

La première étape du processus itératif consiste à prendre en compte le PHD comme défini en Section 2.3.4, afin d'obtenir les énergies post-neutrons des fragments. Une première estimation est alors :

$$E_{post} \simeq e_m + \text{PHD}(e_m, A) \quad (2.17)$$

Ensuite, il est possible de calculer l'énergie cinétique pré-neutron E en étudiant l'émission des neutrons prompts par les fragments de fission. En supposant que cette émission est isotrope dans le centre de masse, l'énergie cinétique pré-neutron des fragments est alors donnée par :

$$E = E_{post} \times \frac{A}{A_{post}} \quad (2.18)$$

Néanmoins, à l'inverse d'une méthode 2E-2v (Section 1.3.2), la masse post-neutron des fragments ne peut pas être mesurée événement par événement avec un dispositif comme VESPA. La méthode 2E nécessite donc l'utilisation de données externes, en l'occurrence la multiplicité neutron moyenne des fragments de fission $\bar{\nu}(A, TKE_{post})$. Avec VESPA, ce sont les multiplicités obtenues au JRC Geel qui sont utilisées [118], avec la paramétrisation suivante :

$$\bar{\nu}(A, TKE_{post}) = \bar{\nu}(A) + \frac{\bar{\nu}(A)}{\bar{\nu}_{tot}(A)} \times \frac{\langle TKE_{post} \rangle(A) - TKE_{post}}{E_{sep}(A_L)} \quad (2.19)$$

où $E_{sep}(A_L)$ est appelée 'énergie de séparation du neutron' et est définie par :

$$E_{sep}(A_L) = \left[\frac{\partial \bar{\nu}_{tot}(A_L, TKE_{post})}{\partial TKE_{post}} \right]^{-1} \quad (2.20)$$

Ainsi, une nouvelle estimation de l'énergie cinétique pré-neutron peut être réalisée à l'aide de l'équation (2.18), en utilisant $A_{post} = A - \bar{\nu}(A, TKE_{post})$. Cette énergie peut alors être utilisée dans l'équation (1.13) pour affiner la valeur de la masse pré-neutron :

$$A_{L,H} = A_{NC} \times \frac{E_{H,L}}{E_H + E_L} \quad (1.13)$$

Cette nouvelle valeur de la masse peut alors être utilisée dans l'équation (2.17) pour estimer de nouveau les énergies des fragments de fission corrigées du PHD, et la procédure décrite précédemment est répétée. La procédure itérative continue alors jusqu'à ce que la valeur de la masse pré-neutron ait convergé. Dans la procédure utilisée avec VESPA, le critère de convergence est fixé à $(\Delta A)^2 \leq 10^{-4} \text{ u}^2$. Si ce critère n'est pas atteint après cinquante itérations, alors l'événement est rejeté [117]. La Figure 2.19 représente l'évolution de la distribution de la masse des fragments entre la première itération (masses provisoires) et la dernière (masses finales).

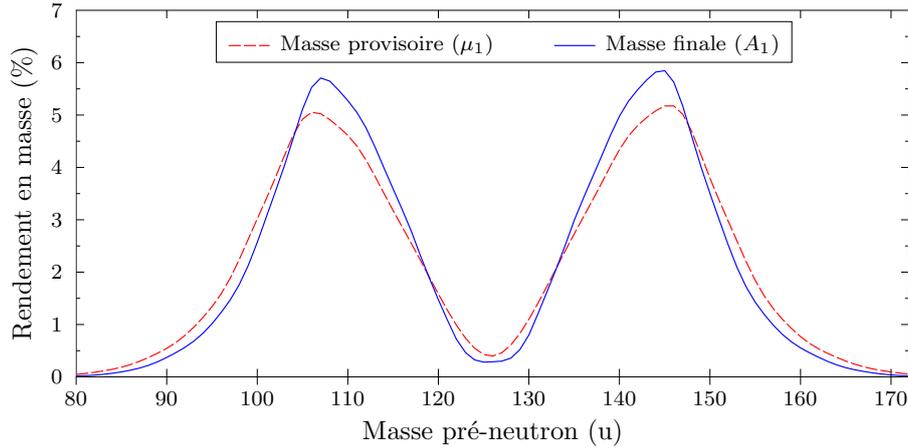
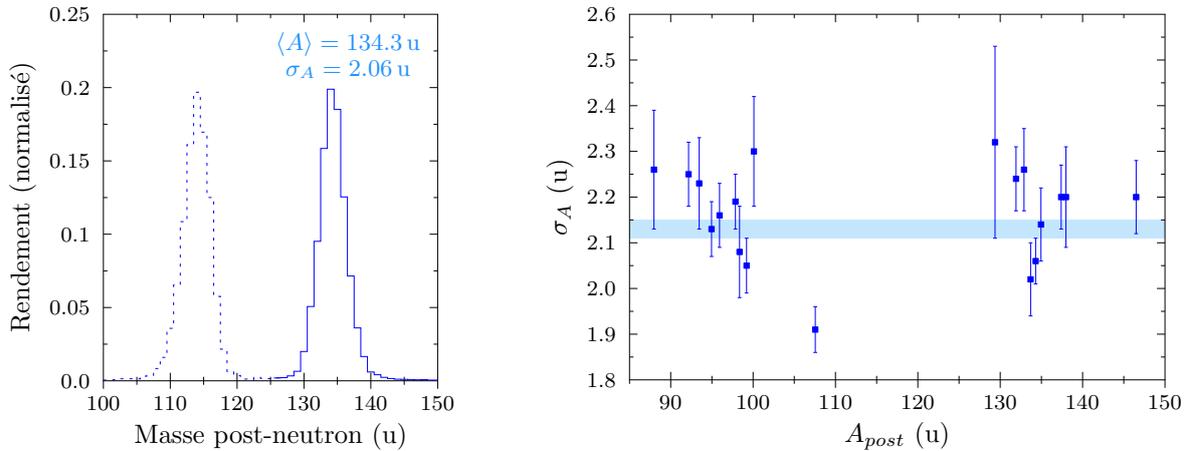


FIGURE 2.19 – Distributions en masse pré-neutron initiales (μ) et finales (A) obtenues pour un des côtés de la chambre d'ionisation (normalisées à 200%).

2.3.6 Résolution

La résolution en masse de la chambre d'ionisation a été déterminée expérimentalement à partir de l'étude des isomères produits par la fission spontanée du ^{252}Cf , qui est détaillée en Section 3.4. Pour la masse post-neutron, la résolution obtenue expérimentalement est ainsi de $\langle\sigma_A\rangle = 2.13 \pm 0.02$ u, comme représenté en Figure 2.20.



(a) Distribution massique obtenue pour le ^{134}Te . L'écart-type σ_A correspond à la résolution massique post-neutron de la CI.

(b) Résultats obtenus pour l'ensemble des isomères observés avec VESPA. L'aire bleue représente la résolution moyenne et l'incertitude associée.

FIGURE 2.20 – Résolution massique (post-neutron) de la chambre d'ionisation obtenue à partir d'isomères produits par la fission du ^{252}Cf .

Cette résolution résulte de plusieurs contributions associées à la chambre d'ionisation, et à la méthode d'analyse utilisée. D'une part, les doubles chambres d'ionisation à grilles de Frisch ont une résolution énergétique intrinsèque $\sigma_0 \lesssim 0.5$ MeV [107]. D'autre part, la méthode $2E$ décrite en Section 2.3.5 induit une dispersion supplémentaire de l'énergie obtenue avec la chambre d'ionisation. En effet, cette méthode repose sur l'hypothèse que la vitesse des fragments de fission reste inchangée par l'émission des neutrons. Cette émission étant isotrope dans le centre de masse, l'hypothèse est valide en moyenne, mais dans le cas d'une analyse événement par événement elle conduit à une dispersion σ_1 de l'énergie calculée (équation (2.18)) par rapport à l'énergie réelle des fragments [119]. De plus, la masse post-neutron utilisée dans cette équation est calculée

à l'aide de la multiplicité moyenne $\bar{\nu}(A, TKE_{post})$, et non pas de la multiplicité réelle ν , ce qui contribue à la dispersion provoquée par la méthode $2E$ [62].

Pour estimer cet effet sur la résolution totale $\sigma_{KE}^2 = \sigma_0^2 + \sigma_1^2$, la méthode $2E$ a été appliquée à des événements de fission générés par le code FIFRELIN [54]. La résolution énergétique pré-neutron est alors $\sigma_{KE} = 1.65$ MeV. Dans la mesure où les masses sont déduites des énergies mesurées par la chambre d'ionisation, cet effet introduit également une dispersion de la masse calculée des fragments de fission, estimée à 1.65 u pour la masse pré-neutron, et à 1.67 u pour la masse post-neutron (écarts-types). On remarque alors que ces valeurs sont bien inférieures à la résolution en masse obtenue expérimentalement (Figure 2.20). Cette différence peut s'expliquer à deux égards : tout d'abord, le traitement effectué avec les données de FIFRELIN est simplifié, et ne prend pas en compte certains biais expérimentaux, ce qui peut mener à une sous-estimation de la résolution. De plus, la dispersion systématique σ_1 dépend du nombre de neutrons émis. Ainsi, la sélection d'isomères particuliers pour la détermination expérimentale de la résolution de la chambre d'ionisation peut introduire un biais, car l'émission de neutrons par ces fragments n'est pas nécessairement représentative de l'ensemble des fissions.

2.4 Les scintillateurs organiques

Le dispositif VESPA comporte également 7 scintillateurs organiques pour la détection des neutrons prompts de fission, visibles à gauche de la Figure 2.1. 6 de ces détecteurs sont des scintillateurs liquides (EJ-301)³, auxquels s'ajoute un unique scintillateur solide Stilbene. Les caractéristiques de ces détecteurs sont indiquées dans le Tableau 2.4.

TABLEAU 2.4 – Caractéristiques des scintillateurs organiques de VESPA. τ désigne la constante de décroissance (composante rapide), D et ℓ sont respectivement le diamètre et la longueur de la cellule scintillante.

	Nature	Molécule	$D \times \ell$ (cm)	τ (ns)	Densité (g/cm ³)
Stilbene	Cristal	C ₁₄ H ₁₂	9.6 × 2.54	4.5	1.16
EJ-301	Liquide	C ₆ H ₄ (CH ₃) ₂	12.7 × 5.1	3.2	0.874

Dans la suite de cette section, les principales caractéristiques de ces scintillateurs seront présentées. Néanmoins, il convient de préciser que les données acquises par ces détecteurs (neutrons prompts de fission) n'ont pas été analysées dans le cadre de ce travail de thèse.

2.4.1 Détection des neutrons

Dans les scintillateurs organiques, les neutrons rapides sont détectés en utilisant la méthode du proton de recul [92]. Cette méthode est basée sur la diffusion élastique du neutron avec les noyaux d'hydrogène du scintillateur. L'énergie de ce proton de recul est alors :

$$E_{pr} = E_n \times \cos(\theta)^2 \quad (2.21)$$

où θ est l'angle de diffusion du neutron dans le laboratoire, et E_n son énergie cinétique.

Ce proton de recul, étant une particule chargée, va alors interagir avec les molécules qui composent le scintillateur et exciter leurs structures électroniques. La désexcitation de ces molécules par fluorescence (ou phosphorescence) va ainsi produire un photon visible qui pourra être converti en photoélectrons à l'aide d'un PMT (section 2.2.1).

Néanmoins, la réponse du scintillateur $L(E)$ diffère selon que la scintillation est issue d'un électron ou d'une particule plus lourde. Ainsi, pour une même énergie initiale E , un électron produira plus de lumière qu'un proton de recul : $L_e(E) > L_{pr}(E)$. Par conséquent, l'énergie

3. Eljen Technology, <https://eljentechnology.com/>

effective $E_{eff} = L_{pr}(E)$ renvoyée par le détecteur sera différente de l'énergie réelle du proton. Une paramétrisation possible de cette réponse est par exemple donnée dans [120] :

$$E_{eff} = L_{pr}(E) = a_1 E_{pr} - a_2 \left[1 - \exp(-a_3 E_{pr}^{a_4}) \right] \quad (2.22)$$

E_{eff} est aussi appelée l'énergie équivalente-électron (en MeVee) : $E_{eff} = L(E_e) = E_e$ (après étalonnage).

L'énergie réelle des neutrons détectés est donc plutôt déterminée à l'aide du temps de vol ou *Time of Flight* (ToF) des neutrons de la source jusqu'au détecteur :

$$\text{ToF}_n = \frac{d}{v_n} \simeq d \sqrt{\frac{m_n}{2 E_n}} \quad (2.23)$$

où d est la distance source-détecteur, $m_n = 939.6 \text{ MeV}/c^2$ est la masse du neutron et E_n son énergie cinétique dans le référentiel du laboratoire. Les corrections relativistes peuvent être ignorées au premier ordre, dans la mesure où $E_n < 20 \text{ MeV}$ ($\gamma < 1.02$). Ainsi, il est possible de déterminer l'énergie des neutrons dans le référentiel du laboratoire à partir de la mesure de leur temps de vol. Pour les neutrons prompts issus de la fission spontanée du ^{252}Cf , ce temps de vol est défini comme le temps écoulé entre le signal de la chambre d'ionisation (détection d'une fission) et le signal du scintillateur (détection du neutron). La résolution temporelle associée (LMH) est alors de $0.93 \pm 0.05 \text{ ns}$ pour les scintillateurs liquides et $1.2 \pm 0.1 \text{ ns}$ pour le Stilbene.

2.4.2 Discrimination neutron/ γ

Dans un scintillateur organique, la désexcitation des molécules peut s'effectuer non seulement par fluorescence prompte, mais également par fluorescence retardée ou par phosphorescence. Par conséquent, des constantes de décroissances retardées sont associées à ces scintillateurs, de l'ordre de plusieurs dizaines de nanosecondes, et vont impacter le signal de sortie [92, 121]. De plus, il a été montré que ces contributions lentes dépendent de la nature du rayonnement incident [122].

Ainsi, les signaux en sortie des scintillateurs n'ont pas la même distribution temporelle selon qu'ils sont induits par les neutrons (protons de recul) ou par des rayons γ (électrons). Ces observations permettent alors la discrimination entre les neutrons et les γ prompts de fission, également détectés par les scintillateurs organiques. On parle alors de discrimination de forme, ou *Pulse Shape Discrimination* (PSD). En pratique, cette discrimination est basée sur le rapport $r_s(N_{tot})$ de la composante lente ($t > t_{seuil}$) sur le signal total (N_{tot}), comme illustré en Figure 2.21.

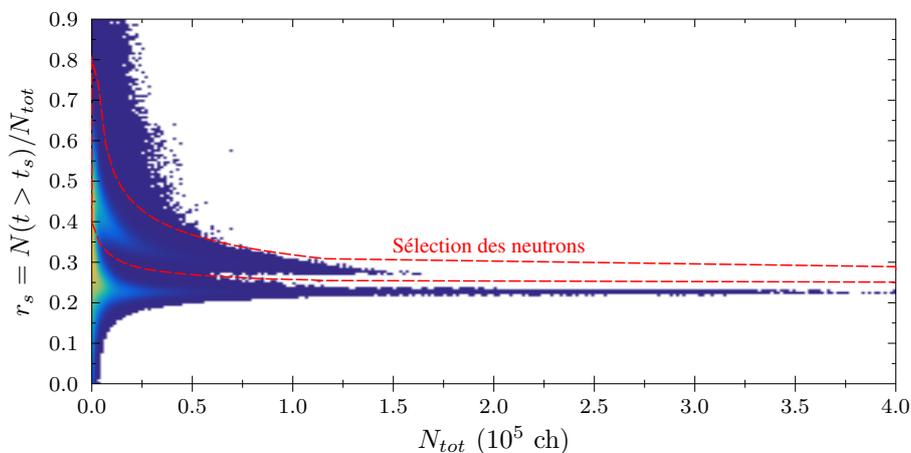


FIGURE 2.21 – Représentation 2D de la discrimination n/ γ par PSD pour un scintillateur liquide. La courbe rouge délimite les événements considérés comme étant induits par des neutrons.

La principale limite du PSD concerne les protons de recul de faible énergie. En effet, on remarque dans la Figure 2.21 que la séparation des neutrons devient moins nette quand l'impulsion

totale N_{tot} diminue, c'est à dire quand E_{pr} devient faible. Une correction supplémentaire consiste alors à appliquer un seuil dynamique [123, 124], comme représenté en Figure 2.22. Cette méthode définit un intervalle dans lequel doit être comprise l'énergie du neutron :

$$L_{min}(\theta_{max}) = \max \left\{ L(E_{min}); L \left(E_n \times \cos(\theta_{max})^2 \right) \right\} \quad (2.24)$$

$$L_{max} = L(E_n) + 4 \times \sigma_L(E_n) \quad (2.25)$$

où θ_{max} correspond à l'angle de diffusion maximum des neutrons dans le détecteur, et E_{min} à l'énergie minimum des protons de recul, fixée ici à 0.5 MeV. σ_L désigne la résolution énergétique du scintillateur. L_{max} correspond donc au maximum de lumière pouvant être produite suite à l'interaction d'un neutron d'énergie E_n dans le détecteur, en prenant en compte la résolution.

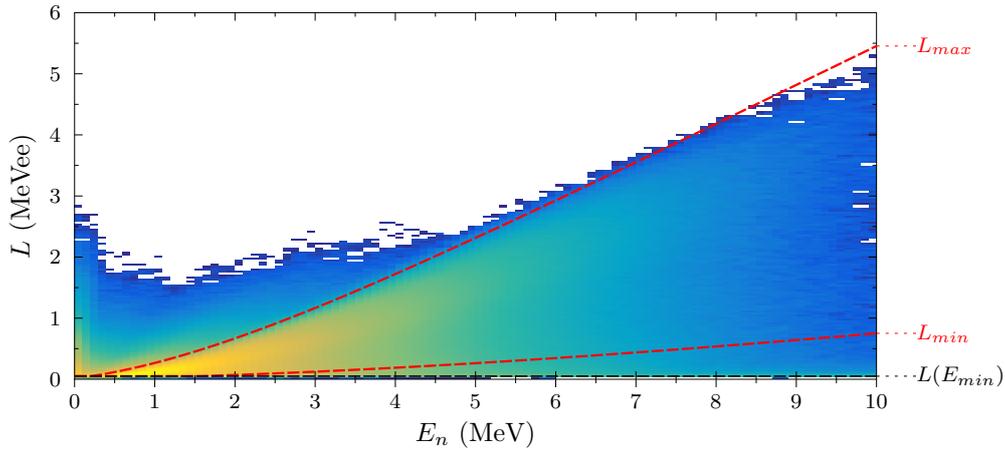


FIGURE 2.22 – Représentation 2D de la discrimination n/ γ par seuil dynamique pour un scintillateur liquide (échelle logarithmique selon z). Dans cet exemple, $\theta_{max} = 60^\circ$.

La Figure 2.23 illustre l'effet des deux corrections présentées dans cette section. Dans ce spectre en temps de vol, le pic des γ prompts centré en 0 se distingue des neutrons prompts, qui atteignent le détecteur plus tard. On remarque que le PSD permet de réduire le bruit de fond (ToF < 0) et le pic des γ prompts par un facteur 10 environ. L'application consécutive du seuil dynamique permet d'éliminer totalement le pic prompt, ainsi que les γ issus de la décroissance des isomères produits par la fission.

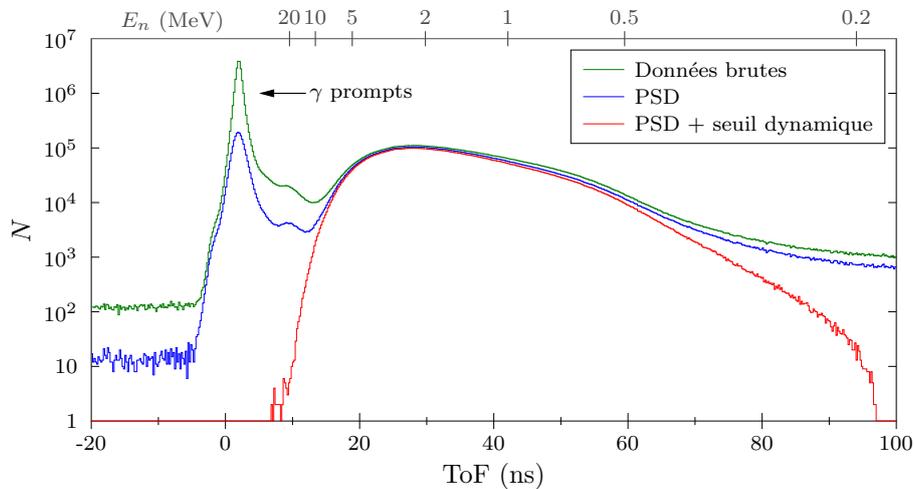


FIGURE 2.23 – Distribution temporelle des particules détectées dans un scintillateur liquide, et impact des méthodes de discrimination n/ γ .

2.5 Simulation sous Geant4

GEANT4 est un code Monte-Carlo (langage C++) dédié à la simulation des interactions rayonnement-matière [125,126]. C'est ce code qui a été choisi pour simuler la réponse du dispositif VESPA aux γ et neutrons de fission. Les développements ont été effectués en utilisant la version 10.7.0 du code, à partir d'une première implémentation fonctionnelle proposée par A. Gök [101].

2.5.1 Motivations

2.5.1.1 Efficacité photoélectrique

L'efficacité des détecteurs γ peut être utilisée pour calculer les rendements isomériques à partir des coïncidences γ - γ détectées par le dispositif, comme détaillé en Section 3.4. Ces efficacités ont été mesurées lors de la campagne d'étalonnage des détecteurs, comme expliqué en Section 2.2.2.3. Néanmoins, comme les sources d'étalonnage ont été placées à l'extérieur de la chambre d'ionisation, l'efficacité totale mesurée n'est pas représentative de l'efficacité associée aux γ de fission. De plus, l'efficacité expérimentale n'étant disponible que pour un petit nombre de points, il serait nécessaire d'interpoler, voire d'extrapoler les données, ce qui peut introduire des biais dans l'analyse. Pour ces raisons, l'analyse des données de fission se fera au moyen des efficacités (photoélectriques et/ou intégrales) issues de la simulation. Les valeurs mesurées seront plutôt utilisées pour contrôler la validité de la simulation, comme décrit en Section 2.5.4.

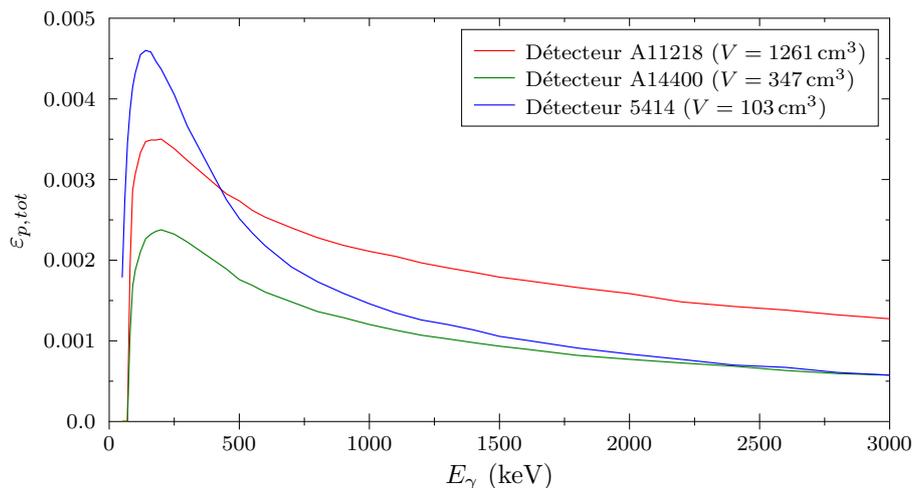


FIGURE 2.24 – Efficacité photoélectrique totale de trois scintillateurs LaBr_3 de taille différente, calculée par la simulation GEANT4 pour une source ponctuelle placée au centre de la chambre d'ionisation.

2.5.1.2 Matrice de réponse

La matrice de réponse \mathbf{R} d'un détecteur permet d'associer l'énergie réelle d'un photon à son énergie mesurée. Ainsi, l'élément R_{ij} est la probabilité qu'un photon d'énergie e_j dépose l'énergie d_i dans le détecteur. Tout spectre mesuré \mathbf{M} par le détecteur peut alors s'exprimer comme le produit de convolution du spectre d'émission \mathbf{S} par la matrice de réponse :

$$\mathbf{M} = \mathbf{R} \otimes \mathbf{S} \quad \Rightarrow \quad M_i = \sum_j R_{ij} S_j \quad \forall i \quad (2.26)$$

L'opération qui consiste à estimer \mathbf{S} à partir de \mathbf{M} se nomme alors la déconvolution, et nécessite de connaître la matrice de réponse du détecteur, voir Section 3.2.2. La matrice de réponse est alors calculée à partir d'une simulation sous GEANT4. Dans cette simulation, N_s

photons sont générés isotropiquement, avec une énergie initiale E_γ échantillonnée à partir d'une distribution continue arbitraire. Ces photons vont interagir avec l'environnement défini dans la simulation (voir Section 2.5.2), et éventuellement déposer une énergie E_{dep} dans l'un des détecteurs. Pour chaque événement ainsi "détecté", le couple $(E_\gamma; E_{dep})$ est stocké. L'ensemble de ces événements permet ainsi de construire une matrice de réponse associée à chaque détecteur.

2.5.2 Définition de la géométrie

La première étape dans la modélisation du dispositif dans GEANT4 est la définition de la géométrie. Pour VESPA, deux configurations légèrement différentes ont été implémentées. La première, représentée en Figure 2.25, correspond à la campagne de fission (2019), et comprend tous les détecteurs décrits dans les sections précédentes. Dans une seconde configuration, qui correspond à la campagne d'étalonnage des détecteurs LaBr₃ (2020), les scintillateurs organiques ont été retirés et remplacés par un détecteur germanium électriquement refroidi.

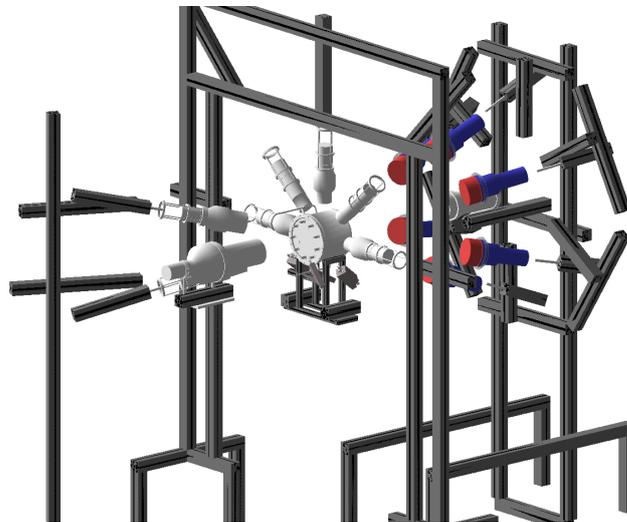


FIGURE 2.25 – Représentation du dispositif défini dans GEANT4 (configuration 1)

La principale difficulté dans le développement de la simulation réside en la description précise du dispositif. Pour cela, il est nécessaire de connaître la position des éléments constitutifs, leurs dimensions et les matériaux qui les composent. Cependant, certaines caractéristiques sont mal connues, par exemple les composants des scintillateurs LaBr₃. Les dimensions externes ont été fournies par le fabricant, mais il est difficile d'accéder aux détails concernant les composants internes du détecteur (voir Figure 2.26) : réflecteur, couplage optique, blindage antimagnétique... Il a donc fallu émettre des hypothèses quant à ces données manquantes. Par exemple, le réflecteur choisi est du téflon, et le blindage antimagnétique consiste en un cylindre de mu-métal (alliage de nickel-fer-molybdène). Ces hypothèses peuvent ensuite être évaluées en comparant les résultats de la simulation aux mesures expérimentales effectuées lors de la campagne d'étalonnage, comme expliqué en Section 2.5.4.

2.5.3 Processus physiques

Différents modèles physiques décrivant les interactions rayonnement-matière sont disponibles dans GEANT4. Dans ce travail, il a été choisi de décrire les processus électromagnétiques en utilisant les modèles issus du code PENELOPE [127, 128] (version 2008), et disponibles dans GEANT4. Bien qu'il soit possible de simuler le processus complexe de scintillation [129], il a été choisi, pour des raisons de gain de performance, de simplifier la détection des rayons γ . Ainsi, on considère que l'énergie déposée par un photon incident correspond directement à l'énergie renvoyée par le scintillateur. La principale conséquence de cette approximation est qu'elle ne

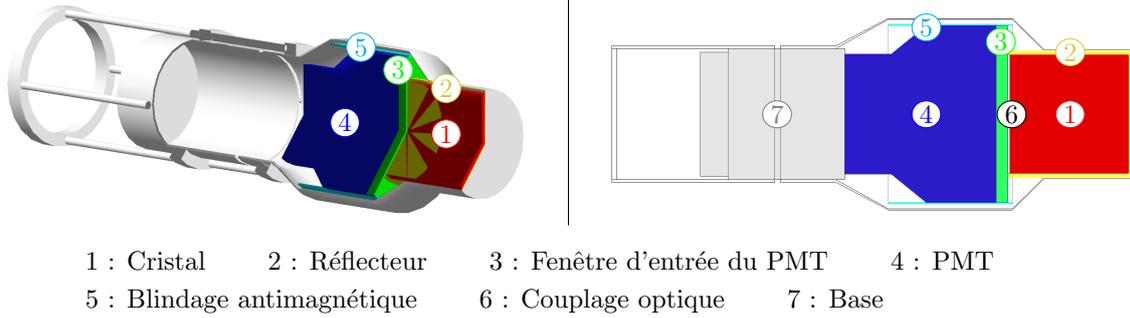


FIGURE 2.26 – Représentation en 3 dimensions (gauche) et plan de coupe (droite) des scintillateurs LaBr_3 dans Geant4.

permet pas à la simulation de reproduire une résolution réaliste des détecteurs, qui est directement liée à la génération de photoélectrons, comme expliqué en Section 2.2.2.1. Pour résoudre ce problème, la réponse des détecteurs est convoluée par la résolution expérimentale σ , mesurée lors de la campagne d'étalonnage. La convolution s'écrit alors :

$$R_{i,j}^{convol} = \sum_k R_{i,k}^{simu} \times \frac{1}{2} \left\{ \operatorname{erf} \left(\frac{E_{\text{sup},i} - E_k}{\sqrt{2}\sigma_k} \right) - \operatorname{erf} \left(\frac{E_{\text{inf},i} - E_k}{\sqrt{2}\sigma_k} \right) \right\} \quad (2.27)$$

où $E_{\text{inf},i}$ et $E_{\text{sup},i}$ sont respectivement les bornes inférieure et supérieure du bin i .

En plus de l'énergie déposée, la simulation stocke le temps de vol des photons au moment de leur détection. La résolution temporelle des détecteurs est alors prise en compte de manière similaire à la résolution en énergie, c'est-à-dire en convoluant le temps de vol de la simulation par la résolution temporelle expérimentale σ_t . Après cette convolution, seuls les événements présents à l'intérieur de la fenêtre en temps associée à la matrice de réponse sont considérés comme détectés.

Enfin, l'émission des γ prompts de fission est réalisée par des fragments de fission en mouvement dans la chambre d'ionisation. En effet, environ 80% d'entre eux sont émis moins de 100 ps après la fission [130]. Ainsi, deux effets doivent être pris en compte dans la simulation pour les événements de fission. D'une part, comme les rayonnements sont émis après un délai Δt , les fragments ne se situent pas exactement au centre de la cathode, ce qui induit un effet que l'on qualifiera de statique. À titre d'exemple, pour un fragment de vitesse $\beta = v/c = 0.04$, après un délai $\Delta t = 100$ ps, le déplacement est de $\Delta x = 1.2$ mm. D'autre part, le mouvement relatif des fragments par rapport aux scintillateurs induit un effet Doppler, et donc un décalage de l'énergie γ mesurée (effet dynamique). Cet effet est surtout important pour les détecteurs 0, 6 et 7 dont l'orientation est proche de l'axe de fission. Pour les autres scintillateurs, cet effet se traduit par un élargissement des pics, les détecteurs étant placés perpendiculairement à l'axe de fission.

2.5.4 Vérification

Pour vérifier la validité de la simulation du dispositif VESPA, nous l'avons confrontée aux résultats de la campagne d'étalonnage. Lors de cette campagne de mesures, des sources étalonnées, c'est-à-dire d'activité connue, ont été placées à l'extérieur de la chambre d'ionisation. Dans la simulation, ces conditions expérimentales ont été reproduites, et chacune des sources étalonnées a été incluse dans la simulation : ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{152}Eu et ^{207}Bi . À l'exception de la source de césium, la décroissance de ces sources a été modélisée en utilisant le module de décroissance radioactive de GEANT4 [131]. Il est alors possible de directement comparer les courbes expérimentales et simulées, comme représenté en Figure 2.27.

Ces comparaisons permettent de constater les limites de la simulation. On observe en effet une déviation de l'efficacité simulée par rapport à l'efficacité mesurée, qui a pu être quantifiée en

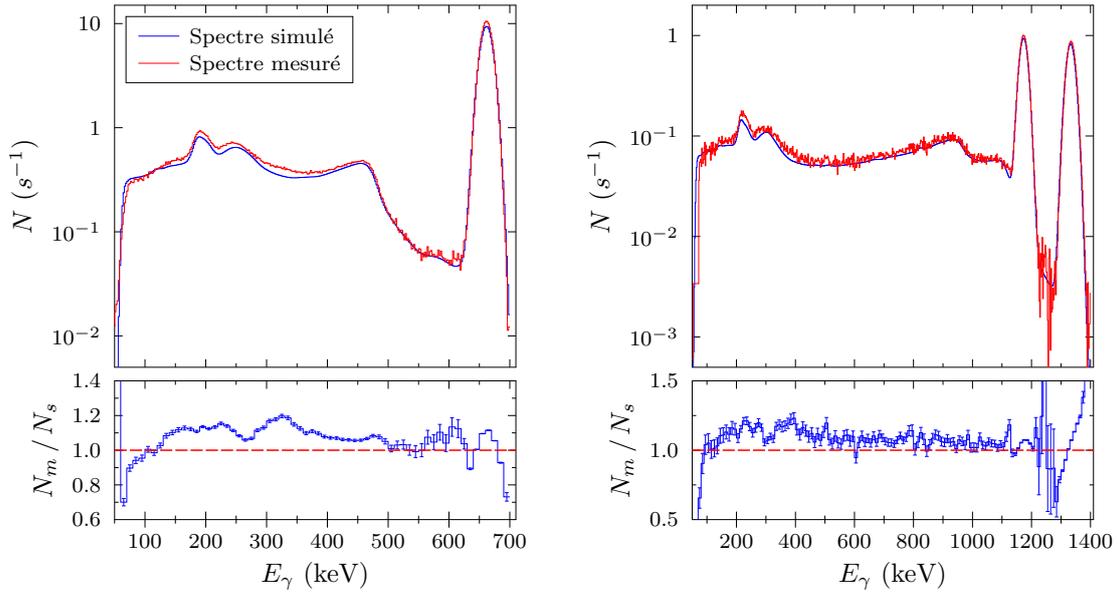


FIGURE 2.27 – Comparaison des spectres mesurés et simulés pour le ^{137}Cs (gauche) et le ^{60}Co (droite), avec le détecteur A11218.

calculant les aires sous les pics photoélectriques des spectres d'étalonnage. Les résultats ainsi obtenus sont représentés en Figure 2.28. Un second effet relevé est la sous-estimation du pic de rétrodiffusion (à 184 keV pour le photon de 662 keV du ^{137}Cs).

Enfin, ces comparaisons avec les mesures d'étalonnage ne permettent pas de juger précisément de la bonne modélisation de la chambre d'ionisation. Afin d'avoir une première estimation de la qualité de cette modélisation, des mesures ont été effectuées en plaçant la source de ^{137}Cs de l'autre côté de la chambre d'ionisation (à l'extérieur du côté 2). En analysant ces spectres, nous avons remarqué que la chambre elle-même introduit des biais dans la simulation, qu'il a également fallu prendre en compte. En effet, on remarque en Figure 2.28 que le rapport entre l'efficacité mesurée et simulée diffère selon que la source est placée à l'avant ($R_{M/S}$) ou à l'arrière ($R_{M/S}^*$) de la chambre d'ionisation.

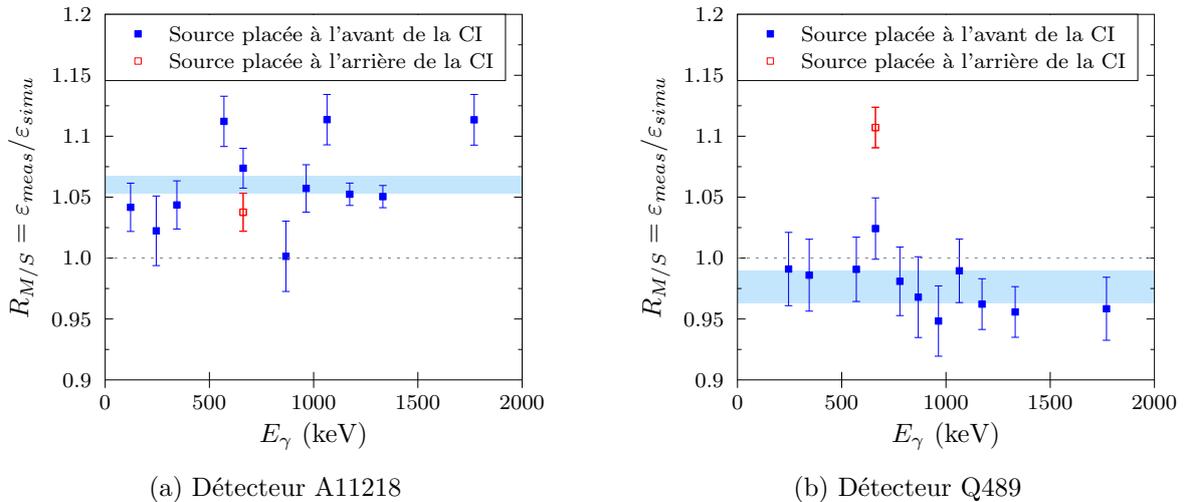


FIGURE 2.28 – Rapport entre les efficacités photoélectriques mesurées et simulées avec GEANT4, obtenues avec les sources d'étalonnage. L'aire bleue correspond au rapport moyen (incertitudes comprises) pour les sources placées à l'avant de la chambre d'ionisation, en prenant en compte les corrélations entre les points (sources identiques).

Malgré d'importants efforts dans le but d'améliorer cette simulation, ces différents défauts n'ont pas pu être complètement éliminés. Ainsi, une correction est appliquée à la matrice de réponse pour prendre en compte ces effets. D'une part, un facteur de correction constant f_c est appliqué pour chaque détecteur (voir Tableau 2.5), et une correction supplémentaire est apportée au pic de rétrodiffusion. Les facteurs correctifs f_c prennent en compte les biais liés aux détecteurs ($\langle R_{M/S} \rangle$) ainsi que ceux induits par la chambre d'ionisation ($R_{M/S}^*$) :

$$f_c = \langle R_{M/S} \rangle_{E_\gamma} \times \frac{1}{2} \left(1 + \frac{R_{M/S}^*(661.7)}{R_{M/S}(661.7)} \right) \quad (2.28)$$

TABLEAU 2.5 – Facteurs de correction appliqués aux matrices de réponse

det.	A11218	Q489	Q491	5414	5415	5416	A14400
f_c	1.042(8)	1.016(22)	0.989(23)	0.941(20)	1.010(23)	1.046(22)	0.990(13)

Conclusion

Ce chapitre a présenté le fonctionnement et les principales propriétés associées aux détecteurs qui composent le dispositif VESPA : scintillateurs $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$, double chambre d'ionisation centrale et scintillateurs organiques. Les avantages, mais aussi les limites de ces détecteurs, qui ont pu être discutés au cours du chapitre, sont des caractéristiques importantes pour l'analyse des données expérimentales, et pour l'interprétation qui peut en être faite (Chapitre 3). Nous avons ainsi vu que parmi les caractéristiques des fragments de fission, seule l'énergie cinétique post-neutron était directement mesurée. Les autres caractéristiques des fragments sont estimées à partir de la méthode $2E$. Quant aux scintillateurs LaBr_3 , après avoir détaillé leurs principales propriétés, nous avons présenté les difficultés rencontrées lors de l'élaboration des matrices de réponse, qui sont des ingrédients de première importance dans l'analyse des spectres de γ prompts de fission et des observables associées.

Le Chapitre 3 s'inscrit dans la continuité de ce chapitre. Les principaux résultats expérimentaux obtenus avec VESPA y seront ainsi présentés.

Mesures d'observables de fission

Sommaire

3.1	Caractéristiques des fragments de fission	51
3.2	Spectres de gammas prompts de fission	54
3.2.1	Distribution temporelle des γ de fission	54
3.2.2	Déconvolution	56
3.2.3	Résultats	58
3.3	Mesures multi-paramètres	63
3.3.1	Corrélations directes	63
3.3.2	Méthode des aberrations Doppler	67
3.4	Étude des états isomériques des fragments de fission	71
3.4.1	Méthodologie	71
3.4.2	Identification des isomères	73
3.4.3	Détermination de la demi-vie	75
3.4.4	États isomères consécutifs	78

Une partie importante de ce travail de thèse a été l'analyse des données pré-traitées de VESPA, stockées sous forme d'histogrammes. Cette analyse, effectuée avec le logiciel ROOT [132], m'a permis d'extraire plusieurs observables de fission, qui seront discutées dans ce chapitre.

Dans une première partie, les caractéristiques moyennes des fragments de fission obtenues à partir de la chambre d'ionisation seront brièvement présentées. Une seconde partie s'intéressera aux mesures intégrales des γ prompts de fission, c'est-à-dire moyennées sur l'ensemble des fissions. Cette partie permettra de présenter les problématiques spécifiques à ces données. Puis, nous montrerons comment les observables précédentes peuvent être étudiées simultanément avec VESPA (mesures multi-paramètres) afin de notamment étudier les corrélations entre les fragments de fission et les γ prompts. Enfin, la dernière partie sera consacrée à l'analyse des isomères produits par fission, détectés par triple coïncidence fission- γ - γ . En particulier, nous détaillerons comment les demi-vies associées à ces isomères ont été mesurées avec VESPA.

3.1 Caractéristiques des fragments de fission

La double chambre d'ionisation de VESPA permet d'estimer les caractéristiques des fragments de fission pré- et post-neutrons événement par événement, comme détaillé en Section 2.3. La Figure 3.1 représente les distributions pré-neutrons ainsi obtenues pour la fission spontanée du ^{252}Cf , pour les fragments satisfaisant la relation $\cos(\theta) \geq 0.7$ ($\theta \leq 46^\circ$), où θ est l'angle formé entre l'axe de fission et l'axe normal à la cathode de la chambre d'ionisation (axe z en Figure 2.11). Cela représente environ 2.8×10^9 événements de fission. Les distributions en masse sont normalisées à 200%.

Les valeurs moyennes et les largeurs de ces distributions sont également indiquées dans les Tableaux 3.1 et 3.2, pour les caractéristiques pré- et post-neutrons, respectivement. Une comparaison avec des valeurs extraites de la littérature est également proposée. Il doit être noté

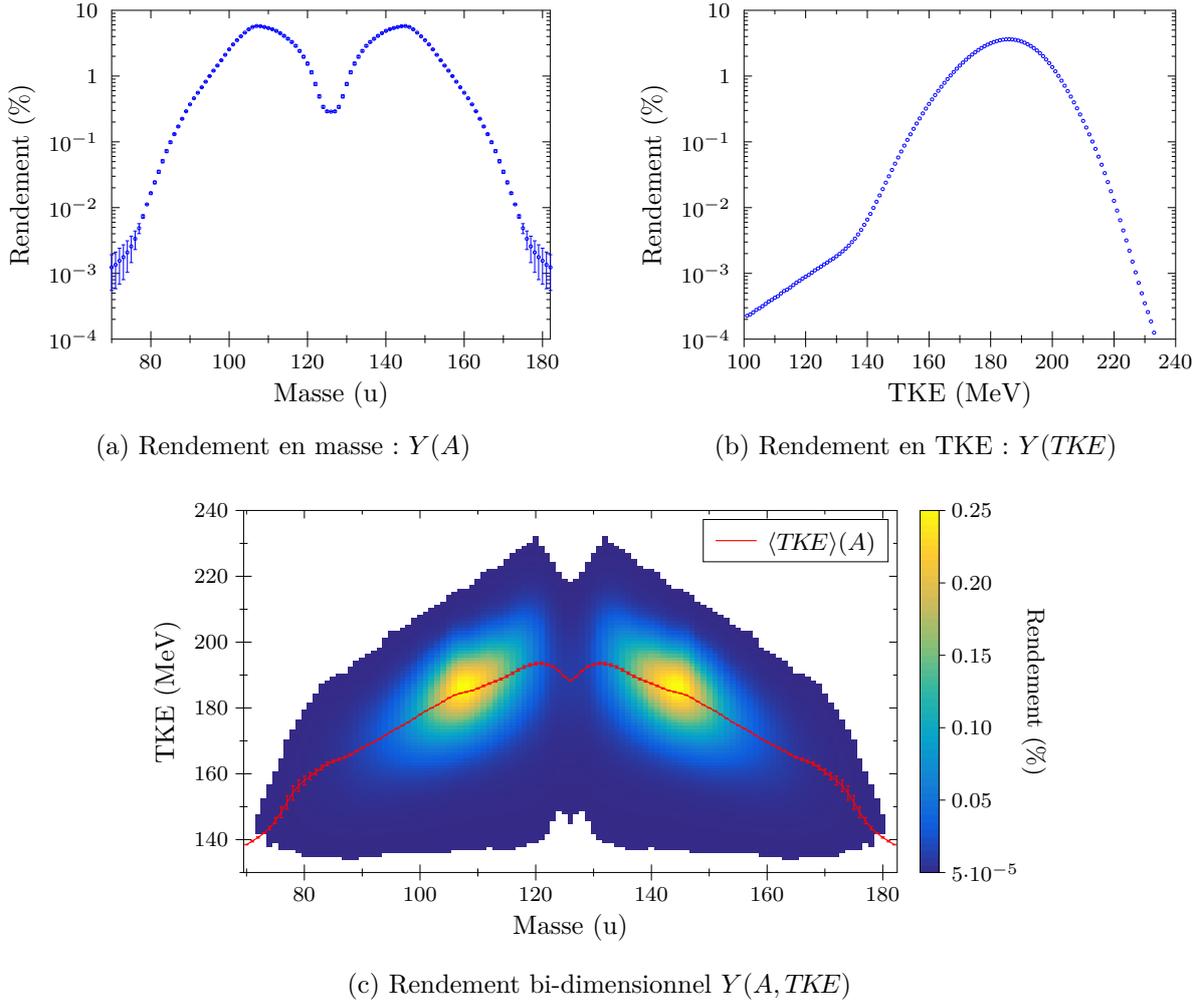


FIGURE 3.1 – Rendements pré-neutrons obtenus avec la chambre d'ionisation de VESPA.

que l'étalonnage de la chambre d'ionisation a été réalisé de manière à reproduire le TKE moyen pré-neutrons de référence, extrait de [6] : $\langle TKE \rangle = 184.1 \pm 1.3$ MeV.

Les incertitudes indiquées dans ces tableaux sont des incertitudes systématiques, plus délicates à estimer que les incertitudes statistiques. Trois sources d'incertitudes, supposées indépendantes, ont été considérées ici. La première de ces sources est l'asymétrie du dispositif. En effet, comme expliqué en Section 2.3.3, un des deux fragments de fission traverse le support en Nickel et va ainsi subir une perte d'énergie supplémentaire. La correction de cet effet n'étant pas parfaite, cela peut générer une différence entre les distributions de chaque côté de la chambre d'ionisation, comme illustré en Figure 3.2. Cette incertitude sera notée σ_{asym} dans la suite.

La perte d'énergie des fragments de fission dans la chambre d'ionisation est également à l'origine de la seconde source d'incertitudes. Comme on peut le remarquer en Figure 2.15, la perte d'énergie des fragments n'est plus maîtrisée quand $\cos(\theta)$ est proche de 1 (fragments émis perpendiculairement à la cathode), ce qui pourrait s'expliquer par un taux de recombinaisons électron-ion plus important. Ainsi, les distributions en masse et en énergie cinétique dépendent dans une certaine mesure de la valeur de $\cos(\theta)$ suite à cet artefact dans l'analyse des données. Pour estimer l'incertitude σ_{cos} associée, on définit une valeur de coupure qui correspond environ à la médiane de la distribution $P(\cos\theta)$ (pour $\cos(\theta) \geq 0.7$). Les distributions pré-neutrons sont calculées de part et d'autre de cette coupure (Figure 3.3), et σ_{cos} est alors estimée à partir de la différence entre ces deux distributions.

Enfin, une dernière source d'incertitudes provient de la chaîne d'acquisition. En effet, la campagne de mesures a duré plusieurs mois, et les données de VESPA ont été subdivisées en sous-

TABLEAU 3.1 – Caractéristiques pré-neutrons des fragments de fission obtenues avec la chambre d’ionisation de VESPA, comparées à la littérature.

	VESPA (2E)	Henschel [133] (2E-v)	Schmidt [134] (2E)	Varapai [135] (2E)
$\langle A_L \rangle$ (u)	108.03 ± 0.17	108.50 ± 0.24	108.55	108.76 ± 1.00
σ_A (u)	7.23 ± 0.04		7.16	
$\langle TKE \rangle$ (MeV)	184.36 ± 0.70	184.07 ± 1.30	186.25 ± 1.20	184.82 ± 1.00
σ_{TKE} (MeV)	11.26 ± 0.11		12.27	
$\langle KE_L \rangle$ (MeV)	105.16 ± 0.37		105.90 ± 0.70	104.62 ± 0.50
σ_{KE_L} (MeV)	5.90 ± 0.05		6.52	
$\langle KE_H \rangle$ (MeV)	79.20 ± 0.37		80.36 ± 0.50	80.2 ± 0.5
σ_{KE_H} (MeV)	8.71 ± 0.07		8.92	

TABLEAU 3.2 – Caractéristiques post-neutrons des fragments de fission obtenues avec la chambre d’ionisation de VESPA, comparées à la littérature.

	VESPA (2E)	Henschel [133] (2E-v)	Schmidt [134] (2E)	SPIDER [66] (E-v)
$\langle TKE \rangle$ (MeV)	181.59 ± 0.74	181.25 ± 1.30	183.34	182.2
σ_{TKE} (MeV)	11.91 ± 0.11			
$\langle KE_L \rangle$ (MeV)	103.26 ± 0.40	102.58 ± 1.15	103.96	103.5 ± 1.8
σ_{KE_L} (MeV)	6.62 ± 0.05	6.62	6.56	
$\langle KE_H \rangle$ (MeV)	78.33 ± 0.38	78.67 ± 0.60	79.38	78.7 ± 1.3
σ_{KE_H} (MeV)	8.93 ± 0.07	9.07	9.04	

ensembles (*runs*) de plusieurs dizaines d’heures pour des raisons pratiques. Pour chacun de ces sous-ensembles, diverses corrections sont appliquées automatiquement aux données de la chambre d’ionisation, afin de prendre en compte les fluctuations du système d’acquisition (fluctuations électroniques, variation de la pression du gaz...). Dans le cas idéal, tous ces sous-ensembles de mesures produisent des résultats identiques après ces corrections. En pratique cependant, des fluctuations résiduelles subsistent. L’incertitude σ_{run} est alors définie comme l’écart-type de cet échantillon de sous-ensembles.

Finalement, les valeurs de ces trois sources d’incertitudes sont indiquées dans le Tableau 3.3. L’incertitude totale est alors la somme quadratique de ces contributions, que l’on a supposées indépendantes.

TABLEAU 3.3 – Incertitudes systématiques associées aux fragments de fission pré-neutrons.

Quantité	Sources d’incertitude			Incertitude totale
	σ_{asym}	σ_{cos}	σ_{run}	
$\langle TKE \rangle$ (MeV)	–	0.46	0.53	0.70
σ_{TKE} (MeV)	–	0.09	0.05	0.11
$\langle A \rangle$ (u)	0.11	0.12	0.04	0.17
σ_A (u)	–	0.03	0.03	0.04

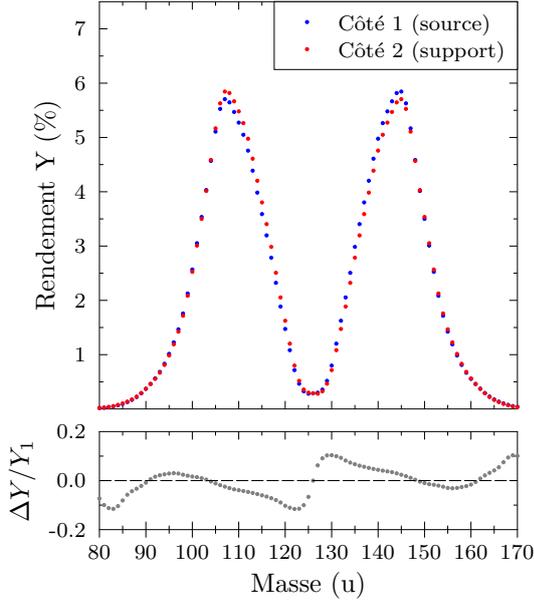


FIGURE 3.2 – Influence du côté de la chambre d'ionisation sur la distribution en masse pré-neutrons des fragments.

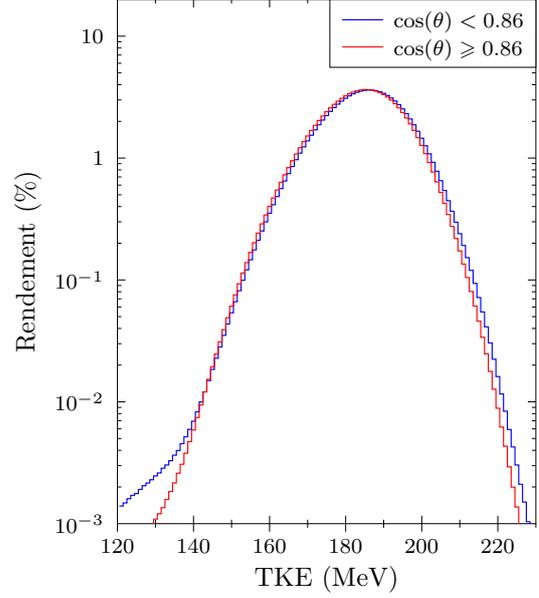


FIGURE 3.3 – Influence de la sélection angulaire des fragments sur la distribution du TKE pré-neutrons.

3.2 Spectres de gammas prompts de fission

Dans cette section, nous allons présenter la méthode utilisée pour obtenir les spectres de γ prompts de fission (*Prompt Fission Gamma-ray Spectra*, ou PFGS) à partir des spectres mesurés avec les différents scintillateurs de VESPA. Dans ce cadre, la chambre d'ionisation est uniquement utilisée pour fournir le *fission trigger*, c'est-à-dire l'instant de chaque événement de fission.

3.2.1 Distribution temporelle des γ de fission

Afin d'accéder au temps entre la fission et l'émission des photons, la chambre d'ionisation fournit un *fission trigger*, c'est-à-dire un temps de référence correspondant à la détection d'une fission dans la chambre d'ionisation, t_f . Le temps d'émission relatif à la fission est alors donné par :

$$t_\gamma = t_s - t_f - \delta t \quad (3.1)$$

où t_s est le temps correspondant à la détection du photon dans un des scintillateurs LaBr_3 , et δt une correction du temps de vol et du délai électronique.

La distribution temporelle des γ générés par fission est alors représentée en Figure 3.4. Dans cette figure, le pic centré en $t_\gamma = 0$ correspond aux γ prompts de fission, convolués par la résolution temporelle du dispositif (Figure 2.8). Le second pic visible correspond aux rayons γ produits par la diffusion inélastique des neutrons prompts de fission sur les détecteurs. Le temps caractéristique τ_n associé à ce phénomène est donné par :

$$\tau_n = \frac{r}{v_n} = \frac{r}{c \sqrt{1 - \left(\frac{m_n c^2}{m_n c^2 + E_n} \right)^2}} \quad (3.2)$$

où r est la distance des détecteurs à la source (voir Tableau 2.1). Pour des neutrons dont l'énergie E_n est comprise entre 100 keV et 13 MeV, on obtient alors $2.6 \text{ ns} \leq \tau_n \leq 29.7 \text{ ns}$ pour une distance $r = 13 \text{ cm}$, et $6.3 \text{ ns} \leq \tau_n \leq 70.8 \text{ ns}$ pour une distance $r = 31 \text{ cm}$.

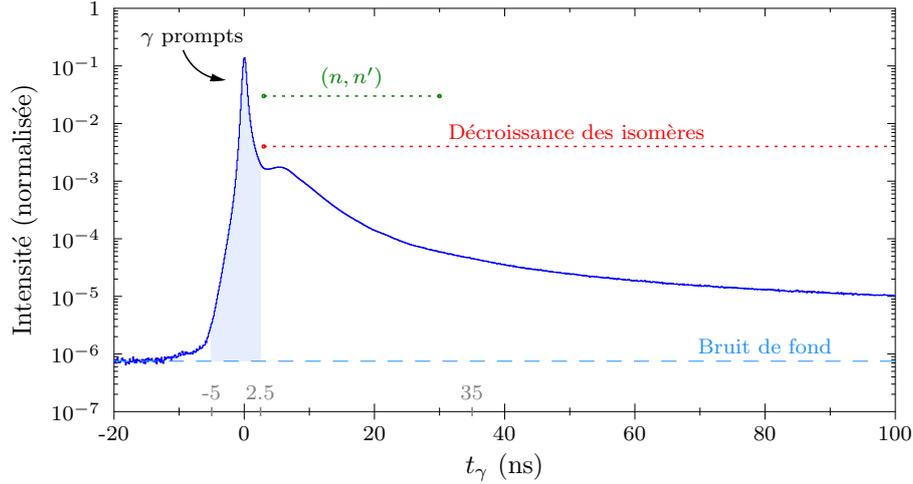


FIGURE 3.4 – Distribution temporelle des γ par rapport à la fission, mesurée avec le détecteur 5415.

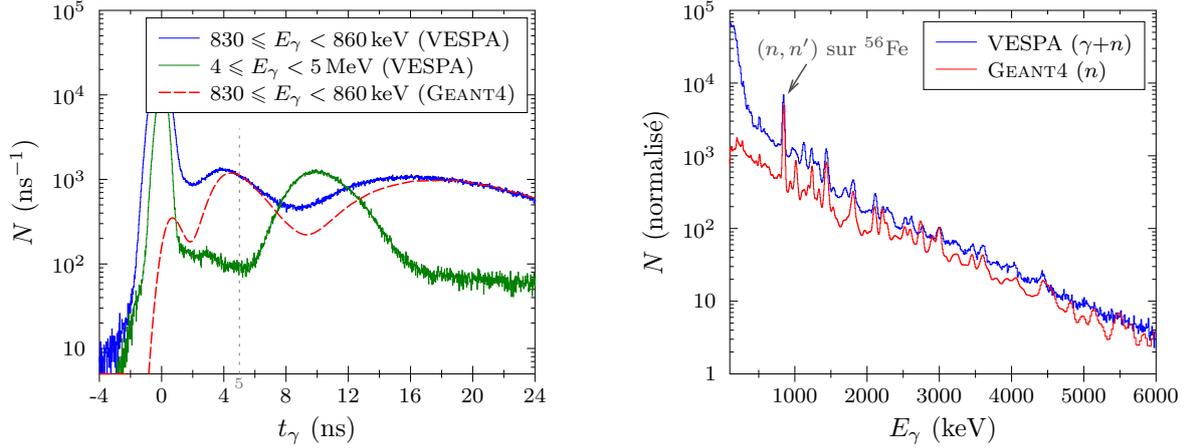
Enfin, aux temps plus longs, on observe les γ issus de la désexcitation des isomères, dont la demi-vie peut varier de la nanoseconde à la milliseconde (voir Section 3.4).

Finalement, les γ prompts de fission sont sélectionnés dans l'intervalle $[-5 \text{ ns}; 5 \text{ ns}]$ pour les détecteurs 0, 6 et 7, et dans l'intervalle $[-5 \text{ ns}; 2.5 \text{ ns}]$ pour les détecteurs 1 à 5, ceux-ci étant plus proches de la source. Le bruit de fond est quant à lui sélectionné dans l'intervalle $[-60 \text{ ns}; -10 \text{ ns}]$ pour tous les détecteurs.

Notons cependant que les neutrons peuvent également interagir avec les matériaux qui constituent la chambre d'ionisation, notamment le ^{56}Fe [136], qui est bien plus proche de la source de neutrons que les scintillateurs. Par exemple, le couvercle épais de la CI est situé à environ 7 cm de la cathode, ce qui correspond à un temps de vol des neutrons compris entre 1.4 ns et 16 ns environ ($0.1 \leq E_n \leq 13 \text{ MeV}$). Ainsi, autour de $E_\gamma = 847 \text{ keV}$, qui correspond au premier état excité du ^{56}Fe , on observe un pic situé entre la zone des γ prompts et celle des réactions (n, n') au voisinage du détecteur, comme représenté en Figure 3.5a. Par conséquent, le spectre des gammas prompts de fission est en partie pollué par des événements issus de la diffusion inélastique des neutrons dans la CI et détectés avant le seuil de 5 ns (pour le détecteur A11218), comme illustré en Figure 3.5b. On remarque alors que la contribution principale de ce bruit de fond est le γ de 847 keV du ^{56}Fe .

Cet effet concerne surtout les détecteurs 0,6 et 7, qui sont les plus éloignés de la chambre d'ionisation (voir Tableau 2.1). En effet, les détecteurs 1 à 5 étant proches de la CI, les photons issus de la diffusion inélastique dans la chambre sont difficilement distinguables de ceux générés par diffusion inélastique dans les détecteurs, et sont donc en grande partie exclus par la sélection temporelle (qui est de +2.5 ns).

Pour corriger cet effet dans les autres détecteurs, il serait nécessaire de simuler le spectre γ produit par la diffusion de ces neutrons prompts et de le soustraire au spectre total mesuré avec VESPA, comme effectué dans [138]. Cependant, cette solution requiert de maîtriser parfaitement la simulation, en particulier autour de la chambre d'ionisation où ont lieu ces diffusions. Or, il s'agit précisément d'une zone pour laquelle des indices semblent indiquer la présence de défauts dans la simulation, comme expliqué en Section 2.5.4. Ainsi, la solution choisie est plutôt d'introduire une incertitude systématique. En utilisant un spectre simulé (et donc en partie erroné), nous avons pu constater que le nombre de γ émis par diffusion des neutrons dans la CI était d'environ 0.4% du total des γ mesurés entre -3 et +3 ns, et d'environ 0.8% du total des γ mesurés entre -5 et +5 ns. Ainsi, les incertitudes retenues sont donc respectivement de 0.5% et de 1% pour ces deux coupures en temps.



(a) Distribution temporelle des γ par rapport à la fission, pour différentes coupures en énergie.

(b) Spectres en énergie des γ entre 2 et 5 ns après la fission.

FIGURE 3.5 – Détection par le détecteur A11218 des rayons γ produits par la diffusion inélastique des neutrons prompts. La simulation GEANT4 a été réalisée avec une source de neutrons seule, dont la distribution énergétique suit l'évaluation proposée par Mannhart [137].

3.2.2 Déconvolution

Principe de la méthode

Les photons émis par les fragments de fission subissent un certain nombre d'effets physiques (effet Doppler, diffusion Compton, ...), auxquels s'ajoutent des effets supplémentaires liés aux détecteurs (efficacité, résolution). Ainsi, quel que soit le dispositif expérimental, les spectres de γ prompts de fission mesurés sont déformés par rapport aux spectres d'émission. La détermination des spectres réellement émis (\mathbf{S}) à partir des spectres mesurés (\mathbf{M}) est un problème inverse, que l'on appelle la déconvolution. Une caractéristique importante de ce problème est qu'il s'agit d'un problème 'mal posé' [139]. De ce fait, la résolution naïve de l'équation (2.26) par inversion de la matrice de réponse \mathbf{R} produit des résultats non physiques présentant d'importantes oscillations. Néanmoins, différentes méthodes de régularisation permettent d'obtenir une solution acceptable au problème.

La méthode utilisée pour l'analyse des PFGS obtenus avec VESPA, est l'algorithme itératif décrit dans [140], et implémentée dans le logiciel `Roofold` [141]. Cette méthode peut être dérivée à partir de l'algorithme d'Espérance-Maximisation (EM) [142], mais également en utilisant la formule de Bayes, c'est pourquoi elle est généralement qualifiée de "déconvolution bayésienne" [140]. En effet, la déconvolution revient à déterminer les probabilités que des événements détectés d_i soient issus de photons d'énergie e_j , et on a alors :

$$P(e_j) = \sum_i P(e_j|d_i)P(d_i) = \sum_i \frac{P(d_i|e_j)P(e_j)}{\sum_p P(d_i|e_p)P(e_p)} \times P(d_i) \quad (3.3)$$

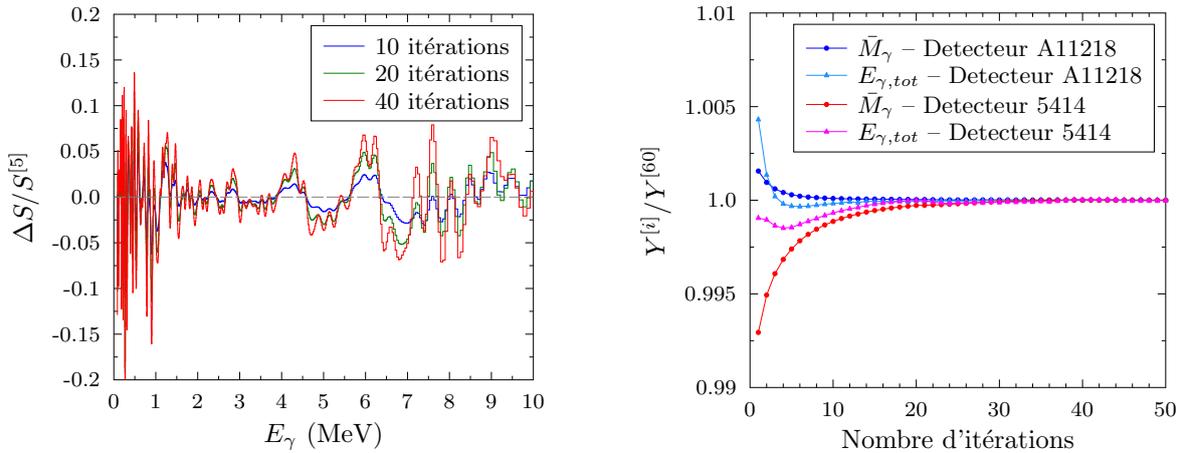
Dans cette équation, les probabilités conditionnelles $P(d_i|e_j)$ correspondent aux éléments R_{ij} de la matrice de réponse. Le spectre d'émission \mathbf{S} et le spectre mesuré \mathbf{M} sont directement reliés aux probabilités $P(e_j)$ et $P(d_i)$ par $S = N_S P(e_j)$ et $M_i = N_M P(d_i)$. N_S et N_M désignent alors respectivement le nombre total de photons émis et détectés. Le terme de droite de l'équation (3.3) fait apparaître le terme inconnu $P(e_j)$. Ainsi, il est nécessaire de définir un *prior*, c'est-à-dire une hypothèse initiale sur le spectre réel : $\mathbf{P} = \mathbf{S}^{(0)}$. La méthode peut alors être appliquée successivement, en actualisant cette hypothèse avec le résultat précédent [140]. Le spectre

déconvolué à l'itération $k + 1$ est alors donné par :

$$S_j^{(k+1)} = S_j^{(k)} \sum_i \frac{R_{ij}}{\varepsilon_j \times \left[\sum_p R_{ip} S_p^{(k)} \right]} M_i \quad (3.4)$$

où ε_j est l'efficacité totale de détection du photon d'énergie e_j .

Dans la procédure d'analyse de données utilisée dans la thèse, le prior \mathbf{P} est construit à partir de la distribution mesurée \mathbf{M} , lissée afin d'en retirer les éventuelles structures et donc de biaiser le moins possible le résultat final. Le paramètre libre le plus important de cette méthode de déconvolution est le nombre d'itérations, qui joue le rôle de paramètre de régularisation. Ainsi, si le nombre d'itérations devient important, des fluctuations artificielles vont apparaître dans le spectre déconvolué. À l'inverse, les premières itérations sont fortement biaisées par le prior. Il est plutôt difficile d'estimer rigoureusement le nombre optimal d'itérations. Ce problème est d'autant plus complexe dans le cas des γ prompts de fission, car le spectre contient des structures importantes à basse énergie. Le choix du nombre d'itérations est donc un compromis entre la reproduction de ces structures réelles, et l'ajout de structures artificielles à plus haute énergie. De telles structures oscillatoires sont par exemple visibles en Figure 3.6a. Pour prendre en compte cette difficulté dans l'analyse des données, une incertitude systématique σ_{iter} a été définie, et est estimée en variant le nombre d'itérations utilisé durant la déconvolution des spectres. On remarque alors en Figure 3.6b que la multiplicité moyenne des γ prompts (i.e. l'intégrale du spectre) et l'énergie γ totale (i.e. le premier moment du spectre) convergent rapidement : la valeur de ces observables semble dépendre relativement peu du nombre d'itérations.



(a) Effets spectraux : création d'oscillations dans le spectre S par rapport au spectre $S^{[5]}$ obtenu après 5 itérations.

(b) Effets sur les observables γ moyennes. $Y^{[60]}$ désigne la valeur de l'observable (M_γ ou $E_{\gamma,tot}$) obtenue après 60 itérations.

FIGURE 3.6 – Influence du nombre d'itérations sur les résultats de la déconvolution des PFGS.

Incertitudes

La déconvolution des PFGS introduit des incertitudes statistiques et systématiques. Les incertitudes statistiques proviennent d'une part du spectre mesuré, et d'autre part de la matrice de réponse, cette dernière étant générée par le code stochastique GEANT4 (voir Section 2.5). Un nombre important de simulations ont été effectuées afin de calculer cette matrice de réponse, et l'incertitude statistique associée est donc faible. Point par point, cette incertitude est généralement inférieure à 0.2%. En prenant en compte la matrice de corrélation associée, l'incertitude sur la multiplicité totale est inférieure à 0.1%.

Néanmoins, la matrice de réponse induit tout de même des incertitudes systématiques importantes. D'une part, les facteurs correctifs appliqués à l'efficacité simulée comportent une

incertitude de l'ordre de 2% environ (Tableau 2.5), qui induit donc une incertitude similaire sur la multiplicité totale. De plus, la matrice de réponse étant construite à partir d'une simulation numérique, il conviendrait d'estimer les incertitudes relatives aux modèles utilisés dans cette simulation, ainsi que les incertitudes technologiques (liées à la géométrie du dispositif). Ces estimations sont généralement réalisées à partir de calculs de sensibilité sur certains paramètres de la simulation. Cependant, de telles estimations n'ont pas été réalisées, compte tenu du nombre de calculs nécessaires (chaque paramètre géométrique doit être étudié séparément sur l'ensemble de la gamme en énergie).

Enfin, des effets de spectres peuvent influencer le résultat de la déconvolution des PFGS. Il peut s'agir de défauts d'étalonnage des détecteurs ou de la largeur des bins utilisés pour ces spectres discrets. Ces effets ont été négligés en première approche dans l'analyse des PFGS, dans la mesure où leur contribution est faible comparée aux autres sources d'incertitudes précédemment mentionnées.

3.2.3 Résultats

Observables moyennes

Dans cette section, nous nous intéressons aux observables γ moyennes calculées associées aux PFGS. Ainsi, la multiplicité moyenne des γ prompts (\bar{M}_γ) désigne l'intégrale du PFGS, et correspond au nombre de γ émis par fission. L'énergie totale moyenne émise par les γ prompts de fission ($E_{\gamma,tot}$) est le moment d'ordre un (espérance mathématique) du spectre. Finalement, l'énergie moyenne des γ prompts de fission (ε_γ) est le rapport des deux observables précédentes :

$$\bar{M}_\gamma = \sum_j S_j \quad [\text{photons/fission}] \quad (3.5)$$

$$E_{\gamma,tot} = \sum_j E_j S_j \quad [\text{MeV/fission}] \quad (3.6)$$

$$\varepsilon_\gamma = E_{\gamma,tot}/\bar{M}_\gamma \quad [\text{MeV/photon}] \quad (3.7)$$

où S_j désigne la composante du spectre de γ prompts de fission (normalisé par le nombre total de fissions), dans le bin j , dont l'énergie est comprise dans l'intervalle $[E_j; E_{j+1}[$.

Pour commencer, il nous faut étudier la cohérence des résultats obtenus entre les différents détecteurs de VESPA. Ainsi, pour chaque détecteur, le spectre de γ prompts de fission a été corrigé du bruit de fond supposé constant (Figure 3.4), puis déconvolué. Puis, à partir de ces spectres, la multiplicité et l'énergie moyenne des γ prompts de fission ont été calculées. Les résultats ainsi obtenus sont représentés en Figure 3.7. On remarque sur la Figure 3.7a que la correction d'efficacité de la matrice de réponse par le facteur constant f_c permet d'obtenir des résultats cohérents entre les détecteurs 1 à 5. Il s'agit d'un résultat satisfaisant, ces détecteurs ayant la même dimension et étant disposés dans le même plan autour de la chambre d'ionisation. On observe néanmoins une déviation de cette multiplicité par rapport à celles obtenues avec les détecteurs A11218 et A14400. En effet, comme mentionné en Section 2.5.4, la chambre d'ionisation induit probablement un biais dans la matrice de réponse, qui est plus important pour les détecteurs 1 à 5 (Q489 à 5416 en Figure 3.7), du fait de leur position par rapport à la CI. Ainsi, dans la suite, sauf mention contraire, les résultats sont renormalisés sur la multiplicité obtenue avec le détecteur A11218, pour lequel la multiplicité est cohérente avec les valeurs de la littérature. À l'inverse, l'énergie moyenne des γ prompts (Figure 3.7b) est indépendante du facteur de correction constant f_c . Par conséquent, l'incertitude associée à l'énergie moyenne ne comprend pas l'incertitude systématique liée à cette correction. Cependant, les incertitudes ainsi calculées sont très faibles (environ 0.3 keV), et sont sans doute sous-estimées. Il a donc été décidé de lui attribuer une incertitude systématique plus réaliste (mais néanmoins arbitraire) de 1%.

Afin de quantifier l'impact des neutrons sur les observables γ mesurées à l'aide des détecteurs A11218 et A14400 (voir Section 3.2.1), ces observables ont été calculées pour deux fenêtres

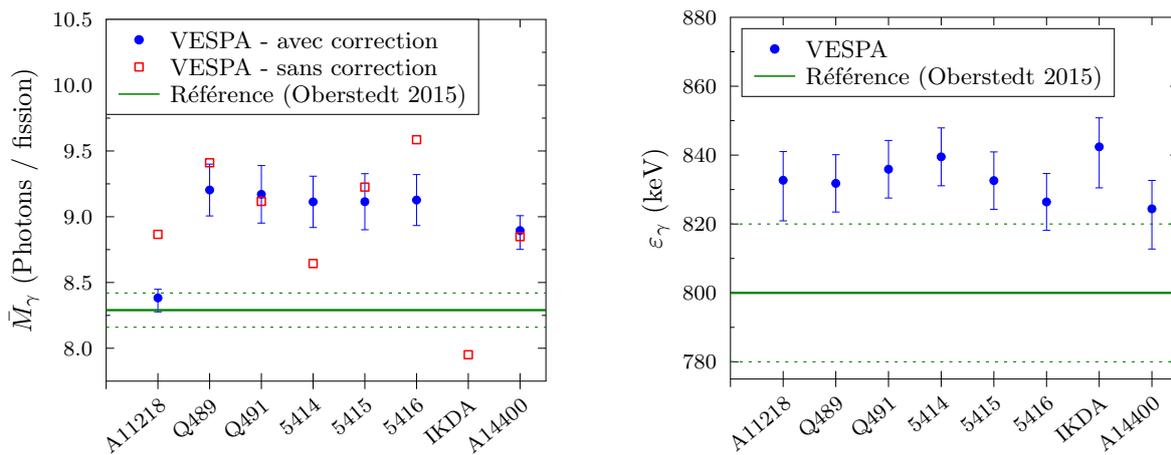
(a) Multiplicité moyenne des γ prompts de fission.(b) Énergie moyenne des γ prompts de fission.

FIGURE 3.7 – Observables γ obtenues après déconvolution des PFGS pour chaque scintillateur de VESPA, calculées entre 100 keV et 7 MeV. Les résultats reportés dans [143] sont également indiqués.

temporelles différentes. Les résultats obtenus sont indiqués dans le Tableau 3.4. On constate alors que plus la fenêtre en temps est large, plus la multiplicité γ augmente. Dans la mesure où la résolution temporelle est prise en compte dans l'analyse des données (*via* la matrice de réponse), cela signifie que des photons supplémentaires sont détectés entre 3 et 5 ns après la fission. Ces γ proviennent en partie de la diffusion inélastique des neutrons (voir Figure 3.5a), mais également de la désexcitation des isomères de vie courte (de l'ordre de quelques nanosecondes). Il est néanmoins difficile d'estimer le poids relatif de ces deux contributions. Une telle estimation pourrait par exemple être réalisée avec FIFRELIN (pour les isomères) et GEANT4 (pour les diffusions inélastiques des neutrons).

TABLEAU 3.4 – Influence de la fenêtre en temps sur les observables γ , calculées entre 80 keV et 8 MeV pour les détecteurs A11218 et A14400.

Détecteur	\bar{M}_γ (γ /fission)	$E_{\gamma,tot}$ (MeV/fission)	ε_γ (MeV)	Δt (ns)
A11218	$8.51^{+0.06}_{-0.11}$	$7.00^{+0.05}_{-0.09}$	0.82 ± 0.01	± 5
	$8.37^{+0.07}_{-0.08}$	$6.89^{+0.06}_{-0.07}$	0.82 ± 0.01	± 3
A14400	$9.03^{+0.12}_{-0.15}$	$7.35^{+0.09}_{-0.12}$	0.81 ± 0.01	± 5
	8.87 ± 0.12	7.25 ± 0.10	0.82 ± 0.01	± 3

Pour finir, les résultats obtenus avec VESPA sont comparés aux valeurs présentes dans la littérature dans le Tableau 3.5. On constate alors que la multiplicité des γ prompts de fission mesurée avec le détecteur A11218 est cohérente avec les valeurs de la littérature. Quant à l'énergie (totale et moyenne) des γ prompts de fission, on observe qu'elle est légèrement supérieure aux autres mesures récentes effectuées avec des scintillateurs LaBr_3 . Une renormalisation des données de la littérature pourrait néanmoins être nécessaire afin de prendre en compte les coupures temporelles appliquées à ces données, comme proposé dans [144].

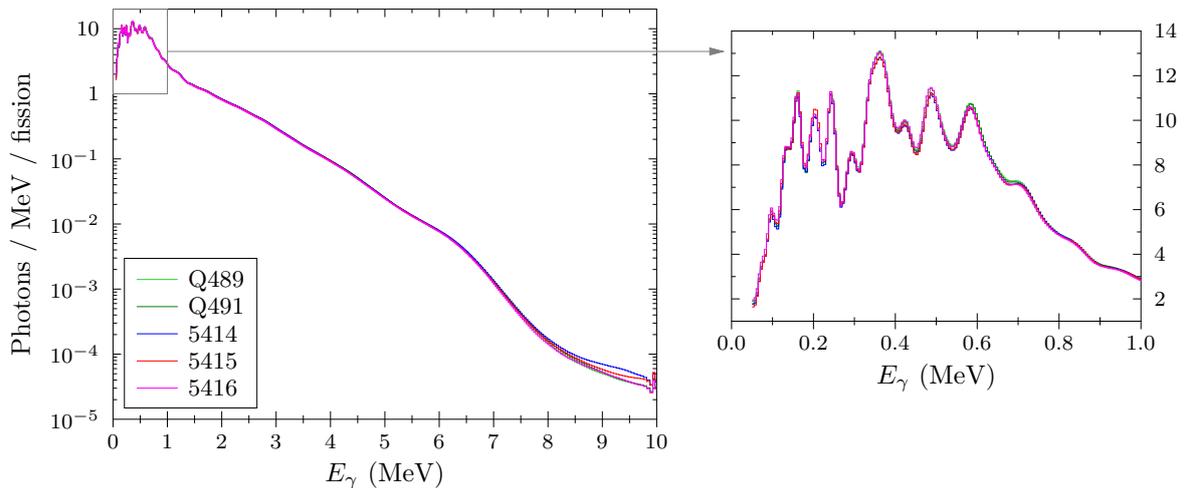
TABLEAU 3.5 – Comparaison des résultats obtenus avec le détecteur A11218 de VESPA (dans l'intervalle ± 5 ns), avec les résultats présents dans la littérature.

	Type de détecteur	\bar{M}_γ (γ /fission)	$E_{\gamma,tot}$ (MeV/fission)	ε_γ (MeV)	Intervalle (MeV)
VESPA (A11218)		$8.51^{+0.06}_{-0.11}$	$7.00^{+0.05}_{-0.09}$	0.82 ± 0.01	0.08–8.0
		$8.38^{+0.07}_{-0.11}$	$6.98^{+0.05}_{-0.09}$	0.83 ± 0.01	0.1–7.0
Gatera [138]	LaBr ₃ (Ce)	8.38 ± 0.11	6.82 ± 0.10	0.81 ± 0.02	0.1–7.0
Qi [145]	LaBr ₃ (Ce)	8.30 ± 0.15	6.60 ± 0.15	0.80 ± 0.02	0.1–6.0
Oberstedt [143]	LaBr ₃ (Ce)	8.29 ± 0.13	6.65 ± 0.10	0.80 ± 0.02	0.1–6.4
Chyzh [146]	BaF ₂	8.14 ± 0.40	7.65 ± 0.55	0.94 ± 0.05	0.2–9.5
Verbinski [147]	NaI(Tl)	7.80 ± 0.30	6.84 ± 0.30	0.88 ± 0.04	0.14–10.0
Pleasanton [148]	NaI(Tl)	8.32 ± 0.40	7.06 ± 0.35	0.85 ± 0.06	0.085–10.0

Spectres

Afin d'aller plus loin dans l'analyse des données expérimentales, nous allons dans cette partie étudier la forme des spectres de γ prompts de fission mesurés avec les scintillateurs de VESPA.

Pour commencer, nous avons vu en Figure 3.7 que les détecteurs 1 à 5 semblaient fournir des résultats cohérents, d'après les valeurs de multiplicité et d'énergie γ moyennes. Les PFGS correspondants à ces détecteurs sont représentés en Figure 3.8. On remarque alors que les résultats sont bel et bien cohérents entre ces cinq détecteurs. Ainsi, pour plus de clarté, nous allons effectuer une moyenne pondérée de ces données, afin d'en extraire un unique spectre que l'on nommera 'AVG5D' dans la suite. Cette moyenne est calculée en prenant en compte les corrélations entre les données, dues à l'étalonnage en efficacité des détecteurs (incertitudes systématiques liées à l'activité et la position des sources). Le χ^2 associé à cette moyenne est alors inférieur au χ^2 limite à 3σ (pour $N = 4$ degrés de liberté).


 FIGURE 3.8 – Spectres de γ prompts de fission obtenus avec VESPA (scintillateurs 1 à 5).

Ensuite, ce spectre moyen AVG5D est comparé aux spectres obtenus avec le détecteur A11218 en Figure 3.9, pour les deux intervalles en temps présentés dans le Tableau 3.4. Dans cette figure, le spectre AVG5D a été renormalisé afin que la multiplicité associée (i.e. l'intégrale du spectre) corresponde à celle obtenue avec le détecteur A11218 (voir Figure 3.7a). Afin de faciliter la comparaison, les spectres sont également représentés relativement à un spectre de référence (A11218, pour une coupure de ± 3 ns).

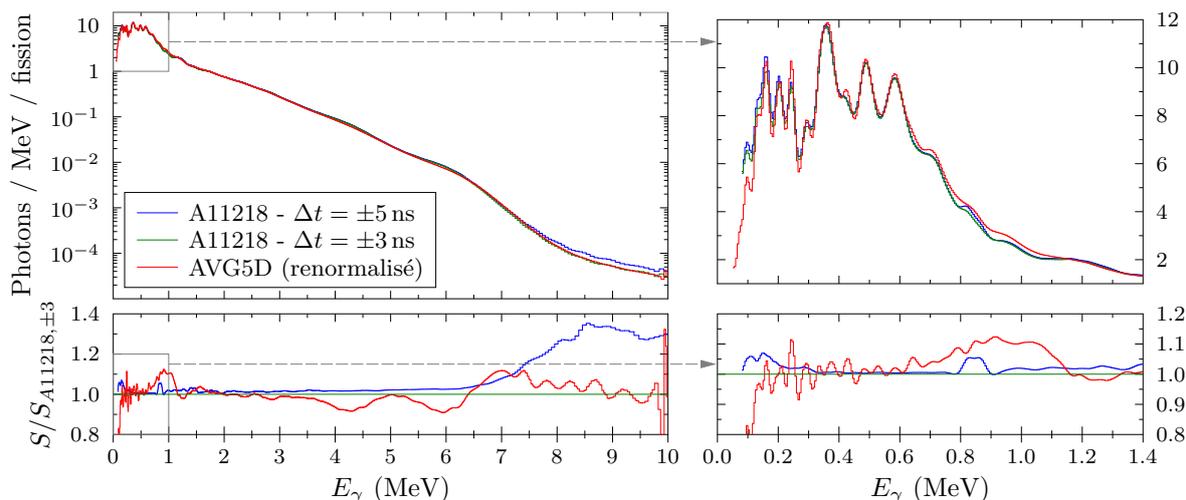


FIGURE 3.9 – Spectres de γ prompts de fission obtenus avec le détecteur A11218 pour différentes coupures en temps. Le spectre moyen correspondant aux scintillateurs 1 à 5 (AVG5D) est également représenté pour comparaison, et normalisé à la multiplicité de A11218 pour ± 5 ns.

On remarque que les structures à basse énergie (entre 100 et 800 keV environ) sont bien reproduites dans tous les cas. La forme de certaines d’entre elles change selon le détecteur (notamment vers 400 keV, et avant 300 keV), mais il peut s’agir d’effets liés à la résolution énergétique du détecteur A11218, plus importante que pour les détecteurs 1 à 5, plus petits (voir Figure 2.6). On remarque cependant dans plusieurs zones des différences entre ces spectres qui ne sont pas imputables à des effets de résolution. La première de ces zones se situe autour de 100 keV, où la structure obtenue avec le détecteur A11218 a une intensité significativement plus importante que pour AVG5D. Cet effet peut être la conséquence d’une sous-estimation de l’absorption des γ de basse énergie dans la chambre d’ionisation, et donc d’une surestimation de l’efficacité totale dans les détecteurs 1 à 5. Ensuite, entre 600 keV et 1.2 MeV environ, la courbe AVG5D est au-dessus de la courbe A11218. Les deux spectres étant normalisés, cette surestimation locale est notamment compensée par la sous-estimation discutée précédemment. Cependant, l’origine physique de cette déviation est plus compliquée à déterminer. Enfin, on remarque la présence de deux bosses de faible amplitude autour de 4 et 6 MeV dans les spectres du détecteur A11218, qui n’apparaissent pas dans la courbe AVG5D.

La Figure 3.9 nous permet également d’étudier l’impact de la fenêtre en temps sur les spectres du détecteur A11218. On remarque en effet un pic autour de 850 keV, qui correspond à la diffusion inélastique des neutrons prompts avec le ^{56}Fe qui compose la CI, comme discuté en Section 3.2.1. En effet, ce pic n’est pas présent sur le spectre AVG5D, ni pour le détecteur A11218 pour une fenêtre en temps plus étroite. Cependant, le pic seul ne permet pas d’expliquer la différence de multiplicité observée dans le Tableau 3.4 entre ces deux coupures temporelles. En effet, on observe que l’intensité des pics à basse énergie ($E \lesssim 300$ keV) augmente avec la largeur de l’intervalle temporel. D’après la Figure 3.5b, il semble peu probable que cet effet soit provoqué par les neutrons prompts de fission. Ainsi, il s’agit probablement de rayons γ issus de la désexcitation d’isomères, comme nous le verrons avec FIFRELIN (Figure 5.15). Enfin, bien que l’impact sur la multiplicité totale soit négligeable, on remarque également que des γ de haute énergie ($E \gtrsim 7.5$ MeV) semblent être produits entre 3 et 5 ns. Dans ce cas, il est difficile de déterminer si cet effet est dû aux neutrons prompts, aux isomères ou simplement à un bruit de fond induit par l’élargissement de la fenêtre temporelle.

Pour finir, les spectres de γ prompts obtenus avec VESPA sont comparés aux données expérimentales présentes dans la littérature [143, 145], en Figure 3.10. Dans la mesure où ces PFGS ont été obtenus avec des scintillateurs $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ de dimension 50.8 mm \times 50.8 mm, nous utilisons le spectre AVG5D normalisé à $M_\gamma = 8.30$ pour nous comparer à ces mesures.

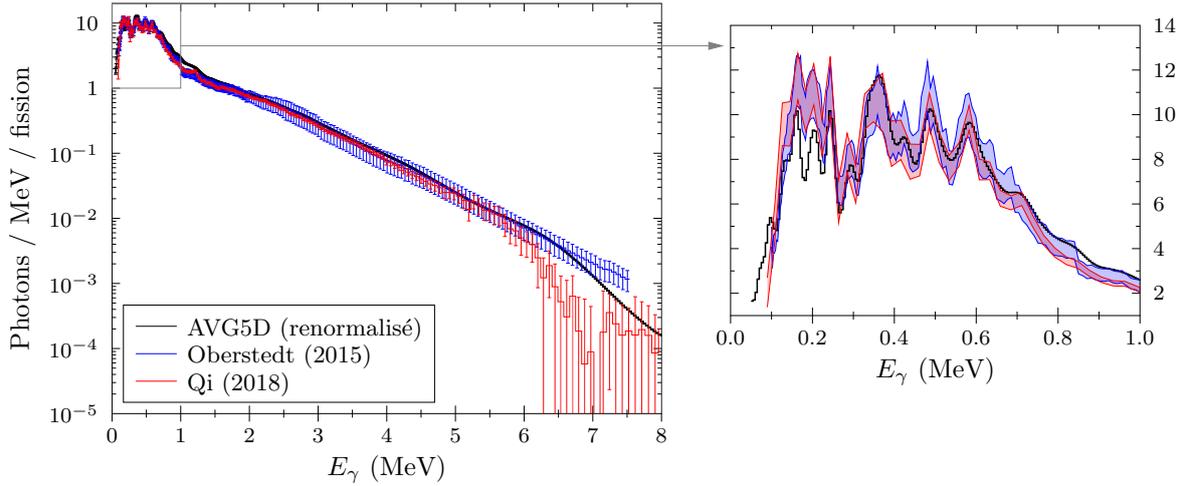


FIGURE 3.10 – Spectres de γ prompts de fission obtenus avec le dispositif VESPA (moyenne pondérée des détecteurs 1 à 5), comparé aux spectres obtenus par Qi [145] et Oberstedt [143].

Plusieurs éléments peuvent être notés dans cette figure. Tout d'abord, tous les PFGS obtenus avec VESPA (Figures 3.8 et 3.9) présentent un décrochage de la décroissance exponentielle après 7 MeV environ. Les données d'Oberstedt [143] ont quant à elles été analysées en supposant à l'inverse que les PFGS pouvaient être approchés par une fonction exponentielle entre 3 et 10 MeV [143], et l'écart observé résulte donc de cette hypothèse, qui n'est pas présente dans la procédure de déconvolution utilisée avec VESPA. Malheureusement, les données de Qi [145] ne sont pas suffisamment précises dans cette zone pour nous indiquer si ce décrochage est réellement présent où s'il s'agit d'un artefact de l'analyse. Nous pouvons également observer que nos mesures semblent légèrement surestimer le nombre de γ entre 700 keV et 1.5 MeV. Or, une telle surestimation du spectre de AVG5D a déjà été observée en Figure 3.9, par rapport au spectre obtenu avec le détecteur A11218. Il s'agit donc probablement du même artefact lié à la CI, qui impacte la réponse des détecteurs 1 à 5.

On remarque également que l'intensité relative des structures de plus basse énergie ($E \lesssim 300$ keV) semble sous-estimée dans VESPA par rapport aux autres mesures. Comme on peut le voir en Figure 3.9, la faible intensité du spectre à basse énergie est une caractéristique également présente pour le détecteur A11218. Cet écart entre nos données et celles de la littérature pourrait être dû à une mauvaise estimation du pic de rétro-diffusion, comme discuté dans [138]. Cette structure, visible par exemple en Figure 2.28, résulte de l'interaction des γ avec des matériaux environnants, et l'énergie associée est donnée par :

$$E_{RD} = \frac{E_\gamma}{1 + 2 [E_\gamma / (m_e c^2)]} \quad (3.8)$$

avec m_e la masse de l'électron : $m_e c^2 = 511$ keV. Ainsi, on a $E_{RD} < 250$ keV pour $E_\gamma \leq 10$ MeV. Pour étudier l'impact du pic de rétrodiffusion, nous avons fait varier son intensité dans la matrice de réponse associée au détecteur A11218, avant de déconvoluer le spectre mesuré. Les résultats ainsi obtenus sont représentés en Figure 3.11. On observe alors qu'une sous-estimation (resp. surestimation) du pic de rétro-diffusion dans la réponse du détecteur peut induire une surestimation (resp. sous-estimation) des γ de basse énergie, sans que le reste du spectre soit impacté.

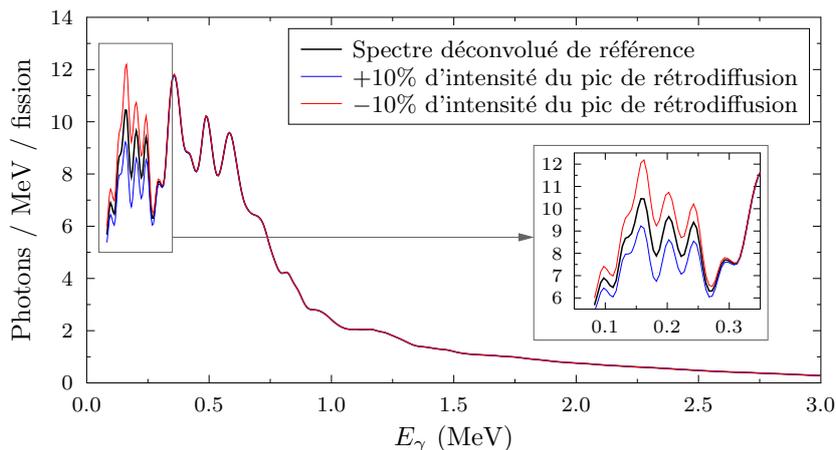


FIGURE 3.11 – Illustration de l’impact du pic de rétro-diffusion sur les structures à basse énergie des PFGS après déconvolution (exemple du détecteur A11218).

3.3 Mesures multi-paramètres

Dans les sections précédentes, nous avons présenté les mesures réalisées avec la chambre d’ionisation pour les caractéristiques des fragments de fission (Section 3.1) d’une part, et les mesures de spectres de γ prompts de fission avec les scintillateurs LaBr_3 (Section 3.2) d’autre part. Néanmoins, l’intérêt d’un dispositif comme VESPA réside dans la mesure simultanée des caractéristiques des fragments, et des particules prompts. Dans cette section, nous discuterons donc ces mesures multi-paramètres, en particulier les coïncidences entre les fragments de fission et les γ prompts de fission (FF- γ).

3.3.1 Corrélations directes

À chaque événement de fission vérifiant $\cos(\theta) > 0.7$ (i.e. $\theta \lesssim 46^\circ$) peut être associé la masse et l’énergie cinétique des fragments de fission grâce à la chambre d’ionisation. En parallèle, les spectres mesurés des γ prompts de fission sont remplis par l’ensemble des scintillateurs LaBr_3 . Ainsi, en utilisant conjointement ces deux systèmes de détection, nous pouvons par exemple obtenir des PFGS associés à la masse des fragments de fission, ou à leur énergie cinétique. Cependant, les γ prompts détectés sont émis par les deux fragments, et des méthodes particulières doivent être mises en place pour remonter à la contribution d’un fragment unique (voir Section 3.3.2). Pour l’heure, nous allons nous focaliser sur les corrélations directes entre les γ prompts de fission, et une paire de fragments. Les paires de fragments peuvent être caractérisées par la masse du fragment lourd pré-neutron (le fragment léger étant obtenu par conservation de la masse : $A_L = 252 - A_H$), et l’énergie cinétique totale (TKE).

Ainsi, les données mesurées relatives aux fragments de fission et aux γ prompts sont stockées dans un histogramme à deux dimensions : $N(A_H, E_\gamma)$ ou $N(\text{TKE}, E_\gamma)$. Par conséquent, les PFGS peuvent être déterminés, après correction du bruit de fond et déconvolution (voir Section 3.2.2), pour chaque valeur de la masse du fragment lourd (A_H) ou de l’énergie cinétique totale (TKE). Les observables γ moyennes (multiplicité, énergie totale et énergie moyenne des γ prompts) sont ensuite obtenues à partir de ces spectres déconvolués, en appliquant les équations (3.5) à (3.7).

La méthode décrite ci-dessus a été appliquée sur l’ensemble des scintillateurs LaBr_3 qui composent VESPA. Notons tout d’abord que la multiplicité moyenne des γ prompts ainsi obtenue est supérieure à la multiplicité reportée en Section 3.2, où les spectres déconvolués étaient rapportés au nombre total de fissions détectées dans la CI. Désormais, une condition supplémentaire est imposée concernant l’angle d’émission des fragments de fission, comme expliqué en Section 3.1. Moins de fragments, et moins de γ de fission sont alors détectés, ce qui est pris

en compte par la normalisation. Or, nous avons pu constater qu'imposer cette sélection angulaire pour les fragments de fission induit une augmentation de la multiplicité d'environ 3%. Comme cette augmentation est également observée sur la multiplicité mesurée (avant la déconvolution du spectre), il ne s'agit pas *a priori* d'un effet lié à l'étape de déconvolution des données. Il peut néanmoins s'agir d'un effet physique, lié à l'émission anisotrope des γ prompts de fission [149]. Ainsi, dans la suite, tous les spectres seront renormalisés à la multiplicité obtenue en Section 3.2 ($\bar{M}_\gamma = 8.51$ pour un seuil à 80 keV, voir le Tableau 3.5), sauf mention contraire. De plus, comme en Section 3.2.3, les résultats des détecteurs 1 à 5, cohérents entre eux, sont moyennés afin de former le jeu de données AVG5D.

La Figure 3.12 représente alors les résultats obtenus en fonction de la masse du fragment lourd : $\bar{M}_\gamma(A_H)$ et $E_{\gamma,tot}(A_H)$.

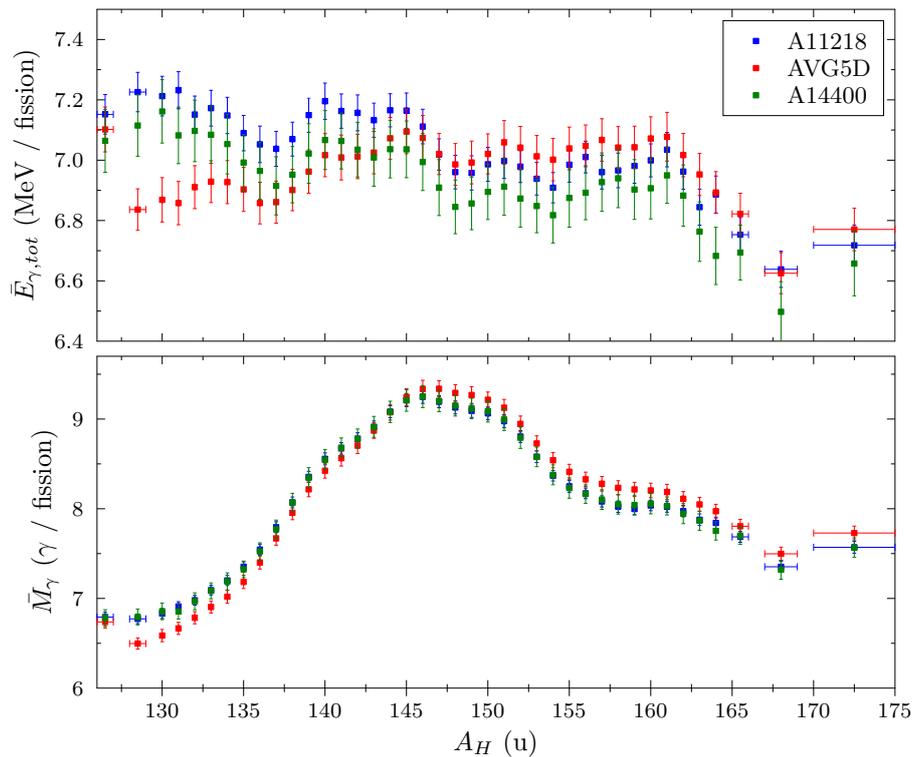


FIGURE 3.12 – Multiplicité moyenne et énergie totale des γ prompts de fission en fonction de la masse pré-neutron du fragment lourd, obtenues avec VESPA entre 80 keV et 7 MeV.

Sur cette figure, on remarque que l'accord entre les détecteurs A11218 et A14400 est très satisfaisant. Le décalage visible sur la courbe $E_{\gamma,tot}(A_H)$ est cohérent avec la Figure 3.7b : l'énergie des γ prompts de fission est plus faible avec le détecteur A14400 qu'avec le détecteur A11218. À l'inverse, on observe d'importantes déviations entre ces courbes et celles de AVG5D. De plus, cet écart évolue avec la masse des fragments, de manière approximativement linéaire entre $A_H = 130$ et $A_H = 160$. Cette dépendance à la masse des fragments est surprenante, dans la mesure où les biais potentiels dans la matrice de réponse identifiés jusqu'à présent (relatifs à la CI, ou à la réponse intrinsèque des détecteurs) ne devraient pas dépendre ainsi de la masse des fragments. Ainsi, il s'agit potentiellement d'effets d'origine physique, liés par exemple aux différentes coupures en temps. En effet, ces coupures en temps sont importantes pour les γ produits par la diffusion inélastique des neutrons, ou par désexcitation des isomères. Or, ces deux processus dépendent de la masse des fragments de fission. Malgré ces divergences entre détecteurs, l'ensemble des courbes $\bar{M}_\gamma(A_H)$ possède des caractéristiques générales communes à tous les détecteurs. On observe en effet dans tous les cas que la multiplicité totale est minimale vers une zone de fragments lourds pouvant présenter des fermetures de couches neutrons ($N = 82$) et/ou protons ($Z = 50$). Le maximum de la distribution est quant à lui atteint vers $A_H = 146$ u

($A_L = 106$ u). Un second minimum local semble également présent vers $A_H \simeq 168$ u ($A_L \simeq 84$ u). Ce minimum pourrait s'expliquer par la présence du fragment ${}^{84}_{34}\text{Se}$ ($N = 50$). L'allure générale des courbes $E_{\gamma,tot}(A_H)$ est plus délicate à analyser, dans la mesure où les résultats diffèrent grandement selon les détecteurs pour $A_H \lesssim 135$ u. Après cela, nous pouvons tout de même noter que l'énergie γ totale semble peu varier jusqu'à $A_H \simeq 160$ u, où elle diminue jusqu'au minimum local à $A_H = 168$ u.

Les observables γ moyennes peuvent également être mesurées en fonction de l'énergie cinétique totale (TKE) des fragments de fission, comme représenté en Figure 3.13.

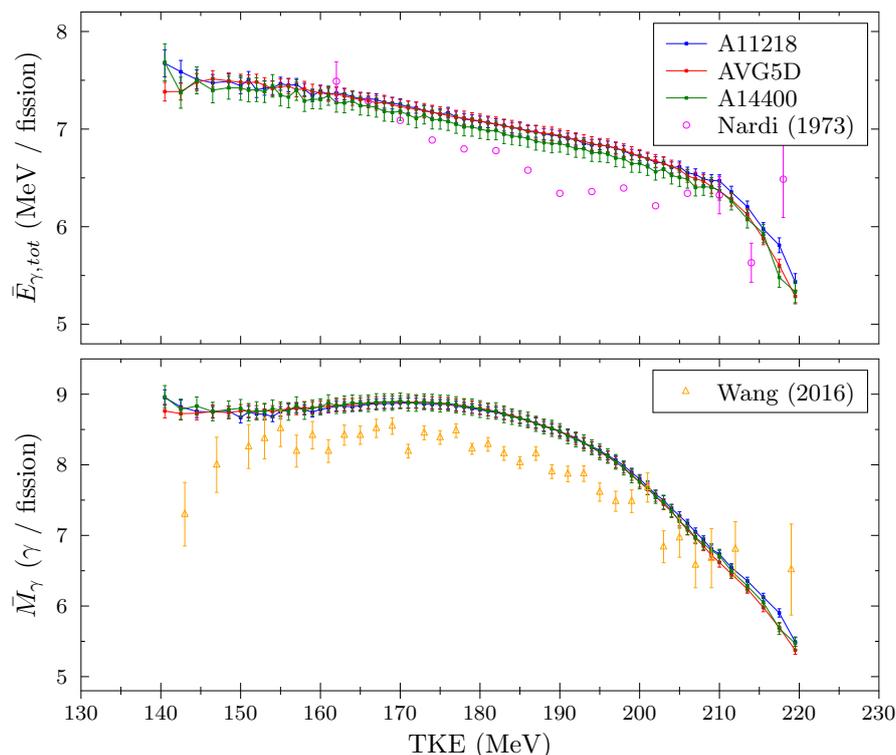


FIGURE 3.13 – Multiplicité moyenne et énergie totale des γ prompts de fission en fonction de l'énergie cinétique totale (pré-neutron) des fragments de fission, obtenues avec VESPA entre 80 keV et 7 MeV. Ces données sont comparées aux mesures de Nardi [150] et Wang [151].

Contrairement à ce qui était observé en Figure 3.12, les résultats de l'intégralité des détecteurs sont cohérents après la renormalisation. On observe alors que la multiplicité moyenne des γ prompts reste constante jusqu'à 180 MeV environ, avant de chuter quand le TKE devient important. On remarque que si la multiplicité moyenne des γ prompts présente une saturation aux bas TKE, ce n'est pas le cas de l'énergie totale des γ . Pour comprendre ces résultats, nous pouvons raisonner en termes d'énergie d'excitation. En effet, pour une fragmentation donnée, une augmentation de l'énergie cinétique implique directement une diminution de l'énergie d'excitation des fragments. Ainsi, pour les forts TKE, les fragments ne sont pas suffisamment excités (on peut potentiellement avoir $E < S_n$) et vont exclusivement se désexciter par voie électromagnétique (γ et électrons de conversion), ce qui explique la forte dépendance des observables γ au TKE. À l'inverse, quand le TKE est plus faible (fragments plus excités), des neutrons sont émis, et l'énergie d'excitation supplémentaire doit alors être distribuée entre neutrons et γ .

Cependant, l'interprétation de ces données en termes d'énergie d'excitation présente d'importantes limites, dans la mesure où pour une certaine valeur de TKE, plusieurs masses sont présentes, et donc plusieurs énergies d'excitation des fragments. De plus, la masse et l'énergie cinétique totale des fragments de fission sont deux caractéristiques corrélées. Ainsi, plus la fission est asymétrique, plus le TKE moyen est faible, comme on peut le voir en Figure 3.1c. Une augmentation du TKE ne signifie donc pas nécessairement une augmentation de l'énergie

d'excitation des fragments (les deux quantités sont toutefois fortement corrélées).

Bien que l'énergie d'excitation totale des fragments de fission (TXE) ne puisse pas être directement mesurée, il est possible de l'estimer à partir de données dépendantes de la masse et du TKE, selon :

$$TXE(A) \simeq \langle Q \rangle(A) - TKE(A) \quad (3.9)$$

où $\langle Q \rangle(A)$ est la chaleur de réaction moyenne pour une masse donnée, estimée à partir de la base de données AME2020 [152], et des rendements en charge du modèle de Wahl [153] (voir Section 4.1.1.1). Les résultats ainsi obtenus sont présentés en Figure 3.14. On observe alors sensiblement les comportements décrits précédemment. Ainsi, la multiplicité moyenne des γ prompts présente une saturation à haut TXE, et l'énergie totale des γ prompts évolue linéairement avec l'énergie d'excitation totale. La pente associée est plutôt faible (environ 0.02 MeV/MeV).

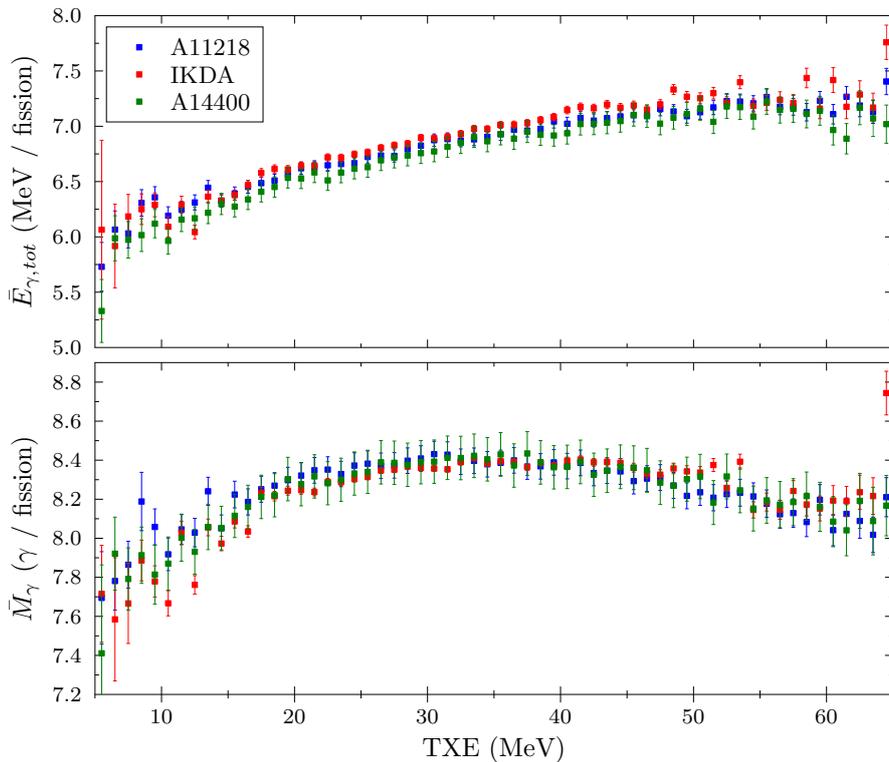


FIGURE 3.14 – Multiplicité moyenne et énergie totale des γ prompts de fission en fonction de l'énergie d'excitation totale des fragments de fission, obtenues avec VESPA entre 80 keV et 8 MeV, entre -3 et 3 ns.

Comme évoqué précédemment, ces effets sont liés à la compétition entre l'énergie emportée par les neutrons et celle emportée par les rayons γ . En effet, quand le TXE est faible et que $E < S_n$, une augmentation de l'énergie d'excitation implique l'émission de nouveaux γ .

Cependant, quand l'énergie d'excitation devient suffisamment importante pour que les fragments puissent émettre des neutrons, un gain supplémentaire d'énergie ne se traduit pas nécessairement par une augmentation de la multiplicité. En effet, la voie neutron bénéficie également de ce gain d'énergie, ce qui se traduit notamment par une augmentation de la multiplicité des neutrons, comme représenté en Figure 3.15. On remarque toutefois que ce surplus d'énergie n'est pas intégralement injecté dans la voie neutrons, dans la mesure où l'énergie totale des γ prompts augmente avec le TXE, et diminue avec le TKE (ce qui est également observé par Nifenecker [154] et Nardi [150] par exemple). Ainsi, pour les fortes énergies d'excitation, une augmentation de l'énergie se traduit par l'émission de γ de plus haute énergie plutôt que par l'émission de γ supplémentaires. Cet effet est rendu possible par la présence de γ dits statistiques issus du continuum à haute énergie, par opposition aux γ discrets issus des niveaux à basse

énergie et responsables de structures dans les PFGS (Figure 3.10 par exemple).

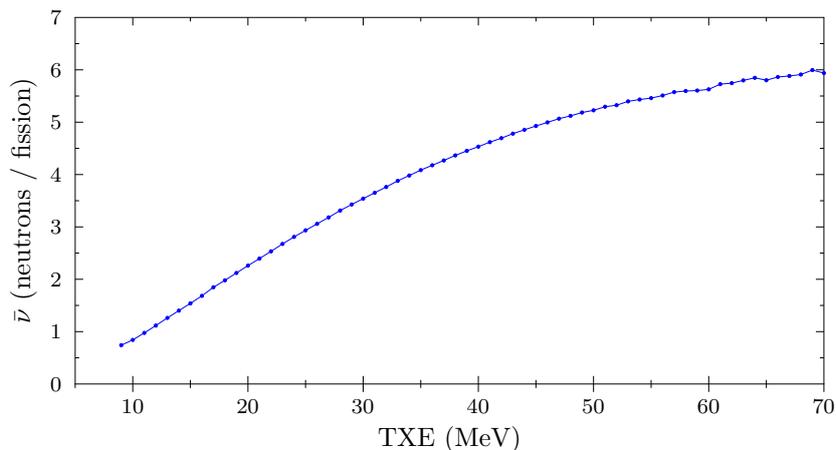
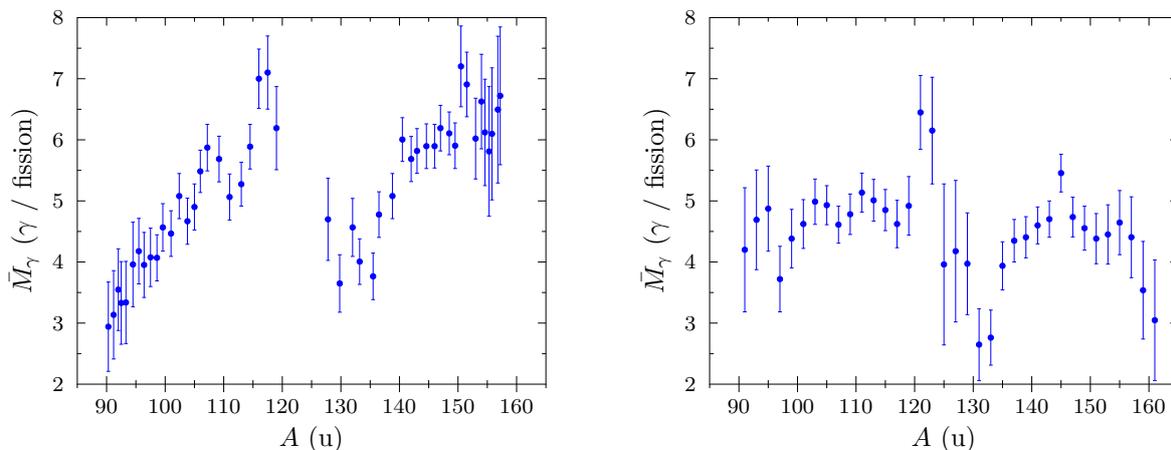


FIGURE 3.15 – Multiplicité totale moyenne des neutrons prompts en fonction du TXE, obtenue avec VESPA (résultats préliminaires fournis sans incertitude).

3.3.2 Méthode des aberrations Doppler

Pour aller plus loin dans l'analyse des données expérimentales, nous souhaiterions obtenir les observables γ en fonction de la masse de chaque fragment. Ce type d'observable est plus délicat à obtenir, dans la mesure où les γ sont émis par les deux fragments de fission. L'enjeu est alors de séparer ces deux contributions.

La multiplicité des γ prompts en fonction de la masse de chaque fragment a déjà été mesurée à plusieurs reprises pour la fission spontanée du ^{252}Cf . Ainsi, la Figure 3.16a représente les résultats de Johansson [155], qui a utilisé un collimateur en plomb afin de ne détecter que les γ prompts issus d'un seul des deux fragments. Cette observable a également été mesurée par Glässel *et al.* [156] avec le dispositif 4π Crystal Ball de Darmstadt (voir Figure 3.16b). Dans cette expérience, c'est la méthode des aberrations Doppler (ou méthode de pondération), proposée par Maier-Leibnitz [157], qui a été utilisée. Il s'agit de la méthode que nous avons appliquée aux données de VESPA, et qui sera détaillée dans la suite.



(a) Résultats obtenus par Johansson, 1964 [155]. (b) Résultats obtenus par Glässel *et al.*, 1989 [156].

FIGURE 3.16 – Résultats expérimentaux disponibles dans la littérature pour la multiplicité moyenne des γ prompts en fonction de la masse pré-neutron des fragments de fission.

Les deux résultats expérimentaux présentés ci-dessus illustrent que l'allure de la courbe

$\bar{M}_\gamma(A)$ est sujette à controverse. En effet, la courbe obtenue avec Crystal Ball présente un comportement relativement plat (aux incertitudes près), contrairement à ce qui avait pu être observé antérieurement par Johansson pour la fission spontanée du ^{252}Cf , et par d'autres groupes pour la fission induite par neutron thermique de ^{235}U par exemple [158, 159]. Selon l'équipe de Darmstadt, l'allure en forme de dents de scie (*saw-tooth*) observée dans ces expériences antérieures était un artefact, potentiellement causé par un mauvais étalonnage en masse des détecteurs [156].

Dans ce contexte, il est alors intéressant de chercher à mesurer de nouveau cette observable avec le dispositif VESPA. Pour cela, les spectres de γ prompts de fission sont construits en fonction de la masse et du TKE des fragments. Ces spectres ont été sélectionnés dans l'intervalle $\pm 3\text{ ns}$, pour lequel la multiplicité moyenne des γ prompts de fission est de 8.37 d'après les mesures effectuées avec le détecteur A11218 (voir Tableau 3.4). Les spectres ainsi obtenus sont ensuite déconvolués afin d'en extraire le nombre (\tilde{n}_γ) et l'énergie totale (\tilde{E}_γ) des γ émis, en fonction de la masse et du TKE. Ces quantités contiennent alors d'une part les γ émis par le fragment de masse A , mais également ceux émis par le fragment complémentaire de masse $\bar{A} = 252 - A$.

Comme cela a été mentionné précédemment, nous avons utilisé la méthode des aberrations Doppler afin d'estimer les contributions des fragments A et \bar{A} à l'émission des γ prompts [59]. En effet, les γ prompts de fission sont émis par des fragments en mouvement, et subissent donc l'effet Doppler. Cet effet peut être maximisé pour les détecteurs A11218, IKDA et A14400 qui font face à la chambre, en sélectionnant les fragments émis dans la direction du détecteur. En pratique, cela revient à imposer une condition sur l'angle $\theta_{FF,D}$ formé entre l'axe de fission et les détecteurs : $\cos(\theta_{FF,D}) > 0.9$, ce qui correspond à $|\theta_{FF,D}| < 26^\circ$ environ [59]. Dans ce cas, on montre alors (voir Annexe B) que le nombre $\omega(A, TKE)$ de γ émis par les fragments de masse A est donné par :

$$\omega(A, TKE) = \frac{1}{4(\beta_A + \beta_{\bar{A}})} \left[\frac{\tilde{n}_\gamma(A, TKE)}{N(A, TKE)} (1 + 2\beta_{\bar{A}}) - \frac{\tilde{n}_\gamma(\bar{A}, TKE)}{N(\bar{A}, TKE)} (1 - 2\beta_{\bar{A}}) \right] \quad (3.10)$$

où $N(A, TKE)$ désigne le nombre de fragments détectés dans cette configuration, et β_A désigne la vitesse du fragment de masse A . De même, l'énergie totale émise par les fragments de masse A peut être estimée selon :

$$\omega_E(A, TKE) = \frac{1}{6(\beta_A + \beta_{\bar{A}})} \left[\frac{\tilde{E}_\gamma(A, TKE)}{N(A, TKE)} (1 + 3\beta_{\bar{A}}) - \frac{\tilde{E}_\gamma(\bar{A}, TKE)}{N(\bar{A}, TKE)} (1 - 3\beta_{\bar{A}}) \right] \quad (3.11)$$

Les détails de cette méthode, en particulier la dérivation des équations (3.10) et (3.11) sont fournis en Annexe B.

Finalement, la Figure 3.17 représente les résultats obtenus en appliquant la méthode des aberrations Doppler aux données de VESPA, et les valeurs moyennes associées sont indiquées dans le Tableau 3.6.

TABLEAU 3.6 – Multiplicité et énergie totale moyennes des γ prompts de fission pour les fragments lourds et légers, après normalisation aux données intégrales obtenues avec le détecteur A11218. Les incertitudes systématiques liées à la matrice de réponse ne sont pas incluses.

	Multiplicité (γ /fission)			Énergie totale (MeV/fission)		
	Léger (L)	Lourd (H)	Total	Léger (L)	Lourd (H)	Total
A11218	4.45 ± 0.05	3.92 ± 0.05	8.37 ± 0.02	3.86 ± 0.06	3.04 ± 0.06	6.90 ± 0.02
A14400	4.60 ± 0.06	3.75 ± 0.06	8.35 ± 0.03	3.86 ± 0.06	2.96 ± 0.06	6.81 ± 0.04
IKDA	4.56 ± 0.06	3.79 ± 0.06	8.36 ± 0.03	3.93 ± 0.06	3.03 ± 0.06	6.96 ± 0.03
Moyenne	4.53 ± 0.03	3.83 ± 0.03	8.36 ± 0.02	3.88 ± 0.03	3.01 ± 0.03	6.89 ± 0.02

On remarque alors que ces résultats semblent indiquer que la courbe $\bar{M}_\gamma(A)$ possède bel et bien une structure en dents de scie, contrairement à ce qui a été observé avec Crystal

Ball. Ce résultat est probablement dû à la prise en compte de l'asymétrie du dispositif [59] : $N(A, TKE) \neq N(\bar{A}, TKE)$, représentée en Figure 3.2), ce qui *a priori* n'était pas le cas dans l'analyse de Glässel. Une allure de dents de scie est également observée pour l'énergie totale des γ prompts mesurée avec VESPA. Une telle forme de $E_{\gamma, tot}(A)$ avait également été observée par Nardi [150] pour le ^{252}Cf , et par Pleasonton pour d'autres systèmes fissionnants [158, 160].

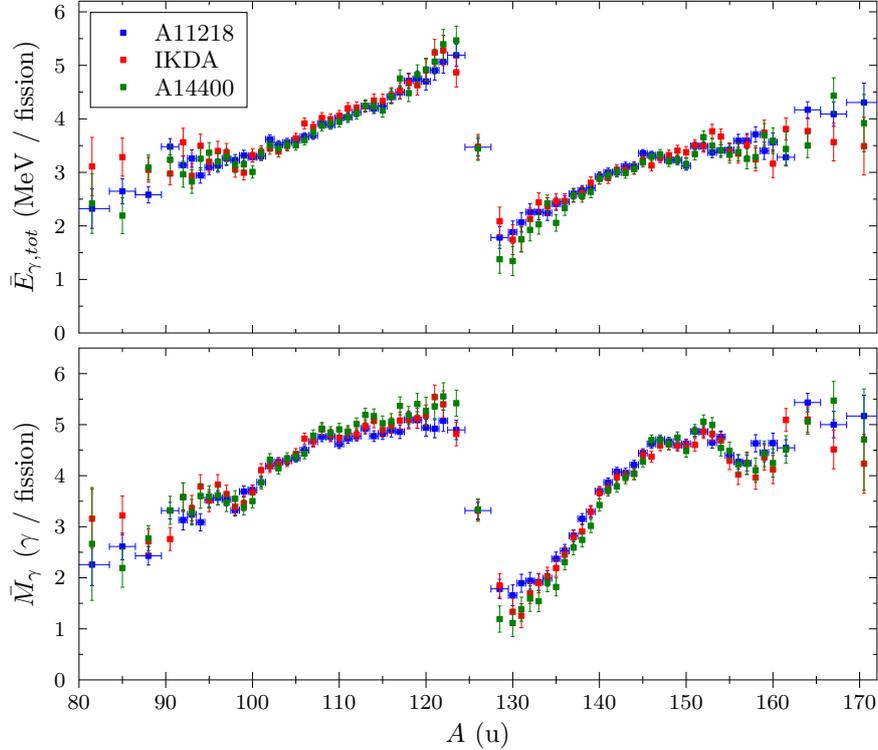


FIGURE 3.17 – Multiplicité moyenne et énergie totale des γ prompts de fission de la masse pré-neutron des fragments de fission, obtenue avec VESPA entre 80 keV et 8 MeV.

La fiabilité de ces résultats est renforcée par le fait que les trois détecteurs fournissent des résultats similaires après la renormalisation. De plus, un soin particulier a été apporté à l'étalonnage en masse de la chambre d'ionisation. Nous pouvons néanmoins étudier l'impact sur la courbe $\bar{M}_\gamma(A)$ d'un biais constant sur la masse des fragments de fission, comme effectué par Glässel [156]. Une telle analyse est alors représentée en Figure 3.18. On remarque alors, de la même manière que Glässel *et al.*, que l'introduction d'un biais positif (vers les masses plus lourdes), génère une augmentation de la multiplicité au voisinage de $A \simeq 110$ u et $A \simeq 150$ u, et amplifie ainsi la structure en dents de scie. L'introduction de biais négatif ne permet cependant pas d'obtenir une courbe plate.

Les données obtenues en Figure 3.17 peuvent être utilisées pour étudier les corrélations moyennes, ou fragment par fragment (par opposition aux corrélations événement par événement) entre les neutrons et les γ prompts. En effet, à partir de la courbe de la multiplicité moyenne des neutrons en fonction de la masse des fragments mesurée par Göök [118] et des courbes de la Figure 3.17, il est possible d'obtenir la multiplicité moyenne et l'énergie totale des γ prompts en fonction de la multiplicité des neutrons prompts, comme illustré en Figure 3.19.

On remarque alors que les multiplicités moyennes des neutrons et des γ semblent faiblement corrélées, avec des comportements très différents entre les fragments légers et les fragments lourds. L'énergie totale des γ prompts en fonction de $\bar{\nu}$ présente en revanche un comportement très proche de la linéarité, pour les fragments lourds et légers. Un tel comportement avait également été constaté par Nifenecker *et al.* [154], dont la régression proposée est représentée en Figure 3.19b. Il est alors intéressant de noter que les données obtenues avec VESPA forment une

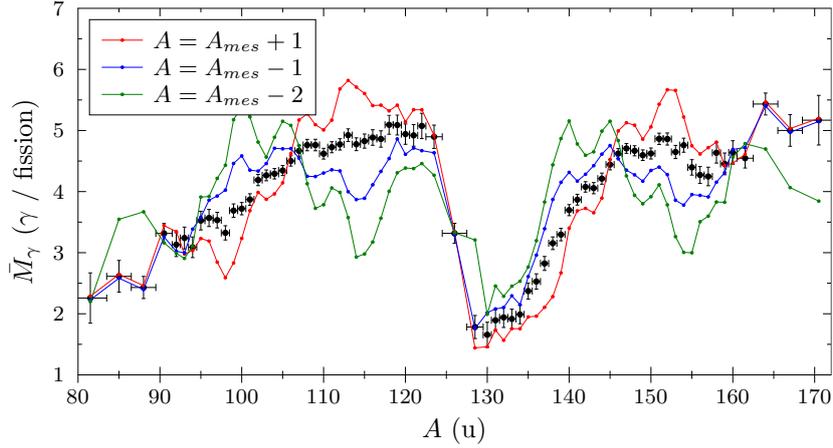
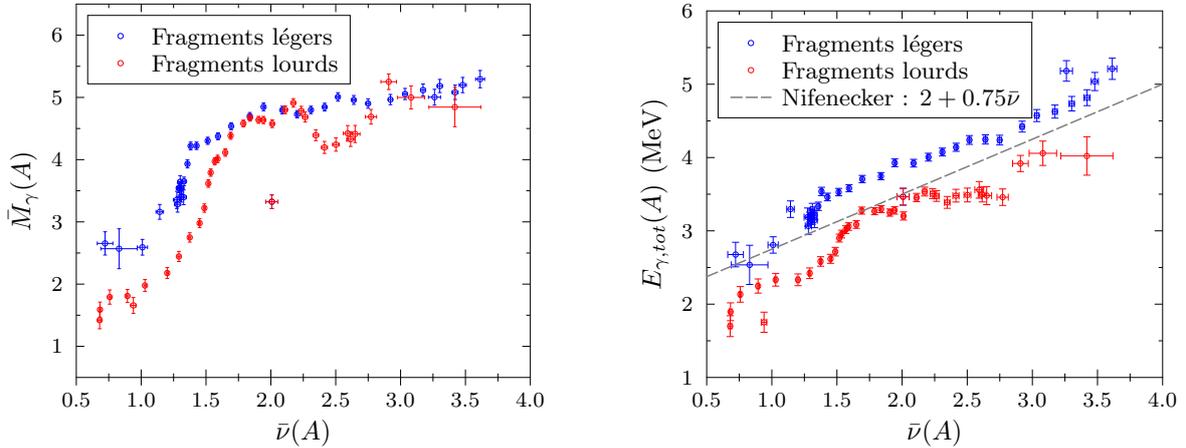


FIGURE 3.18 – Effet d'un décalage constant de la masse utilisée dans l'analyse des données (A) par rapport à la masse mesurée par la chambre d'ionisation (A_{mes}) sur la courbe $\bar{M}_\gamma(A)$, pour le détecteur A11218. La courbe de référence ($A = A_{mes}$) est indiquée en noir.

penne remarquablement proche de celle proposée par Nifenecker, qu'il s'agisse des fragments légers ou des fragments lourds. On observe également un décalage entre cette droite et nos mesures, directement lié à l'écart entre l'énergie totale des γ prompts mesurée par Nifenecker (6.5 MeV), et celle obtenue avec VESPA. Enfin, le fait qu'un décalage soit observé entre les fragments lourds et légers n'est pas surprenant, dans la mesure où $(\bar{M}_\gamma)_L \neq (\bar{M}_\gamma)_H$ (voir Tableau 3.6). Notons toutefois que les corrélations fragment par fragment ainsi obtenues en Figure 3.19 ne correspondent pas aux corrélations réelles, comme cela sera détaillé dans la suite (Section 5.3.2.3 et Annexe E). En effet, ce type d'analyse ignore le rôle essentiel que joue l'énergie d'excitation initiale des fragments de fission dans les corrélations entre neutrons et γ prompts.



(a) Corrélation entre la multiplicité des γ prompts et celle des neutrons prompts.

(b) Corrélation entre l'énergie γ totale et la multiplicité des neutrons prompts.

FIGURE 3.19 – Corrélations entre la multiplicité moyenne des neutrons prompts (tirée de [118]) et les observables γ moyennes obtenues avec VESPA.

Nous avons également décomposé la courbe $\bar{M}_\gamma(TKE)$ afin d'en extraire les contributions des fragments lourds et légers. Ce résultat, présenté en Figure 3.20, montre que les fragments lourds et légers présentent des comportements très différents. D'une part, la multiplicité des γ émis par les fragments lourds diminue quasi-linéairement quand TKE augmente (TXE diminue). D'autre part, la multiplicité des γ émis par les fragments légers augmente légèrement quand l'énergie cinétique des fragments augmente. Ce comportement différencié, également observé pour les

neutrons prompts (voir Figure 3.21), témoigne de la répartition de l'énergie d'excitation entre les fragments de fission [161]. En effet, la multiplicité des neutrons et γ prompts dépend de l'énergie d'excitation disponible à la scission. Pour les γ prompts, le moment angulaire total des fragments de fission joue également un rôle important, et dépend lui aussi de l'énergie d'excitation des fragments. Néanmoins, comme discuté précédemment, l'interprétation de ces courbes $\bar{M}_\gamma(TKE)$ par un simple raisonnement sur l'énergie d'excitation n'est rigoureusement correcte que pour un fragment donné [161].

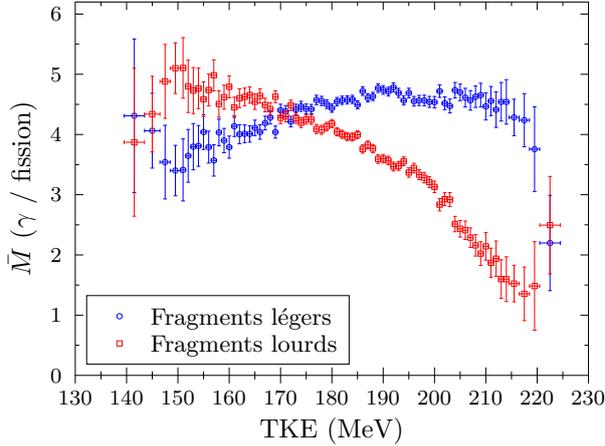


FIGURE 3.20 – Multiplicités des γ prompts issus des fragments lourds et légers en fonction du TKE, obtenues avec VESPA.

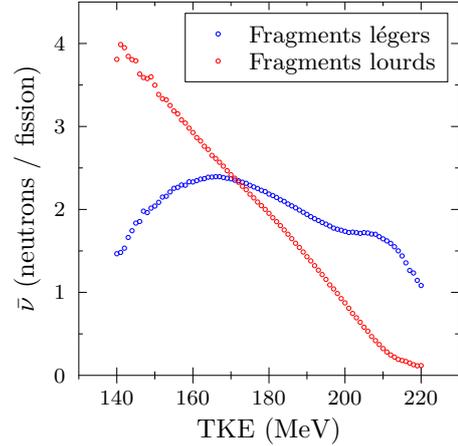


FIGURE 3.21 – Multiplicités des neutrons prompts (fragments lourds et légers) en fonction du TKE, obtenues avec VESPA (résultats préliminaires fournis sans incertitude).

3.4 Étude des états isomériques des fragments de fission

Au cours des sections précédentes, diverses observables de fission ont été présentées. Ces observables traitaient des caractéristiques moyennes des fragments de fission et des γ prompts, et leurs corrélations. L'étude présentée ici ne consiste plus à analyser des observables moyennées sur l'ensemble des fissions, mais à se focaliser sur des fragments particuliers, dont nous chercherons à déterminer certaines propriétés. Ces fragments de fission sont des isomères, qui sont laissés dans un état métastable au cours du processus de désexcitation prompt. Nous nous intéresserons ici aux isomères ayant une durée de vie supérieure à la nanoseconde, et inférieure à quelques microsecondes, afin qu'ils puissent être détectés par le dispositif. Dans certains cas, ces isomères se désexcitent en émettant simultanément plusieurs photons (cascade γ), qui peuvent alors être détectés en coïncidence dans plusieurs des scintillateurs du dispositif VESPA.

Dans cette partie, la méthode d'analyse des coïncidences γ - γ pour l'étude des isomères sera présentée, et les résultats obtenus seront discutés.

3.4.1 Méthodologie

La première étape de l'étude des isomères est l'extraction des événements de type F - γ - γ , c'est-à-dire une fission suivie d'au moins deux photons émis en coïncidence, ayant chacun une énergie supérieure à 50 keV. Pour détecter ces coïncidences, nous utilisons les scintillateurs 1 à 5 placés autour de la chambre d'ionisation (voir Figure 3.22). Comme ces scintillateurs sont de dimensions similaires (Tableau 2.1), ils possèdent des caractéristiques proches (résolution énergétique et temporelle, efficacité), ce qui simplifie l'analyse des coïncidences. Dans le cadre de cette analyse des isomères, les fragments sélectionnés vérifient $\cos \theta \geq 0.5$ (i.e. $\theta \leq 60^\circ$).

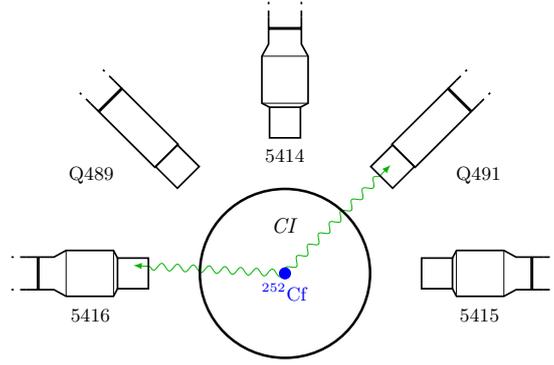


FIGURE 3.22 – Disposition des détecteurs utilisés pour l'étude des isomères, et détection d'une coïncidence γ - γ .

L'utilisation de ces détecteurs, placés à une distance $\langle r \rangle \simeq 13.7$ cm de la source de californium, impose de ne considérer que les photons atteignant le détecteur après $t_{min} = 35$ ns, afin de rejeter les photons émis par la diffusion inélastique des neutrons prompts, pour $E_n \geq 100$ keV (voir Section 3.2.1). Il est également nécessaire de définir l'intervalle de temps pendant lequel deux photons peuvent être considérés comme coïncidents. Afin de prendre en compte la résolution temporelle des scintillateurs (Section 2.2.2.2), cette fenêtre de coïncidence est fixée à 2 ns :

$$|t_{\gamma,i} - t_{\gamma,j}| \leq 2 \text{ ns} \quad i \neq j \quad (3.12)$$

Une partie des isomères se désexcite par cascade triple (ou d'un ordre plus élevé), ce qui génère des coïncidences triple- γ , en plus des coïncidences γ - γ . Cependant, la probabilité \mathcal{P}_3 d'observer une telle coïncidence avec VESPA est bien plus faible que la probabilité \mathcal{P}_2 d'observer une coïncidence double :

$$\mathcal{P}_2 = \sum_{i \neq j} \mathcal{P}(\{\gamma_1 \in d_i\} \cap \{\gamma_2 \in d_j\}) \simeq N_c \times \binom{5}{2} \times \varepsilon_1 \varepsilon_2 \quad (3.13)$$

$$\mathcal{P}_3 = \sum_{i \neq j \neq k} \mathcal{P}(\{\gamma_1 \in d_i\} \cap \{\gamma_2 \in d_j\} \cap \{\gamma_3 \in d_k\}) \simeq N_c \times \binom{5}{3} \times \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3 \simeq \mathcal{P}_2 \times \varepsilon_3 \quad (3.14)$$

où N_c désigne le nombre de cascades, et ε l'efficacité photoélectrique totale des détecteurs (supposée identique pour tous les détecteurs, afin de simplifier le calcul). On obtient alors $\mathcal{P}_3 < 0.003 \mathcal{P}_2$ d'après les valeurs de la Figure 2.24. Ainsi, en pratique, seules les coïncidences doubles sont disponibles avec ce dispositif.

Finalement, pour chaque coïncidence détectée, l'énergie et l'instant de détection des gammas associés, ainsi que les caractéristiques des fragments de fission (masse et énergie cinétique) sont stockés dans un arbre ROOT. L'extraction des informations sur les états isomères s'effectue ensuite en parcourant cet arbre des coïncidences, et en analysant les corrélations entre les paramètres stockés. En effet, l'avantage de cette structure de données est qu'elle permet un accès simultané à tous les paramètres des coïncidences, et la possibilité de représenter ces données sous la forme d'histogrammes à 1 ou 2 dimensions.

Une de ces représentations est par exemple la matrice $M_{\gamma\gamma}$, dont l'élément (i, j) contient le nombre de photons d'énergies E_i et E_j détectés en coïncidence, comme illustré en Figure 3.23. Afin de réduire le bruit de fond de ces matrices, des contraintes supplémentaires peuvent être appliquées, par exemple sur la masse et/ou le temps d'émission des photons.

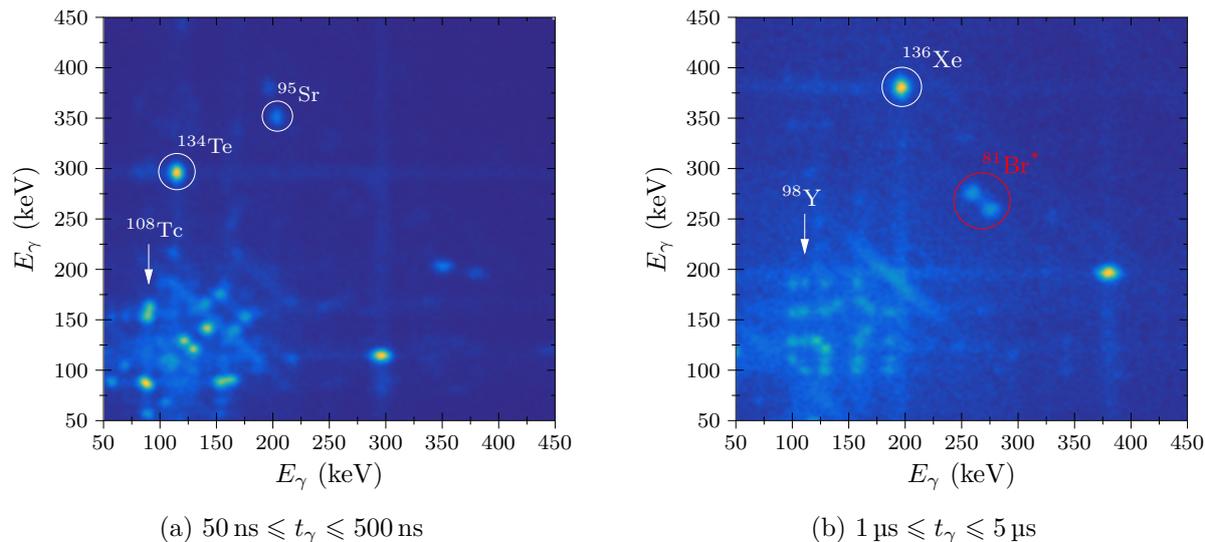


FIGURE 3.23 – Matrices γ - γ pour différentes fenêtres temporelles. Des coïncidences associées à des isomères sont indiquées en blanc, et la coïncidence parasite du ^{81}Br est indiquée en rouge.

3.4.2 Identification des isomères

La résolution des scintillateurs ne permet pas d'obtenir une énergie précise des rayons γ , et donc d'identifier sans ambiguïté les isomères. Néanmoins, grâce à la chambre d'ionisation, il est possible d'obtenir la distribution en masse associée à une coïncidence donnée. S'il s'agit bien d'un isomère, alors la distribution obtenue est formée de deux gaussiennes, qui correspondent au fragment émetteur et au fragment complémentaire, comme représenté en Figure 3.24. En calculant les valeurs moyennes associées aux pics gaussiens ainsi obtenus, on obtient deux estimations de la masse (post-neutron) des isomères correspondants. La largeur de ces pics est utilisée pour estimer la résolution en masse du dispositif (Figure 2.20).

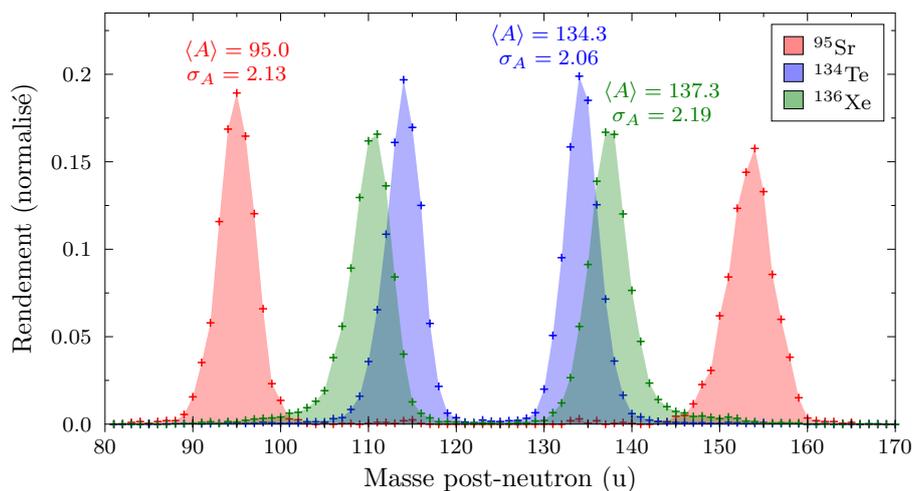


FIGURE 3.24 – Distributions massiques obtenues avec VESPA en sélectionnant les isomères par coïncidence γ - γ .

Cette information supplémentaire est également utile pour rejeter les coïncidences n'étant pas issues de la désexcitation des isomères. Par exemple, la coïncidence 260-276 observée en Figure 3.23b n'est pas associée à un fragment de fission, mais à la désexcitation d'un état métastable du ^{81}Br présent dans les détecteurs (environ 50% du Br naturel), probablement excité par la diffusion inélastique des neutrons prompts de fission [162]. En effet, contrairement à ce

qui est par exemple observé en Figure 3.24, la distribution en masse associée à cette coïncidence n'était pas gaussienne, mais correspondait plutôt à la distribution $Y(A_{post})$, les photons détectés étant issus des scintillateurs eux-mêmes, excités par les neutrons prompts pouvant être par tous les fragments de fission.

Comme les énergies des γ et la masse des fragments intègre une certaine résolution, il est nécessaire de s'appuyer sur une base de données externe, comme NuDat [163], qui contient les schémas de niveaux nucléaires et les caractéristiques des transitions électromagnétiques d'un nombre important de noyaux, afin de déterminer exactement l'isomère ayant été détecté de la sorte. Ainsi, 20 isomères ont pu être identifiés en utilisant cette méthode, et sont listés dans le Tableau 3.7. Les schémas de niveaux correspondants sont fournis en Annexe C. Quelques isomères supplémentaires ont été observés, mais le nombre d'événements associés étant trop faible pour pouvoir les étudier plus en détail, ils ont été exclus de cette analyse.

TABLEAU 3.7 – Liste des isomères identifiés avec VESPA. E^* désigne l'énergie de l'état isomérique étudié, et N_c le nombre de cascades γ - γ associées à la désexcitation depuis cet état, et détectées par le dispositif.

	Fragments légers				Fragments lourds				
	A	Z	E^* (MeV)	N_c	A	Z	E (MeV)	N_c	
^{88}Br	88	35	0.270	1	^{130}Sn	130	50	2.085	3
^{92}Rb	92	37	0.284	1	^{132}Sb	132	51	0.254	1
^{94}Rb	94	37	1.485	3	^{132}Te	132	52	1.775	3
^{95}Sr	95	38	0.556	1	^{133}Te	133	52	1.610	1
^{97}Sr	97	38	0.308	1	^{134}Te	134	52	1.691	3
^{98}Y	98	39	1.181	10	^{135}Te	135	52	1.555	3
^{97}Zr	97	40	1.264	1	^{136}Xe	136	54	1.892	3
^{99}Zr	99	40	0.252	1	^{137}Xe	137	54	1.935	3
^{101}Zr	101	40	0.942	3	^{146}La	146	57	0.620	10
^{108}Tc	108	43	0.331	8	^{152}Nd	147	60	2.243	4

Déviatoin de la masse mesurée

On peut remarquer en Figure 3.24 que la valeur moyenne du pic gaussien associé au fragment émetteur peut dévier significativement de la masse réelle de l'isomère, comme pour le ^{136}Xe . En étudiant l'ensemble des isomères identifiés, nous avons pu constater que cette déviation dépendait à la fois de la masse (post-neutron) et de la charge nucléaire des isomères. Une manière de représenter cette déviation est de l'exprimer en fonction du rapport A/Z , comme proposé en Figure 3.25.

Plusieurs effets peuvent expliquer cette déviation. D'une part, le PHD dépend dans une certaine mesure de la charge des ions, comme représenté en Figure 2.17. Or, la chambre d'ionisation n'étant pas sensible à cette quantité, cet effet a dû être ignoré lors de l'étalonnage. La seconde cause probable de cette déviation est que la multiplicité des neutrons prompts, utilisée dans la méthode 2E (voir Section 2.3.5), est considérée comme indépendante de la charge des fragments. En effet, en première approximation, cette déviation peut être approchée par :

$$\Delta A = A_{iso} - A_{mes} \simeq A - \nu(A, Z) - (A - \bar{\nu}(A)) \simeq \bar{\nu}(A) - \nu(A, Z) := \Delta\nu \quad (3.15)$$

où A_{iso} , A_{mes} et A désignent respectivement la masse réelle de l'isomère, la masse post-neutron estimée par la méthode 2E et la masse pré-neutron. Dans un souci de simplification, on suppose

que la masse pré-neutron est correctement estimée par la chambre d'ionisation. Afin d'estimer cet impact de la multiplicité des neutrons, des calculs FIFRELIN ont été effectués, au terme desquels la déviation de la multiplicité moyenne totale des neutrons prompts $\Delta\nu_{tot}$ a pu être estimée, en fonction de A_{post}/Z . Les résultats ainsi obtenus sont comparés aux déviations observées expérimentalement, en Figure 3.25. On remarque alors que la déviation de la masse observée pour les isomères peut être plutôt bien expliquée par la dépendance en charge de la multiplicité des neutrons. Cette explication semble néanmoins insuffisante pour les noyaux lourds. Il peut dans ce cas s'agir de l'effet lié au PHD, ce dernier étant plus important pour les noyaux lourds (voir Figure 2.18). Il peut également s'agir d'un artefact de cette modélisation très simplifiée du problème.

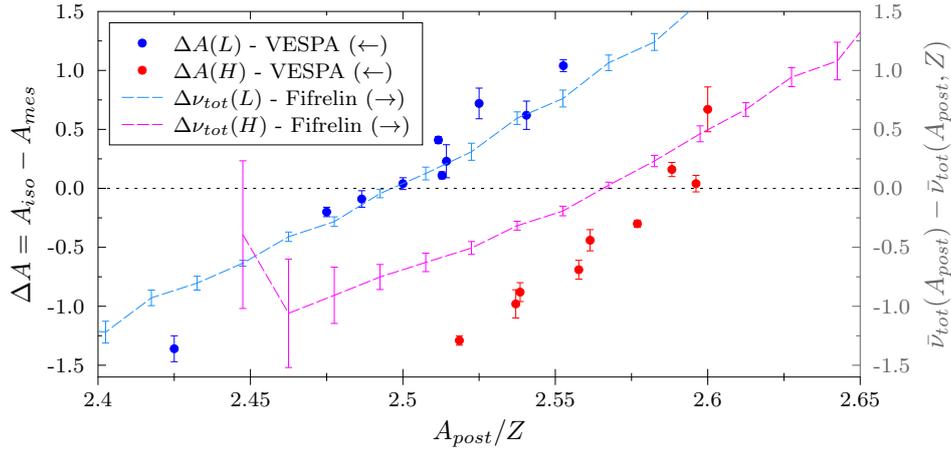


FIGURE 3.25 – Déviation entre la masse mesurée et la masse réelle des isomères. Les lignes représentent les écarts à la multiplicité moyenne totale des neutrons prompts, calculés avec FIFRELIN.

3.4.3 Détermination de la demi-vie

Une caractéristique importante des états isomériques est leur temps de demi-vie. Certains de ces isomères sont potentiellement mal connus, dans la mesure où les fragments de fission sont des isotopes riches en neutrons et instables. Or, ces données de structure nucléaire sont utilisées pour simuler les désexcitations des fragments de fission à basse énergie, et impactent donc les résultats obtenus avec des codes comme FIFRELIN [164]. Il est donc particulièrement intéressant de confronter les demi-vies obtenues expérimentalement avec VESPA à celles disponibles dans les bases de données nucléaires comme RIPL-3 [43] ou ENSDF, via l'application NuDat [163].

Comme expliqué en Section 3.2.1, le dispositif VESPA permet d'accéder au temps d'émission des γ depuis l'instant de la fission, t_γ . Ainsi, la distribution temporelle des isomères s'obtient à partir des distributions $N_i(t_\gamma)$ associées aux coïncidences γ - γ détectées dans les scintillateurs. De plus, les isomères ayant été préalablement identifiés, une sélection en masse (± 4.5 u) a été appliquée à ces distributions temporelles afin de réduire le bruit de fond. Pour extraire la période des états métastables ainsi identifiés, une régression (*fit*) a été réalisée entre ces distributions temporelles et une fonction de décroissance exponentielle :

$$f(t) = N_0 \exp(-\lambda t) [+B] \quad (3.16)$$

où λ est la constante de décroissance ($T_{1/2} = \ln(2)/\lambda$), N_0 une constante de normalisation et B un bruit de fond constant. Les paramètres de cette régression sont déterminés par une minimisation du χ^2 entre la distribution mesurée et la fonction exponentielle, en utilisant le programme Minuit [165] implémenté dans ROOT. Cette minimisation fournit également des incertitudes σ_{fit} associées aux paramètres de la fonction (3.16).

Une étape supplémentaire consiste à déterminer si la fonction de régression (3.16) doit contenir un bruit de fond constant B ou non. Afin de limiter le sur-ajustement, le modèle choisi est celui qui minimise le critère d'information d'Akaike [166], donné par :

$$AIC = \chi^2 + 2p + \frac{2p(p+1)}{n-p-1} \quad (3.17)$$

où p désigne le nombre de paramètres (ici $p = 2$ ou 3) et n le nombre de bins. Cette sélection de la fonction de régression est par exemple illustrée en Figure 3.26. Dans cette figure, on remarque que le modèle le plus adapté à la distribution temporelle est celui contenant un bruit de fond constant. Cependant, on observe dans ce cas que l'ajout du bruit de fond impacte la valeur de la demi-vie, ces deux paramètres étant anti-corrélés lors de la régression.

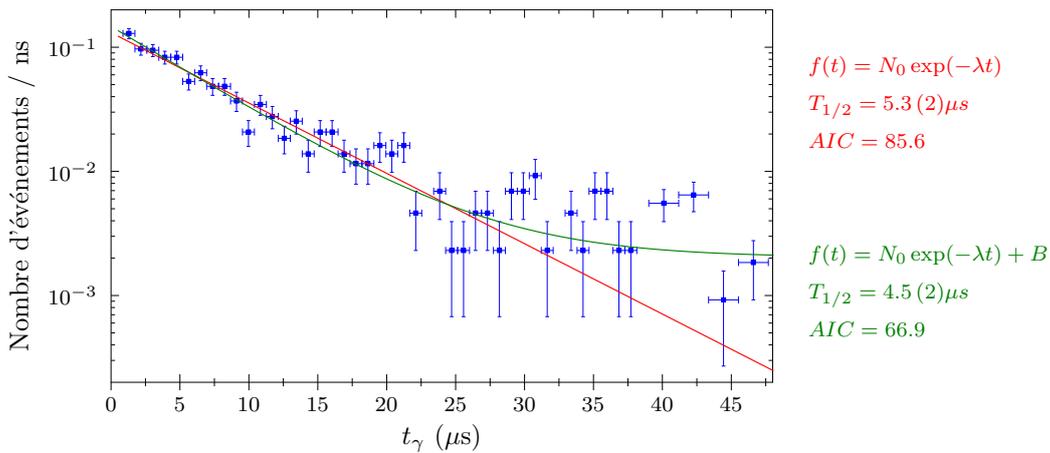


FIGURE 3.26 – Distribution temporelle des coïncidences γ - γ associées au ^{88}Br et régressions associées (avec/sans bruit de fond constant).

Les incertitudes σ_{fit} déterminées à l'issue de la régression sont calculées à partir de la distribution du χ^2 entre les données discrétisées et la fonction (3.16). Il s'agit donc d'incertitudes de nature statistique. Cependant, les résultats de la régression dépendent dans une certaine mesure des paramètres de la distribution $N(t_\gamma)$, comme la largeur des bins ou l'intervalle considéré pour la régression. En faisant varier ces paramètres, et en étudiant la distribution des demi-vies ainsi extraites, il est possible d'estimer cette incertitude systématique supplémentaire σ_{bin} .

Cette méthode a été appliquée aux isomères détectés par le dispositif VESPA, afin d'extraire les demi-vies et les incertitudes qui y sont associées. Les valeurs obtenues sont indiquées dans le Tableau 3.8, dans lequel les demi-vies de référence, extraites des bases de données, ont également été reportées. Les isomères associés au ^{94}Rb et au ^{97}Sr ont été exclus de cette analyse, l'extraction de leurs demi-vies nécessitant une méthode plus fine (voir Section 3.4.4).

Dans ce tableau, on remarque que la majorité des mesures effectuées sont compatibles avec les données de référence, ce qui dénote la robustesse de la méthode. Néanmoins, on peut remarquer une incompatibilité importante entre la demi-vie mesurée avec VESPA et la demi-vie de référence pour le ^{134}Te . Cette observation est d'autant plus intrigante que le ^{134}Te est un isomère abondant, et qui ne semble pas pollué (Figure 3.24). Malheureusement, nous ne sommes pas parvenus à identifier la cause de cette déviation.

Un autre isomère dont la demi-vie mesurée semble incompatible avec les données évaluées est le ^{99}Zr . Néanmoins, la valeur que nous mesurons est compatible avec d'autres mesures présentes dans la littérature, dont la plus récente rapporte une demi-vie de 336 ± 5 ns [167]. Cet exemple nous permet d'illustrer le fait que les mesures que nous avons effectuées sont tout à fait pertinentes pour une utilisation dans de futures évaluations de données nucléaires.

Le tableau 3.8 contient deux isomères non répertoriés dans RIPL-3 : il s'agit du ^{108}Tc et du ^{146}La . Ces isomères ne sont pas totalement inconnus, étant donné que des mesures de leur

demi-vie sont disponibles dans la littérature, avec des schémas de niveaux associés. Ainsi, une demi-vie de 94 ± 10 ns a ainsi été mesurée pour le ^{108}Tc [168], et une demi-vie de 14 ± 1 ns pour le ^{146}La [169]. Ces valeurs sont cohérentes avec celles que nous mesurons avec VESPA.

TABLEAU 3.8 – Demi-vies associées aux isomères étudiés avec VESPA. Les demi-vies de référence sont extraites des bases de données NuDat 3.0 et RIPL-3-2021.

Isotope	$T_{1/2}^{ref}$ (ns)	Résultats obtenus avec VESPA (ns)			
		$T_{1/2}$	σ_{fit}	σ_{bin}	σ_{tot}
^{92}Rb	54 ± 3	54.4	1.3	2.4	2.7
^{95}Sr	21.9 ± 0.5	21.0	0.4	0.3	0.5
^{97}Zr	102.8 ± 2.4	106.1	6.3	8.6	10.7
^{99}Zr	293 ± 10	351	6	6	9
^{101}Zr	16 ± 2	18.2	1.1	1.5	1.9
^{108}Tc	\emptyset	119.2	1.2	2.2	2.6
^{130}Sn	52 ± 3	47.0	2.4	3.5	4.3
^{132}Sb	102 ± 4	112.0	1.9	1.9	2.7
^{132}Te	145 ± 8	131.6	5.9	7.8	9.8
^{133}Te	100 ± 5	106.5	3.2	3.1	4.4
^{134}Te	164.1 ± 0.9	172.8	1.3	1.2	1.8
^{135}Te	511 ± 20	500	18	~ 30	35
^{137}Xe	10.1 ± 0.9	7.8	0.3	0.4	0.5
^{146}La	≈ 20	14.0	0.4	0.4	0.5
^{152}Nd	63 ± 7	71.0	3.4	4.9	6.0
	(μs)			(μs)	
^{88}Br	5.3 ± 0.4	4.50	0.24	0.29	0.38
^{98}Y	0.78 ± 0.03	0.74	0.01	0.03	0.03
^{136}Xe	2.95 ± 0.17	3.00	0.04	0.08	0.09

3.4.4 États isomères consécutifs

La méthode détaillée dans la section précédente pour déterminer la demi-vie des isomères fonctionne bien pour les cas simples, dans lesquels un seul état métastable est présent (Figure 3.27a). Néanmoins, dans un certain nombre de cas, plusieurs états isomères consécutifs existent, chacun ayant sa propre demi-vie. Une configuration problématique émerge alors quand l'isomère étudié (que l'on appelle isomère principal, et qui est reporté dans le Tableau 3.7) se situe sous un autre état isomère de plus haute énergie. Dans ce cas, si ce second état isomère est alimenté par le premier (que l'on nommera alors état de peuplement), alors sa demi-vie apparente sera potentiellement altérée. Une telle configuration est illustrée en Figure 3.27b, et concerne par exemple le ^{132}Te . L'analyse des données consiste alors à étudier des "coïncidences retardées". Il se s'agit pas ici de véritables coïncidences γ - γ telles que définies en équation (3.12), mais de photons détectés au cours du même événement de fission, et donc émis par le même fragment (ou le complémentaire).

En pratique, plusieurs γ émis par des isomères connus sont pré-sélectionnés. Il s'agit des γ_i représentés en Figure 3.27b par exemple. Quand un de ces γ est détecté en coïncidence avec un fragment de masse compatible avec la masse de l'isomère ($\pm 5 u$), alors ce γ et tous ceux détectés avant celui-ci (notés γ_p) au cours du même événement de fission sont stockés dans un arbre ROOT (énergie et temps d'émission de γ_i et des γ_p).

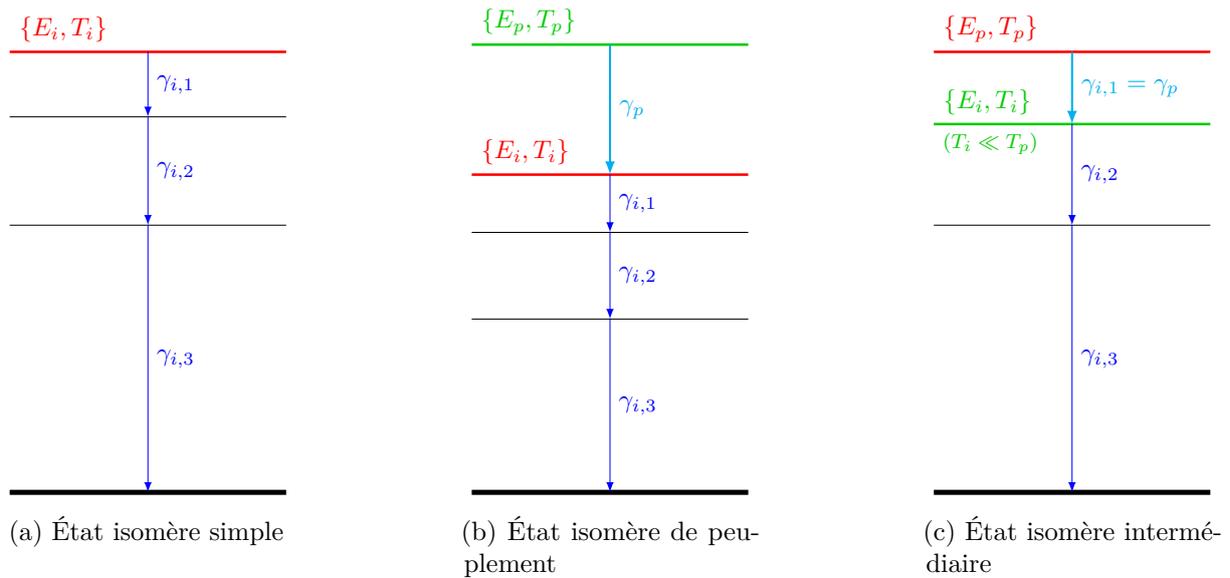


FIGURE 3.27 – Configurations étudiées pour l'étude des isomères. L'état isomère principal (i.e. reporté dans le Tableau 3.7) est représenté en rouge. Tous les états isomères sont caractérisés par leur énergie E et leur demi-vie T .

Une représentation adaptée à l'étude de tels arbres est la matrice (E_p, t_p) , où E_p désigne l'énergie des photons émis préalablement à la désexcitation de l'isomère, et t_p leur temps d'émission relatif à la fission. La matrice obtenue pour le ^{132}Te est par exemple représentée en Figure 3.28. En projetant les résultats sur l'axe E_p , deux pics apparaissent distinctement : il s'agit des deux photons alimentant l'état isomère. Dans un second temps, il est alors possible d'obtenir les distributions $N(t_p)$ associées à chacun de ces photons. Dans le cas du ^{132}Te , deux demi-vies différentes sont extraites, dans la mesure où les photons ne sont pas issus du même état de peuplement (cet effet est visible en Figure 3.28). La demi-vie de l'état isomère sous-jacent peut également être déterminée. Pour cela, on utilise la distribution $N(\Delta t)$, où $\Delta t = t_i - t_p$ est la différence temporelle entre la détection du γ issu de l'état isomère (t_i) et du γ de peuplement (t_p).

Cette analyse permet également de déterminer la demi-vie d'états isomères à vie courte

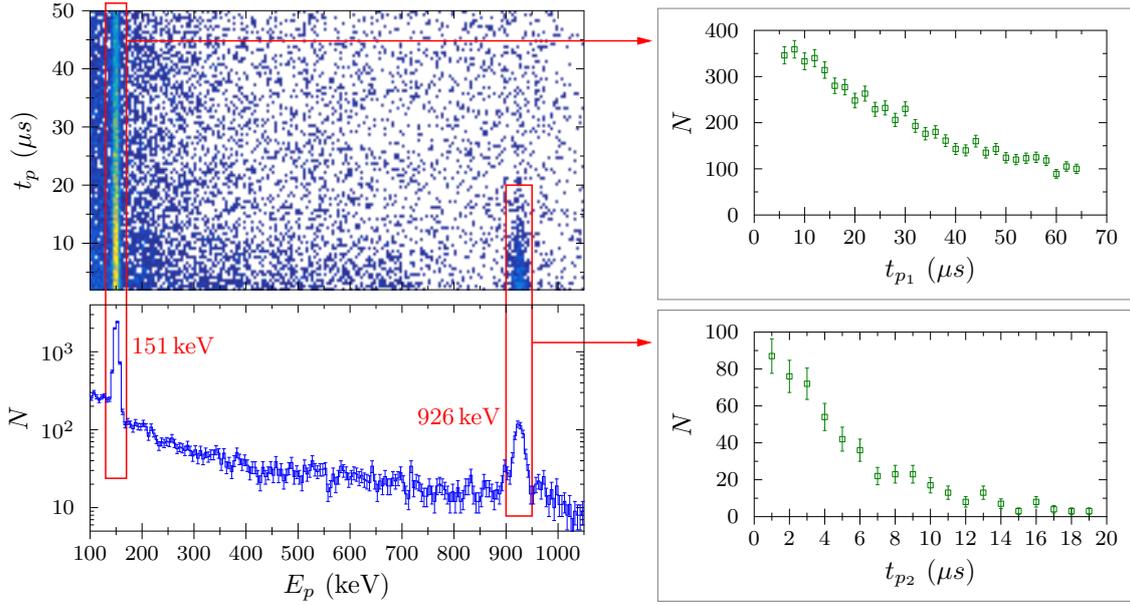


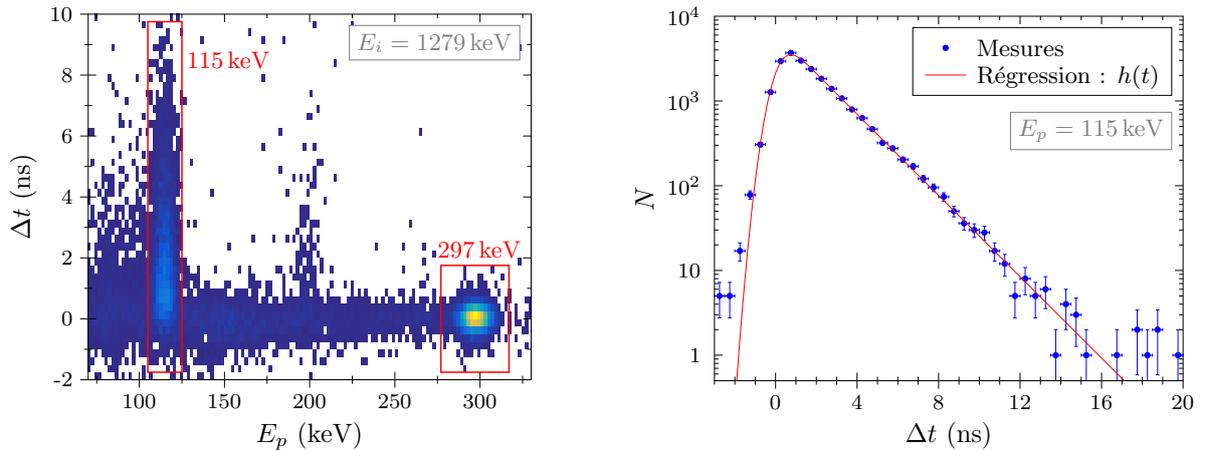
FIGURE 3.28 – Analyse des coïncidences retardées pour le ^{132}Te , et identification des deux γ de peuplement.

($\lesssim 2$ ns) peuplés lors de la cascade d'un isomère, comme représenté en Figure 3.27c. De tels états sont par exemple présents dans le ^{134}Te ou le ^{136}Xe .

La méthode présentée ici permet alors d'identifier ce niveau, à partir des matrices $(E_p, \Delta t)$, comme illustré en Figure 3.29a. Ensuite, la demi-vie associée à cet état peut être déterminée par régression sur la distribution $N(\Delta t)$, comme représenté en Figure 3.29b. Dans ce cas, la densité de probabilité associée résulte de la convolution entre une densité gaussienne liée à la résolution temporelle du dispositif (voir Section 2.2.2) et une distribution exponentielle :

$$h(t | \mu, \sigma, \lambda) = g(t | \mu, \sigma) * f(t | \lambda) \quad (3.18)$$

où μ et σ sont respectivement la valeur moyenne et l'écart-type associés à la gaussienne g , et λ la constante de décroissance de l'état isomère.



(a) Matrice $(E_p, \Delta t)$ obtenue en sélectionnant les γ d'énergie 1279 keV.

(b) Distribution $N(\Delta t)$ obtenue à partir des γ de peuplement de 115 keV.

FIGURE 3.29 – Identification d'un état isomère à vie courte présent dans la cascade du ^{134}Te et distribution temporelle associée.

Les différents résultats obtenus avec cette méthode sont rassemblés dans le Tableau 3.9.

Pour chaque combinaison d'états isomères étudiée, les demi-vies de ces deux états (principal et secondaire) ont été extraites par cette méthode, afin de vérifier la cohérence des résultats. Ainsi, en comparant les demi-vies mesurées dans les Tableaux 3.8 et 3.9), on observe des valeurs cohérentes, y compris pour des méthodes d'analyse différentes.

Nous pouvons cependant constater que les demi-vies associées au ^{94}Rb dévient significativement de celles présentes dans les bases de données. Ces demi-vies sont issues d'une unique mesure, également effectuée à partir de la réaction $^{252}\text{Cf}(\text{sf})$ [170]. Des mesures complémentaires seraient donc nécessaires avant de pouvoir conclure sur les causes de cette déviation entre nos mesures et les mesures de référence.

Mis à part le cas du ^{94}Rb , les demi-vies obtenues avec la méthode des coïncidences retardées sont plutôt cohérentes avec les valeurs présentes dans les bases de données nucléaires, ainsi qu'avec des mesures récentes. C'est par exemple le cas du ^{134}Te , dont les demi-vies des états à 5.8 MeV et 1.58 MeV mesurées avec VESPA sont en accord avec celles déterminées dans [171] : 16.4 ± 1.7 ns et 1.4 ± 0.1 ns, respectivement. Notons également à propos du ^{134}Te que la demi-vie de l'état principal ($E = 1.69$ MeV) est systématiquement compatible avec la valeur de 172.8 ± 1.8 ns déterminée par analyse des coïncidences γ - γ . Ainsi, l'écart entre les mesures de VESPA et la valeur de référence ne semble pas être dû à un biais provoqué par ces états isomères supplémentaires.

Parmi toutes ces mesures de demi-vies, deux sont particulièrement intéressantes du point de vue des données nucléaires. Il s'agit d'une part du ^{108}Tc , dont un état isomère intermédiaire a été identifié pour la première fois ($E = 177$ keV), et dont la demi-vie a pu être mesurée. D'autre part, l'incertitude importante associée à la demi-vie de l'état isomère à 831 keV du ^{97}Sr est due à la présence dans la littérature de valeurs incompatibles : 263 ± 24 ns et 526 ± 13 ns [172]. La mesure effectuée avec VESPA semble plutôt confirmer la valeur de 526 ns reportée dans [173]. D'autres mesures tendent à confirmer cette valeur, par exemple dans [174], où une demi-vie de 504 ± 8 ns est proposée.

TABLEAU 3.9 – Demi-vies extraites de l'analyse des coïncidences retardées avec VESPA. Les états isomères principaux (reportés dans le Tableau 3.7) sont indiqués en gras. Les incertitudes indiquées entre parenthèses sont uniquement les incertitudes σ_{fit} liées à la régression.

	Premier état isomère (E_p)			Second état isomère ($E_i < E_p$)		
	E (MeV)	$T_{1/2}^{ref}$ (ns)	$T_{1/2}^{mes}$ (ns)	E (MeV)	$T_{1/2}^{ref}$ (ns)	$T_{1/2}^{mes}$ (ns)
^{94}Rb	2.075	107(16)	57(3)	1.485	18(1)	48(3)
^{97}Sr	0.831	395(132)	530(16)	0.308	169(9)	200(6)
^{99}Zr	0.679	8.9(12)	14.3(5)	0.252	293(10)	359(9)
^{132}Te	2.723	$3.7(1) \times 10^3$	$3.5(2) \times 10^3$	1.775	145(8)	144(7)
^{132}Te	1.925	$28.1(15) \times 10^3$	$29.0(7) \times 10^3$	1.775	145(8)	145(3)
^{134}Te	5.804	18(2)	16.7(6)	1.691	164.1(9)	179(6)
^{92}Rb	0.284	54(3)	56(1)	0.142	0.75(3)	0.82(3)
^{99}Zr	0.252	293(10)	350(5)	0.122	1.07(3)	1.01(2)
^{108}Tc	0.331	–	115(1)	0.177	–	2.81(2)
^{134}Te	1.691	164.1(9)	173(1)	1.576	1.36(11)	1.26(1)
^{136}Xe	1.892	$2.95(17) \times 10^3$	$2.98(4) \times 10^3$	1.694	1.29(2)	1.25(1)

Conclusion

Au cours de ce chapitre, un certain nombre d'observables de fission mesurées avec le dispositif VESPA ont été présentées. Bien que certains points de l'analyse des données soient encore perfectibles, les résultats obtenus dans ce travail mettent en évidence des corrélations intéressantes pour la compréhension du phénomène de fission nucléaire, comme la répartition de l'énergie d'excitation des fragments de fission, ou la compétition neutron/ γ . Ainsi, nous avons pu montrer que les γ prompts de fission, à l'instar des neutrons prompts, semblent répartis en dent de scie en fonction de la masse des fragments de fission. L'origine de cette distribution en dent de scie, observée à la fois pour $\bar{M}_\gamma(A)$ et $E_{\gamma,tot}(A)$ reste encore à déterminer. Par ailleurs, les corrélations $\bar{M}_\gamma(TKE)$ et $E_{\gamma,tot}(TKE)$ que nous avons obtenues par ailleurs présentent des caractéristiques similaires à diverses mesures antérieures [150, 151, 154], tout en étant plus précises du fait de la bonne statistique dont bénéficient nos mesures. Afin d'aller plus loin dans l'interprétation de ces résultats, nous avons calculé les contributions $\bar{M}_{\gamma,L}(TKE)$ et $\bar{M}_{\gamma,H}(TKE)$, ce qui a mis en évidence un comportement très différent entre ces deux groupes de fragments, similaire à ce qui est observé pour les neutrons prompts. Enfin, nous avons pu estimer les corrélations $\bar{M}_\gamma(TXE)$ et $E_{\gamma,tot}(TXE)$ qui peuvent permettre d'étudier comment l'énergie d'excitation est partagée entre l'émission neutron et l'émission γ .

Enfin, nous avons montré comment le dispositif VESPA pouvait être utilisé pour détecter et étudier les isomères produits par fission. Au total, les demi-vies de vingt isomères ont ainsi pu être obtenues, et pourront alimenter les données de structure nucléaire. À cet égard, un des résultats importants est l'estimation précise des demi-vies associées au ^{108}Tc , dont les états isomères étaient jusqu'à présent mal connus. Les isomères ont un rôle important dans l'étude de la fission, car ils peuvent être utilisés pour étudier indirectement le moment angulaire total des fragments de fission, via les rapports isomériques [71, 73]. Cependant, la détermination de ces rapports n'est pas directement possible avec VESPA.

Finalement, les différentes observables de fission expérimentalement obtenues avec VESPA seront comparées aux résultats de calculs effectués par le code Monte-Carlo FIFRELIN [54] dans le Chapitre 5. Cette comparaison permettra alors de contraindre les modèles nucléaires utilisés par ce code, dont la description est détaillée au chapitre suivant.

Le dispositif VESPA, fort du retour d'expérience des mesures de γ prompts effectuées dans le cadre de cette thèse, est en phase de préparation pour une nouvelle campagne de mesures. VESPA bénéficiera alors de l'ajout de 15 détecteurs CeBr_3 disposés sur plusieurs plans autour de la chambre d'ionisation centrale, et de quelques détecteurs HPGe à haute résolution énergétique. Ce nouveau dispositif, d'efficacité accrue, permettra alors d'aller plus loin dans l'étude des PFGS et des isomères issus de la fission. De plus, nous avons pu voir qu'un étalonnage plus précis de l'efficacité des détecteurs était nécessaire. Cette mesure nécessiterait par exemple de disposer d'une chambre d'ionisation vide au centre de laquelle les sources d'étalonnage pourraient être placées, afin de prendre en compte l'absorption des rayons γ par la chambre d'ionisation.

Le code de calcul FIFRELIN

Sommaire

4.1	Principes de fonctionnement	83
4.1.1	Échantillonnage des fragments de fission primaires	83
4.1.2	Émission des particules promptes	88
4.1.3	Fichiers de sortie	92
4.2	Modèles nucléaires	93
4.2.1	Spin cut-off des fragments primaires	93
4.2.2	Densités de niveaux nucléaires	95
4.2.3	Fonctions de force gamma	100

Le code FIFRELIN [53, 54] est un code stochastique écrit en C++, qui simule la désexcitation des fragments de fission. Cette désexcitation se traduit par l'émission de particules promptes (neutrons, γ et électrons de conversion), dont le mécanisme est géré par les modèles nucléaires implémentés dans FIFRELIN. Dans ce chapitre, le fonctionnement général du code sera présenté (Section 4.1), avant de détailler certains des modèles qui y sont intégrés, et sur lesquels j'ai été amené à travailler (Section 4.2).

4.1 Principes de fonctionnement

Dans cette première partie, les principales étapes d'un calcul avec FIFRELIN seront présentées. FIFRELIN étant un code stochastique, chaque événement de fission est simulé par échantillonnage, selon des lois de probabilités issues de différents modèles nucléaires. Ainsi, les fragments de fission primaires sont dans un premier temps échantillonnés, comme détaillé en Section 4.1.1. La désexcitation de ces fragments est ensuite simulée par le code, en utilisant un algorithme de Hauser-Feshbach (Section 4.1.2). Tous les événements de fission ainsi simulés par FIFRELIN sont utilisés pour construire des estimateurs Monte-Carlo des observables de fission ainsi qu'un arbre d'événements, comme décrit en Section 4.1.3.

4.1.1 Échantillonnage des fragments de fission primaires

À chaque nouvel événement de fission simulé avec FIFRELIN, il est nécessaire de déterminer l'état initial de chacun des deux fragments de fission. Cet état initial est défini par la masse A , la charge Z , l'énergie cinétique KE , l'énergie d'excitation E , le moment angulaire total J et la parité π du fragment :

$$\mathcal{S}_i = \{A, Z, KE, E, J, \pi\}_i \quad (4.1)$$

4.1.1.1 Masse, charge et énergie cinétique

La masse et l'énergie cinétique d'un fragment de fission primaire sont deux quantités fortement corrélées, dont la valeur dépend du comportement du noyau composé à la scission. Lors d'un calcul FIFRELIN, ces quantités sont échantillonnées à partir de distributions pré-neutrons renseignées préalablement au calcul. Ces distributions constituent alors des données d'entrée du code, et peuvent être fournies de différentes façons. Dans le cadre de ce travail, nous utilisons directement les données pré-neutrons mesurées avec VESPA, sous la forme de la distribution bi-dimensionnelle $Y(A, TKE)$ représentée en Figure 3.1c. Plus généralement, il s'agit d'un ensemble de 3 distributions expérimentales : le rendement de fission pré-neutron $Y(A)$, ainsi que $\langle KE \rangle(A)$ et $\sigma_{KE}(A)$, où $\langle KE \rangle$ désigne l'énergie cinétique pré-neutron moyenne, et σ_{KE} la largeur de la distribution associée. Ces données d'entrée expérimentales, issues de VESPA et des mesures effectuées par Varapai [135] sont représentées et comparées en Figure 4.1. Il est également possible d'utiliser les distributions pré-neutrons calculées avec le code GEF [55].

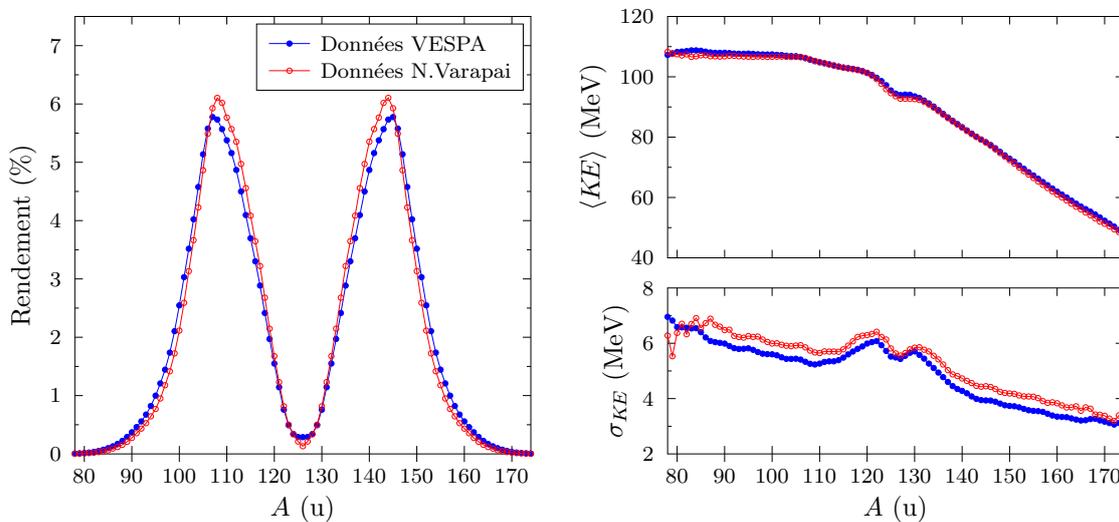


FIGURE 4.1 – Données d'entrée de FIFRELIN pour la réaction $^{252}\text{Cf}(\text{sf})$: distribution de la masse pré-neutron (gauche) et moments des distributions en énergie cinétique pré-neutron en fonction de la masse (droite).

La charge nucléaire Z des fragments est estimée à partir d'un modèle gaussien appelé modèle Z_p , et proposé par Wahl [153, 175]. Dans ce modèle, la charge la plus probable Z_p pour un fragment de masse A est donnée par :

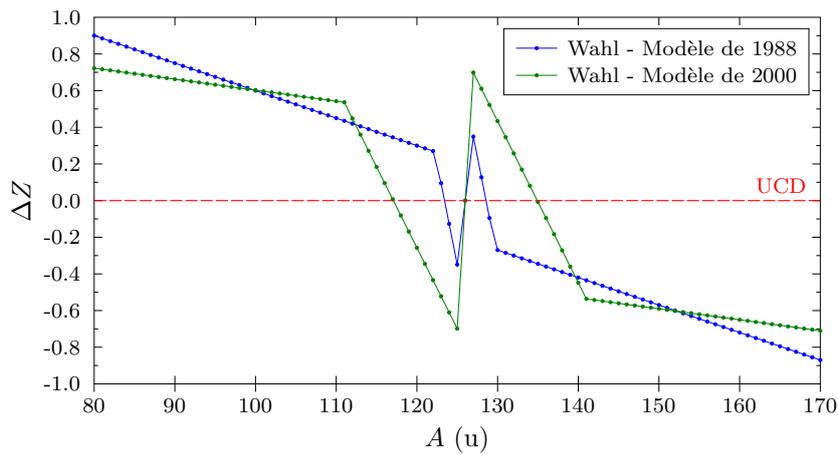
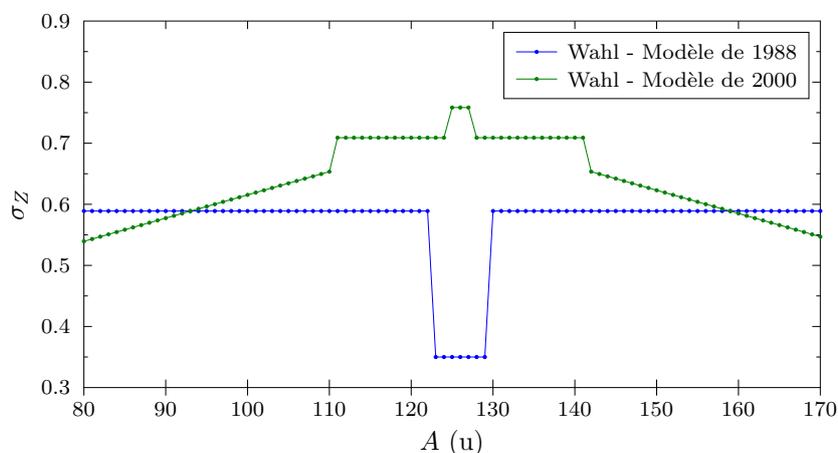
$$Z_p(A) = Z_{\text{UCD}}(A) + \Delta Z(A) \quad (4.2)$$

où Z_{UCD} est la charge du fragment selon l'hypothèse UCD (Unchanged Charge Density), qui suppose que la densité de charge nucléaire Z/A des fragments primaires est identique à celle du noyau composé :

$$Z_{\text{UCD}}(A) = A \times \frac{Z_{\text{NC}}}{A_{\text{NC}}} \quad (4.3)$$

La correction ΔZ est appelée la polarisation de charge. Les modèles Z_p définissent également les écarts-types $\sigma_Z(A)$ associés aux distributions gaussiennes $Z(A)$, ainsi que des facteurs supplémentaires F_N et F_Z , qui permettent de prendre en compte des effets de parité pour les neutrons et les protons, respectivement.

Les paramètres de ce modèle phénoménologique ont été établis pour un nombre réduit de systèmes fissionnant (fission spontanée du ^{252}Cf , et fission induite par neutron de $^{233,235}\text{U}$ et du ^{239}Pu). Pour ces réactions, deux modèles Z_p sont implémentés dans FIFRELIN, dont les paramètres sont représentés en Figure 4.2 pour le ^{252}Cf . Pour les autres systèmes fissionnant, une valeur constante $|\Delta Z| = 0.5$ est utilisée par défaut dans le code [176].

(a) Polarisation de charge $\Delta Z(A)$ (b) Largeur $\sigma_Z(A)$ de la distribution de chargeFIGURE 4.2 – Paramètres des modèles de Wahl de 1988 [153] et de 2000 [175] pour la fission spontanée du ^{252}Cf .

4.1.1.2 Répartition de l'énergie d'excitation

L'énergie totale Q libérée à l'issue d'une fission spontanée provient de la différence entre les énergies de liaisons B des fragments et du noyau composé, et est donc donnée par :

$$Q = B(Z_H, A_H) + B(Z_L, A_L) - B(Z_{NC}, A_{NC}) = TKE + TXE \quad (4.4)$$

Ainsi, une fois que les fragments et leurs énergies cinétiques ont été échantillonnés, l'énergie d'excitation totale (TXE) peut être calculée, et doit être répartie entre les deux fragments. Cependant, une telle répartition n'est pas triviale, car l'excitation totale résulte de la somme de plusieurs contributions de natures différentes. Dans FIFRELIN, on considère qu'après l'accélération complète des fragments, l'énergie d'excitation totale E comporte une contribution intrinsèque E^* et une contribution collective, principalement rotationnelle E^{rot} qui correspond à l'énergie de rotation du fragment [53, 54]. L'énergie d'excitation totale peut alors s'écrire :

$$TXE = E_L + E_H = E_L^* + E_L^{rot} + E_H^* + E_H^{rot} \quad (4.5)$$

En utilisant le modèle du gaz de Fermi, l'énergie d'excitation intrinsèque peut s'exprimer sous la forme :

$$E^* = a(E^*) \times T^2 \quad (4.6)$$

où T désigne la température nucléaire. a est le paramètre de densité de niveaux, et est donné par la prescription d'Ignatyuk [43, 177] :

$$a(E, A, Z) = \tilde{a}(A) \times \left\{ 1 + \frac{\delta W(A, Z)}{E - \Delta} \exp[-\gamma(A) \times (E - \Delta)] \right\} \quad (4.7)$$

où $\tilde{a}(A)$ est le paramètre de densité de niveaux asymptotique, δW la correction de couche, Δ l'énergie d'appariement et $\gamma(A)$ un facteur d'amortissement des effets de couche. La densité de niveaux asymptotique, qui ne prend pas en compte les effets de couche présents à basse énergie, peut s'exprimer selon la théorie de Fermi en considérant un potentiel fini [43, 178] :

$$\tilde{a}(A) = \alpha A + \beta A^{2/3} \quad (4.8)$$

Le facteur d'amortissement est pris selon la prescription de Ramamurthy [43, 179] :

$$\gamma(A) = \gamma_0 A^{-1/3} \quad (4.9)$$

α , β et γ_0 sont alors des paramètres libres globaux ajustés pour chaque modèle de densité de niveaux afin de reproduire les données expérimentales [43], comme les espacements moyens des résonances neutrons (D_0).

La correction de couche correspond à la différence entre la masse mesurée des noyaux et la masse calculée par un modèle de goutte liquide [43, 180] :

$$\delta W = M_{exp}(A, Z) - M_{calc}(A, Z) \quad (4.10)$$

où M_{calc} est calculée à partir de la formule de la goutte liquide proposée par Myers et Swiatecki [181], avec la paramétrisation de Mengoni et Nakajima [180]. Dans RIPL3, M_{exp} provient de l'évaluation AME2003 [182].

En utilisant les équations (4.5) et (4.6), on obtient alors :

$$E_H^* = \frac{TXE - E_L^{\text{rot}} - E_H^{\text{rot}}}{1 + \frac{a_L}{a_H} \left(\frac{T_L}{T_H} \right)^2} \quad (4.11)$$

Une équation identique est obtenue pour E_L^* , dans laquelle les indices L et H sont inversés.

Ainsi, la répartition de l'énergie d'excitation intrinsèque est gouvernée par le rapport $R_T = T_L/T_H$. Dans FIFRELIN, une relation $R_T(A)$ est utilisée [54, 183], comme représentée en Figure 4.3. Cette relation part du postulat que les valeurs minimales et maximales du rapport de température sont atteintes lorsque l'un des fragments est parfaitement sphérique, et donc de température minimale. Ces noyaux doublement magiques sont obtenus pour $A = 132$ ($Z = 50$ et $A = 82$) et $A = 78$ ($Z = 28$ et $N = 50$). Les valeurs R_T^{132} et R_T^{78} permettent alors de décrire complètement cette relation, et constituent des paramètres libres de la simulation, dont le rôle est détaillé dans la partie 4.1.1.4.

L'énergie de rotation dépend quant à elle du moment angulaire total J du fragment considéré :

$$E^{\text{rot}} = \frac{J(J+1)\hbar^2}{2\mathcal{I}_r} \quad (4.12)$$

avec \mathcal{I}_r le moment d'inertie d'un sphéroïde rigide de densité uniforme :

$$\mathcal{I}_r = \frac{2}{5} Am_n R^2 (1 + 0.31\beta_2 + 0.44\beta_2^2 + o(\beta_2^2)) \quad (4.13)$$

où m_n est la masse d'un nucléon, $R = 1.2A^{1/3}$ fm le rayon du fragment, et β_2 sa déformation quadrupolaire dans l'état fondamental. Néanmoins, ce modèle ne fournit généralement pas une description fidèle du moment d'inertie des noyaux, comme discuté dans [184]. Un modèle plus fidèle (*cranking*) a été implémenté, mais son influence sur les résultats de la simulation semblait limitée [185].

Dans l'équation (4.11), on peut remarquer que E_H^* dépend des paramètres de densité de niveaux a_L et a_H qui sont eux-mêmes dépendants de E_L^* et E_H^* . Ainsi, cette étape du calcul nécessite une résolution itérative afin de converger vers une fragmentation cohérente.

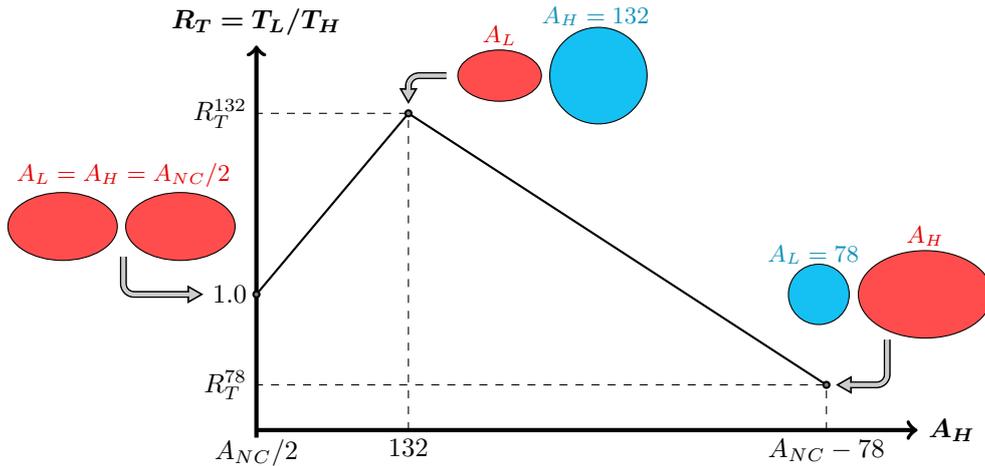


FIGURE 4.3 – Relation du rapport de température utilisée avec FIFRELIN.

4.1.1.3 Moment angulaire total et parité des fragments

Dans FIFRELIN, l'échantillonnage du moment angulaire et de la parité d'un fragment primaire se fait indépendamment de son complémentaire, et par conséquent les corrélations angulaires entre ces deux fragments [186] ne sont pas prises en compte de manière explicite.

Le moment angulaire total d'un fragment primaire est échantillonné à partir de la distribution suivante, établie à partir des travaux de Bethe et Bloch, qui ont décrit le noyau comme un gaz de fermions [187–189] :

$$P(J) = \frac{2J+1}{2\sigma^2} \exp\left(\frac{-(J+1/2)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (4.14)$$

où σ est le paramètre de spin cut-off [43]. Cette distribution s'apparente à une distribution de Rayleigh $R_\sigma(J + \frac{1}{2})$, à la différence que les valeurs de J ne sont pas continues, comme représenté en Figure 4.4. Une valeur approchée du moment angulaire moyen associé à la distribution (4.14) est alors $\langle J \rangle = \sigma\sqrt{\frac{\pi}{2}} - \frac{1}{2}$.

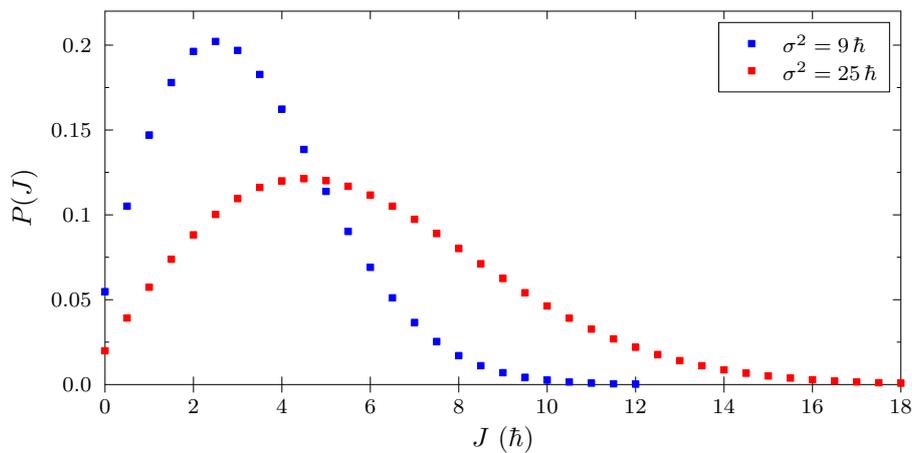


FIGURE 4.4 – Distributions du moment angulaire total pour différentes valeurs du spin cut-off.

Les différents modèles pour ce paramètre de spin cut-off seront discutés en Section 4.2.1. Quel que soit le modèle choisi, deux paramètres libres supplémentaires sont introduits afin d'ajuster la valeur des moments angulaires moyens des fragments primaires $\langle \sigma_L \rangle$ et $\langle \sigma_H \rangle$. Nous noterons ces paramètres k_L et k_H .

Enfin, la parité des fragments de fission primaires est considérée comme équiprobable lors de l'échantillonnage :

$$P(\pi = -1) = P(\pi = +1) = 0.5 \quad (4.15)$$

4.1.1.4 Paramètres libres

Nous avons vu au cours des sections précédentes que la génération des fragments primaires faisait intervenir 4 paramètres libres : R_T^{78} et R_T^{132} pour la répartition de l'énergie d'excitation, et k_L et k_H pour l'échantillonnage du moment angulaire total. Ces deux derniers paramètres dépendent du modèle choisi pour le spin cut-off des fragments primaires, voir Section 4.2.1.

Le principe d'un calcul FIFRELIN est de parvenir à trouver un ensemble de paramètres qui permette de reproduire une ou plusieurs observables de fission, que l'on qualifie alors d'observable(s) cible(s). Généralement, cette observable cible est la multiplicité moyenne des neutrons prompts $\bar{\nu}$. Dans le cas de la réaction $^{252}\text{Cf}(sf)$, les observables cibles sont la multiplicité moyenne des neutrons prompts pour les fragments légers et lourds (notées respectivement $\bar{\nu}_L$ et $\bar{\nu}_H$) ce qui permet de déterminer plus finement les paramètres libres. Les données expérimentales sont tirées de [190], et on a alors $\bar{\nu}_L \simeq 2.06$ et $\bar{\nu}_H \simeq 1.70$. Le principe de cette méthode est illustré en Figure 4.5.

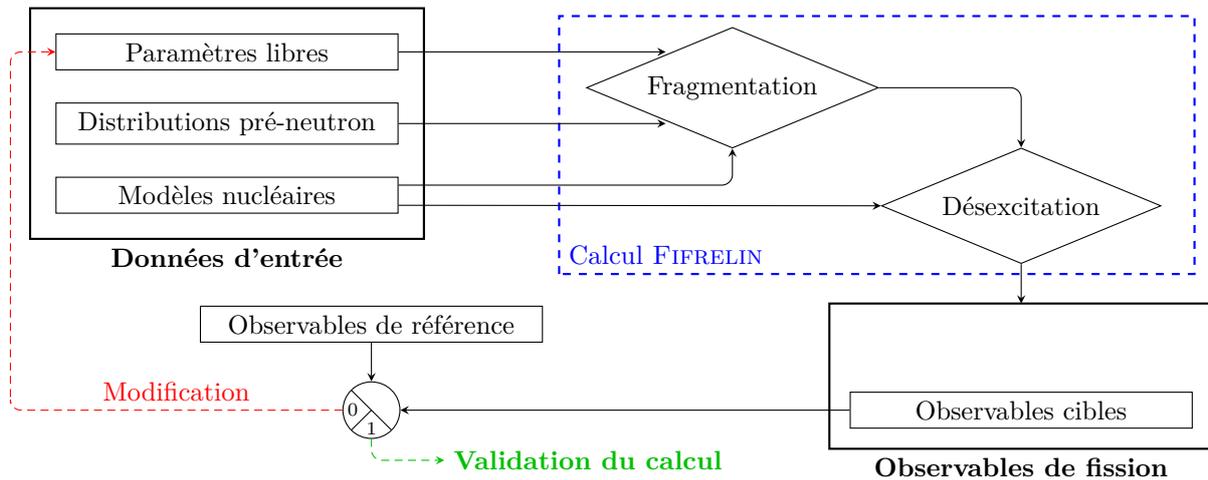


FIGURE 4.5 – Schéma de principe pour la détermination des paramètres libres de FIFRELIN.

Un calcul qui reproduit ces observables cibles est alors considéré comme valide, et peut être utilisé pour prédire les autres observables de fission. Notons cependant que cette méthode n'est pas parfaite, dans la mesure où l'unicité voire l'existence d'un tel jeu de paramètres pour un calcul donné n'est pas garantie.

De plus, la méthode décrite en Figure 4.5 n'est pas automatisée, et la recherche des paramètres libre s'effectue donc manuellement. En effet, l'espace des configurations (quadruplet $\{R_T^{78}; R_T^{132}; k_L; k_H\}$) est très vaste, et chaque calcul peut prendre jusqu'à une heure (afin que les incertitudes statistiques soient suffisamment faibles).

4.1.2 Émission des particules promptes

Chacun des fragments de fission échantillonnés par le code est caractérisé par un état initial \mathcal{S}_i :

$$\mathcal{S}_i = \{A, Z, E, J, \pi\}_i$$

La seconde étape du calcul consiste alors à modéliser la désexcitation de ces fragments à partir de l'état \mathcal{S}_i , par émission de particules promptes (neutrons, γ , électrons de conversion).

4.1.2.1 Construction du schéma de niveaux

Une des difficultés associées à la désexcitation des fragments de fission provient de la méconnaissance des schémas de niveaux nucléaires. Ainsi, seuls quelques niveaux d'excitation des noyaux ont des caractéristiques (énergie, spin et parité) bien connues. Ces niveaux sont alors qualifiés de discrets, par opposition aux niveaux de hautes énergies qui font partie d'un continuum et dont il est impossible d'obtenir expérimentalement les caractéristiques. Ces niveaux discrets forment la partie à basse énergie du schéma de niveaux nucléaire. Dans FIFRELIN, les caractéristiques de ces niveaux discrets proviennent de la base de données RIPL-3 [43]. À chacun de ces schémas de niveaux est également associé une énergie de coupure $E_{\text{cut-off}}$, correspondant au niveau N_C , au-delà de laquelle le schéma de niveaux est supposé être lacunaire.

Empiriquement, on peut approcher le nombre cumulé N_{cumul} de niveaux excités depuis le niveau fondamental jusqu'à l'énergie E par [191] :

$$N_{\text{cumul}}(E) = \exp\left(\frac{E - E_0}{T}\right) \quad (4.16)$$

où E_0 et T sont des paramètres ajustables. T est une température nucléaire, supposée constante sur toute la gamme en énergie. De ce fait, ce modèle est appelé modèle de température constante (abrégé en CTM pour *Constant Temperature Model*).

La procédure mise en place par RIPL pour déterminer ce niveau de coupure, détaillée en Section 4.2.2.5, consiste à rechercher un intervalle $[N_{\text{min}}; N_{\text{max}}]$ pour lequel le modèle CTM est applicable. Le niveau de coupure est alors défini par $N_C = N_{\text{max}}$, comme illustré en Figure 4.6.

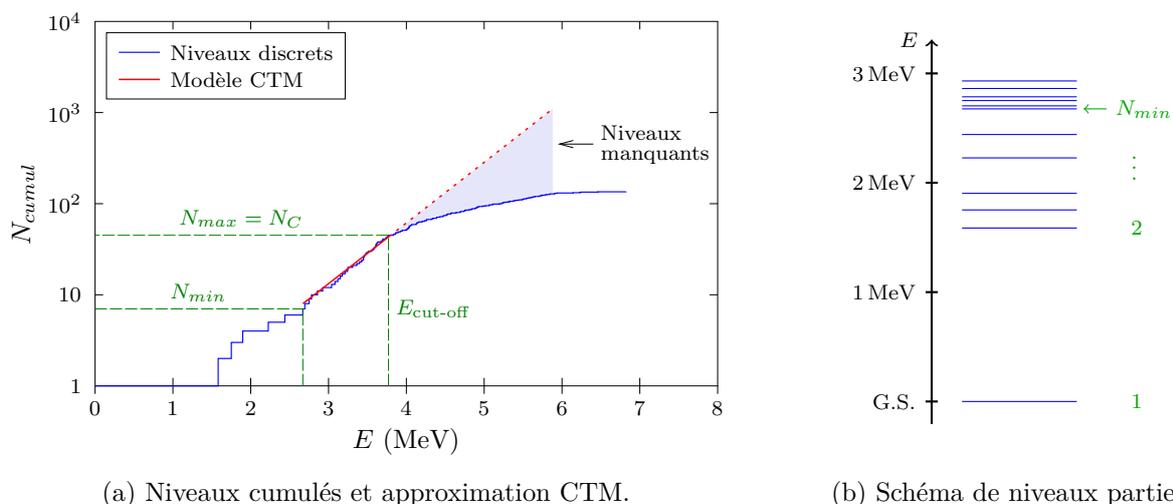


FIGURE 4.6 – Niveaux discrets du noyau ${}^{96}_{40}\text{Zr}$, d'après la base de données RIPL-3.

Au-delà de $E_{\text{cut-off}}$, le nombre théorique de niveaux entre l'état fondamental et l'énergie E est donné par :

$$N_{\text{cumul}}(E) = N_C + \int_{E_{\text{cut-off}}}^E \rho(x) dx \quad (4.17)$$

où ρ est la densité de niveaux, dont différents modèles sont discutés en Section 4.2.2.

Ainsi, à partir du schéma de niveaux discrets et d'un modèle de densité de niveaux, un schéma de niveaux complet est construit dans FIFRELIN, et divisé en 3 zones (Figure 4.7) :

- Pour $E \leq E_{\text{cut-off}}$, on utilise les données disponibles dans la base de données de structure RIPL-3. En plus de l'énergie de ces niveaux, RIPL peut fournir le moment angulaire total et/ou la parité d'une partie des niveaux. Il peut s'agir de données expérimentales, ou bien de données inférées, comme décrit dans [192]. Si ces caractéristiques ne sont pas disponibles, elles sont échantillonnées par FIFRELIN.

- Pour $E > E_{\text{cut-off}}$, les niveaux présents dans RIPL sont utilisés, mais le schéma est incomplet, i.e. $N_{\text{cumul}}(E) > N_{\text{discret}}$. Il est donc complété en échantillonnant des niveaux théoriques dans l'intervalle $[E_{\text{cut-off}}; E]$, selon un modèle de densité de niveaux, afin que l'équation (4.17) soit vérifiée. Le moment angulaire et la parité de ces niveaux sont échantillonnés à partir des distributions $P(J|E)$ et $P(\pi|E)$ associées à la densité de niveaux (Section 4.2.2).
- Pour $E > E(\rho_{\text{max}}) = E_{\text{bin}}$, les niveaux sont regroupés en bins dans lesquels leurs caractéristiques sont moyennées. Le nombre de niveaux contenus dans le bin d'énergie moyenne \bar{E} et de largeur dE est alors $N(\bar{E}) = \rho(\bar{E}, \bar{J}, \bar{\pi})dE$. Par défaut, $\rho_{\text{max}} = 5 \times 10^4 \text{ MeV}^{-1}$.

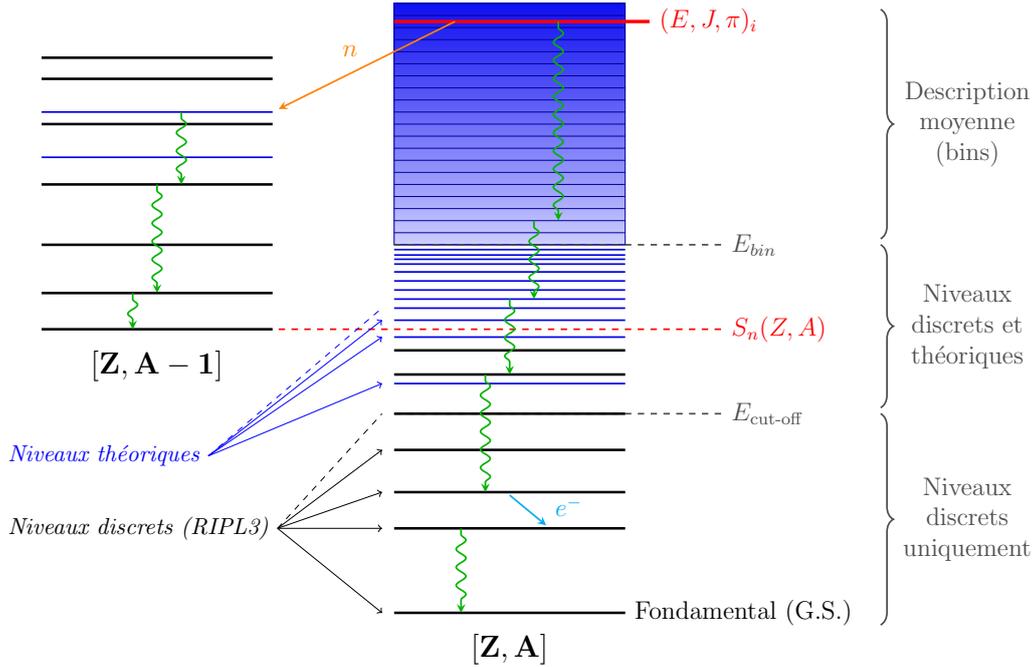


FIGURE 4.7 – Schéma de niveaux complet généré par FIFRELIN, avec deux chemins de désexcitation possibles (avec/sans émission neutron).

4.1.2.2 Modèle de Hauser-Feshbach

Une fois que le schéma est complété, il est alors possible de calculer les probabilités de transition de l'état initial \mathcal{S}_i vers un état final \mathcal{S}_f . Pour cela, le modèle statistique de Hauser-Feshbach [48, 193] est utilisé. Avec ce formalisme, la probabilité d'émission de la particule p (neutron ou γ) dépend non seulement de son énergie ϵ_p , mais également des propriétés α de la transition : [194, 195]

$$P_p(\mathcal{S}_i \rightarrow \mathcal{S}_f, \alpha) = \frac{\Gamma_p(i \rightarrow f, \alpha)}{\Gamma_\gamma^{\text{tot}} + \Gamma_n^{\text{tot}}} \quad (4.18)$$

où $\Gamma_p(i \rightarrow f)$ désigne la largeur partielle de la transition, et est directement liée au temps caractéristique τ qui y est associé : $\Gamma\tau = \hbar$. Γ_p^{tot} désigne la largeur partielle de transition totale pour une particule donnée : $\Gamma_p^{\text{tot}} = \sum_k \Gamma_p(i \rightarrow f_k)$.

Tant que l'énergie d'excitation de l'état initial est supérieure à l'énergie de séparation du neutron, alors l'émission d'un neutron est énergiquement possible. La largeur partielle moyenne de transition associée à l'émission d'un neutron d'énergie ϵ_n est calculée à partir des coefficients de transmission $T_{\ell,j}(\epsilon_n)$, où ℓ et j sont respectivement le moment orbital et le moment angulaire total du neutron. On a alors :

$$\bar{\Gamma}_n(\epsilon_n, \ell, j) = \frac{T_{\ell,j}(\epsilon_n)}{2\pi\rho(E_i, J_i, \pi_i)} \quad (4.19)$$

où ρ est la densité de niveaux de l'état initial. Dans FIFRELIN, les coefficients de transmission neutron T_n sont issus de calculs effectués en amont avec le code ECIS [196] (piloté par Talys [197]). Les résultats de ces calculs sont tabulés en fonction de l'énergie (de 1 eV à 20 MeV) et du moment orbital du neutron émis (20 valeurs) [54], et sont ensuite lus lors des calculs effectués avec FIFRELIN. Par défaut, ces calculs font appel à un modèle de potentiel optique avec la paramétrisation de Koning-Delaroche [198], qui suppose des noyaux peu déformés.

La largeur partielle de transition γ est estimée à partir d'une fonction de force gamma $f_{XL}(\epsilon_\gamma)$, où X désigne la nature de la transition (électrique ou magnétique) et L le moment angulaire du photon. Plus de détails concernant ces fonctions de force sont donnés en Section 4.2.3. La largeur partielle moyenne de transition s'exprime alors par :

$$\bar{\Gamma}_\gamma(\epsilon_\gamma, XL) = \frac{f_{XL}(\epsilon_\gamma)\epsilon_\gamma^{2L+1}}{\rho(E_i, J_i, \pi_i)} \quad (4.20)$$

Enfin, FIFRELIN modélise également l'émission d'électrons de conversion interne (CI). Une telle transition se traduit par l'émission d'un électron atomique, généralement d'une couche K ou L. Dans ce cas, l'énergie de l'électron est donnée par :

$$E_{e^-} = E_i - E_f - B_{e^-} \quad (4.21)$$

où B_{e^-} est l'énergie de liaison de l'électron, et $(E_i - E_f)$ l'énergie de la transition.

La compétition entre ce processus et l'émission d'un rayon γ est caractérisée par le coefficient de conversion interne α_{CI} . La probabilité d'émission d'un électron de conversion interne est alors :

$$P_{e^-} = \alpha_{CI} \times P_\gamma \quad (4.22)$$

Ces coefficients de conversion sont estimés à partir de données calculées avec le code BrIcc [199], et tabulées pour chaque élément ($Z \geq 10$) en fonction de la multipolarité, de la gamme d'énergie de la transition et de la couche (ou sous-couche) électronique [161].

4.1.2.3 Réalisation nucléaire

Le concept de Réalisation Nucléaire (RN) a été initialement introduit par Bečvář [200] pour l'émission de γ en cascade suivant la capture d'un neutron thermique. Cette notion a ensuite été élargie à l'émission couplée neutron/ γ par Régnier [193, 195].

Une RN ω correspond alors à un schéma de niveaux complet (voir Section 4.1.2.1) pour l'ensemble des fragments échantillonnés (pré- et post-neutron), ainsi que les largeurs partielles de transition entre les niveaux. En échantillonnant plusieurs RN différentes au cours du calcul, on peut donc prendre en compte la méconnaissance des schémas de niveaux associés aux fragments de fission, comme illustré en Figure 4.8. Pour chacune des K réalisations nucléaires échantillonnées, L fissions seront modélisées (et donc $2L$ cascades). Ainsi, le nombre total d'événements de fission simulés par FIFRELIN est égal à $K \times L$.

De plus, les largeurs partielles de transition décrites dans les équations (4.19) et (4.20) ne correspondent pas exactement aux largeurs de transition $\mathcal{S}_i \rightarrow \mathcal{S}_f$, mais à la moyenne des largeurs de transitions pour des niveaux d'énergie proche [193]. Autour de ces valeurs moyennes, les largeurs de transitions suivent une distribution de Porter-Thomas [201]. Ainsi, on associe à chaque RN des largeurs partielles de transitions uniques :

$$\Gamma_{p,\omega}(i \rightarrow f, \alpha) = \bar{\Gamma}_p(\epsilon_p, \alpha) \times y_\omega(n_i \times n_f) \times \delta(\alpha, i, f) \times n_f \quad (4.23)$$

où $y_\omega(k)$ est un facteur de fluctuation qui suit une distribution du χ^2 à k degrés de liberté. n_i (resp. n_f) désigne alors le nombre de niveaux associé à l'état initial (resp. final) [193]. Pour $E < E_{bin}$ (niveaux discrets) $n = 1$, mais pour $E > E_{bin}$ on a $n = \lfloor \rho(E)dE \rfloor$. Enfin, δ est le symbole de Krönecker, qui vaut 1 si la transition est possible, et 0 dans le cas contraire.

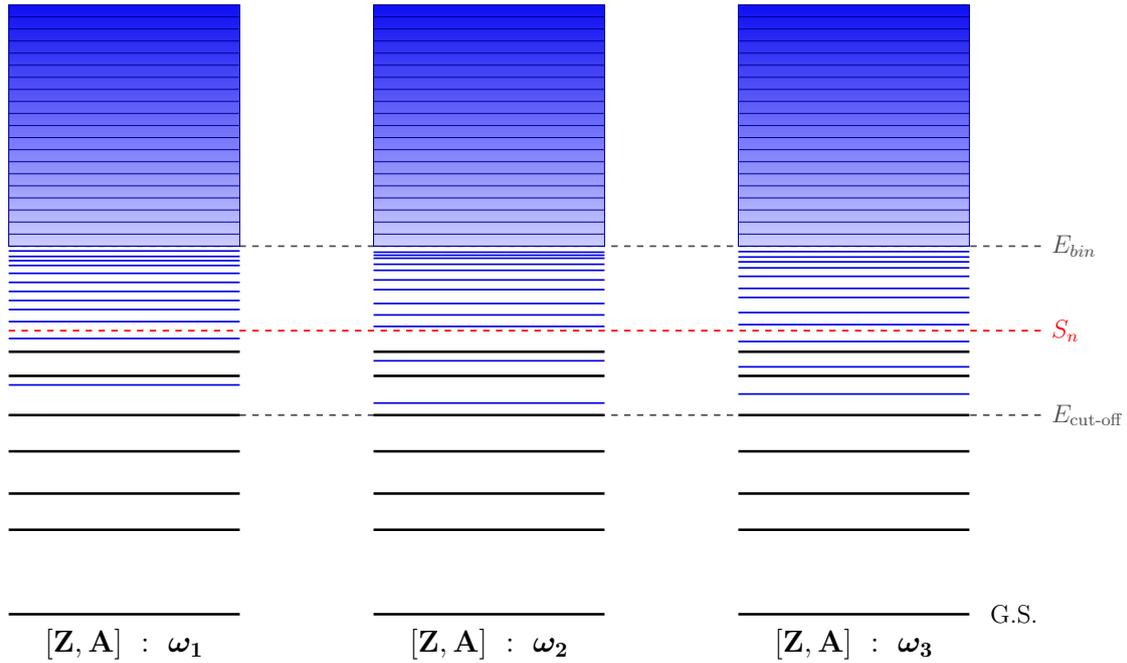


FIGURE 4.8 – Exemples de schémas de niveaux complets du même noyau, pour 3 RN différentes. Les niveaux discrets (en noir) sont identiques, alors que les niveaux théoriques (en bleu) sont ré-échantillonnés pour chaque RN.

4.1.3 Fichiers de sortie

4.1.3.1 Observables de fission et estimateurs

Les observables de fission obtenues avec FIFRELIN peuvent être des valeurs scalaires (e.g. $\bar{\nu}$), ou des distributions (e.g. $\bar{\nu}(A)$, $\bar{\nu}(TKE)$, $P(\nu)$, ...). Comme il s'agit d'une simulation stochastique, FIFRELIN calcule des estimateurs statistiques associés à ces observables. La méthode utilisée a déjà été décrite dans le détail à plusieurs reprises [183, 193, 200], mais nous allons tout de même en rappeler ici les points essentiels.

Prenons une observable scalaire arbitraire et notons-la \bar{Q} . Pour chacune des K réalisations nucléaires ω_k , une estimation μ_{ω_k} de cette observable est fournie. À cette estimation est associée une erreur statistique $\sigma_{\mu_{\omega_k}} \propto L^{-1/2}$ (L étant le nombre de cascades).

La méthode basée sur les réalisations nucléaires suppose alors que valeur physique de l'observable (\bar{Q}^ϕ) peut être approchée par la valeur moyenne de la distribution des μ_{ω_k} :

$$\bar{Q}^\phi \simeq \hat{\mu} = \langle \mu_{\omega_k} \rangle = \frac{1}{K} \sum_k \mu_{\omega_k} \quad (4.24)$$

où $\hat{\mu}$ est l'estimateur de la moyenne sur les K réalisations. L'incertitude associée à cet estimateur moyen est alors :

$$\hat{\sigma}_\mu = \frac{\hat{\sigma}}{\sqrt{K}} = \sqrt{\frac{1}{K(K-1)} \sum_k (\mu_{\omega_k} - \hat{\mu})^2} \quad (4.25)$$

où $\hat{\sigma}^2$ est l'estimateur de la variance de l'échantillon des μ_{ω_k} . Cette variance possède 2 contributions distinctes. D'une part, la variance intrinsèque provient de la dispersion de \bar{Q} d'une réalisation nucléaire à l'autre. Cette variance peut donc être interprétée comme l'incertitude systématique liée à la méconnaissance de la structure nucléaire : plus les schémas de niveaux sont connus, plus les réalisations nucléaires sont proches et donc plus cette variance σ_{sys}^2 est faible. La seconde contribution à la variance de l'échantillon est de nature purement statistique. En effet, les μ_{ω_k} sont des estimateurs, et sont donc dispersés autour de la valeur physique \bar{Q}_ω^ϕ associée à chaque

réalisation nucléaire. Un exemple de l'effet de cette dispersion est proposé en Figure 4.9. En supposant que cette dispersion varie peu d'une réalisation à l'autre, on peut estimer la variance intrinsèque selon :

$$\hat{\sigma}_{syst}^2 = \hat{\sigma}^2 - \frac{1}{K} \sum_k \sigma_{\mu_{\omega_k}}^2 \quad (4.26)$$

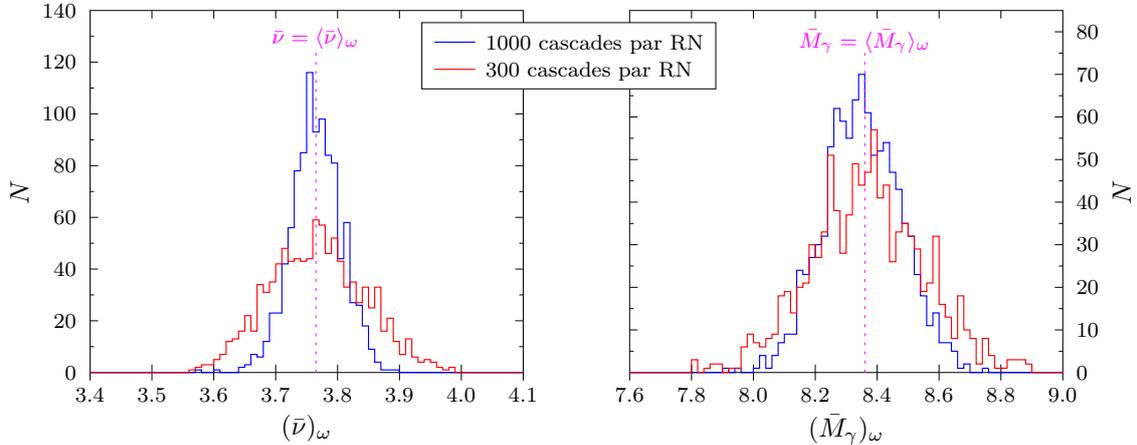


FIGURE 4.9 – Distribution des estimateurs μ_{ω_k} associés à la multiplicité moyenne des neutrons prompts (gauche) et des gammas prompts (droite), en variant le nombre de cascades (L). Dans les deux calculs, $K = 1000$ RN.

4.1.3.2 Arbre d'événements

Les événements de fission peuvent également être stockés sous la forme d'un arbre ROOT [132]. Ces événements sont les caractéristiques des fragments de fission, mais aussi des particules prompts émises lors de la désexcitation des fragments [176, 202]. L'avantage de ce format est qu'il permet d'étudier des corrélations complexes entre les observables de fission en utilisant le logiciel ROOT.

4.2 Modèles nucléaires

Comme expliqué en Section 4.1, divers modèles nucléaires interviennent au cours d'un calcul FIFRELIN. Une même quantité peut alors être estimée de plusieurs manières différentes, en fonction du modèle choisi. Dans cette section, différents modèles utilisés pendant la thèse seront ainsi présentés. Ces modèles seront ensuite comparés dans le Chapitre 5 en confrontant les résultats obtenus aux mesures réalisées avec VESPA.

4.2.1 Spin cut-off des fragments primaires

Le moment angulaire des fragments primaires est échantillonné à partir de la distribution (4.14), dont les caractéristiques dépendent du paramètre de spin cut-off σ (Section 4.1.1.3). De plus, afin de reproduire au mieux les données expérimentales, les valeurs moyennes du moment angulaire des fragments de fission primaires sont modifiées par des paramètres libres k_L et k_H , dont la définition dépend du modèle utilisé.

4.2.1.1 Modèle constant

Le modèle 'historique' de FIFRELIN pour le spin cut-off des fragments de fission primaire est le modèle constant (CST). Dans ce modèle simple, deux valeurs constantes sont choisies, pour les fragments lourds (H) et légers (L), et constituent les deux paramètres libres de la simulation :

$$\sigma(A) = \begin{cases} \sigma_L & \text{pour } A < A_{NC}/2 \\ \sigma_H & \text{pour } A > A_{NC}/2 \\ (\sigma_L + \sigma_H)/2 & \text{pour } A = A_{NC}/2 \end{cases} \quad (4.27)$$

4.2.1.2 Modèle dépendant de l'énergie

Une description plus physique du paramètre de spin cut-off peut être fournie par le modèle de Bethe (gaz de Fermi), pour les hautes énergies d'excitations ($E \geq S_n$). Dans ce modèle, σ représente l'écart-type de la distribution de la projection du moment angulaire $P(M)$, dans l'approximation gaussienne [187]. On peut alors montrer que [64] :

$$\sigma_{\text{FGM}}^2 = \mathcal{I}_r T = \mathcal{I}_r \sqrt{\frac{E - \Delta}{a}} \quad (4.28)$$

où a est le paramètre de densité de niveaux défini en (4.7). Néanmoins, cette expression présente de sérieuses limites, car elle ne permet pas de reproduire les données à basse énergie, où les effets de couches sont importants. Une correction empirique a donc été proposée [178, 203], qui a également pu être justifiée par des calculs microscopiques [204] :

$$\sigma_S^2 = \frac{a}{\tilde{a}} \times \sigma_{\text{FGM}}^2 = \mathcal{I}_r \frac{a}{\tilde{a}} \sqrt{\frac{E - \Delta}{a}} \quad (4.29)$$

Les modèles de spin cut-off correspondant aux équations (4.28) et (4.29) ont été implémentés dans FIFRELIN (modèles *Inertia* et *Inertia+Shell*, respectivement) par Thulliez [64, 205].

À basse énergie, comme le nombre de niveaux excités est faible, on ne peut plus utiliser le modèle du gaz de Fermi. Cependant, si le moment angulaire total des premiers niveaux discrets est connu, il est possible d'estimer un spin cut-off discret qui correspond à la dispersion de M dans cette partie du schéma de niveaux. On a alors, dans l'intervalle $[E_L, E_U]$ [206] :

$$\sigma_d^2 = \frac{1}{3 \sum_{i=N_L}^{N_U} (2J_i + 1)} \sum_{i=N_L}^{N_U} J_i(J_i + 1)(2J_i + 1) \quad (4.30)$$

où $N_L = N_{\min}$ et $N_U = N_{\max}$ correspondent au nombre de niveaux cumulés aux énergies E_L et E_U .

Finalement, si l'on note $E_d = (E_L + E_U)/2$, la paramétrisation complète du spin cut-off est donnée par [43] :

$$\sigma^2 = \begin{cases} \sigma_d^2(A, Z) & \text{pour } E \leq E_d \\ \sigma_d^2 + [\sigma_S^2(S_n) - \sigma_d^2] \frac{E - E_d}{S_n - E_d} & \text{pour } E_d \leq E \leq S_n \\ \sigma_S^2(A, Z, E) & \text{pour } E \geq S_n \end{cases} \quad (4.31)$$

où une interpolation linéaire du spin cut-off est utilisée entre E_d et S_n .

Pour l'échantillonnage du moment angulaire des fragments primaires, le modèle dépendant de l'énergie (EDS, pour *Energy-Dependent Spin cut-off*) utilise le paramètre de spin cut-off défini en équation (4.31). Les paramètres libres sont alors les facteurs correctifs $f_{\sigma_{L,H}}$, appliqués au spin cut-off de haute énergie selon :

$$\tilde{\sigma}_S(A, Z, E)_{L,H} = f_{\sigma_{L,H}} \times \sigma_S(A, Z, E) \quad (4.32)$$

Comme souligné dans [64], la dépendance en énergie du spin cut-off génère une sérieuse difficulté. En effet, l'énergie d'excitation intrinsèque E^* est obtenue de manière itérative à partir de l'équation (4.11). Ainsi, l'énergie E varie à chaque itération, ce qui met à jour le paramètre de spin cut-off, et rend donc nécessaire un nouvel échantillonnage de J . Mais comme chaque échantillonnage est indépendant du précédent, J , et par conséquent E^{rot} , peut varier radicalement d'une itération à l'autre, rendant toute convergence impossible. Pour pallier ce problème, il a été choisi de ne pas échantillonner J mais d'utiliser la valeur moyenne du moment angulaire [64]. Comme J est nécessairement entier pour les noyaux pairs, et demi-entier pour les noyaux impairs, on a alors :

$$J(A, Z, E) := \begin{cases} \mathcal{A} \left(\sigma(A, Z, E) \sqrt{\pi/2} - 0.5 \right) & \text{pour } A \text{ pair} \\ \mathcal{A} \left(\sigma(A, Z, E) \sqrt{\pi/2} - 1 \right) + 0.5 & \text{pour } A \text{ impair} \end{cases} \quad (4.33)$$

où $\mathcal{A}(x)$ désigne l'arrondi entier de x .

4.2.1.3 Modèle microscopique

La base de données RIPL contient également des densités de niveaux obtenues à partir du modèle combinatoire basé sur des calculs Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) et détaillé en Section 4.2.2.4. Ces densités sont tabulées pour chaque fragment, en fonction de l'énergie, du moment angulaire et de la parité. Il est alors possible de définir une distribution de moment angulaire associée à chaque fragment :

$$P_{\text{HFB}}(J|E) = \frac{\rho_{\text{tab}}(E, J^-) + \rho_{\text{tab}}(E, J^+)}{\sum_i \rho_{\text{tab}}(E, J_i^-) + \rho_{\text{tab}}(E, J_i^+)} \quad (4.34)$$

Comme pour le modèle EDS décrit précédemment, l'échantillonnage d'un moment angulaire à partir de cette distribution dépendante de l'énergie peut empêcher la convergence vers un état initial des fragments de fission. Ainsi, on utilisera plutôt les valeurs moyennes associées à ces distributions :

$$\langle J_{\text{HFB}} \rangle(E) = \sum_i J_i \times P_{\text{HFB}}(J_i|E) \quad (4.35)$$

Comme représenté en Figure 4.10, ce spin moyen $\langle J_{\text{HFB}} \rangle$ semble plus important que le spin moyen obtenu avec le modèle du gaz de Fermi non modifié ($f_\sigma = 1$), excepté pour les très basses énergies d'excitation, où une description statistique est moins adaptée. Dans cette figure, le spin moyen obtenu pour le modèle EDS avec un facteur correctif $f_\sigma = 1.5$ est également représenté, ce qui conduit à des valeurs plus élevées que pour le modèle HFB. On remarque alors que l'évolution de $\langle J \rangle$ en fonction de l'énergie d'excitation diffère significativement entre les modèles EDS et HFB.

Il reste néanmoins une difficulté supplémentaire à surmonter afin de pouvoir utiliser ce modèle dans FIFRELIN. En effet, l'utilisation du modèle HFB sans paramètre libre ne permet pas de reproduire les observables cibles, *a minima* pour la réaction $^{252}\text{Cf}(\text{sf})$. Appliquer un facteur correctif global semble problématique aux basses énergies. Une approche progressive, semblable à celle utilisée pour le modèle EDS, serait alors plus adaptée :

$$\tilde{J}_{\text{HFB}}(A, Z, E) = \begin{cases} \langle J_{\text{HFB}} \rangle(A, Z, E) \times \left(1 + \frac{E}{S_n} [f_{\sigma_{L,H}} - 1] \right) & \text{pour } E \leq S_n \\ \langle J_{\text{HFB}} \rangle(A, Z, E) \times f_{\sigma_{L,H}} & \text{pour } E \geq S_n \end{cases} \quad (4.36)$$

4.2.2 Densités de niveaux nucléaires

Les modèles de densité de niveaux nucléaires sont des ingrédients essentiels pour la description des schémas de niveaux. Si l'on note $N_{\text{cumul}}(E)$ le nombre de niveaux cumulés à l'énergie E , la densité de niveaux est définie comme :

$$\rho(E) = \frac{dN_{\text{cumul}}(E)}{dE} \quad (4.37)$$

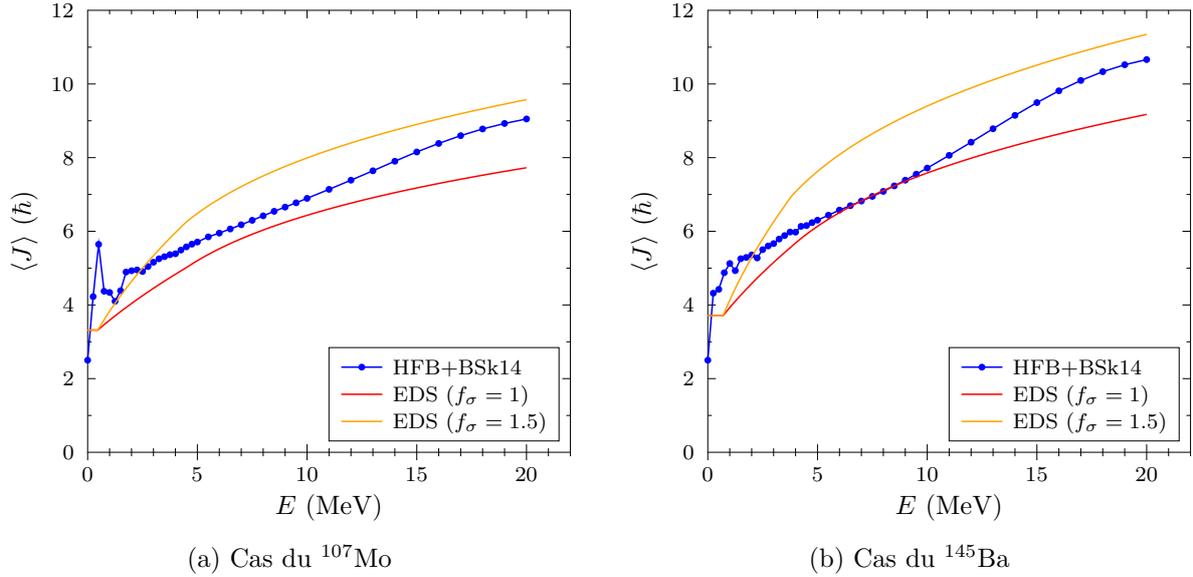


FIGURE 4.10 – Comparaison des distributions $\langle J \rangle(E)$ obtenues avec le modèle HFB et le modèle EDS, pris pour deux facteurs correctifs différents.

Comme les niveaux excités sont caractérisés non seulement par l'énergie d'excitation, mais également par le moment angulaire total J et la parité π , on exprimera la densité sous la forme :

$$\rho(E, J, \pi) = \rho(E) \times P(\pi|E) \times P(J|E, \pi) \quad (4.38)$$

Plusieurs modèles, phénoménologiques ou microscopiques, seront décrits dans la suite de cette section. Ces modèles comportent tous des paramètres d'ajustement, afin de les faire correspondre du mieux possible aux données expérimentales disponibles. Il s'agit des niveaux discrets à basse énergie, mais également de l'espacement moyen des résonances pour les neutrons s (i.e. de moment orbital nul), défini par :

$$\frac{1}{D_0} = \begin{cases} \rho(S_n, 1/2, \pi_0) & \text{pour } J_0 = 0 \\ \rho(S_n, J_0 + 1/2, \pi_0) + \rho(S_n, J_0 - 1/2, \pi_0) & \text{pour } J_0 \neq 0 \end{cases} \quad (4.39)$$

où ρ est la densité de niveaux du noyau composé. J_0 et π_0 désignent respectivement le moment angulaire total et la parité du noyau cible [43].

4.2.2.1 Modèle de température constante

Le modèle de température constante (CTM) est un modèle purement empirique, qui résulte de l'observation selon laquelle le nombre de niveaux cumulés de nombreux noyaux peut être décrit par une distribution exponentielle pour des énergies inférieures à plusieurs MeV [191]. Cela conduit à l'expression suivante pour la densité de niveaux :

$$\rho_{\text{CTM}}(E) = \frac{1}{T} \exp\left(\frac{E - E_0}{T}\right) \quad (4.40)$$

où le décalage en énergie E_0 et la température T sont les paramètres ajustables du modèle. Ces paramètres sont constants et obtenus par régression sur le schéma de niveaux à basse énergie.

4.2.2.2 Modèle du gaz de Fermi

Dans le modèle du gaz de Fermi (FGM), le noyau est considéré comme un gaz de fermions (protons et neutrons) indépendants. À l'issue des calculs, détaillés dans [43, 187–189, 191], la

densité totale de niveaux peut s'exprimer sous la forme :

$$\rho_{\text{FGM}}(E) = \frac{1}{12\sqrt{2}\sigma} \frac{\exp\left(2\sqrt{aU}\right)}{a^{1/4}U^{5/4}} \quad (4.41)$$

Dans cette équation, $U = E - \Delta$ est l'énergie d'excitation effective, corrigée des effets d'appariement, σ est le spin cut-off défini en (4.31), et a est le paramètre de densité de niveaux, dont l'expression est donnée en (4.7).

Dans ce modèle, le moment angulaire total J suit la distribution donnée en équation (4.14), et la parité peut être considérée comme équiprobable [191, 207]. Ainsi, l'équation (4.38) se simplifie en :

$$\rho(E, J, \pi) = \rho(E) \times P(J) \times P(\pi) \quad (4.42)$$

4.2.2.3 Modèle de Gilbert-Cameron

Le modèle de Gilbert-Cameron [191], communément nommé CGCM (*Composite Gilbert Cameron Model*) est un modèle qui mêle le CTM à basse énergie, et le FGM à haute énergie. En effet, le FGM n'est pas défini pour $E < \Delta$, et par ailleurs le CTM est particulièrement adapté pour reproduire les niveaux cumulés aux basses énergies d'excitation. On a alors :

$$\rho_{\text{CGCM}}(E^*) = \begin{cases} \rho_{\text{CTM}}(E^*) & \text{si } E^* \leq E_M \\ \rho_{\text{FGM}}(E^*) & \text{si } E^* \geq E_M \end{cases} \quad (4.43)$$

où l'énergie E_M est l'énergie de raccordement entre les deux modèles (*matching energy*). Les paramètres globaux du FGM (α , β et γ_0) sont fixes, et définis dans RIPL-3 [43]. Ces paramètres ont été ajustés pour minimiser l'écart avec les données expérimentales disponibles (niveaux discrets et D_0).

Ainsi, le modèle CGCM possède trois paramètres libres : E_0 , T et E_M . Pour les déterminer, trois contraintes doivent donc être appliquées au modèle [43, 191]. La première de ces contraintes est la continuité de ρ_{CGCM} en E_M , ce qui mène à :

$$E_0 = E_M - T \ln(T\rho_{\text{FGM}}(E_M)) \quad (4.44)$$

La deuxième contrainte s'obtient en imposant la continuité de la température nucléaire, et donc la dérivabilité de ρ_{CGCM} en E_M [191] :

$$\frac{1}{T} = \left. \frac{d \ln(\rho_{\text{FGM}}(E))}{dE} \right|_{E_M} \quad (4.45)$$

Enfin, une ultime contrainte est obtenue en maximisant l'accord entre les niveaux discrets à basse énergie et le nombre de niveaux cumulés prédits par le modèle. Dans RIPL, cette contrainte se traduit par la formule [43] :

$$N_{\text{max}} = N_{\text{min}} + T\rho_{\text{FGM}}(E_M) \left[\exp\left(\frac{E_{\text{max}} - E_M}{T}\right) - \exp\left(\frac{E_{\text{min}} - E_M}{T}\right) \right] \quad (4.46)$$

où les énergies E_{min} et E_{max} sont les énergies correspondantes aux niveaux N_{min} et N_{max} définis par RIPL et représentés en Figure 4.6. Ce modèle CGCM est le modèle de densité de niveaux utilisé par défaut dans FIFRELIN.

Cependant, si l'équation (4.46) permet de reproduire la différence de niveaux $N_{\text{max}} - N_{\text{min}}$, elle ne garantit pas la reconstitution des niveaux discrets entre E_{min} et E_{max} , ce qui peut générer un biais important lors de la construction du schéma de niveaux (voir Section 4.2.2.5). Ainsi, durant la thèse, cette contrainte a été retravaillée, et une méthode alternative a été développée pour calculer E_M en minimisant la fonction :

$$r_\ell^2 = \sum_{k=N_{\text{min}}}^{N_{\text{max}}} \frac{(N_{\text{cumul}}(E_k) - k)^2}{N_{\text{max}} - N_{\text{min}}} \quad (4.47)$$

où r_ℓ^2 est défini de manière similaire au χ_{lev}^2 proposé par Koning [206]. Les paramètres du modèle obtenus par cette procédure sont alors calculés en amont et stockés dans un fichier externe. Ce modèle a été dénommé `CGCM_TAB`.

4.2.2.4 Modèle combinatoire microscopique

Dans ce modèle, le noyau est décrit comme un ensemble de particules-trous pour les neutrons et les protons. Chacun de ces états individuels est décrit par son énergie d'excitation, la projection de son moment angulaire total, sa parité et son énergie d'appariement [208]. Un état du noyau dans son ensemble est défini par le nombre de particules/trous correspondants aux protons et aux neutrons : $\mathcal{N} = \{N_\pi^p, N_\pi^t, N_\nu^p, N_\nu^t\}$. Le principe de la méthode combinatoire est alors de déterminer le nombre $N_{\mathcal{N}}(E, M, \pi)$ de ces états nucléaires permettant d'obtenir l'état excité caractérisé par l'énergie E , la projection M du moment angulaire totale et la parité π . La densité d'états associée est donnée par [209] :

$$\omega_{\mathcal{N}}(E, M, \pi) = \frac{\partial N_{\mathcal{N}}(E, M, \pi)}{\partial E} \quad (4.48)$$

Ces densités sont alors utilisées pour construire la densité d'états particules-trous indépendants, ou densité intrinsèque $\omega_{int}(E, M, \pi)$. Des densités d'états vibrationnels (excitations collectives décrites par des phonons) sont également estimées [210] et convoluées avec les densités intrinsèques pour former la densité d'états totale :

$$\omega(E, M, \pi) = \omega_{int}(E, M, \pi) \otimes \omega_{vib}(E, M, \pi) \quad (4.49)$$

Finalement, la densité de niveaux est calculée à partir de cette densité d'états. Pour un noyau sphérique, on a alors :

$$\rho_{sph}(E, J, \pi) = \omega(E, M = J, \pi) - \omega(E, M = J + 1, \pi) \quad (4.50)$$

Pour les noyaux déformés, le calcul de la densité de niveaux doit prendre en compte les différentes bandes de rotations [43, 209]

$$\rho_{def}(E, J, \pi) = \frac{1}{2} \sum_{\substack{K=-J \\ K \neq 0}}^J \omega(E - E_{rot}^{J,K}, K, \pi) + f(J, \pi) \times \omega(E - E_{rot}^{J,0}, 0, \pi) \quad (4.51)$$

où $f(J, \pi)$ vaut 1 quand J^π est impair-négatif ou pair-positif, et 0 sinon. Comme les noyaux tendent vers la sphéricité quand l'énergie d'excitation augmente, un facteur d'amortissement \mathcal{F} est introduit [210, 211] :

$$\rho(E, J, \pi) = (1 - \mathcal{F}(E)) \times \rho_{sph}(E, J, \pi) + \mathcal{F}(E) \times \rho_{def}(E, J, \pi) \quad (4.52)$$

Les états particules/trous individuels, utilisés pour calculer $\omega_{int}(E, J, \pi)$, et la déformation du noyau sont décrits à partir de calculs microscopiques utilisant la méthode Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) avec une interaction effective nucléon-nucléon [208–211] (voir Annexe A.3). Les valeurs tabulées disponibles dans la base de données RIPL-3 ont été obtenues à partir d'une interaction de contact de Skyrme (BSk14) [43], dont la paramétrisation est donnée dans [212]. Dans la suite, nous appellerons indifféremment ce modèle : `HFB+BSk14` ou `HFB14`. Des densités de niveaux obtenues en utilisant l'interaction de portée finie de Gogny (D1M), décrite dans [213], sont par ailleurs disponibles dans le code Talys [197], et ont été incorporées dans FIFRELIN. Ce modèle sera appelé `HFB+D1M`.

Les densités de niveaux issues de ces modèles combinatoires sont tabulées selon l'énergie d'excitation, le spin et la parité pour de nombreux noyaux. En complément des valeurs tabulées,

des coefficients de corrections c et p propres à chaque noyau sont donnés pour certains noyaux, afin d'ajuster ces densités de niveaux aux données expérimentales disponibles [43] :

$$\rho_{\text{HFB}}(E, J, \pi) = \exp\left(c\sqrt{E-p}\right) \times \rho_{\text{tab}}(E-p, J, \pi) \quad (4.53)$$

Pour les noyaux dont le D_0 est inconnu, c est nul, et dans le cas des noyaux dont le schéma de niveaux est peu connu, p l'est également, ce qui est le cas d'une partie des fragments de fission, comme mis en évidence dans [64]. Les valeurs de ces coefficients de corrections, appliquées aux densités de niveaux HFB+BSk14, sont représentées en Figure 4.11.

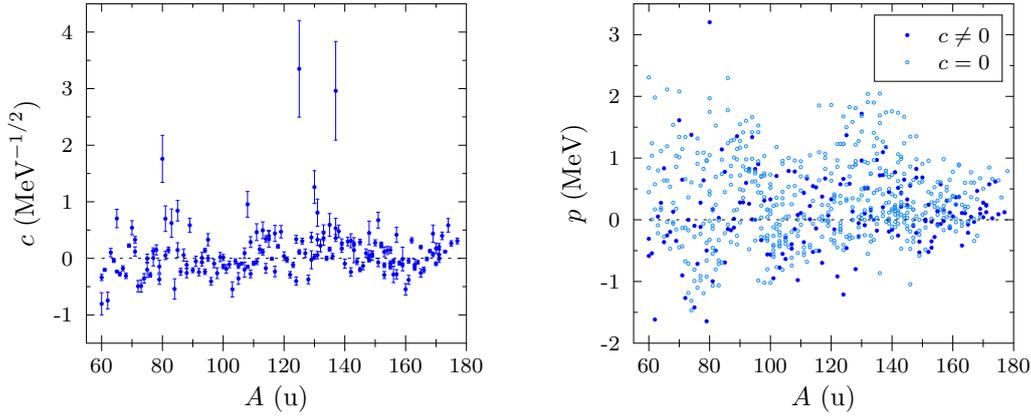


FIGURE 4.11 – Coefficients de corrections obtenus pour les densités de niveaux HFB+BSk14, extraits de la base de données RIPL-3.

L'implémentation du modèle HFB+BSk14 avait été initiée par Thulliez [64]. Durant ma thèse, j'ai repris ce travail, en y intégrant notamment la dépendance en parité de la distribution du moment angulaire $P(J|E, \pi)$, comme explicité dans (4.38), et en définissant des énergies de coupure adaptées, comme décrit dans la section suivante.

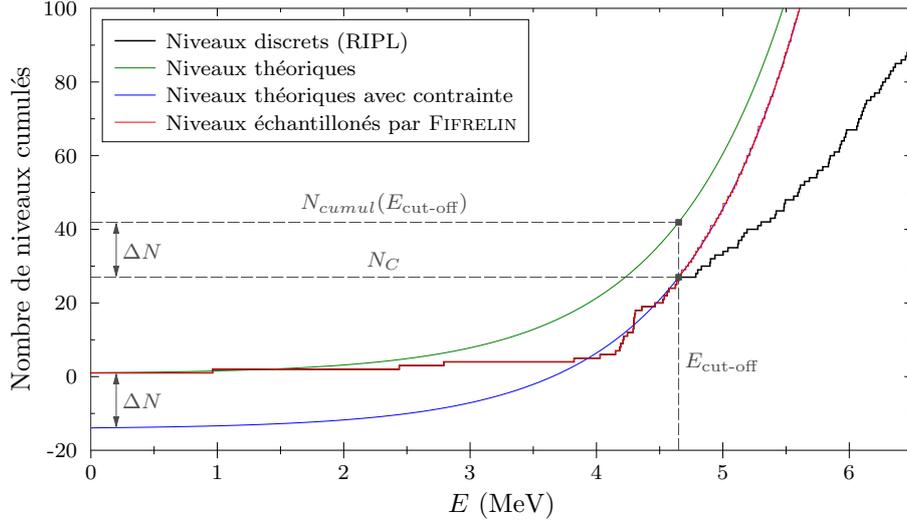
4.2.2.5 Énergie de coupure

Un aspect important dans la construction du schéma de niveaux complet est la détermination de l'énergie de coupure $E_{\text{cut-off}}$ en deçà de laquelle le schéma de niveaux fourni par RIPL peut être considéré comme complet. La densité de niveaux est alors utilisée pour construire des niveaux théoriques supplémentaires pour $E > E_{\text{cut-off}}$, comme expliqué en Section 4.1.2.1. Néanmoins, cette méthode introduit un biais constant sur le nombre de niveaux cumulés par rapport à un modèle purement théorique :

$$\Delta N = N_C - \int_0^{E_{\text{cut-off}}} \rho(x) dx = N_C - N_{\text{cumul}}(E_{\text{cut-off}}) \quad (4.54)$$

Ce biais se traduit par un décalage vertical de la courbe des niveaux théoriques, comme illustré en Figure 4.12. Ainsi, meilleure est la cohérence entre le schéma de niveaux discret et le modèle de densité de niveaux à l'énergie de coupure, plus faible est ce biais. De ce fait, la valeur de $E_{\text{cut-off}}$ va dépendre du modèle de densité de niveaux utilisé.

L'énergie de coupure fournie dans RIPL dépend d'un modèle CTM, et peut donc être utilisée avec le modèle CGCM. La procédure utilisée est basée sur une régression globale de la fonction $T(A)$. Pour les noyaux autour de la vallée de stabilité, le nombre de niveaux cumulés est approché par le modèle CTM sur un intervalle $[N_{\text{min}}, N_{\text{max}}]$, ajusté de manière itérative pour chacun des noyaux inclus dans la procédure [43, 192]. À l'issue de cette régression, une fonction $T(A)$ est alors obtenue. Pour les noyaux ayant au moins 20 niveaux connus et n'ayant pas été inclus dans


 FIGURE 4.12 – Schémas de niveaux discret, théorique (modèle CGCM) et complet du ^{133}Sb .

la procédure initiale, une régression supplémentaire est effectuée afin de déterminer N_{max} , mais cette fois la température est fixée, et prise égale à $T(A)$. Dans ce cas, N_{min} est fixé à 14 pour les noyaux impair-impair et à 7 pour les autres. Finalement, l'énergie de coupure $E_{cut-off}$ correspond à l'énergie du niveau $N_{max} = N_C$.

Quand la densité de niveaux est obtenue à partir d'un modèle microscopique, il semble plus judicieux d'estimer l'énergie de coupure à partir des prédictions de ces mêmes modèles, par exemple dans [214]. La méthode développée pendant la thèse consiste à déterminer le dernier niveau (noté κ) pour lequel les données disponibles dans RIPL sont au-dessus des prédictions du modèle HFB, avec une tolérance n_{tol} fixée :

$$E_{\kappa} = \max_i \{E_i \mid \delta_i \leq n_{tol}\} \quad \text{avec } \delta_i = N_{\text{HFB}}(E_i) - N_{\text{RIPL}}(E_i) \quad (4.55)$$

Afin de minimiser le biais $|\Delta N| = |\delta(E_{cut-off})|$, l'énergie de coupure est finalement définie par :

$$E_{\text{cut-off}}^{\text{HFB}} = \begin{cases} E_{\kappa+1} & \text{si } |\delta_{\kappa+1}| < |\delta_{\kappa}| \\ E_{\kappa} & \text{sinon} \end{cases} \quad (4.56)$$

La tolérance a été introduite afin que l'énergie de coupure ne soit pas définie pour une énergie trop basse, ce qui est par exemple le cas pour ^{132}Sn , pour lequel on a $\delta_2 = 4$ avec le modèle HFB14 (ce qui correspond au premier niveau excité, à 4.04 MeV). Cette procédure est illustrée en Figure 4.13.

4.2.3 Fonctions de force gamma

La désexcitation du noyau de l'état \mathcal{S}_i à l'état \mathcal{S}_f peut s'effectuer par une transition électromagnétique. Dans ce cas, un photon (ou un électron de conversion) est émis. Ce photon possède une énergie $\epsilon_{\gamma} = E_f - E_i$, et on associe à cette transition un type X (Electrique ou Magnétique) et une multipolarité $L > 0$, qui correspond au moment angulaire du photon. On a alors les règles de sélection suivantes :

- Pour les moments angulaires totaux :

$$|J_f - J_i| \leq L \leq J_f + J_i \quad (4.57)$$

- Pour les parités :

$$\pi_i \pi_f = \begin{cases} (-1)^L & \text{pour les transitions électriques} \\ (-1)^{L+1} & \text{pour les transitions magnétiques} \end{cases} \quad (4.58)$$

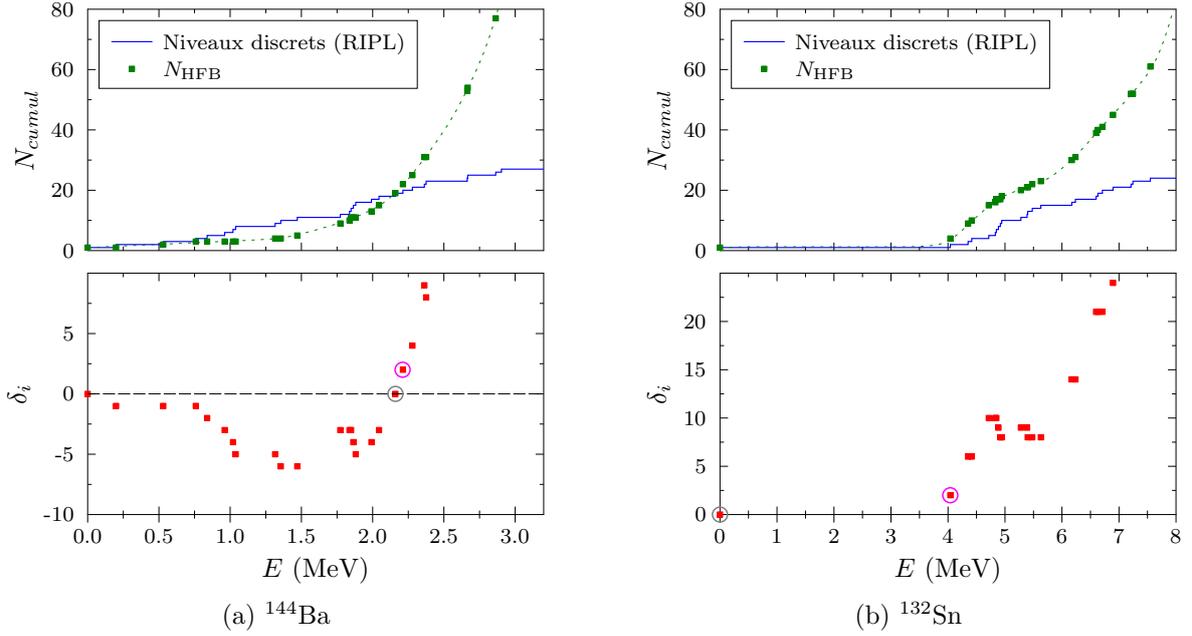


FIGURE 4.13 – Détermination de l'énergie de coupure pour les noyaux ^{144}Ba et ^{132}Sn . Les niveaux correspondants aux coupures sélectionnées sont entourés en gris ($n_{\text{tol}} = 0$) et en magenta ($n_{\text{tol}} = 2$).

Pour déterminer les largeurs des transitions possibles depuis l'état initial \mathcal{S}_i , un modèle simple est le modèle de Weisskopf [215], qui considère des particules indépendantes :

$$\Gamma_{XL}^{SP}(\epsilon_\gamma) = \begin{cases} y_{EL} \times A^{2L/3} \epsilon_\gamma^{2L+1} & \text{pour les transitions électriques} \\ y_{ML} \times A^{(2L-2)/3} \epsilon_\gamma^{2L+1} & \text{pour les transitions magnétiques} \end{cases} \quad (4.59)$$

où y_{EL} et y_{ML} sont les coefficients de Weisskopf, indiqués dans le Tableau 4.1.

TABLEAU 4.1 – Estimation de Weisskopf des largeurs de transitions γ , d'après [176].

EL	y_{EL}	ML	y_{ML}
E1	$6.747 \times 10^{-8} \text{ MeV}^{-2}$	M1	$2.073 \times 10^{-8} \text{ MeV}^{-2}$
E2	$4.791 \times 10^{-14} \text{ MeV}^{-4}$	M2	$1.472 \times 10^{-14} \text{ MeV}^{-4}$
E3	$2.232 \times 10^{-20} \text{ MeV}^{-6}$	M3	$6.858 \times 10^{-21} \text{ MeV}^{-6}$

Cependant, le modèle à particules indépendantes n'est généralement pas une approximation satisfaisante, et ne prend pas en compte les excitations collectives du noyau (états vibrationnels/rotationnels). Ainsi, en pratique, les largeurs partielles moyennes de transition sont estimées à partir des fonctions de force gamma $f_{XL}(\epsilon_\gamma)$, comme défini en équation (4.20). Dans cette section, nous allons présenter plusieurs des modèles qui permettent de décrire ces fonctions de force.

4.2.3.1 Modèles phénoménologiques

Les modèles phénoménologiques usuels sont issus du modèle initial proposé par Brink et Axel [216, 217]. Tout d'abord, la largeur partielle de transition gamma peut être reliée à la section efficace moyenne d'absorption des photons $\langle \sigma_a \rangle$ par :

$$\frac{\bar{\Gamma}_\gamma(\epsilon_\gamma, XL)}{D_{J_e}} = \bar{\Gamma}_\gamma(\epsilon_\gamma, XL) \rho(E, J_e, \pi_e) = \frac{\epsilon_\gamma^2}{(\pi \hbar c)^2} \times g^{-1} \times \langle \sigma_a \rangle \quad (4.60)$$

avec $g^{-1} = (2J_0 + 1)/(2J_e + 1)$, où J_0 et J_e sont respectivement les moments angulaires de l'état fondamental et excité (i.e. après l'absorption du photon ϵ_γ) [217]. Le facteur g peut être simplifié en supposant $J_0 = 0$, et dans ce cas $g = 2L + 1$ [218]. Pour les transitions E1, le mode d'excitation prédominant est un mode collectif appelé résonance dipolaire géante (GDR, pour *Giant Dipole Resonance*), dans lequel l'ensemble des neutrons oscille par rapport aux protons [64]. La section efficace associée à ce phénomène peut être décrite par une fonction lorentzienne [216, 217, 219] :

$$\sigma_a^{GDR} = \sigma_0 \frac{\Gamma_r^2 \epsilon_\gamma^2}{(\epsilon_\gamma^2 - E_r^2)^2 + \epsilon_\gamma^2 \Gamma_r^2} \quad (4.61)$$

où σ_0 , E_r et Γ_r désignent respectivement la valeur, la position et la largeur du pic associé. Brink émet alors l'hypothèse simplificatrice que l'équation (4.61) est valable quelle que soit l'excitation initiale du noyau [216]. Cette hypothèse permet ainsi de décrire la fonction de force associée à la désexcitation (eq. (4.20)) par la fonction de force obtenue par photo-absorption (calculée en utilisant l'équation (4.60)) [220]. Bien que la validité de l'hypothèse de Brink-Axel soit reconnue aux énergies de la GDR (hautes énergies), elle est plus controversée à basse énergie, c'est-à-dire sous l'énergie de séparation du neutron [221, 222].

SLO (Standard Lorentzian)

En suivant les hypothèses de Brink et Axel, et en utilisant les équations (4.20), (4.60) et (4.61), on obtient :

$$f_{E1}^{SLO} = \frac{1}{3(\pi\hbar c)^2} \times \frac{\sigma_0 \Gamma_r^2 \epsilon_\gamma}{(\epsilon_\gamma^2 - E_r^2)^2 + \epsilon_\gamma^2 \Gamma_r^2} \quad (4.62)$$

Il est également possible de généraliser cette approche pour les résonances dipolaires magnétiques (transition M1) ou quadrupolaires électriques (transition E2), et donc de décrire les fonctions de force associées par des fonctions lorentziennes.

EGLO (Enhanced Generalized Lorentzian)

Le modèle SLO, où la fonction de force est décrite par une fonction lorentzienne simple, ne permet pas de correctement décrire certaines données expérimentales. Ainsi, une largeur de résonance dépendante de l'énergie et de la température est proposée [43, 223, 224] :

$$\Gamma(\epsilon_\gamma, T) = \frac{\Gamma_r}{E_r^2} (\epsilon_\gamma^2 + 4\pi T^2) \quad , \quad T = \sqrt{\frac{U}{a}} \quad (4.63)$$

Cette dépendance en énergie de la largeur de la GDR est alors prise en compte dans le modèle EGLO, qui intègre de plus une contribution supplémentaire afin de mieux décrire le comportement de la fonction de force quand l'énergie d'excitation devient proche de 0 [43] :

$$f_{XL}^{EGLO} = \frac{1}{3(\pi\hbar c)^2} \times \sigma_0 \Gamma_r \left[\frac{\epsilon_\gamma \Gamma_K(\epsilon_\gamma, T_f)}{(\epsilon_\gamma^2 - E_r^2)^2 + \epsilon_\gamma^2 \Gamma_K(\epsilon_\gamma, T_f)^2} + \frac{0.7 \Gamma_K(0, T_i)}{E_r^3} \right] \quad (4.64)$$

Dans l'équation (4.64), T_i et T_f désignent respectivement la température dans l'état initial et final. Γ_K correspond à la largeur de résonance dépendante de l'énergie définie dans l'équation (4.63), avec une correction purement empirique :

$$\Gamma_K(\epsilon_\gamma, T) = \left[k_0 + (1 - k_0) \frac{\epsilon_\gamma - \epsilon_0}{E_r - \epsilon_0} \right] \Gamma(\epsilon_\gamma, T) \quad (4.65)$$

où ϵ_0 et k_0 sont les paramètres du modèle, obtenus par ajustement à partir de données expérimentales [225]. Pour une température T obtenue à partir d'un modèle de gaz de Fermi (ce qui est le cas dans FIFRELIN), on a alors, pour $\epsilon_0 = 4.5$ MeV :

$$k_0 = \begin{cases} 1 & \text{pour } A < 148 \\ 1 + 0.09(A - 148)^2 \exp(-0.18(A - 148)) & \text{pour } A \geq 148 \end{cases} \quad (4.66)$$

Dans FIFRELIN, le modèle par défaut pour les fonctions de force E1 est le modèle EGLO. Les fonctions de force M1 et E2 sont décrites par des modèles SLO selon la recommandation de RIPL [43].

Pour les multipolarités plus élevées, qui sont beaucoup moins probables, les estimations de Weisskopf définies en (4.59) sont utilisées [183], proportionnellement à la fonction de force E1 :

$$f_{XL}^{SP}(\epsilon_\gamma) = \begin{cases} f_{E1}(\epsilon_\gamma) \times \frac{y_{EL}}{y_{E1}} A^{2(L-1)/3} & \text{pour les transitions électriques} \\ f_{E1}(\epsilon_\gamma) \times \frac{y_{ML}}{y_{E1}} A^{2(L-2)/3} & \text{pour les transitions magnétiques} \end{cases} \quad (4.67)$$

4.2.3.2 Modèles microscopiques

Les modèles phénoménologiques présentés dans la section précédente reposent sur quelques paramètres (E_r , Γ_r et σ_0) qui sont ajustés afin de reproduire les données expérimentales disponibles. Or, pour les fragments de fission, qui sont des noyaux instables riches en neutrons, de telles données expérimentales n'existent pas, et les paramètres sont extrapolés à partir des paramètres de noyaux mieux connus. Afin d'éviter d'avoir recours à ces approximations, une alternative est alors d'estimer les fonctions de force à partir de modèles microscopiques, dont on peut raisonnablement supposer que le pouvoir prédictif est plus fiable [43]. Des fonctions de force E1 obtenues à partir de calculs microscopiques [226] sont disponibles dans la base de données RIPL3 [43].

De nouveaux calculs microscopiques ont récemment été réalisés par Goriely *et al.* afin d'obtenir les fonctions de force d'un nombre important de noyaux pour les transitions E1 et M1 [227–229]. Cette méthode est basée sur la description du noyau par une approche HFB avec l'interaction effective de Gogny D1M [213] (voir Annexe A.3). Cette approche, qui permet de décrire le noyau dans son état fondamental et pour des excitations à quasi-particules indépendantes, est complétée par des calculs QRPA (*Quasiparticle Random Phase Approximation*, voir Annexe A.4) qui permettent de décrire les excitations collectives du noyau (phonons). Ces calculs QRPA font appel à la même interaction effective (D1M), afin de rendre la description du noyau cohérente [227, 228]. Ces calculs, dont les principes sont résumés dans [230, 231], permettent alors d'accéder à la force de la transition : B_{X1}^{QRPA} . La QRPA considère uniquement des excitations à 2 quasi-particules, sans prendre en compte les interactions d'ordre plus élevé, ni les interactions phonons-particules. Il a été observé que ces contributions supplémentaires, qui peuvent être introduites en faisant appel à des modèles plus complexes, provoquent un décalage et un élargissement de la fonction de force. Ainsi, les fonctions de forces ont été convoluées par des lorentziennes afin de prendre en compte ces effets *a posteriori* :

$$\begin{aligned} f_{E1}^{\text{QRPA}}(E) &= \sum_n L(E, \omega_n) B_{E1}^{\text{QRPA}}(\omega_n) & [e^2 \text{fm}^2] \\ f_{M1}^{\text{QRPA}}(E) &= \sum_n L(E, \omega_n) B_{M1}^{\text{QRPA}}(\omega_n) \times f_{\text{corr}} & [\mu_N^2] \end{aligned} \quad (4.68)$$

$$\text{avec } L(E, \omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\Gamma E^2}{(E^2 - (\omega - \Delta)^2 + E^2 \Gamma^2)}$$

où ω_n désignent les énergies des phonons QRPA [227, 228]. Γ et Δ sont respectivement la largeur de la lorentzienne et le décalage en énergie, dont les valeurs sont données dans [229]. Pour les fonctions de force M1, une correction supplémentaire $f_{\text{corr}} = 2$ a été ajoutée afin de mieux reproduire les données expérimentales disponibles [228]. Il convient de noter que ces fonctions de force n'ont pas été calculées pour les noyaux avec A impairs ou N, Z impairs. Dans ce cas, les fonctions de force sont interpolées à partir de celles obtenues pour les noyaux pair-pair adjacents [227].

Les calculs QRPA décrivent une excitation depuis l'état fondamental, et non une désexcitation. Or, comme cela a été précédemment discuté, l'hypothèse de Brink peut présenter des limites pour

$\epsilon_\gamma \rightarrow 0$. Ainsi, une correction phénoménologique est appliquée aux fonctions de force définies en (4.68) :

$$\begin{aligned} f_{E1}(\epsilon_\gamma) &= f_{E1}^{\text{QRPA}}(\epsilon_\gamma) + f_0 \frac{E_i}{1 + \exp(\epsilon_\gamma - \epsilon_0)} \\ f_{M1}(\epsilon_\gamma) &= f_{M1}^{\text{QRPA}}(\epsilon_\gamma) + C \exp(-\eta\epsilon_\gamma) \end{aligned} \quad (4.69)$$

où f_0 , ϵ_0 , C et η sont les paramètres ajustables, dont les valeurs sont discutées dans [229, 232]. E_i désigne l'état initial d'où est émis le photon.

Pendant la thèse, ce modèle D1M+QRPA a été implémenté dans FIFRELIN. Les fonctions de force $f_{E1, M1}^{\text{QRPA}}$ sont lues à partir de données tabulées en énergie. Les corrections à basse énergie présentées en équation (4.69) sont ensuite prises en compte dans le code. La Figure 4.14 illustre la différence entre l'approche phénoménologique décrite en Section 4.2.3.1 et cette approche microscopique, pour le fragment de fission ^{134}Te .

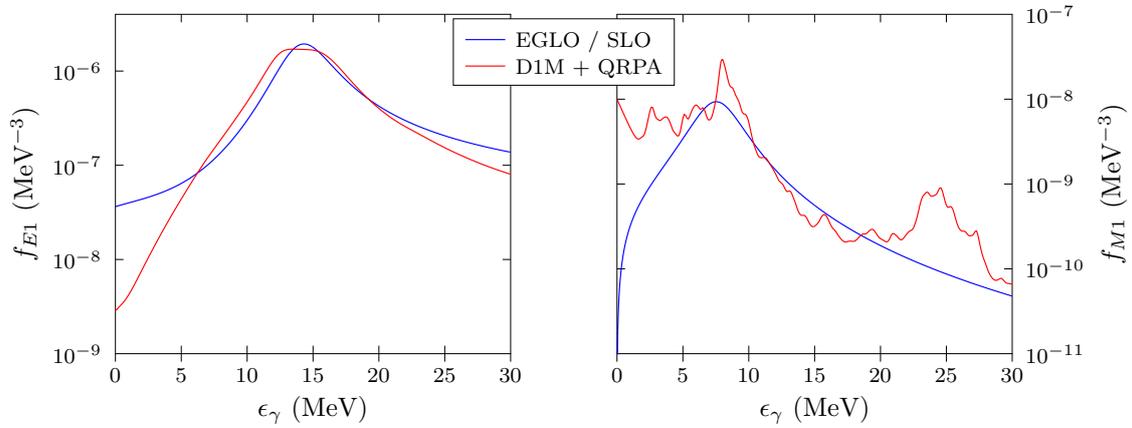


FIGURE 4.14 – Fonctions de force E1 (gauche) et M1 (droite) obtenues avec l'approche recommandée par RIPL3 (EGLO pour E1, SLO pour M1), et à partir des calculs HFB+QRPA avec l'interaction D1M, pour le noyau $^{134}_{52}\text{Te}$.

Conclusion

Les principes généraux du code FIFRELIN ont été présentés dans cette section. En particulier, nous avons vu que les résultats fournis par FIFRELIN reposent sur des données d'entrées externes, plusieurs modèles nucléaires et des paramètres libres déterminés afin de reproduire la multiplicité moyenne des neutrons prompts. Toutes ces contributions doivent être gardées en tête lors des comparaisons entre calculs ou bien lorsque ces calculs sont confrontés à des données expérimentales.

Plusieurs des modèles nucléaires disponibles dans le code FIFRELIN ont également été présentés. Durant cette thèse, je me suis en particulier intéressé à l'ajout de modèles microscopiques dans le code, via les densités de niveaux (HFB+BSk14 et HFB+D1M) et les fonctions de force gamma (D1M+QRPA). Dans le chapitre suivant, les résultats obtenus avec VESPA (Chapitre 3) seront comparés à des calculs effectués avec FIFRELIN, et l'impact des différents modèles nucléaires sur le calcul de ces observables de fission sera analysé. Ces modèles sont listés dans le Tableau 4.2.

TABLEAU 4.2 – Données et modèles nucléaires utilisés dans FIFRELIN dans le cadre de cette thèse.

Données	Modèle / Origine
Rendements pré-neutrons $Y(A, TKE)$	VESPA
Charge nucléaire des fragments (Z)	Modèle Z_p (1988/2000)
Moment angulaire total initial (J)	CST / EDS
Schémas de niveaux nucléaires	RIPL-3-2020
Masses nucléaires	AME-2012
Densités de niveaux nucléaires	CGCM / HFB+BSk14 / HFB+D1M
Coefficients de transmission neutron	Modèle Optique (Koning-Delaroche)
Fonction de force gamma	EGLO(E1)+SLO(M1) / D1M+QRPA(E1,M1)

Résultats obtenus avec FIFRELIN

Sommaire

5.1	Détermination des paramètres libres	107
5.2	Comparaisons de modèles	110
5.2.1	Charge des fragments de fission	110
5.2.2	Moment angulaire total des fragments primaires	110
5.2.3	Densité de niveaux nucléaire	113
5.2.4	Fonction de force γ	115
5.3	Étude des observables de fission	117
5.3.1	Spectres de γ prompts de fission	117
5.3.2	Corrélations FF- γ	122

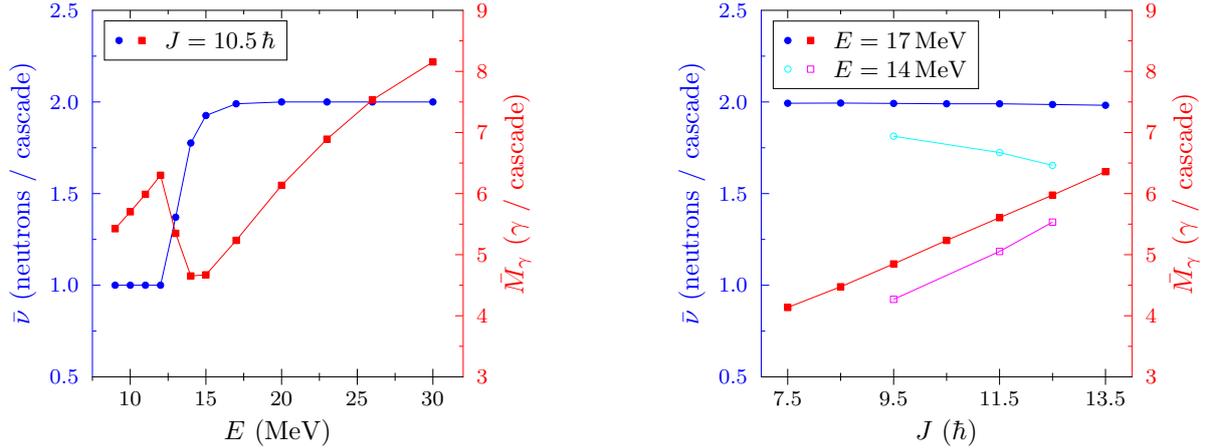
Dans ce dernier chapitre, nous allons présenter les résultats des calculs effectués avec FIFRELIN pour la fission spontanée du ^{252}Cf . Nous montrerons en particulier comment les paramètres libres de la simulation (Section 5.1) et les modèles nucléaires utilisés (Section 5.2) impactent ces résultats. Puis, à partir d'un calcul de référence reproduisant les observables cibles $\bar{\nu}_L$ et $\bar{\nu}_H$, nous confronterons les prédictions de FIFRELIN pour les autres observables de fission aux résultats expérimentaux obtenus avec le dispositif VESPA (Section 5.3).

5.1 Détermination des paramètres libres

La première étape d'un calcul avec FIFRELIN consiste à déterminer les paramètres libres qui permettent de reproduire les observables cibles (multiplicités moyennes des neutrons prompts), comme expliqué en Section 4.1.1.4. Ces paramètres libres sont R_T^{78} , R_T^{132} , k_L et k_H . Les deux premiers agissent sur la répartition de l'énergie d'excitation entre les deux fragments (voir Section 4.1.1.2), et les deux suivants concernent le spin cut-off, et donc le moment angulaire des fragments primaires (voir Section 4.2.1).

Afin de comprendre comment ces paramètres peuvent influencer les multiplicités neutrons et γ , nous pouvons commencer par raisonner sur un cas simple, c'est-à-dire sur la désexcitation d'un noyau unique. La Figure 5.1 représente l'impact de l'énergie d'excitation et du moment angulaire initiaux sur le nombre de neutrons et de γ émis lors de la désexcitation du fragment de fission ^{107}Mo . On remarque alors en Figure 5.1a qu'une augmentation de l'énergie d'excitation se traduit par une augmentation de la multiplicité des γ , excepté lorsque le noyau devient suffisamment excité pour émettre un neutron supplémentaire, diminuant ainsi l'énergie disponible pour l'émission des γ , et donc la multiplicité associée. On observe également en Figure 5.1b que le moment angulaire initial a un impact important sur la multiplicité des γ . Pour les neutrons, l'impact de J devient important quand les neutrons et les γ sont en compétition, c'est-à-dire quand l'énergie du noyau est proche d'une énergie de séparation d'un neutron supplémentaire.

Ces observations constituent un point de départ dans la recherche des paramètres libres pour un calcul avec FIFRELIN. Ainsi, il nous faut agir sur les énergies d'excitation initiales des fragments pour obtenir les multiplicités neutrons voulues (observables cibles). Ce faisant, on s'attend à ce que la valeur du moment angulaire initial impacte fortement la multiplicité des



(a) Multiplicités neutrons/ γ calculées en fonction de l'énergie d'excitation initiale.

(b) Multiplicités neutrons/ γ calculées en fonction du moment angulaire initial.

FIGURE 5.1 – Multiplicités des neutrons et γ émis lors de la désexcitation du ^{107}Mo , d'après FIFRELIN.

γ prompts. Cependant, un calcul de fission est plus complexe à étudier qu'une désexcitation simple. En effet, plusieurs fragments interviennent dans le calcul, et l'énergie d'excitation totale, ainsi que le moment angulaire total du système peuvent varier d'une fission à l'autre. De plus, nous ne pouvons pas directement agir sur l'énergie d'excitation totale des fragments de fission, mais sur l'énergie de rotation E^{rot} d'une part, qui dépend du moment angulaire des fragments (paramètres k_L, k_H), et sur l'énergie d'excitation intrinsèque E^* d'autre part, qui est partagée entre les deux fragments (paramètres R_T^{78}, R_T^{132}). On peut alors écrire :

$$E_H = E_H^{\text{rot}}(J_H) + \left[TXE - E_H^{\text{rot}}(J_H) - E_L^{\text{rot}}(J_L) \right] \times f_H(R_T) \quad (5.1)$$

où l'expression de $f_H(R_T)$ est fournie en équation (4.11). La même équation peut être appliquée aux fragments légers ($f_L(R_T) = 1 - f_H(R_T)$). On peut alors noter que les quatre paramètres libres impactent l'ensemble des fragments.

La Figure 5.2 illustre ainsi la sensibilité des multiplicités à ces paramètres libres, pour un modèle de spin cut-off dépendant de l'énergie ($k_{L,H} = f_{\sigma_{L,H}}$, voir l'équation (4.32)). On remarque que les paramètres R_T produisent des variations opposées de la multiplicité des neutrons pour les fragments lourds et légers. Ce résultat est attendu, dans la mesure où une augmentation de $R_T = T_L/T_H$ signifie que le fragment léger emporte plus d'énergie d'excitation intrinsèque, au détriment du fragment lourd : $\bar{\nu}_L$ augmente et $\bar{\nu}_H$ diminue. L'effet est plus important pour R_T^{132} dans la mesure où la valeur de ce paramètre modifie l'ensemble de la courbe $R_T(A)$, alors que R_T^{78} n'a pas d'impact pour les fragments dont la masse est comprise entre $A = 120$ et $A = 132$ (voir la Figure 4.3). À l'inverse, on observe que les paramètres relatifs au spin cut-off semblent avoir une influence à peu près équivalente sur les deux fragments : une augmentation de ces paramètres se traduit par une diminution de la multiplicité des neutrons.

Pour finir, la Figure 5.3 représente une séquence de calculs FIFRELIN effectués pour déterminer les paramètres libres associés à un fichier d'entrée spécifique, qui définit les rendements pré-neutrons et les modèles nucléaires à utiliser. En effet, ces données d'entrée ont un impact sur les résultats de FIFRELIN, et il est donc nécessaire de déterminer les paramètres libres qui permettent de reproduire les observables cibles à chaque nouveau changement. Pour cela, des calculs plus courts sont effectués, qui offrent un compromis entre rapidité et précision des résultats. Une fois que les paramètres libres ont pu être déterminés, un calcul plus long est alors effectué, afin d'en améliorer la précision statistique. Notons enfin qu'au cours de cette recherche, plusieurs ensembles de paramètres valides peuvent émerger, comme illustré en Figure 5.3, mais il arrive

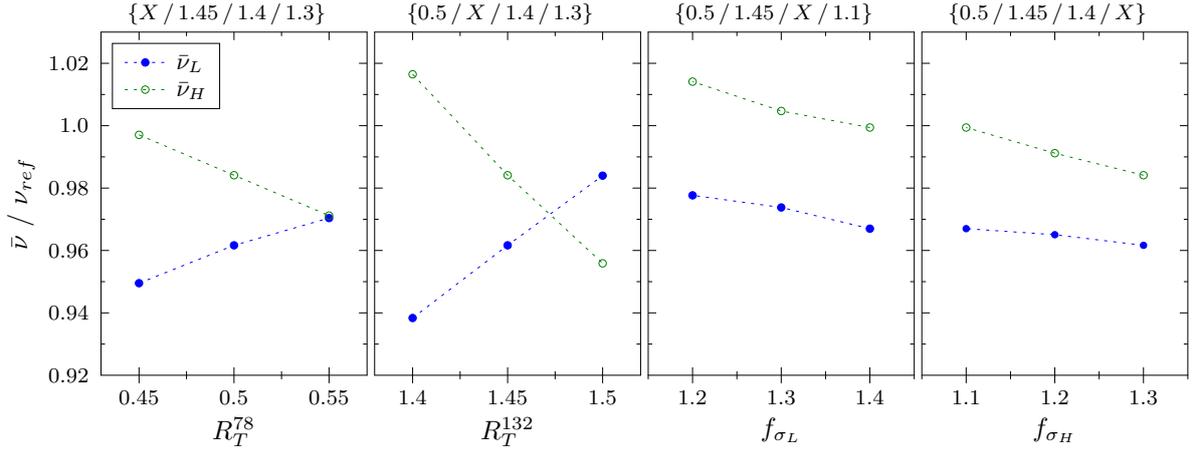


FIGURE 5.2 – Sensibilités individuelles des multiplicités neutrons aux paramètres libres de FIFRELIN. Les paramètres fixés lors des calculs sont indiqués au-dessus de chaque courbe selon : $R_T^{78} / R_T^{132} / f_{\sigma_L} / f_{\sigma_H}$, X désignant le paramètre étudié.

également qu’aucun ensemble satisfaisant n’émerge. Cela a par exemple été le cas avec le modèle microscopique de spin cut-off sans correction (cf Section 4.2.1.3), ce modèle ne possédant alors que deux paramètres libres (R_T^{78} et R_T^{132}).

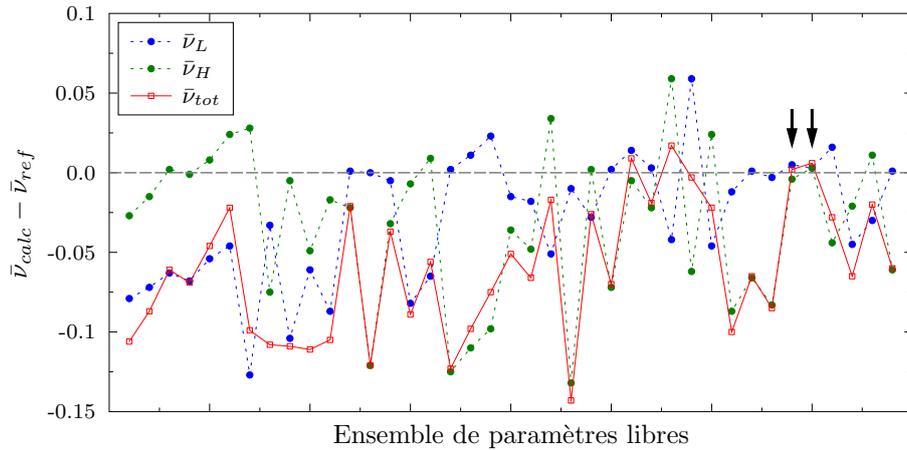


FIGURE 5.3 – Recherche des paramètres libres adaptés à un calcul FIFRELIN spécifique. Chaque colonne correspond à un calcul avec un ensemble de paramètres libres unique. Les calculs valides permettant de reproduire les observables cibles sont indiqués par des flèches épaisses.

Pour conclure, nous avons décrit dans cette section comment les paramètres libres influençaient les résultats obtenus par FIFRELIN. Nous avons également présenté la procédure suivie pour obtenir ces paramètres, afin que les multiplicités moyennes des neutrons prompts, $\bar{\nu}_L$ et $\bar{\nu}_H$ soient correctement reproduites par le calcul. Nous rappelons ici que les observables de références utilisées dans ce travail sont $\bar{\nu}_L = 2.06$ et $\bar{\nu}_H = 1.70$ neutrons pour la fission spontanée du ^{252}Cf , d’après [190].

Au cours des sections suivantes, des calculs FIFRELIN utilisant les différents modèles détaillés dans le Chapitre 4 seront présentés et leurs résultats seront discutés. Compte tenu de ce qui précède, il faut donc garder à l’esprit que des calculs faisant appel à des modèles différents peuvent nécessiter des paramètres libres différents.

5.2 Comparaisons de modèles

Dans cette section, nous allons étudier l'influence des modèles nucléaires (voir le Chapitre 4) sur les observables de fission calculées par FIFRELIN. Nous verrons de plus comment ces modèles peuvent être contraints en comparant les résultats de ces calculs aux différentes données expérimentales disponibles.

5.2.1 Charge des fragments de fission

Pour commencer, nous nous sommes intéressés au modèle Z_p utilisé dans FIFRELIN pour échantillonner la charge nucléaire des fragments de fission (voir Section 4.1.1.1). Comme illustré en Figure 4.2, deux modèles différents sont proposés dans FIFRELIN : le modèle Z_p initial, proposé par Wahl en 1988 [153], que nous noterons ZP1988, et une version revisitée de ce modèle [175], notée ZP2000. Nous avons alors comparé deux calculs en changeant uniquement ce modèle afin d'étudier l'impact de celui-ci sur les observables de fission. Les résultats ainsi obtenus (avec un modèle de spin cut-off EDS et une densité de niveaux HFB14) sont indiqués dans le Tableau 5.1. Notons que des résultats similaires sont obtenus avec d'autres modèles de spin cut-off ou de densité de niveaux. On remarque alors que les observables cibles, ainsi que la charge moyenne des fragments légers (Z_L) sont très peu impactées par un changement du modèle de charge nucléaire.

TABLEAU 5.1 – Paramètres libres et résultats de calculs FIFRELIN réalisés avec les modèles ZP1988 et ZP2000 pour la charge nucléaire des fragments de fission.

Modèle de charge nucléaire	Paramètres libres				Observables		
	R_T^{78}	R_T^{132}	f_{σ_L}	f_{σ_H}	$\bar{\nu}_L$	$\bar{\nu}_H$	$\langle Z_L \rangle$
ZP1988	0.50	1.45	1.4	1.3	2.066	1.700	42.44
ZP2000	0.50	1.45	1.4	1.1	2.061	1.702	42.49

La courbe $\bar{\nu}(A)$ (la *saw-tooth*) correspondant à ces calculs est représentée en Figure 5.4, avec les données expérimentales extraites de [118]. On remarque alors que les deux courbes calculées par FIFRELIN sont très proches, excepté autour de $A = 120$, où les calculs effectués avec le modèle ZP2000 présentent une diminution brusque de la multiplicité des neutrons. Ces courbes présentent toutes deux un accord satisfaisant avec les données expérimentales de Göök. Notons toutefois que le minimum de la saw-tooth expérimentale se situe autour de $A = 130$, alors que les calculs FIFRELIN placent ce minimum à $A = 132$.

Comme le modèle Z_p agit sur les rendements en charge (Figure 5.5), la chaleur moyenne de réaction $\langle Q \rangle(A)$ (voir équation (4.4)) est modifiée par le changement de modèle, comme représenté en Figure 5.6. Or, l'énergie cinétique moyenne étant fixée par les données de VESPA, l'énergie d'excitation des fragments est directement impactée par ce modèle Z_p (voir équation (1.8)). Ainsi, pour A_L compris entre 118 et 125 environ, l'énergie d'excitation des fragments est moins importante avec le modèle ZP2000 qu'avec le modèle ZP1988. Ceci explique donc la diminution importante de $\bar{\nu}(A)$ au voisinage de $A = 120$ avec le modèle ZP2000.

Dans la suite de ce travail, le modèle utilisé pour la distribution en charge des fragments de fission sera le modèle ZP1988.

5.2.2 Moment angulaire total des fragments primaires

Nous allons maintenant étudier l'impact du modèle de spin cut-off pour les fragments de fission primaires (voir Section 4.2.1) sur les observables de fission. Les modèles étudiés ici sont le modèle constant (CST) et le modèle dépendant de l'énergie (EDS). Une telle étude a été menée par Thulliez dans le cadre de son travail de thèse, pour la fission spontanée du ^{252}Cf [64, 205], et pour la fission induite par neutrons du ^{237}Np [233]. Cette étude peut désormais être complétée

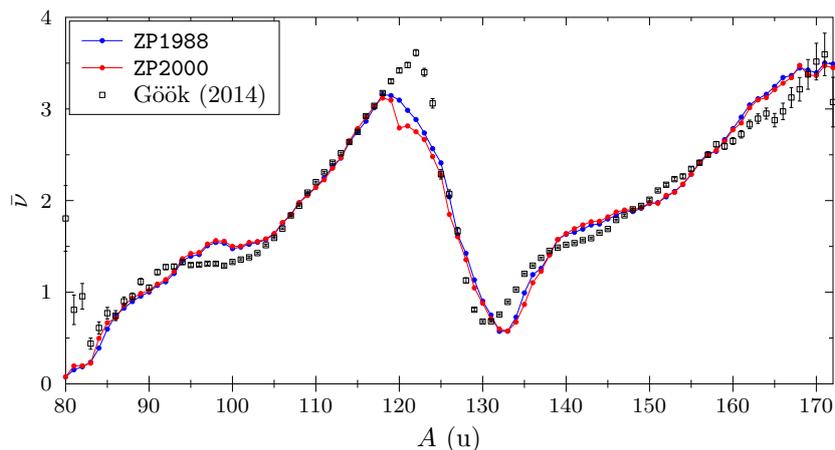


FIGURE 5.4 – Multiplicité moyenne des neutrons prompts en fonction de la masse des fragments, obtenue par FIFRELIN en utilisant les modèles ZP1988 et 2000, comparée aux données expérimentales de Gök [118].

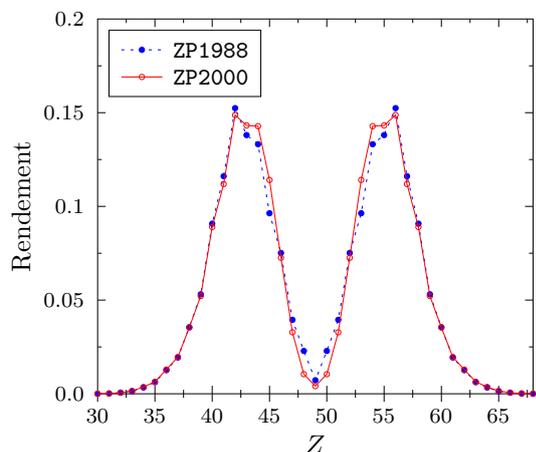


FIGURE 5.5 – Rendement en charge de la fission spontanée du ^{252}Cf calculé avec FIFRELIN, en fonction du modèle Z_p .

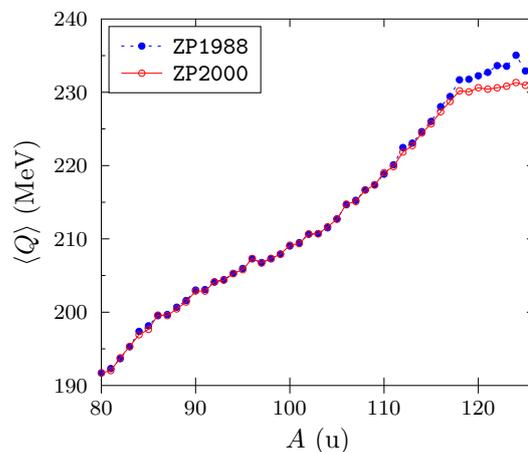


FIGURE 5.6 – Chaleur de réaction moyenne pour la fission spontanée du ^{252}Cf calculée avec FIFRELIN, en fonction du modèle Z_p .

grâce aux nouveaux résultats expérimentaux sur la multiplicité des γ prompts de fission obtenus avec le dispositif VESPA.

Le Tableau 5.2 présente donc les résultats obtenus à partir de quatre calculs, réalisés avec les modèles de spin cut-off constant (CST1) ou dépendant de l'énergie (EDS1, EDS2 et EDS3). Les autres modèles utilisés pour ces calculs sont les modèles macroscopiques de densité de niveaux (CGCM) et de fonction de force gamma (EGLO). Les multiplicités des γ prompts indiquées dans ce tableau sont calculées pour $E_\gamma \geq 80$ keV afin d'être cohérentes avec les données mesurées expérimentalement. De plus, afin de ne pas inclure les isomères, une coupure de temps de 3 ns a également été appliquée pour l'ensemble des calculs.

Les quatre calculs présentés dans le Tableau 5.2 surestiment tous la multiplicité des γ prompts, comparé à la valeur obtenue avec VESPA ($\bar{M}_\gamma = 8.37$ γ /fission entre 80 keV et 8 MeV), bien que les multiplicités neutrons qui sont les observables cibles soient correctement reproduites. On remarque également que pour reproduire $(\bar{M}_\gamma)_L > (\bar{M}_\gamma)_H$ (Tableau 3.6) avec FIFRELIN, il est nécessaire d'utiliser $k_L \geq k_H$. Le fait d'obtenir $\bar{J}_L > \bar{J}_H$ est cohérent avec de récentes études théoriques [234, 235]. Le moment angulaire initial moyen des fragments en fonction de leur masse, pour chacun de ces calculs, est alors représenté en Figure 5.7. Comme attendu, le modèle de spin cut-off constant produit deux plateaux, pour les fragments lourds et légers. Vers $A = 132$, des

TABLEAU 5.2 – Paramètres libres et résultats des calculs FIFRELIN réalisés avec les modèles de spin cut-off constant (CST) et dépendant de l'énergie (EDS). Pour le modèle constant, les paramètres libres k_L et k_H font respectivement référence aux valeurs σ_L et σ_H , voir équation (4.27). Pour le modèle dépendant de l'énergie, il s'agit des facteurs f_{σ_L} et f_{σ_H} de l'équation (4.32).

Modèle de spin cut-off	Paramètres libres				Observables						
	R_T^{78}	R_T^{132}	k_L	k_H	$\bar{\nu}_L$	$\bar{\nu}_H$	\bar{M}_γ	$(\bar{M}_\gamma)_L$	$(\bar{M}_\gamma)_H$	\bar{J}_L	\bar{J}_H
CST1	0.45	1.40	10.5	8.0	2.057	1.696	9.39	5.72	3.67	12.61	9.08
EDS1	0.50	1.40	1.7	1.5	2.062	1.695	9.78	5.37	4.41	12.66	11.82
EDS2	0.50	1.40	1.5	1.7	2.062	1.700	9.76	4.74	5.02	11.11	13.13
EDS3	0.50	1.40	1.6	1.6	2.061	1.697	9.78	5.06	4.72	11.87	12.35

fragments présentent des fermetures de couches, et donc des niveaux discrets à haute énergie, proches notamment de l'énergie d'excitation du fragment. Dans ce cas, le moment angulaire du fragment n'est pas échantillonné à partir de l'équation 4.31, mais correspond directement au moment angulaire du niveau discret correspondant à l'énergie d'excitation du fragment. Dans la Figure 5.7, on remarque que pour les calculs effectués avec un spin cut-off dépendant de l'énergie, la courbe $\bar{J}(A)$ présente une forme en dent de scie, ce qui est cohérent avec les données obtenues par Wilson *et al.* [236]. L'impact des facteurs de correction $f_{\sigma_{L,H}}$ sur cette courbe est bien visible.

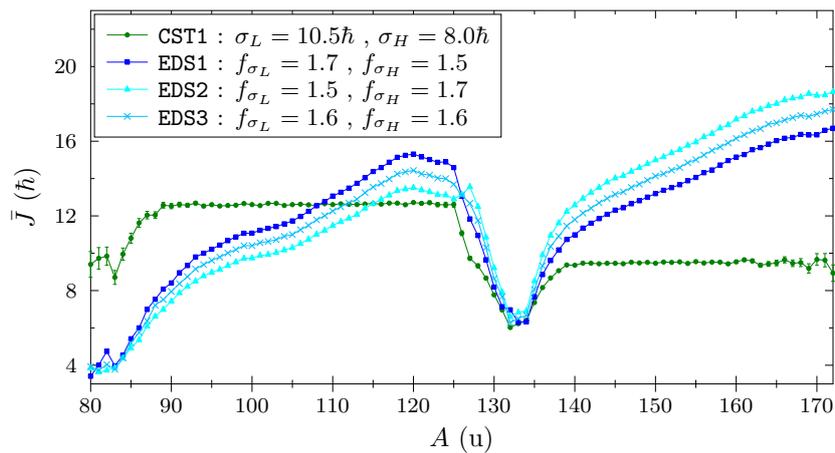


FIGURE 5.7 – Moments angulaires moyens des fragments de fission avant l'émission de particules promptes, calculés avec FIFRELIN à partir de différents modèles de spin cut-off.

Finalement, les courbes de multiplicités neutron et γ correspondant à ces calculs sont représentées en Figure 5.8. Comme évoqué plus tôt, la multiplicité des γ prompts est surestimée par tous les calculs, et les courbes $\bar{M}_\gamma(A)$ ont donc été renormalisées à $8.37 \gamma/\text{fission}$. On observe alors que l'ensemble des calculs génère la même *saw-tooth* pour les neutrons, reproduisant de manière satisfaisante les données de Göök. Néanmoins, les résultats concernant la multiplicité des γ prompts diffèrent grandement en fonction des calculs. D'une part, comme attendu le modèle CST n'est pas adapté pour reproduire nos données expérimentales. D'autre part, le modèle EDS reproduit assez bien l'allure de la courbe $\bar{M}_\gamma(A)$, excepté pour les fragments de masse $A \gtrsim 150$. En particulier, avec le calcul EDS1, pour lequel $f_{\sigma_L} > f_{\sigma_H}$, on observe un très bon accord (après normalisation) entre les résultats de FIFRELIN et les données obtenues avec VESPA, pour $A \leq 130$. Ainsi, le modèle de spin cut-off dépendant de l'énergie avec $f_{\sigma_L} > f_{\sigma_H}$ semble le plus approprié pour reproduire la courbe $\bar{M}_\gamma(A)$.

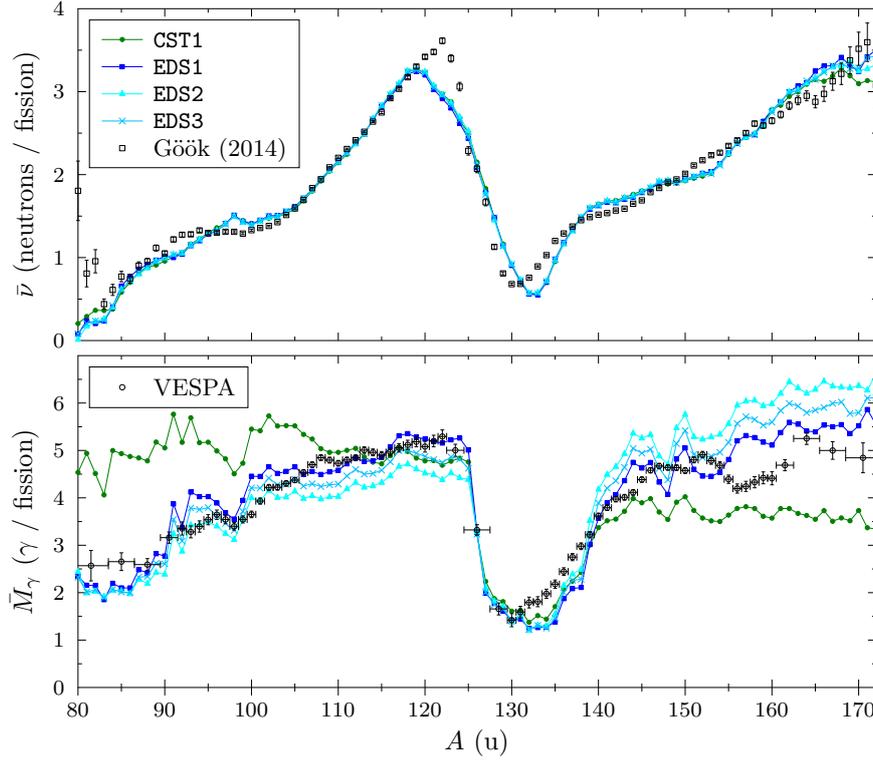


FIGURE 5.8 – Multiplicités moyennes des neutrons et des γ prompts en fonction de la masse des fragments, calculées par FIFRELIN pour différents modèles de spin cut-off primaires. Les multiplicités neutrons sont comparées aux données expérimentales de Göök [118], et les multiplicités γ aux données obtenues avec VESPA. Les calculs de $\bar{M}_\gamma(A)$ sont renormalisés à la valeur expérimentale : $8.37 \gamma/\text{fission}$.

5.2.3 Densité de niveaux nucléaire

Dans cette partie sera étudié l'impact du modèle de densité de niveaux sur les observables de fission. Nous allons ainsi comparer les résultats issus de trois modèles différents : le modèle macroscopique CGCM (Section 4.2.2.3), et le modèle combinatoire microscopique HFB (Section 4.2.2.4), calculé avec les interactions effectives BSk14 (interaction de contact de Skyrme), ou D1M (interaction à portée finie de Gogny). Compte tenu des conclusions de la section précédente, le modèle de spin cut-off utilisé ici est le modèle dépendant de l'énergie, en privilégiant $f_{\sigma_L} > f_{\sigma_H}$. Les fonctions de force gamma phénoménologiques (EGLO) sont appliquées pour l'ensemble des calculs.

Ainsi, le Tableau 5.3 répertorie les résultats obtenus à partir de ces trois modèles. Le calcul nommé CGCM correspond au calcul EDS1 présenté en Section 5.2.2. On constate alors que pour reproduire les observables cibles $\bar{\nu}_L$ et $\bar{\nu}_H$ avec les densités de niveaux microscopiques, il est nécessaire de diminuer les facteurs f_{σ_L} et f_{σ_H} . Par conséquent, les moments angulaires initiaux moyens des fragments de fission sont moins importants, ce qui diminue la multiplicité moyenne des γ prompts (voir par exemple la Figure 5.1b). Ainsi, la multiplicité γ moyenne, surestimée en utilisant le modèle CGCM, devient très proche de la valeur expérimentale avec le modèle HFB+BSk14. Cependant, elle devient largement sous-estimée avec le modèle HFB+D1M, du fait des très faibles valeurs des facteurs f_{σ_L} et f_{σ_H} .

La Figure 5.9 représente les courbes $\bar{\nu}(A)$ et $\bar{M}_\gamma(A)$ obtenues avec FIFRELIN en utilisant ces différents modèles de densité de niveaux, comparées aux données expérimentales. Contrairement à la Figure 5.8, les multiplicités γ ne sont pas renormalisées aux résultats de VESPA, afin de mettre en évidence les différences de multiplicité moyenne entre ces trois calculs. On observe alors de légères différences entre ces trois résultats concernant la *saw-tooth* neutron, notamment

TABLEAU 5.3 – Paramètres libres et résultats de calculs FIFRELIN réalisés pour différents modèles de densité de niveaux nucléaires. La première ligne (CGCM) correspond au cas EDS1 du Tableau 5.2.

Modèle de densité de niveaux	Paramètres libres				Observables						
	R_T^{78}	R_T^{132}	f_{σ_L}	f_{σ_H}	$\bar{\nu}_L$	$\bar{\nu}_H$	\bar{M}_γ	$(\bar{M}_\gamma)_L$	$(\bar{M}_\gamma)_H$	\bar{J}_L	\bar{J}_H
CGCM	0.50	1.40	1.7	1.5	2.062	1.695	9.78	5.37	4.41	12.66	11.82
HFB+BSk14	0.50	1.45	1.4	1.3	2.066	1.700	8.36	4.66	3.70	10.79	10.57
HFB+D1M	0.60	1.45	1.1	1.0	2.070	1.701	7.06	4.04	3.02	8.50	8.02

pour le calcul HFB+D1M, probablement à cause des différences dans les valeurs des paramètres R_T associés. Néanmoins, ces trois calculs restent en accord avec la *saw-tooth* expérimentale, et les observables cibles sont atteintes. Par ailleurs, la Figure 5.9 montre bien la surestimation de la multiplicité des γ prompts par le calcul CGCM, et la sous-estimation par le calcul HFB+D1M. À l'inverse, le calcul HFB+BSk14 reproduit bien les résultats obtenus avec VESPA. On remarque notamment que le changement de densité de niveaux de CGCM vers HFB+BSk14 ne provoque pas un simple décalage de la courbe, mais également une diminution relative de la multiplicité des γ prompts pour les fragments de masse $A \gtrsim 150$, comme observé par Thulliez [64]. Ainsi, le modèle HFB+BSk14 introduit dans cette section reproduit simultanément les multiplicités neutrons et γ , ce qui est un résultat qui n'était pas atteint avec les précédents modèles [237], et constitue donc une avancée importante dans le développement du code FIFRELIN.

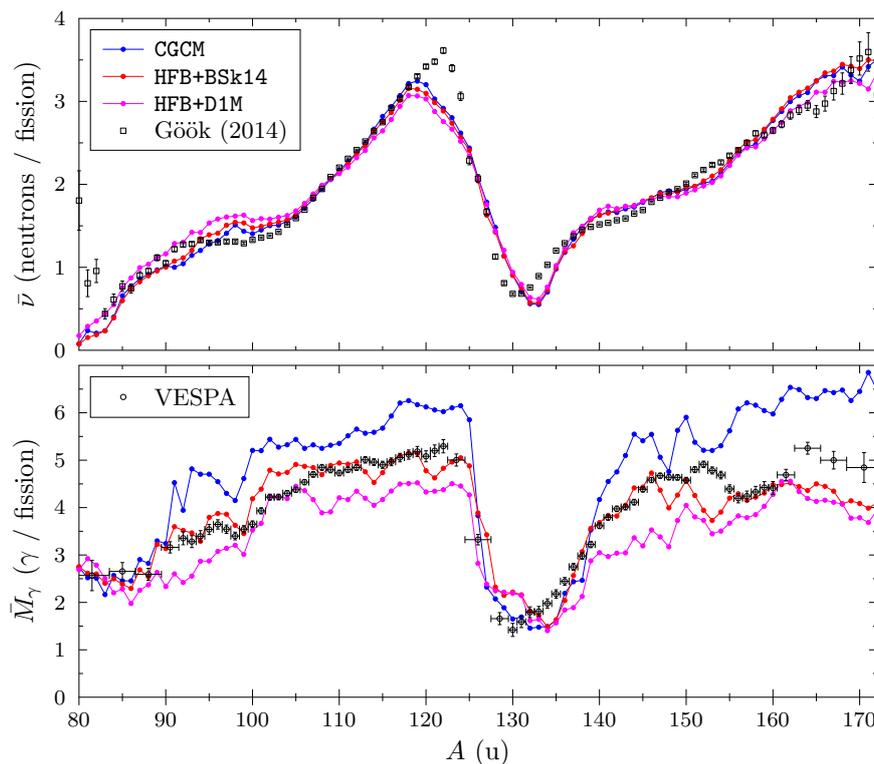


FIGURE 5.9 – Multiplicités moyennes des neutrons et des γ prompts en fonction de la masse des fragments, calculées par FIFRELIN pour différents modèles de densités de niveaux nucléaires. Les multiplicités neutrons sont comparées aux données expérimentales de Gök [118], et les multiplicités γ aux données obtenues avec VESPA. Les calculs de $\bar{M}_\gamma(A)$ ne sont pas renormalisés.

Afin de mieux appréhender l'impact de ces calculs sur l'émission des γ prompts de fission, la Figure 5.10 représente la distribution de la multiplicité gamma $P(M_\gamma)$ calculée avec ces trois modèles. Outre le décalage de la valeur moyenne, on observe également un resserrement des

distributions. En effet, la variance σ_γ^2 associée au calcul CGCM vaut 10.4, et diminue à 8.4 et 7.2 pour les calculs HFB+BSk14 et HFB+D1M, respectivement. Pour ces trois calculs, on observe donc $\bar{M}_\gamma/\sigma_\gamma^2 \simeq 1$, ce qui correspond à des distributions de Poisson. On remarque néanmoins sur cette figure que la distribution obtenue expérimentalement avec le dispositif DANCE [238] est plus large que ce qui est prédit par les calculs de FIFRELIN : $\bar{M}_\gamma/\sigma_\gamma^2 = 1.45$. Un tel résultat peut alors être approché par une distribution binomiale négative [239], plutôt que par une distribution de Poisson.

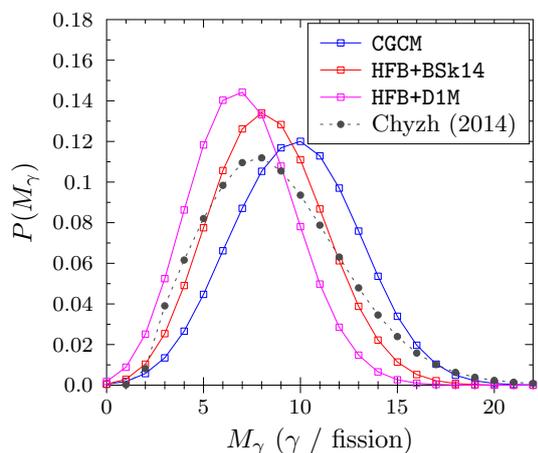


FIGURE 5.10 – Distributions de la multiplicité des γ prompts de fission, calculés avec FIFRELIN à partir de 80 keV.

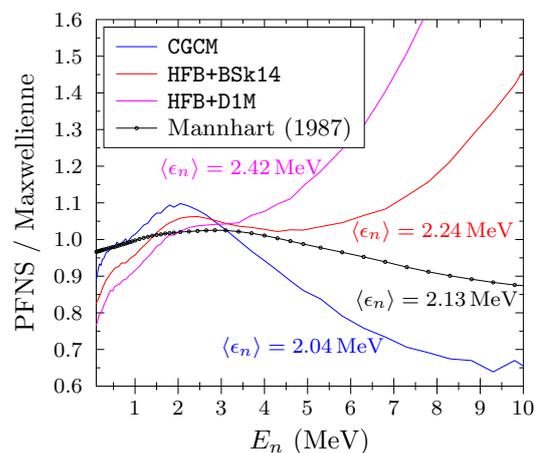


FIGURE 5.11 – Rapport des spectres de neutrons prompts dans le laboratoire sur une Maxwellienne ($T = 1.42$ MeV).

Enfin, la Figure 5.11 représente les rapports des spectres de neutrons prompts de fission (*Prompt Fission Neutron Spectrum*, ou PFNS) sur une Maxwellienne de température $T = 1.42$ MeV ($N(E_n) \propto \sqrt{E_n} \exp(-E_n/T)$). Ces PFNS ont été calculés dans le référentiel du laboratoire avec FIFRELIN, et sont comparés à l'évaluation de Mannhart [137]. On remarque alors que le modèle de densité de niveaux a un impact important sur la forme de ces spectres. En effet, le spectre obtenu avec le modèle CGCM est surestimé entre 1 et 3 MeV environ, et sous-estimé à plus haute énergie. À l'inverse, les densités de niveaux HFB produisent une surestimation du spectre à partir de $E_n \simeq 2$ MeV, et une sous-estimation à basse énergie. Ainsi, les densités de niveaux HFB diminuent la multiplicité moyenne des γ prompts, et produisent un durcissement des PFNS, comme observé par Thulliez [64]. Ces deux effets sont encore plus prononcés avec les densités HFB+D1M.

5.2.4 Fonction de force γ

Pour finir, nous allons étudier l'impact des fonctions de force gamma sur l'émission des γ prompts de fission, en comparant les résultats obtenus avec des fonctions de forces phénoménologiques (EGLO/SLO) et issues de calculs microscopiques (QRPA+D1M). Les résultats obtenus avec ces modèles, calculés avec un modèle de spin cut-off dépendant de l'énergie et une densité de niveaux HFB14, sont indiqués dans le Tableau 5.4. Dans ce tableau, le calcul EGLO correspond au calcul HFB+BSk14 de la section précédente.

On constate que les mêmes paramètres libres peuvent être appliqués aux deux calculs : les multiplicités moyennes des neutrons prompts sont peu sensibles à ce modèle. Pour les γ prompts, on observe une augmentation légère de la multiplicité moyenne, plus importante pour les fragments légers que pour les fragments lourds. Le changement le plus important entre ces deux modèles est la proportion de transitions "théoriques" magnétiques échantillonnées lors du calcul (équation (4.20)), plus importante avec le modèle de fonctions de force microscopiques. Cela peut être dû au fait que la description phénoménologique des fonctions de force M1 par

TABLEAU 5.4 – Paramètres libres et résultats de calculs FIFRELIN réalisés pour différents modèles de fonctions de force gamma. N_γ^{E1} (resp. N_γ^{M1}) désigne le nombre moyen de γ théoriques (i.e. absents de la base de données RIPL-3) issus d’une transition E1 (resp. M1). La première ligne (EGLO) correspond au cas HFB+BSk14 du Tableau 5.3.

Modèle de fonction de force gamma	Paramètres libres				Observables						
	R_T^{78}	R_T^{132}	f_{σ_L}	f_{σ_H}	$\bar{\nu}_L$	$\bar{\nu}_H$	\bar{M}_γ	$(\bar{M}_\gamma)_L$	$(\bar{M}_\gamma)_H$	N_γ^{E1}	N_γ^{M1}
EGLO	0.50	1.45	1.4	1.3	2.066	1.700	8.36	4.66	3.70	2.17	1.00
D1M+QRPA	0.50	1.45	1.4	1.3	2.063	1.701	8.58	4.82	3.76	1.36	2.30

une Lorentzienne ne prend en compte que la partie à haute énergie d’excitation des transitions M1 (mode *spin-flip* décrivant la résonance géante), et néglige les mouvements collectifs à basse énergie des noyaux déformés (mode "ciseaux") [228]. À l’inverse, le modèle D1M+QRPA prend toutes ces contributions en compte, ce qui peut conduire à une fonction de force M1 plus importante, et donc à une proportion accrue de transitions magnétiques lors de la désexcitation des fragments.

Les courbes $\bar{M}_\gamma(A)$ correspondantes sont représentées en Figure 5.12. On note alors que la fonction de force a un impact faible sur la forme de ces courbes. Comme observé dans le Tableau 5.4, l’impact du modèle est plus important pour les fragments légers, sans qu’une dépendance forte à la masse du fragment léger soit visible. À l’inverse, pour les fragments lourds, on observe que les fonctions de force microscopiques provoquent une augmentation de la multiplicité vers 140 u, et une diminution pour $A \gtrsim 155$ u.

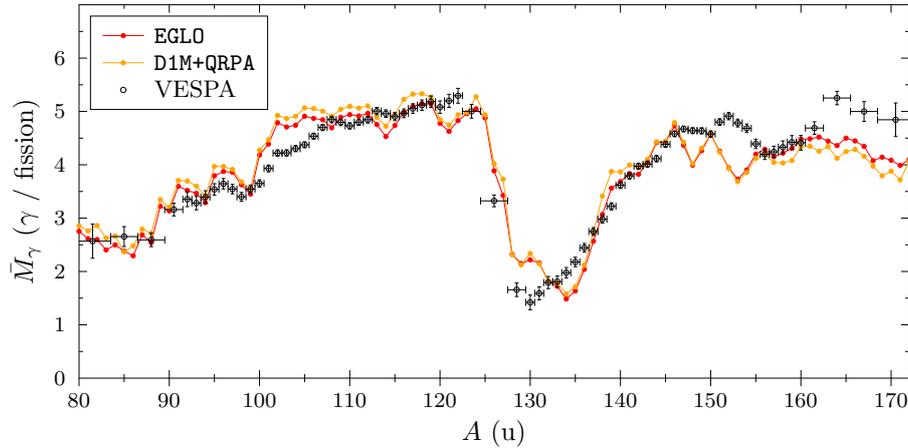


FIGURE 5.12 – Multiplicité moyenne des γ prompts en fonction de la masse des fragments, calculée par FIFRELIN et comparée aux données obtenues avec VESPA.

Il semble donc que les fonctions de force EGLO présentent des résultats légèrement plus fidèles aux données expérimentales $\bar{M}_\gamma(A)$ par rapport aux fonctions de force microscopiques.

Conclusion

Dans cette section, nous avons vu comment les données expérimentales de VESPA sur la multiplicité des γ prompts de fission en fonction de la masse des fragments étaient utilisés pour contraindre les modèles de FIFRELIN. Ainsi, nous avons pu établir que les multiplicités des neutrons $\bar{\nu}(A)$ et des gammas $\bar{M}_\gamma(A)$ pouvaient être simultanément reproduites avec FIFRELIN, en utilisant un modèle de spin cut-off dépendant de l’énergie et une densité de niveaux microscopique HFB+BSk14. Les fonctions de force gamma ont un impact plus limité sur ces résultats, même si le modèle standard macroscopique EGLO semble présenter un meilleur accord.

Ainsi, ces modèles (EDS+HFB14+EGLO) définissent le calcul de référence qui sera utilisé dans la partie suivante pour prédire et interpréter différentes observables de fission avec FIFRELIN.

Notons pour finir que la comparaison entre les données expérimentales et les calculs de FIFRELIN devrait en toute rigueur prendre en compte la résolution expérimentale, en particulier la résolution en masse de la chambre d'ionisation de VESPA. Pour cela, les résultats de VESPA sont convolués par la fonction de résolution en masse, supposée gaussienne de largeur constante $\sigma_A \simeq 2.1$ u (Figure 2.20). Cette convolution a pour principal effet de lisser les courbes obtenues avec FIFRELIN, comme illustré en Figure 5.13. Il est intéressant de noter que cette convolution produit aussi un léger décalage de la position du minimum local des courbes $\bar{\nu}(A)$ et $\bar{M}_\gamma(A)$, qui se rapproche alors de la valeur déterminée expérimentalement. Malgré le bon accord entre les résultats de FIFRELIN et les données expérimentales sur cette figure, on remarque certaines déviations locales. Pour les neutrons, on observe notamment une sous-estimation importante de la multiplicité autour de $A_L \simeq 120$. Pour les γ , on observe une légère surestimation proche de $A_L \simeq 105$, et une sous-estimation plus importante autour de $A_H \simeq 150$. Des oscillations sont présentes dans cette dernière zone, qui sont masquées par la prise en compte de la résolution expérimentale.

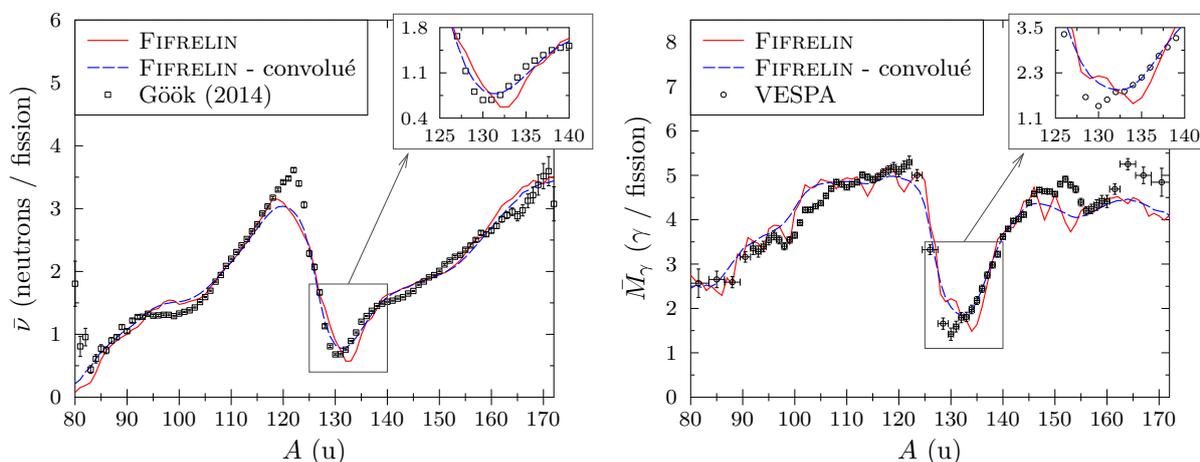


FIGURE 5.13 – Convolution des courbes obtenues avec FIFRELIN par la résolution en masse expérimentale de VESPA, en fonction de la masse pré-neutrons des fragments de fission.

5.3 Étude des observables de fission

Nous avons vu en Section 5.2 que les calculs effectués avec FIFRELIN pouvaient reproduire simultanément les courbes $\bar{\nu}(A)$ et $\bar{M}_\gamma(A)$. Cette première comparaison a servi à définir un calcul de référence (EDS+HFB14+EGLO), à partir duquel peuvent être extraites d'autres observables de fission afin de les confronter aux résultats expérimentaux obtenus avec VESPA. Cette comparaison plus fine, en fonction de l'énergie des γ prompts (Section 5.3.1) ou des caractéristiques des fragments de fission (Section 5.3.2), permettra d'étudier les processus à l'œuvre dans l'émission des γ prompts, et les pistes d'amélioration du code.

5.3.1 Spectres de γ prompts de fission

Spectres d'émission – Pour commencer, nous pouvons comparer les spectres de γ prompts de fission et leurs caractéristiques moyennes, obtenus avec VESPA après déconvolution, aux résultats de FIFRELIN. Ainsi, le Tableau 5.5 compare les caractéristiques des γ prompts mesurées par VESPA et calculées par FIFRELIN. Dans ce tableau, l'incertitude associée aux résultats de FIFRELIN correspond à l'incertitude systématique liée à la méconnaissance du schéma de niveaux (équation (4.26)), largement supérieure à l'incertitude statistique. On observe alors que

la multiplicité moyenne des γ prompts est bien reproduite. Les légers écarts qui apparaissent sur les valeurs de $(\bar{M}_\gamma)_L$ et $(\bar{M}_\gamma)_H$ traduisent les déviations localement observées dans la courbe $\bar{M}_\gamma(A)$ (Figure 5.13). Cependant, l'énergie associée à ces γ ne semble pas correctement reproduite par FIFRELIN. En particulier, les calculs prédisent $(E_{\gamma,tot})_L < (E_{\gamma,tot})_H$, en contradiction avec les mesures de VESPA. Néanmoins, l'énergie totale des γ prompts pour l'ensemble des fragments est relativement bien reproduite.

TABLEAU 5.5 – Multiplicité et énergie totale moyennes des γ prompts de fission mesurées avec VESPA et calculées par FIFRELIN pour $E_\gamma \geq 80$ keV et $t < 3$ ns.

	Multiplicité (γ / fission)			Énergie totale (MeV / fission)		
	Léger (L)	Lourd (H)	Total	Léger (L)	Lourd (H)	Total
VESPA	4.53 ± 0.03	3.83 ± 0.03	8.36 ± 0.02	3.88 ± 0.03	3.01 ± 0.03	6.89 ± 0.02
FIFRELIN	4.66	3.70	8.36 ± 0.08	3.12	3.82	6.94 ± 0.02

Afin d'aller plus loin dans la comparaison entre les résultats de FIFRELIN et les données expérimentales de VESPA, et d'identifier les raisons de l'écart entre les énergies γ moyennes calculées et mesurées, les spectres de γ prompts de fission sont comparés en Figure 5.14.

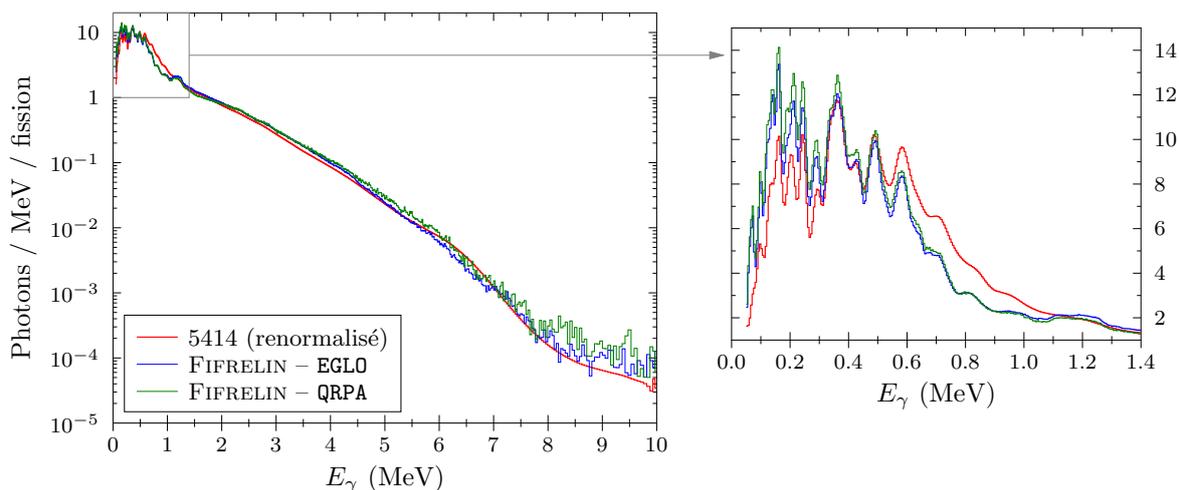


FIGURE 5.14 – Spectres de γ prompts de fission, mesurés avec VESPA (détecteur 5414), et calculés par FIFRELIN (puis convolués par la résolution expérimentale) pour deux modèles de fonction de force gamma. Le spectre expérimental a été renormalisé à la multiplicité moyenne calculée par FIFRELIN ($8.36 \gamma/\text{fission}$).

Dans cette figure, on remarque tout d'abord que la forme du spectre à haute énergie est bien reproduite par les calculs FIFRELIN. On peut toutefois noter une légère surestimation du calcul entre 2 et 5 MeV, puis une légère sous-estimation entre 5 et 7 MeV environ. Des déviations plus importantes sont visibles à basse énergie. En particulier, on observe une importante sous-estimation du spectre γ entre 500 keV et 1.1 MeV. Il est cependant difficile de déterminer les causes de cette différence. Pour aller plus loin, il pourrait par exemple être intéressant d'effectuer cette comparaison pour des spectres obtenus pour des masses ou des énergies d'excitation particulières, mais cela nécessiterait une statistique importante. Nous pouvons également distinguer une structure entre 1.1 et 1.3 MeV environ, présente dans le calcul mais absente des données expérimentales. En étudiant dans le détail les résultats de FIFRELIN, on peut déterminer que cette structure est principalement due à deux raies γ issues de la désexcitation du ^{137}Xe ($E_\gamma = 1.218$ MeV) et de ^{135}I ($E_\gamma = 1.134$ MeV).

Enfin, on remarque en Figure 5.14 que la position des structures à basse énergie ($E_\gamma < 1$ MeV) est bien reproduite par le code, grâce à l'utilisation des niveaux discrets issus de RIPL3 [194].

Cependant, des déviations importantes des intensités associées à ces structures sont visibles entre le calcul FIFRELIN et les mesures de VESPA, indépendamment du modèle de fonction de force gamma utilisé. En effet, on remarque que l'intensité des structures à très basse énergie ($E_\gamma \lesssim 300$ keV) prédite par FIFRELIN est plus importante que ce qui est mesuré expérimentalement. Néanmoins, nous avons vu en Figure 3.10 que les intensités des structures obtenues avec VESPA dans cette zone sont inférieures aux autres mesures de la littérature. Ainsi, nous ne pouvons pas exclure que les déviations observées en Figure 5.14 soient au moins en partie imputables aux données expérimentales. Une source potentielle de ces déviations pourrait être liée à la distribution temporelle des γ prompts. En effet, comme représenté en Figure 5.15, ces γ de basse énergie dépendent fortement de la coupure temporelle appliquée, probablement du fait d'isomères à demi-vie très courte ($t_{1/2} \lesssim 1$ ns). On remarque également que l'influence de la coupure temporelle varie grandement en fonction de l'énergie, ce qui est illustré en Figure 5.16. Nous voyons donc, à partir de ces deux figures, que la distribution temporelle des γ prompts de fission, et que cet impact varie fortement en fonction de l'énergie considérée. Une amélioration possible de l'analyse de données pour VESPA serait donc la prise en compte de ces contributions après quelques nanosecondes. En effet, dans la simulation GEANT4 utilisée dans ce travail, nous avons utilisé une distribution temporelle intégrale $N_\gamma(t)$ des γ prompts jusqu'à $t = 2$ ns, extraite des données de Skarsvåg [130]. Il nous faut cependant garder en tête que la résolution temporelle du dispositif expérimental devient plus importante quand l'énergie diminue (voir Figure 2.8), ce qui peut limiter l'impact d'une telle correction.

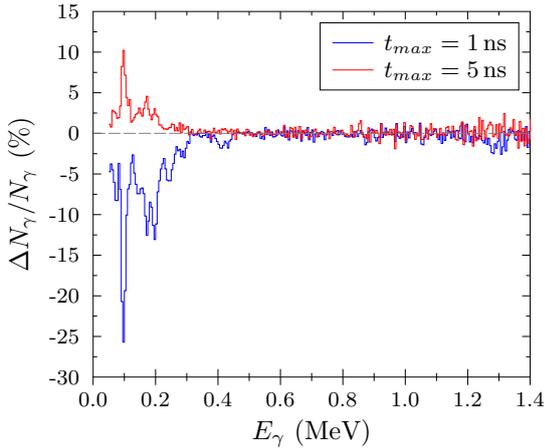


FIGURE 5.15 – Différences relatives des PFGS calculés par FIFRELIN pour différentes coupures en temps, par rapport au spectre de référence ($t_{max} = 3$ ns).

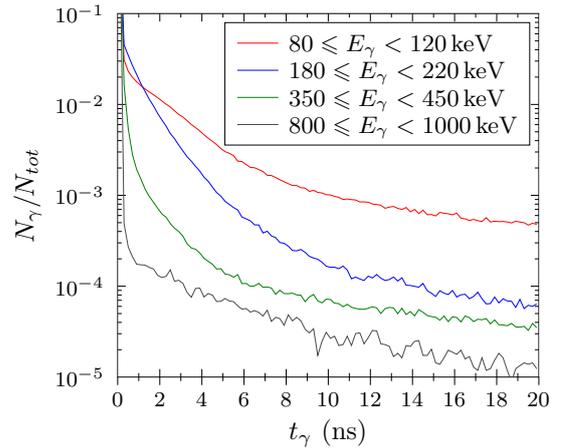
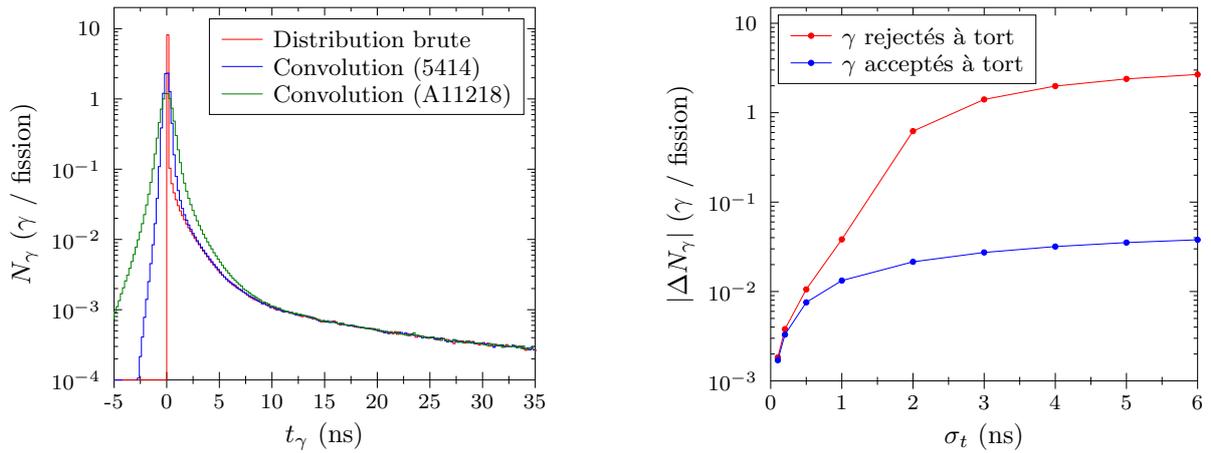


FIGURE 5.16 – Distributions temporelles des γ prompts à différentes énergies, calculées par FIFRELIN. Les courbes sont normalisées à 1 entre 0 et 20 ns.

Enfin, il peut également être nécessaire de prendre en compte la résolution temporelle expérimentale dans l'analyse des résultats calculés par FIFRELIN. La résolution temporelle associée aux scintillateurs LaBr_3 du dispositif VESPA est dépendante de l'énergie, comme représenté en Figure 3.4. La convolution des γ prompts par cette résolution (supposée gaussienne) élargit alors le pic prompt, comme représenté en Figure 5.17a. Dans cette figure, les résolutions temporelles associées aux détecteurs A11218 et 5414 ont été utilisées, la première étant environ deux fois plus importante que la deuxième (Tableau 2.2 et Figure 2.8). La prise en compte de la résolution temporelle va induire deux effets inverses. D'une part, une partie des γ réellement émis avant la coupure ($t_\gamma < 3$ ns) peuvent être détectés en dehors de la fenêtre de coïncidence, et donc être rejetés. D'autre part, des γ émis après 3 ns peuvent être détectés plus tôt du fait de l'élargissement gaussien, et ainsi être acceptés malgré le fait que leur temps d'émission réel se situe après la coupure temporelle. Pour étudier ces deux effets, des résolutions temporelles constantes ont été appliquées aux calculs de FIFRELIN, et les résultats obtenus sont représentés en

Figure 5.17b. Comme attendu, on remarque que ces deux effets sont de plus en plus importants quand la résolution augmente. On observe néanmoins que le nombre de γ rejetés est bien plus important que le nombre de γ additionnels. Cet effet s'explique par la forme de la distribution temporelle des γ prompts de fission : la majeure partie de ces γ sont émis avant la fission ($t < 1$ ns), puis le nombre de γ diminue exponentiellement. Du fait de cette forte asymétrie, les deux effets ne se compensent pas, et une coupure temporelle non adaptée à la résolution des détecteurs peut provoquer une diminution non négligeable de la multiplicité mesurée. Cependant, comme les détecteurs LaBr₃ possèdent une excellente résolution temporelle, l'effet est négligeable. Par exemple, l'application de la résolution $\sigma_t(E_\gamma)$ correspondant aux détecteurs A11218 et 5414 provoque le rejet de 0.064 et 0.009 γ par fission, respectivement.



(a) Distribution temporelle des γ de fission calculée par FIFRELIN et convoluée par la résolution temporelle des détecteurs 5414 et A11218.

(b) Modification de la multiplicité totale des γ de fission en fonction de la résolution temporelle, pour une coupure fixée à 3 ns après la fission.

FIGURE 5.17 – Effets de la prise en compte de la résolution temporelle sur les γ prompts de fission, d'après les calculs FIFRELIN.

Spectres mesurés – Dans la mesure où la déconvolution peut introduire des biais dans les spectres de γ prompts, il peut être intéressant de directement comparer les spectres mesurés par VESPA à des pseudo-mesures. Ces pseudo-mesures consistent en un spectre d'émission (produit par FIFRELIN) introduit dans la simulation GEANT4. Dans le cas de FIFRELIN, il s'agit d'un chaînage simple (et non d'un couplage complet), schématisé en Figure 5.18. Cette méthode est moins complexe à mettre en place qu'un couplage complet, mais implique une simplification du problème (les corrélations sont ignorées, par exemple la dépendance de la multiplicité des γ prompts à la masse des fragments, ou les dépendances temporelles des γ représentées en Figure 5.16).

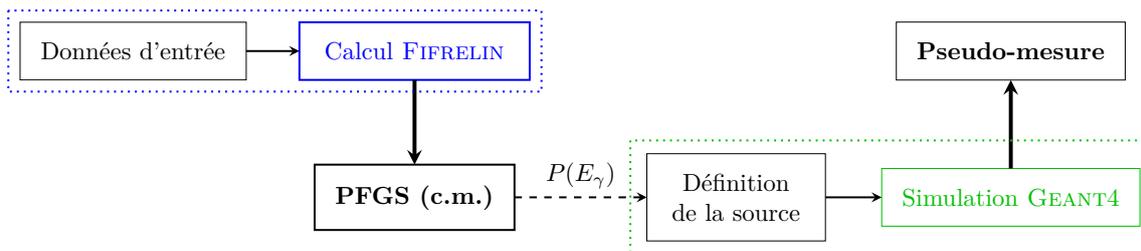


FIGURE 5.18 – Schéma de principe du chaînage entre FIFRELIN et GEANT4 pour la génération de pseudo-mesures pour les spectres de γ prompts.

Les résultats obtenus à l'issue de ces calculs sont représentés en Figure 5.19. Comme l'on pouvait s'y attendre, on observe qu'une partie des différences observées en Figure 5.14 sont également présentes dans cette figure, notamment pour $E_\gamma \gtrsim 5$ MeV, et à basse énergie (entre 500 keV et 1 MeV). Néanmoins, du fait de l'interaction complexe des γ avec l'ensemble du système de détection, des différences sont présentes. En particulier, la structure autour de 1.2 MeV n'apparaît plus dans les pseudo-mesures. Ainsi, il semble que le dispositif, ou du moins la simulation GEANT4 de celui-ci, fasse disparaître cette structure. Ainsi, il n'est pas surprenant que celle-ci soit absente du spectre d'émission, après déconvolution. Enfin, on observe que le spectre mesuré et la pseudo-mesure ne semblent pas présenter de différence majeure pour $E \lesssim 200$ keV. Cette observation n'est pas incohérente avec la sous-estimation observée en Figure 5.14 dans cette zone, dans la mesure où les γ détectés peuvent être issus de photons d'énergie $E_\gamma > E_{det}$ (effet Compton, rétrodiffusion).

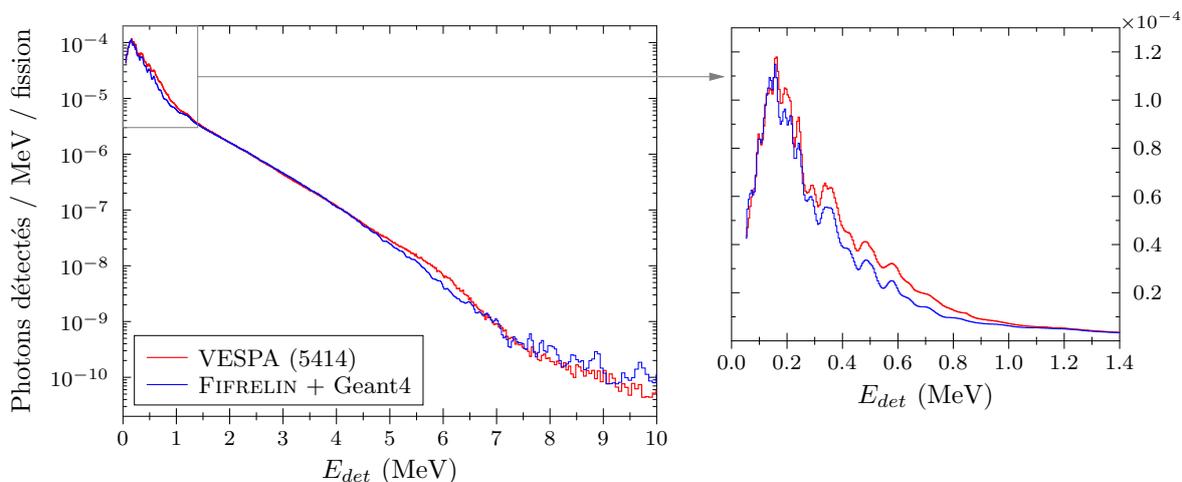


FIGURE 5.19 – Spectre γ mesuré en coïncidence avec les fragments de fission par le détecteur 5414, et pseudo-mesure associée, calculée par le chaînage entre FIFRELIN et GEANT4.

Pour finir, nous pouvons appliquer la procédure de déconvolution à ces pseudo-mesures, afin d'étudier les différences entre le spectre d'émission réel T et le spectre déconvolué S . Les résultats obtenus sont représentés en Figure 5.20.

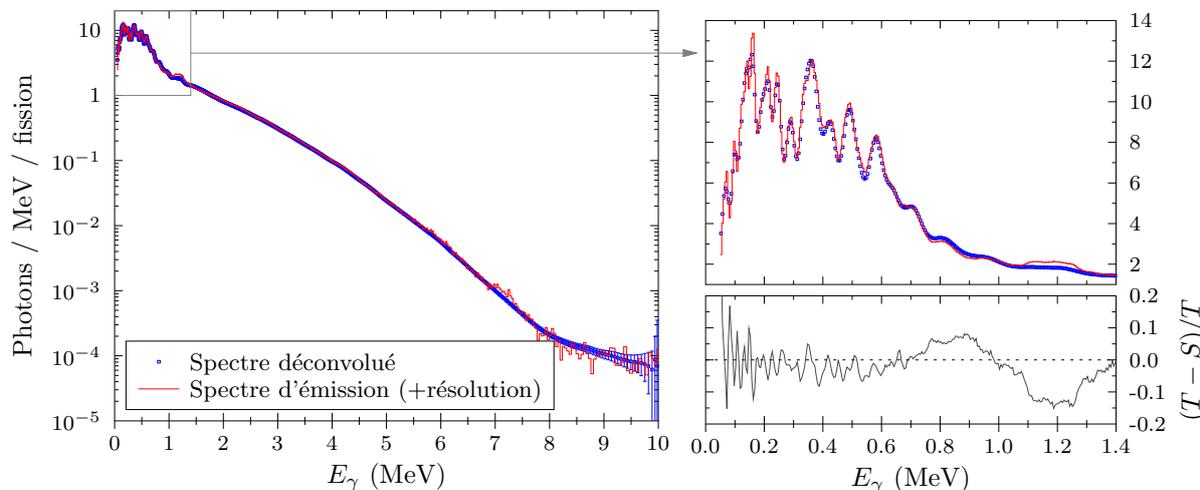


FIGURE 5.20 – Spectre γ obtenu par déconvolution de la pseudo-mesure (FIFRELIN+GEANT4), comparé au spectre d'émission convolué par la fonction de résolution expérimentale.

On remarque tout d'abord que la forme globale du spectre est bien reproduite (structures

à basse énergie et décroissance exponentielle du spectre à haute énergie). Comme attendu, la structure censée être présente autour de 1.2 MeV n'est pas reproduite. Il ne s'agit ici pas d'un biais lié à la déconvolution en tant que telle, mais au dispositif expérimental, comme discuté précédemment. On observe alors une compensation de ce défaut par une légère surestimation du spectre dans la zone d'énergie voisine (autour de 800 keV). Enfin, on constate également que la déconvolution induit des biais aux très basses énergies ($E \lesssim 200$ keV). Ces effets seuls ne suffisent cependant pas à expliquer les écarts observés entre les PFGS mesurés avec le dispositif VESPA et les calculs de FIFRELIN.

5.3.2 Corrélations FF- γ

Dans la section précédente, nous avons étudié la distribution énergétique intégrale des γ prompts de fission, et les différences que l'on pouvait observer entre les mesures réalisées avec VESPA et les calculs FIFRELIN. Afin de comprendre plus en détail les raisons de ces écarts, il est nécessaire de déterminer quelles sont les fragmentations pour lesquelles les prédictions de FIFRELIN ne correspondent pas à la mesure. Ainsi, dans la section suivante, nous allons comparer les prédictions de FIFRELIN aux résultats expérimentaux présentés en Sections 3.3. De plus, FIFRELIN permet d'accéder simultanément à toutes les caractéristiques de la fission (fragments, neutrons, γ ...), ce qui en fait un outil de choix pour mieux comprendre les corrélations observées expérimentalement, et interpréter les résultats.

5.3.2.1 Émission des γ prompts en fonction de la masse

Influence de la coupure en temps – L'émission des γ prompts de fission dépend dans une certaine mesure de la coupure en temps appliquée aux données, à cause des états isomères des fragments de fission [164]. Il est ainsi légitime de se demander si la structure en dent de scie observée pour les γ prompts (Figure 3.7) est liée ou non à cette coupure temporelle. Expérimentalement, il n'est pas possible de faire varier la coupure en temps de manière importante. D'une part, il est nécessaire que les fragments soient encore en mouvement pour pouvoir appliquer la méthode des aberrations Doppler (Annexe B). D'autre part, les γ retardés issus des décroissances β^- deviendraient non négligeables. Néanmoins, nous pouvons utiliser FIFRELIN pour prédire le comportement de $\bar{M}_\gamma(A)$ en fonction du temps relatif à la fission. La Figure 5.21 représente les résultats ainsi obtenus, en appliquant différentes coupures temporelles aux calculs effectués avec FIFRELIN (aucune résolution temporelle n'a été prise en compte dans ces calculs).

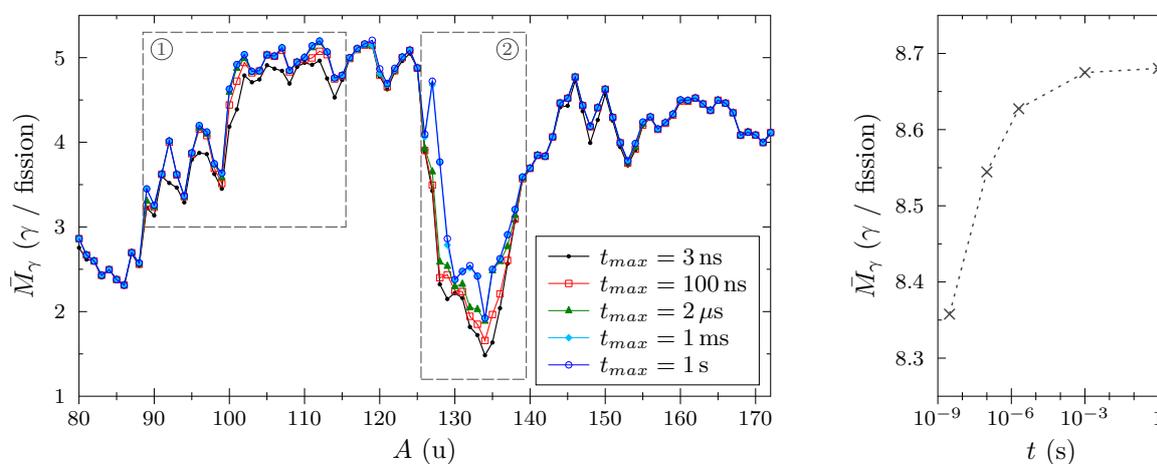


FIGURE 5.21 – Multiplicité des γ prompts de fission calculée avec FIFRELIN pour différentes coupures temporelles. Les zones encadrées (1) et (2) correspondent aux régions les plus impactées par l'élargissement de la fenêtre temporelle (voir texte).

On peut alors distinguer deux zones dans cette figure pour lesquelles l'émission des γ prompts dépend sensiblement de la coupure temporelle. La première zone concerne les fragments légers, de masse pré-neutron comprise entre $A_L \simeq 89$ et $A_L \simeq 115$ u environ. Ceux-ci semblent surtout comporter des isomères de demi-vie courte (de l'ordre de plusieurs nanosecondes), car leur multiplicité γ augmente peu après 100 ns. La seconde zone contient les fragments lourds proches de la symétrie ($A_H \lesssim 137$), qui forment le creux de la distribution. Ces fragments sont les plus fortement impactés par la coupure en temps, jusqu'à 1 ms : des états isomères à vie plus longue sont donc présents (comme dans le ^{132}Sn par exemple). Néanmoins, ces différentes coupures temporelles ne modifient pas l'allure générale de la courbe $\bar{M}_\gamma(A)$.

Énergie totale des γ prompts de fission – La courbe de la multiplicité des γ prompts en fonction de la masse des fragments a été utilisée en Section 5.2 afin de contraindre les modèles nucléaires de FIFRELIN. L'énergie totale des γ prompts en fonction de la masse des fragments a également pu être obtenue à partir du dispositif VESPA en utilisant la même méthode des aberrations Doppler (voir Section 3.3.2). Une comparaison entre ces résultats expérimentaux et ceux calculés par FIFRELIN est alors proposée en Figure 5.22, afin de mieux comprendre les déviations constatées sur les spectres de γ prompts de fission. Nous avons par ailleurs pu remarquer dans le Tableau 5.5 que FIFRELIN sous-estime l'énergie totale associée aux fragments légers et surestime celle des fragments lourds, par rapport aux mesures effectuées avec le dispositif VESPA.

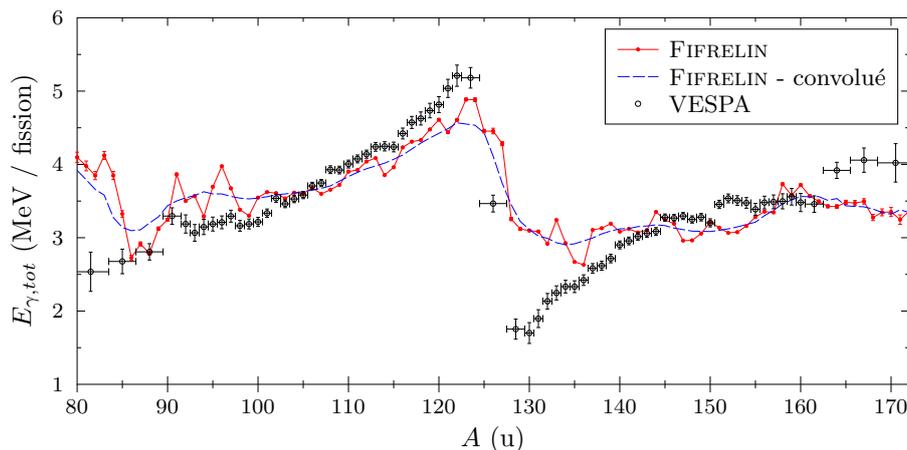


FIGURE 5.22 – Énergie totale des γ prompts de fission en fonction de la masse des fragments, calculée par FIFRELIN et comparée aux données obtenues expérimentalement avec le dispositif VESPA.

On remarque alors que les calculs effectués avec FIFRELIN surestiment grandement l'énergie totale emportée par les γ prompts pour les fragments de masse pré-neutron comprise entre 125 et 145 u. Cette énergie dépend de quatre paramètres : l'énergie d'excitation initiale du fragment (E_{FF} , donnée par l'équation (5.1)), l'énergie totale emportée par les neutrons ($E_{n,tot}$) et les électrons de conversion ($E_{e,tot}$), et l'énergie résiduelle de l'état final ($E_{res} \neq 0$ si un état isomère est atteint) :

$$E_{\gamma,tot} = E_{FF} - E_{n,tot} - E_{e,tot} - E_{res} \quad (5.2)$$

Ces différentes contributions calculées dans FIFRELIN sont représentées en Figure 5.23, à l'exception de l'énergie des électrons de conversion qui est négligeable ($E_{e,tot} < 200$ keV). On remarque alors que l'énergie résiduelle des fragments est généralement négligeable, excepté au voisinage de $A = 130$ (à cause des états isomères mentionnés dans le paragraphe précédent), et que la majeure partie de l'énergie d'excitation est emportée par les neutrons prompts. L'énergie totale

des neutrons peut s'exprimer sous la forme :

$$E_{n,tot} \simeq \bar{\nu} \times (\langle \epsilon_n \rangle + \langle S_n \rangle) \quad (5.3)$$

L'énergie moyenne du neutron dans le centre de masse $\langle \epsilon_n \rangle$ peut être estimée expérimentalement. Ainsi, les résultats de FIFRELIN sont comparés aux données expérimentales de Göök en Figure 5.24. On remarque alors que dans le voisinage de $A = 130$, l'énergie moyenne des neutrons est sous-estimée. De plus, la courbe présente une structure vers $A = 135$, ce qui correspond également à une diminution locale de $E_{\gamma,tot}$ en Figure 5.22. Il semble ainsi que la surestimation de l'énergie emportée par les rayons γ autour de la masse pré-neutron $A \sim 130$ puisse en partie s'expliquer par une sous-estimation de l'énergie des neutrons préalablement émis par ces fragments. Cette explication pourrait également s'appliquer pour les fragments légers tels que $A \leq 100$. Cependant, ce raisonnement présente certaines limites, notamment pour les fragments proches de la masse 120, où l'énergie des neutrons est grandement surestimée, alors que la sous-estimation de l'énergie totale des γ est plus légère. Il est possible que dans ce cas, la sous-estimation de la multiplicité des neutrons prompts par FIFRELIN (voir Figure 5.9), soit à l'origine d'une compensation dans l'énergie totale emportée par les neutrons (équation (5.3)). Il semble donc que dans cette zone la répartition de l'énergie d'excitation totale puisse être améliorée. Cela pourrait par exemple passer par une modification de la relation $R_T(A)$.

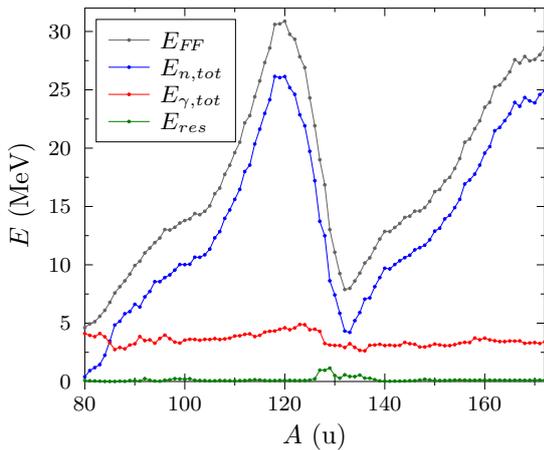


FIGURE 5.23 – Décomposition de l'énergie d'excitation des fragments de fission dans FIFRELIN, en fonction de la masse pré-neutron.

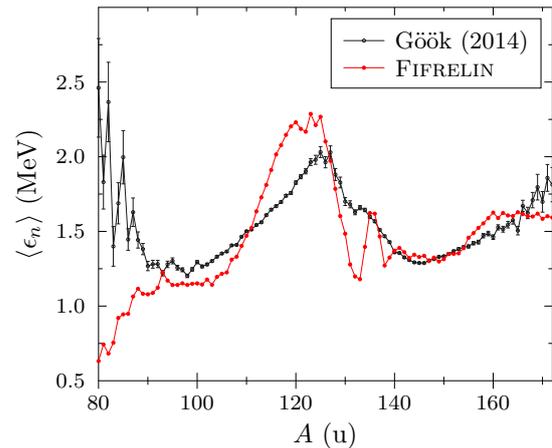


FIGURE 5.24 – Énergie moyenne des neutrons prompts dans le centre de masse, obtenue par Göök [118], et calculée par FIFRELIN.

Fragments post-neutrons – Jusqu'à présent, la variation de l'émission γ en fonction de la masse pré-neutron a été présentée, sous la forme des courbes $\bar{M}_\gamma(A)$ et $E_{\gamma,tot}(A)$. Cependant, les γ prompts de fission sont majoritairement émis après les neutrons prompts, et sont par conséquent issus des fragments de fission post-neutrons. Ainsi, la Figure 5.25 représente les courbes $\bar{M}_\gamma(A_{post})$ et $E_{\gamma,tot}(A_{post})$ calculées par FIFRELIN. Dans cette figure, comme la multiplicité et l'énergie totale des γ sont directement exprimées en fonction de la masse du fragment émetteur, d'importantes fluctuations apparaissent, liées aux effets de structure des noyaux. Néanmoins, l'aspect général des courbes reste similaire pré- et post-neutrons.

5.3.2.2 Émission des γ prompts en fonction du TKE

Nous avons vu au cours des sections précédentes que la courbe $\bar{M}_\gamma(A)$ obtenue avec VESPA pouvait être reproduite par FIFRELIN, les écarts qui existaient entre nos mesures et ces calculs concernant $E_{\gamma,tot}(A)$ ont été discutés. Nous allons maintenant comparer les mesures effectuées avec VESPA de la multiplicité et l'énergie totale des γ prompts en fonction du TKE, aux calculs

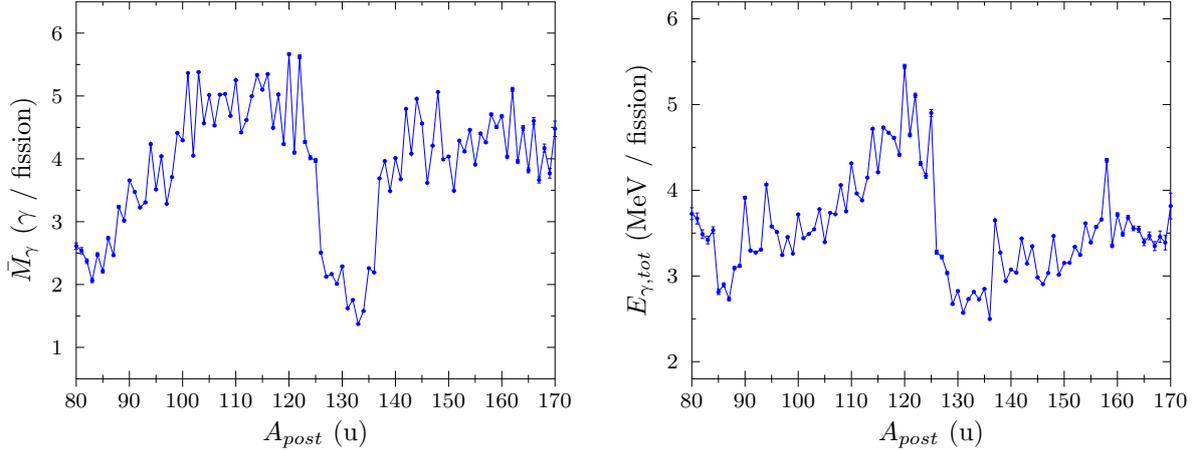
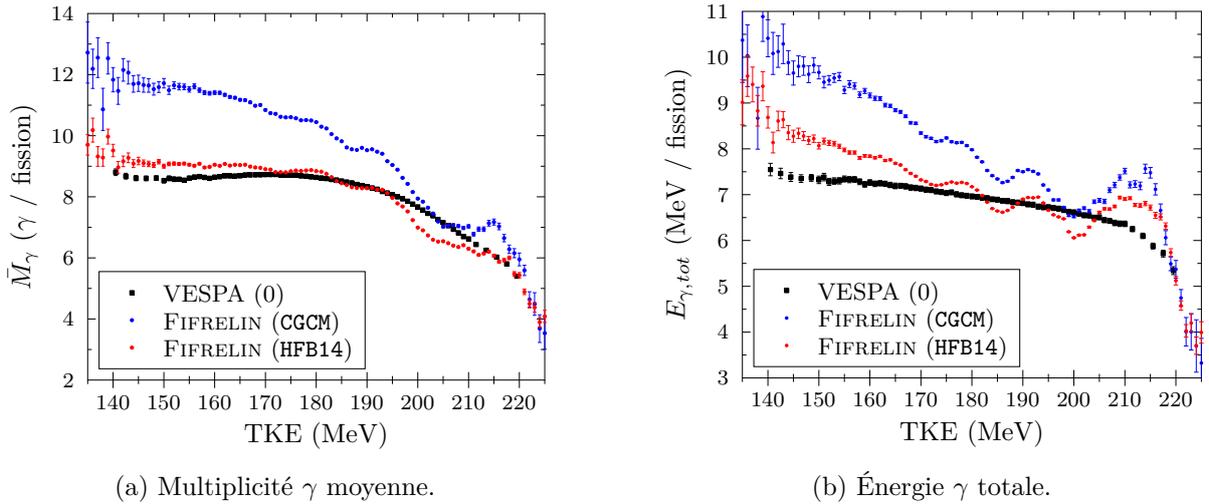


FIGURE 5.25 – Multiplicité et énergie totale des γ prompts de fission en fonction de la masse post-neutron des fragments, calculées par FIFRELIN(non convolué).

FIFRELIN, afin de déterminer si ces observables sont correctement prédites par le code. Ainsi, la comparaison entre les données expérimentales et les prédictions de FIFRELIN (pour deux modèles de densité de niveaux) est présentée en Figure 5.26.



(a) Multiplicité γ moyenne.

(b) Énergie γ totale.

FIGURE 5.26 – Multiplicité et énergie totale des γ prompts en fonction de l'énergie cinétique totale des fragments, calculées par FIFRELIN et comparées aux données expérimentales obtenues avec le dispositif VESPA (issues du détecteur A11218, et normalisées à $\bar{M}_\gamma = 8.37$).

On remarque ainsi en Figure 5.26a que l'utilisation de densités de niveaux microscopiques permet de mieux reproduire les données expérimentales, du fait de la diminution de la multiplicité moyenne totale et d'une légère diminution de la pente pour les faibles TKE. On note toutefois une légère surestimation de la multiplicité pour $TKE \lesssim 185$ MeV. Cette surestimation est par ailleurs compensée par une diminution locale de la multiplicité γ autour de 200 MeV. Un autre minimum local, d'intensité beaucoup plus réduite, est également visible autour de 185 MeV. À l'exception de ces structures locales, l'allure générale de $\bar{M}_\gamma(TKE)$ est plutôt bien reproduite par FIFRELIN. À l'inverse, d'importantes déviations entre les calculs FIFRELIN et les mesures de VESPA sont observées en Figure 5.26b pour $E_{\gamma, \text{tot}}(TKE)$, quel que soit le modèle de densité de niveaux utilisé. D'une part, la pente $\Delta E_{\gamma, \text{tot}} / \Delta TKE$ entre 140 et 200 MeV est surestimée par le calcul. D'autre part, le calcul génère des structures oscillatoires importantes dans la courbe $E_{\gamma, \text{tot}}(TKE)$, qui ne sont pas présentes dans les mesures. Les creux de ces oscillations se situent aux mêmes énergies que les creux observés dans la courbe $\bar{M}_\gamma(TKE)$, mais leurs intensités semblent amplifiées. Cette

similarité est parfaitement compréhensible, dans la mesure où la multiplicité et l'énergie totale sont liées par la relation (3.7) : $E_{\gamma,tot} = \bar{M}_{\gamma} \times \varepsilon_{\gamma}$. La surestimation de l'énergie γ totale pour $TKE > 200$ MeV correspond probablement à la surestimation de l'énergie γ totale observée autour de la masse 130 (Figure 5.22). En effet, comme on peut le voir en Figure 3.1c, les TKE élevés correspondent à des fragmentations proches de la symétrie ($110 \lesssim A \lesssim 140$). Comme discuté plus tôt, une cause potentielle de cette surestimation de l'énergie γ pourrait être une sous-estimation de l'énergie des neutrons prompts.

Pour aller plus loin dans l'analyse, nous avons extrait les courbes $\bar{M}_{\gamma}(TKE)_{L,H}$ des calculs FIFRELIN et les avons comparées aux mesures effectuées avec le dispositif VESPA en Figure 5.27. On remarque tout d'abord que les résultats de FIFRELIN sont en très bon accord avec les mesures de VESPA, pour les fragments lourds aussi bien que légers. Les déviations calcul/mesure relevées précédemment sont également présentes dans ces courbes, et on peut alors noter que celles-ci n'ont *a priori* pas la même origine. Ainsi, la surestimation aux basses énergies cinétiques semble provenir des fragments légers, tandis que les creux observés à 185 et 210 MeV semblent liés aux fragments lourds.

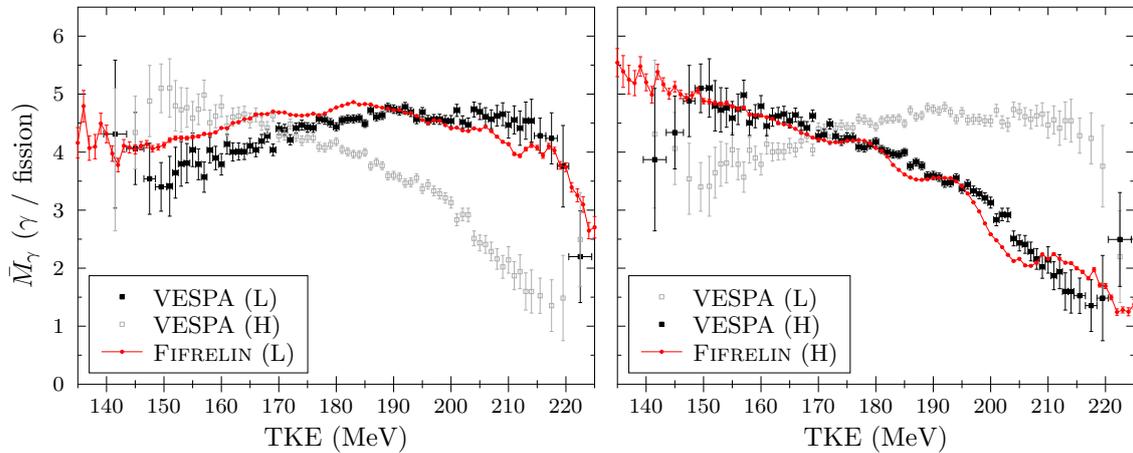


FIGURE 5.27 – Multiplicité des γ prompts en fonction du TKE pour les fragments légers (L) et lourds (H), calculées par FIFRELIN et comparées aux données expérimentales obtenues avec le dispositif VESPA.

Comme évoqué en Section 3.3.2, l'allure différente des courbes $\bar{M}_{\gamma}(TKE)$ et $\bar{\nu}(TKE)$ pour les fragments légers et lourds provient de la répartition de l'énergie entre les fragments de fission. Dans FIFRELIN, ce mécanisme est régi par la relation du rapport de température $R_T(A)$ (voir Section 4.1.1.2). Dans la mesure où la masse des fragments et l'énergie cinétique totale sont corrélées (Figure 3.1c), le rapport de température R_T varie en fonction du TKE, comme représenté en Figure 5.28. On remarque ainsi que R_T augmente presque linéairement entre 150 et 210 MeV. Comme on peut l'observer sur cette figure, cette augmentation de R_T se traduit par une diminution de la température avec le TKE (qui correspond à une augmentation avec le TXE) plus importante pour les fragments lourds que pour les fragments légers. Par conséquent, dans FIFRELIN, l'énergie d'excitation initiale des fragments lourds (équation (5.1)) diminue plus rapidement que celle des fragments légers en fonction du TKE, comme représenté en Figure 5.29. Ceci explique pourquoi les multiplicités des neutrons et des γ prompts n'évoluent pas de la même manière en fonction du TKE selon qu'il s'agit des fragments lourds ou des fragments légers.

En étudiant plus en détail la multiplicité des neutrons prompts en fonction du TKE calculée par FIFRELIN, nous avons remarqué que les structures visibles dans la courbe $\bar{M}_{\gamma}(TKE)_H$ étaient également présentes pour la multiplicité des neutrons, comme illustré en Figure 5.30. Ces structures, par ailleurs également observées dans [240], sont liées à l'ouverture d'une voie neutron supplémentaire et sont donc localisées au niveau des énergies moyennes de séparation de neutrons $\langle S_n \rangle$, $\langle S_{2n} \rangle$, etc. Les augmentations locales de $\bar{\nu}_H$ seraient alors responsables de diminutions

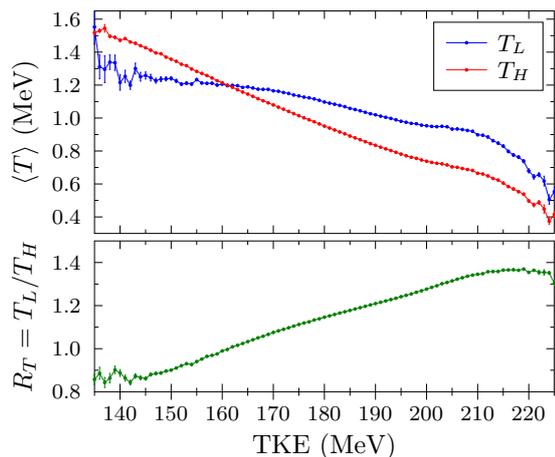


FIGURE 5.28 – Évolution de la température moyenne des fragments de fission légers (L) et lourds (H) en fonction du TKE.

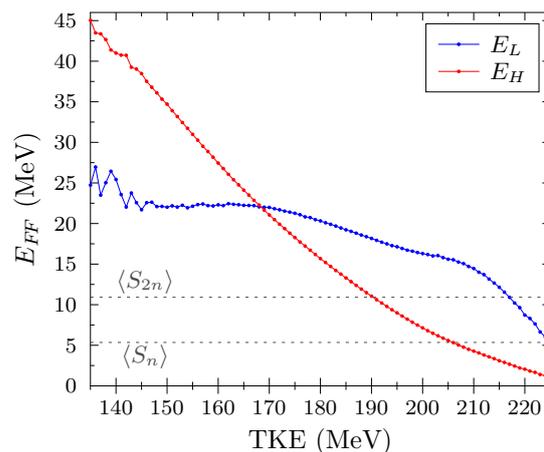


FIGURE 5.29 – Évolution de l'énergie d'excitation moyenne des fragments de fission légers et lourds, en fonction du TKE.

de la multiplicité moyenne des γ aux énergies cinétiques correspondantes (Figure 5.27). Cette hypothèse est appuyée par le fait que ces énergies cinétiques correspondent bien à des énergies d'excitation des fragments proches des énergies de séparation des neutrons, comme indiqué en Figure 5.29, et est cohérente avec les observations réalisées dans le cadre de la désexcitation d'un noyau unique (Figure 5.1a).

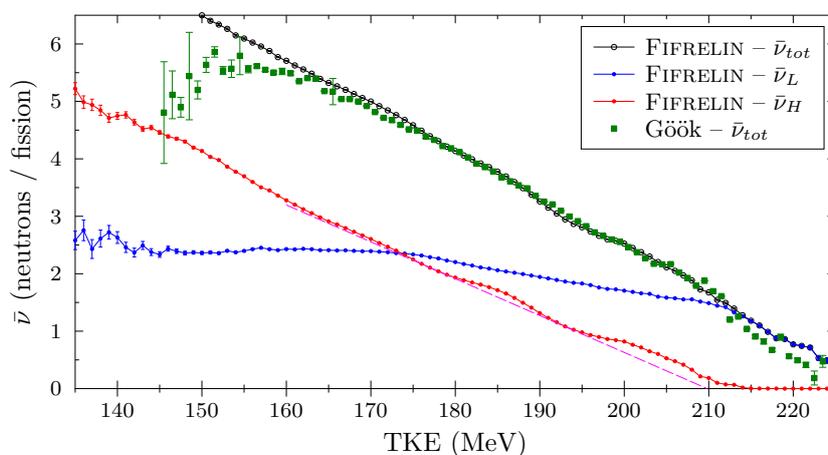


FIGURE 5.30 – Multiplicité des neutrons prompts en fonction du TKE, calculée par FIFRELIN et comparée aux données de Göök [118]. L'inverse de la pente, i.e. $(\partial\bar{\nu}_{tot}/\partial TKE)^{-1}$ vaut -12.02 MeV/n d'après les calculs FIFRELIN, et -12.6 ± 0.2 MeV/n d'après les données expérimentales de Göök. Ces valeurs sont cohérentes avec d'autres résultats présentés dans la littérature (voir [241] par exemple).

Enfin, nous avons pu remarquer que ces effets locaux dus à la diminution de la multiplicité des neutrons prompts dans le calcul ne semblent pas affecter uniformément toutes les transitions. Pour illustrer cet effet, la proportion de transitions expérimentales (i.e. extraites de RIPL3) et théoriques (i.e. calculées à partir des fonctions de force gamma du modèle EGL0) est ainsi représentée en Figure 5.31, pour les fragments lourds. On remarque alors que cette diminution de l'énergie d'excitation disponible pour la cascade γ se répercute sur les transitions théoriques. En effet, à l'issue de la cascade γ , les fragments post-neutrons sont toujours fortement excités, sur un niveau théorique absent du schéma de niveaux ($E > E_{cut-off}$). Les niveaux discrets doivent donc être atteints par des transitions théoriques, échantillonnées à partir de l'équation (4.20). Or,

ces transitions sont majoritairement des transitions dipolaires E1 et M1 (dont la proportion varie selon le modèle de fonction de force, voir Tableau 5.4), comme prévu par la théorie (voir par exemple les estimations de Weisskopf indiquées dans le Tableau 4.1). À l'inverse, de nombreuses transitions E2 sont disponibles dans la base de données RIPL3, mesurées par exemple le long de la ligne Yrast pour les noyaux pair-pair. Cette différence s'explique notamment par le fait que les fonctions de force E2 sont peu connues. Seul le modèle phénoménologique de RIPL1 (ou les estimations de Weisskopf) est disponible à l'heure actuelle, et présente certaines limites (voir par exemple [242]). Quoiqu'il en soit, les oscillations sont majoritairement présentes sur les transitions dipolaires, ce qui fait donc varier la multipolarité moyenne des γ prompts en fonction du TKE, comme illustré en Figure 5.32. Il serait en théorie possible de déterminer la multipolarité des transitions à partir de l'anisotropie de l'émission des γ prompts [243, 244], mais l'interprétation rigoureuse de telles anisotropies dans le cadre de la fission nécessite des calculs complexes, en cours de développement dans FIFRELIN [245].

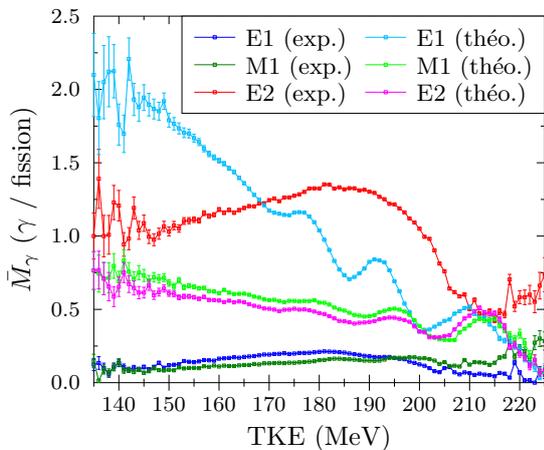


FIGURE 5.31 – Décomposition de la multiplicité des γ prompts issus des fragments lourds, selon la nature des transitions (E1,M1,E2), théoriques (théo.) et expérimentales (exp.), échantillonnées par FIFRELIN.

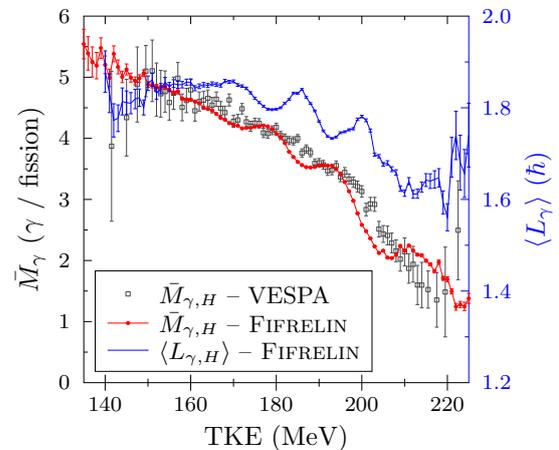
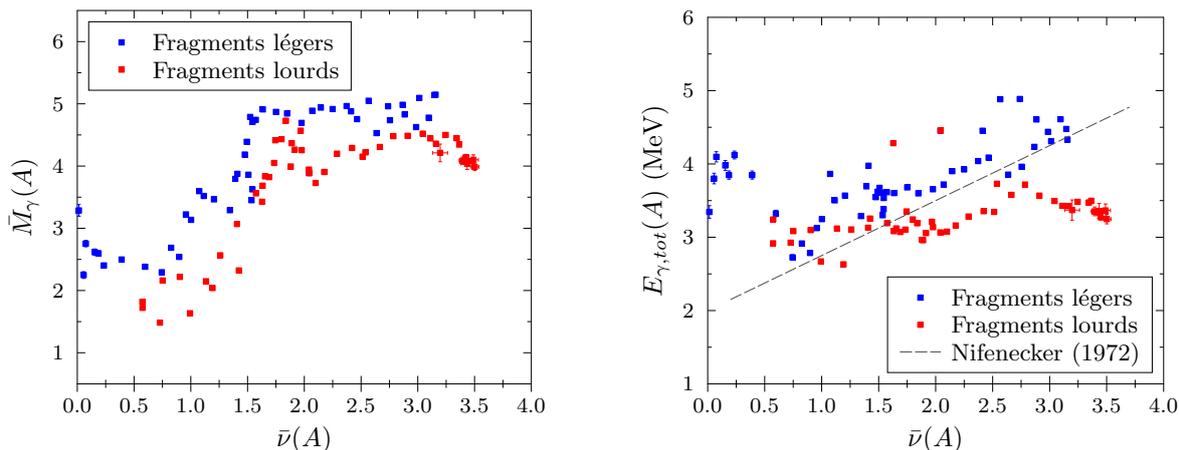


FIGURE 5.32 – Multiplicité des γ prompts issus des fragments lourds, et moment angulaire moyen des photons ($\langle L_\gamma \rangle$), calculés par FIFRELIN. La multiplicité mesurée avec VESPA est indiquée pour comparaison.

5.3.2.3 Compétition neutrons- γ

Pour finir, nous pouvons comparer les corrélations neutrons- γ obtenues avec FIFRELIN avec celles extraites des mesures de VESPA. Ainsi, la Figure 5.33 représente les corrélations obtenues à partir des courbes $\bar{\nu}(A)$, $\bar{M}_\gamma(A)$ et $E_{\gamma,tot}(A)$ obtenues à l'issue d'un même calcul avec FIFRELIN, de manière similaire aux données expérimentales issues de VESPA et présentées en Figure 3.19. Comme avec le dispositif VESPA, on observe un décalage entre les fragments lourds et légers : pour une même valeur de $\bar{\nu}$, la multiplicité moyenne et l'énergie totale des γ sont généralement plus basses pour les fragments lourds que pour les fragments légers. On remarque également que les corrélations neutron/gamma semblent moins fortes dans le cas des calculs effectués avec FIFRELIN, que ce qui est observé avec VESPA. Pour l'énergie γ totale en fonction de la multiplicité moyenne des neutrons prompts, les déviations observées pourraient en partie s'expliquer par la surestimation de l'énergie des γ prompts pour $A_H \lesssim 140$ et $A_L \lesssim 105$ (voir la Figure 5.22), qui correspondent à deux zones où la multiplicité moyenne des neutrons est faible ($\bar{\nu}(A) \lesssim 1.5$, voir par exemple la Figure 5.4).

Qu'il s'agisse des résultats de VESPA (Figure 3.19) ou de ceux de FIFRELIN (Figure 5.33), l'allure des corrélations neutrons/ γ paraît suspecte. En effet, il est parfaitement contre-intuitif que le nombre et l'énergie des γ prompts soient plus importants quand le nombre de neutrons



(a) Corrélation entre la multiplicité moyenne des γ prompts et celle des neutrons prompts. (b) Corrélation entre l'énergie γ totale et la multiplicité des neutrons prompts.

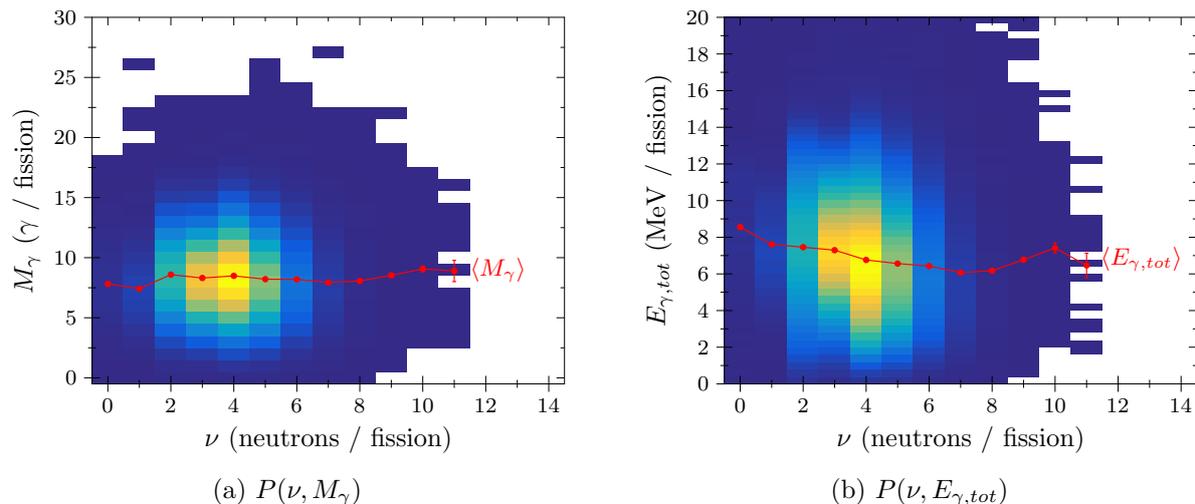
FIGURE 5.33 – Corrélations entre la multiplicité moyenne des neutrons prompts $\bar{\nu}(A)$ et les observables γ moyennes calculées par FIFRELIN.

prompts augmente. En effet, ces corrélations sont biaisées, car elles ne prennent pas en compte une troisième variable essentielle : l'énergie d'excitation moyenne des fragments E_{FF} . Comme on peut le voir en Figure 5.23, E_{FF} dépend fortement de la masse. Par exemple, pour $A \simeq 130$, l'énergie d'excitation moyenne des fragments est minimale. Par conséquent, peu de neutrons et peu de γ peuvent être émis. À l'inverse, pour $A > 160$, E_{FF} est importante, et plus de particules prompts pourront être émises. Ainsi, en traçant $\bar{M}_\gamma(A)$ en fonction de $\bar{\nu}(A)$, nous introduisons artificiellement une corrélation positive, alors que pour une énergie d'excitation fixée, la conservation de l'énergie impose une anti-corrélation entre l'émission des neutrons et des γ prompts. Afin d'illustrer cet effet sur un exemple moins complexe, un *toy model* est présenté en Annexe E.

Ainsi, l'utilisation d'un code Monte-Carlo comme FIFRELIN est particulièrement intéressante pour étudier la compétition neutron/gamma événement par événement. Ainsi, pour chaque événement de fission généré par FIFRELIN, les multiplicités des neutrons et des γ prompts sont connues, indépendamment des autres paramètres associés à cet événement. Il est ainsi possible d'établir les distributions bi-dimensionnelles $P(\nu, M_\gamma)$ et $P(\nu, E_{\gamma,tot})$, comme représenté en Figure 5.34. Dans cette figure, nous avons également représenté l'évolution de la multiplicité moyenne et de l'énergie totale des γ prompts en fonction de la multiplicité des neutrons. Les valeurs des coefficients de corrélation associées à ces distributions sont reportées dans le Tableau 5.6, où sont également indiquées les valeurs obtenues en séparant les fragments légers des fragments lourds. Ces coefficients de corrélations sont calculés selon :

$$\text{corr}(\nu, M_\gamma) = \frac{\text{cov}(\nu, M_\gamma)}{\sigma_\nu \sigma_\gamma} = \frac{\sum_i (\nu_i - \bar{\nu})(M_{\gamma,i} - \bar{M}_\gamma)}{\sqrt{[\sum_i (\nu_i - \bar{\nu})^2] [\sum_i (M_{\gamma,i} - \bar{M}_\gamma)^2]}} \quad (5.4)$$

On remarque alors que les multiplicités des neutrons et des γ prompts ne sont pas corrélées. Une légère anti-corrélation est néanmoins observée entre l'énergie totale des γ prompts et la multiplicité des neutrons. Ces résultats ne sont pas compatibles avec ceux présentés dans [246], notamment comparés aux autres codes CGMF et FREYA, qui calculent une anti-corrélation forte (de l'ordre de -0.8). Nous ne sommes cependant pas parvenus à expliquer une telle différence de comportement entre FIFRELIN et ces autres codes, qui pourrait par exemple être due à différentes sélections sur l'énergie des particules émises. Enfin, on observe que des corrélations plus importantes sont obtenues en séparant les fragments légers des fragments lourds. Les coefficients de corrélation moyens $\text{corr}(\nu, M_\gamma)$ deviennent même positifs, ce qui semble être un

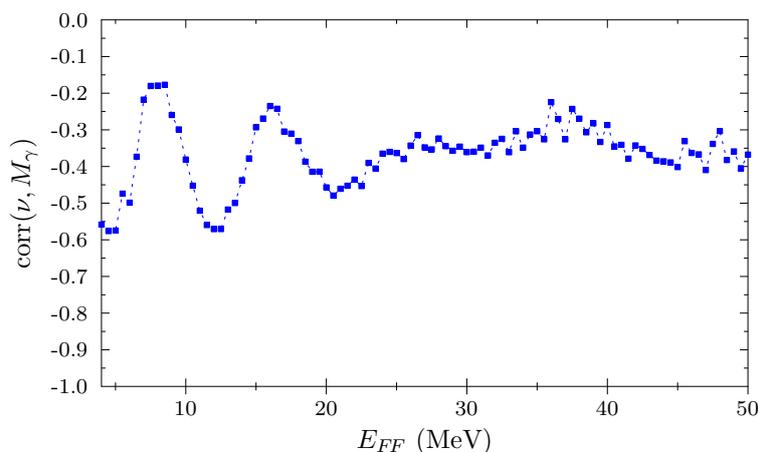

 FIGURE 5.34 – Distributions bi-dimensionnelles neutrons/ γ calculées par FIFRELIN.

artefact (comme discuté précédemment).

 TABLEAU 5.6 – Coefficients de corrélations neutrons/ γ calculés événement par événement avec FIFRELIN.

	Total	FF légers	FF lourds
$\text{corr}(\nu, M_\gamma)$	-0.0195	0.0048	0.1022
$\text{corr}(\nu, E_{\gamma,tot})$	-0.1287	-0.1511	-0.2386

Pour finir, notons que les coefficients de corrélation indiqués dans le Tableau 5.6 sont moyennés sur l'ensemble des fissions, pour toutes les masses et énergies des fragments. Ainsi, cela ne signifie pas que les multiplicités des neutrons et des γ prompts soient complètement décorrélées. Par conservation de l'énergie (équation 5.1), nous savons que l'énergie totale des neutrons et des γ sont fortement anti-corrélées. Ainsi, la Figure 5.35 représente l'évolution de la corrélation entre les multiplicités neutron et γ , en fonction de l'énergie d'excitation des fragments de fission.


 FIGURE 5.35 – Coefficients de corrélation entre la multiplicité moyenne des γ prompts et celle des neutrons prompts calculés par FIFRELIN en fonction de l'énergie d'excitation initiale des fragments de fission.

On remarque alors sur cette figure que cette sélection en énergie des fragments permet d'obtenir une (anti-)corrélation plus importante qu'en sélectionnant l'ensemble des fissions. On

remarque également des structures pour $E_{FF} \lesssim 20$ MeV, qui correspondent aux phénomènes observés en Figure 5.1a : les diminutions importantes sont localisées au niveau des énergies de séparation $\langle S_n \rangle$ et $\langle S_{2n} \rangle$ et correspondent à l’ouverture d’une voie neutron supplémentaire. De même, l’augmentation du coefficient de corrélation (ou sa diminution en valeur absolue) est due à la saturation de l’émission des neutrons : M_γ augmente mais ν reste constant. Cette saturation de l’émission des neutrons pourrait potentiellement être la cause de la faible anti-corrélation entre ν et M_γ observée avec FIFRELIN par rapport aux autres codes.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons comparé les différents résultats expérimentaux obtenus avec VESPA pour la fission spontanée du ^{252}Cf , aux prédictions de FIFRELIN. En particulier, la multiplicité des γ prompts en fonction de la masse pré-neutron des fragments de fission nous a permis de contraindre une partie des modèles utilisés dans FIFRELIN. Ainsi, en utilisant un modèle de spin cut-off dépendant de l’énergie (EDS) et un modèle combinatoire microscopique de densités de niveaux nucléaires (HFB+BSk14), nous avons pu simultanément reproduire les multiplicités des neutrons prompts et des γ prompts en fonction de la masse des fragments, $\bar{\nu}(A)$ et $\bar{M}_\gamma(A)$.

La confrontation des résultats de FIFRELIN et des données expérimentales a également été menée sur d’autres observables de fission liées aux γ prompts, comme le spectre en énergie, $E_{\gamma,tot}(A)$ ou encore $\bar{M}_\gamma(TKE)$. Nous avons ainsi pu voir que les multiplicités prédites par FIFRELIN, en fonction de la masse ou de l’énergie cinétique totale des fragments, reproduisaient bien les données mesurées avec VESPA. Cependant, nous avons également constaté des écarts entre les calculs et l’expérience concernant l’énergie des γ prompts de fission. En effet, des différences non négligeables entre la mesure et les calculs de FIFRELIN apparaissent dans les spectres de γ prompts de fission, notamment dans la partie à basse énergie ($E_\gamma < 1$ MeV). De plus, nous avons vu que l’énergie totale des γ prompts émis par les fragments lourds de masse $A \lesssim 140$ est surestimée par FIFRELIN. La raison de ces écarts est relativement complexe à estimer, dans la mesure où l’émission des γ est généralement réalisée après l’émission des neutrons. Ainsi, les analyses que nous avons menées nous ont renseignées sur l’impact qu’ont les neutrons prompts sur les γ prompts. Dans FIFRELIN, cette émission couplée neutrons/ γ prompts s’effectue par le calcul des largeurs partielles de transitions (équation (4.18)), et dépend donc des coefficients de transmission neutron et des fonctions de force gamma. Par conséquent, une piste d’amélioration de ces résultats pourrait être d’utiliser de nouveaux modèles qui décrivent ces quantités, en particulier les coefficients de transmission neutron, qui n’ont pas été étudiés durant cette thèse. Une autre possibilité serait d’agir sur les fragments de fission primaires, en modifiant par exemple la relation $R_T(A)$, et/ou en utilisant de nouveaux modèles pour le moment angulaire total des fragments. En particulier, j’ai pu commencer à implémenter un modèle simple basé sur les $\langle J \rangle(E^*)$ issus des calculs HFB+BSk14. Pour aller plus loin, il est cependant nécessaire d’inclure des paramètres libres à ce modèle (équation (4.36)) voire d’utiliser les $P(\pi)$ également issus des calculs HFB+BSk14.

Notons que ce travail a exclusivement porté sur la fission spontanée du ^{252}Cf , dans la mesure où il s’agit du système fissionnant utilisé dans VESPA. Cependant, les récents développements effectués dans FIFRELIN peuvent être appliqués pour d’autres réactions, notamment les fissions induites par neutrons thermiques de ^{235}U et du ^{239}Pu . Ainsi, pour ces deux réactions, les courbes $\bar{\nu}(A)$, $\bar{M}_\gamma(A)$ et $E_{\gamma,tot}(A)$ ont été calculées avec FIFRELIN en utilisant les modèles EDS et HFB14 [247]. Une comparaison de ces résultats aux données expérimentales disponibles dans la littérature est présentée dans les Figures 5.36 et 5.37, pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$, respectivement. On remarque alors que les mêmes caractéristiques générales que pour la fission spontanée du ^{252}Cf sont observées pour la multiplicité moyenne et l’énergie totale des γ prompts de fission en fonction de la masse des fragments. En effet, les courbes

$\bar{M}_\gamma(A)$ issues des calculs FIFRELIN reproduisent correctement les données expérimentales de Pleasonton [158, 160], mais la courbe $E_{\gamma,tot}(A)$ calculée ne présente pas une structure en dent de scie aussi prononcée que la mesure.

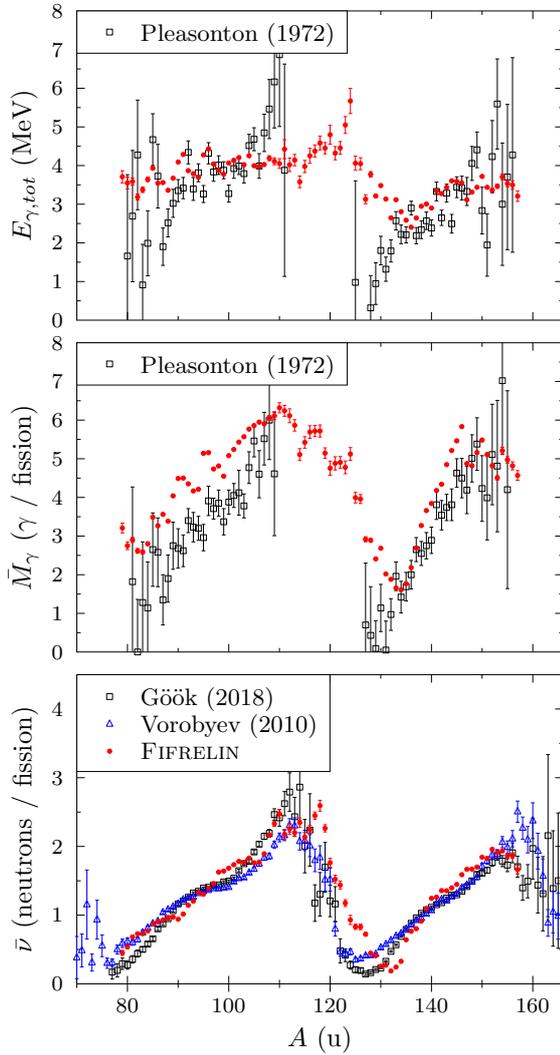


FIGURE 5.36 – Observables de fission calculées avec FIFRELIN pour la fission induite par neutron thermique de ^{235}U , comparées aux données expérimentales de Gök [58], Vorobyev [248] et Pleasonton [158].

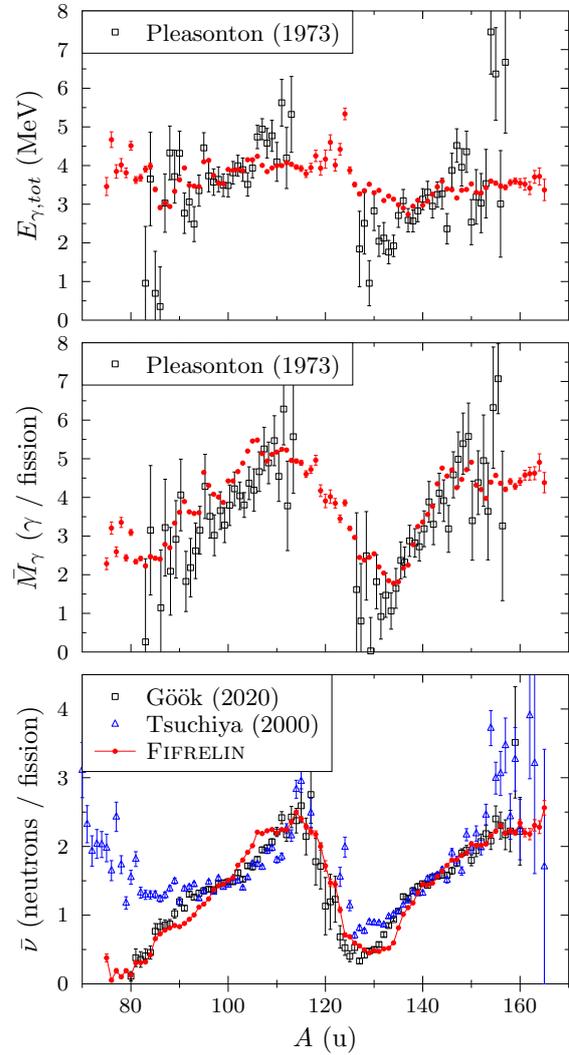


FIGURE 5.37 – Observables de fission calculées avec FIFRELIN pour la fission induite par neutron thermique du ^{239}Pu , comparées aux données expérimentales de Gök [249], Tsuchiya [250] et Pleasonton [160].

Les études réalisées dans le cadre de la thèse montrent l'importance d'étudier en particulier les corrélations entre neutrons et γ prompts afin de contraindre plus fortement certains modèles, comme la répartition de l'énergie d'excitation entre les fragments. Le moment angulaire des fragments de fission est l'objet d'un récent regain d'intérêt au sein de la communauté des chercheurs, et constitue donc un sujet qui pourrait également être approfondi, notamment par le développement de nouveaux modèles. Enfin, d'importants efforts sont actuellement réalisés par ailleurs, afin de proposer des améliorations du code qui sortent du cadre de cette thèse, telles que le calcul des corrélations angulaires, l'implémentation des fissions de chances multiples, l'intégration de l'intelligence artificielle, et le développement de nouveaux modèles microscopiques.

Conclusion et Perspectives

Conclusion

Ces travaux de thèse visent à comprendre plus précisément le phénomène de la fission nucléaire, au travers de l'étude de la désexcitation des fragments issus de la fission spontanée du ^{252}Cf . En effet, les caractéristiques des particules promptes émises par les fragments nous fournissent d'importantes indications sur des quantités plus fondamentales, comme l'énergie d'excitation et le moment angulaire total de ces fragments.

L'approche menée dans ce travail est une approche mixte, qui consiste à faire interagir des résultats expérimentaux d'une part et des résultats issus de modélisations d'autre part. La modélisation de la désexcitation des fragments de fission a été réalisée avec le code Monte-Carlo FIFRELIN, développé par le CEA pour prédire les observables de fission. FIFRELIN utilise un algorithme de type Hauser-Feshbach, et repose sur un certain nombre de modèles, permettant de définir l'état initial des fragments (masse, charge, énergie, moment angulaire et parité), et de simuler la désexcitation de ces noyaux excités par émission couplée de neutrons, rayons γ et électrons de conversion.

Afin d'améliorer la prédiction par FIFRELIN des observables de fission, il est alors nécessaire de contraindre ces modèles et leurs paramètres, en confrontant les résultats qu'ils permettent d'obtenir aux données expérimentales. Pour cela, des mesures d'observables de fission ont été réalisées à l'EC-JRC Geel auprès du dispositif VESPA. Ces mesures, dites multi-paramètres, permettent d'accéder simultanément à diverses observables de fission, ce qui permet d'obtenir des résultats plus fins, et donc de contraindre plus fortement les modèles de FIFRELIN. En particulier, ce travail est focalisé sur les observables relatives aux γ prompts, en corrélation avec les fragments de fission.

Dans un premier temps, les données mesurées avec VESPA ont donc été analysées afin d'en extraire les spectres de γ prompts de fission, ainsi que la multiplicité et l'énergie totale de ces γ en fonction de la masse pré-neutrons des fragments, de leur énergie cinétique TKE et de leur énergie d'excitation TXE. Pour obtenir ces observables, il est nécessaire de déconvoluer les données expérimentales, en utilisant la matrice de réponse des détecteurs, obtenue à partir de la modélisation du dispositif avec GEANT4. Nous avons pu voir que la caractérisation des détecteurs n'était pas optimale et que cette matrice était encore perfectible. Une correction simple (renormalisation des données) a pu être appliquée afin de résoudre ce problème, qui constitue la limite principale de nos mesures. Le dispositif VESPA a également été utilisé pour la détection d'un certain nombre d'isomères produits par fission, dont les demi-vies, comprises entre quelques nanosecondes et quelques microsecondes, ont pu être mesurées. De nouveaux résultats ont ainsi été obtenus, et ceux-ci sont appuyés par le bon accord observé par ailleurs entre nos données et la littérature.

Dans un second temps, des développements ont été effectués sur le code FIFRELIN, dont les résultats obtenus avec différents modèles ont été confrontés aux observables de fission déterminées expérimentalement avec VESPA. En utilisant en particulier l'observable $\bar{M}_\gamma(A)$, les modèles nucléaires relatifs aux moments angulaires initiaux des fragments de fission et aux densités de niveaux nucléaires ont pu être contraints. En effet, l'utilisation d'un modèle de moment angulaire dépendant de l'énergie et de densités de niveaux microscopiques issues de calculs HFB avec une interaction effective BSk14, permet de reproduire simultanément la multiplicité des neutrons et des γ prompts de fission. Ce résultat important, obtenu pour la fission spontanée du ^{252}Cf , est

également observé dans une certaine mesure pour la fission induite par neutron thermique de l' ^{235}U et du ^{239}Pu .

Perspectives

Pour commencer, les résultats expérimentaux obtenus dans cette thèse présentent des corrélations, à cause de la résolution massique expérimentale d'une part, et des incertitudes systématiques liées à la déconvolution d'autre part (notamment le facteur de correction constant, qui induit une corrélation positive entre les données issues d'un même détecteur). Une détermination de ces matrices de corrélations pourrait donc être entreprise par la suite.

Ensuite, pour aller plus loin dans la compréhension de la fission, et dans l'amélioration de FIFRELIN, de nouvelles observables multi-paramètres pourraient être étudiées, comme la multiplicité des particules promptes en fonction de la charge nucléaire des fragments, les distributions angulaires des γ prompts de fission ou encore les corrélations neutron- γ événement par événement. Des expériences sont en cours afin de mesurer de telles quantités.

L'amélioration du dispositif VESPA par l'ajout de nouveaux détecteurs pour de nouvelles campagnes de mesures sur la fission spontanée du ^{252}Cf ou des ^{246}Cm et ^{248}Cm , ainsi que les développements actuellement en cours sur le code FIFRELIN s'inscrivent dans ce cadre, et permettront ainsi une meilleure prédiction des observables de fission, et des données nucléaires associées.

Description microscopique du noyau

Les descriptions microscopiques sont les méthodes qui traitent le problème de la résolution l'équation de Schrödinger appliquée au noyau :

$$\mathcal{H}|\Phi\rangle = E|\Phi\rangle \quad (\text{A.1})$$

Nous allons dans la suite présenter les équations fondatrices des méthodes les plus communément utilisées, et les hypothèses qu'elles impliquent. Une description bien plus détaillée de ces méthodes est fournie dans [251].

A.1 Approche Hartree-Fock : le champ moyen

L'approche Hartree-Fock (HF) suppose l'existence d'un potentiel moyen pouvant être exprimé à partir des potentiels h de particules indépendantes :

$$\mathcal{H}_{HF} = \sum_{i=1}^A h(i) \quad (\text{A.2})$$

Les fonctions propres de cet hamiltonien peuvent être décrites par des déterminants de Slater $|\Phi\rangle$, que l'on peut décrire à partir d'une matrice de densité $\hat{\rho}$ [251] :

$$\hat{\rho}_{i,j} = \langle \Phi | c_j^\dagger c_i | \Phi \rangle \quad \text{avec } \hat{\rho}^2 = \hat{\rho} \quad (\text{A.3})$$

où c_i^\dagger et c_i désignent respectivement les opérateurs de création et d'annihilation des fermions. Ces opérateurs respectent alors les relations de commutation suivantes :

$$\{c_i, c_j\} = \{c_i^\dagger, c_j^\dagger\} = 0 \quad \text{et} \quad \{c_i, c_j^\dagger\} = \delta_{ij} \quad (\text{A.4})$$

où $\{A, B\} = AB + BA$ est un anti-commutateur et δ_{ij} désigne le symbole de Kronecker.

Finalement, l'hamiltonien qui décrit le noyau est approché par les potentiels d'interaction nucléon-nucléon (voir Section A.2) :

$$\mathcal{H} = T + V = \sum_i t_i + \sum_{i,j>i} v_{ij} \quad (\text{A.5})$$

L'énergie associée à cet hamiltonien s'exprime alors [231, 251] :

$$E[\rho] = \langle \Phi | \mathcal{H} | \Phi \rangle = \sum_{i,j} t_{ij} \hat{\rho}_{ji} + \frac{1}{2} \sum_{i\ell,jk} \tilde{v}_{i\ell,jk} \hat{\rho}_{ji} \hat{\rho}_{k\ell} = \sum_{i,j} \left(t_{ij} \hat{\rho}_{ji} + \frac{1}{2} \hat{\Gamma}_{ij} \hat{\rho}_{ji} \right) \quad (\text{A.6})$$

avec $\tilde{v}_{i\ell,jk} = v_{i\ell,jk} - v_{i\ell,kj}$, et $\hat{\Gamma}_{ij} = \sum_{k,\ell} \tilde{v}_{i\ell,jk} \hat{\rho}_{k\ell}$ qui désigne le potentiel moyen.

L'hamiltonien de Hartree-Fock est défini par :

$$\hat{h}_{i,j} = \frac{\partial E[\rho]}{\partial \rho_{i,j}} = \hat{t}_{ij} + \hat{\Gamma}_{ij} \quad (\text{A.7})$$

Finalement, l'application du principe variationnel ($\delta E = 0$) conduit à l'équation de Hartree-Fock :

$$[\hat{h}, \hat{\rho}] = \hat{h}\hat{\rho} - \hat{\rho}\hat{h} = 0 \quad (\text{A.8})$$

Cette équation est non-linéaire, et doit donc être résolue de manière itérative. Cette résolution s'effectue notamment en diagonalisant la matrice \hat{h} , c'est-à-dire en calculant ses vecteurs propres [251].

A.2 Interactions effectives

Les potentiels d'interactions nucléon-nucléon ne sont pas formellement connus. De plus, les interactions entre nucléons ne se limitent pas à de simples interactions deux à deux. Ainsi, des interactions effectives sont généralement utilisées, afin de prendre en compte les divers effets qui peuvent avoir lieu au sein du noyau (couplage spin-orbite, effet de densité...) [251]. Ces interactions sont phénoménologiques, c'est-à-dire qu'elles comportent un certain nombre de paramètres qui sont ajustés afin de reproduire au mieux les données expérimentales.

Interaction de Skyrme

L'interaction effective de Skyrme [252, 253] est une interaction de contact, qui s'exprime sous la forme :

$$V_{ij}^{Sk} = t_0(1 + x_0\hat{P}_\sigma)\delta + \frac{1}{2}t_1(1 + x_1\hat{P}_\sigma) \left[(\hat{\mathbf{k}}^\dagger)^2\delta + \delta(\hat{\mathbf{k}})^2 \right] + t_2(1 + x_2\hat{P}_\sigma)\hat{\mathbf{k}}^\dagger \cdot \delta\hat{\mathbf{k}} \\ + \frac{1}{6}t_3(1 + x_3\hat{P}_\sigma)\delta\rho^\alpha + iW_0(\hat{\boldsymbol{\sigma}}_i + \hat{\boldsymbol{\sigma}}_j) \cdot \hat{\mathbf{k}}^\dagger \wedge \delta\hat{\mathbf{k}} \quad (\text{A.9})$$

où $\delta = \delta(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)$, $\rho = \rho([\mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j]/2)$. $\hat{P}_\sigma = \frac{1}{2}(1 + \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_j)$ est l'opérateur d'échange de spin, et $\hat{\mathbf{k}} = \hat{\mathbf{p}}/\hbar = (\nabla_i - \nabla_j)/2i$ est l'opérateur du moment angulaire relatif [251, 254]. Finalement, les paramètres ajustables de cette interaction sont t_k , x_k , α et W_0 .

Les premiers termes de l'équation (A.9) représentent la contribution centrale de portée nulle, avec une dépendance à la densité sur le troisième terme. Le dernier terme est le terme de spin-orbite, lui aussi de portée nulle.

Interaction de Gogny

L'interaction effective de Gogny [255, 256] est une interaction de portée finie, donnée par :

$$V_{ij}^{Go}(\mathbf{r}) = \sum_{k=1}^2 e^{-(r/\mu_k)^2} (W_k + B_k\hat{P}_\sigma - H_k\hat{P}_\tau - M_k\hat{P}_\sigma\hat{P}_\tau) \\ + t_0(1 + x_0\hat{P}_\sigma)\delta\rho^\alpha + iW_{LS}(\hat{\boldsymbol{\sigma}}_i + \hat{\boldsymbol{\sigma}}_j) \cdot \hat{\mathbf{k}}^\dagger \wedge \delta\hat{\mathbf{k}} \quad (\text{A.10})$$

où $\mathbf{r} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$ et $\hat{P}_\tau = \frac{1}{2}(1 + \boldsymbol{\tau}_i \cdot \boldsymbol{\tau}_j)$ est l'opérateur d'échange d'isospin [251, 254]. Les quantités μ_k , W_k , B_k , H_k , M_k , t_0 , x_0 , α et W_{LS} sont les paramètres ajustables de cette interaction.

La somme de gaussienne présente dans l'équation (A.10) constitue la contribution centrale de portées finies μ_1 et μ_2 . Les 2 termes suivants sont respectivement le terme dépendant de la densité pour la contribution centrale et le terme de spin-orbite de portée nulle, similaires à ceux présents dans l'interaction de Skyrme. Récemment, une nouvelle forme de cette interaction a été proposée, dans laquelle le terme dépendant de la densité est considéré comme ayant une portée finie non nulle [257].

A.3 Méthode Hartree-Fock-Bogoliubov

La méthode Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) généralise l'approche HF, et utilise le concept de quasi-particules afin de prendre en compte les corrélations entre les particules. Dans ce cas, l'état fondamental HFB du noyau $|\Psi_0\rangle$ correspond à l'absence de ces quasi-particules. On a alors $\beta_i|\Phi\rangle = 0$, où β_i est l'opérateur d'annihilation associé aux quasi-particules, alors défini en utilisant la transformation de Bogoliubov [251] :

$$\begin{aligned}\beta_i &= \sum_k U_{k,i}^* c_k + V_{k,i}^* c_k^\dagger \\ \beta_i^\dagger &= \sum_k U_{k,i} c_k^\dagger + V_{k,i} c_k\end{aligned}\quad (\text{A.11})$$

Cette transformation peut également s'exprimer sous forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} \beta \\ \beta^\dagger \end{pmatrix} = \mathcal{W}^\dagger \otimes \begin{pmatrix} c \\ c^\dagger \end{pmatrix} \quad \text{avec } \mathcal{W} = \begin{pmatrix} U & V^* \\ V & U^* \end{pmatrix}\quad (\text{A.12})$$

Comme les quasi-particules sont des fermions, elles doivent respecter les relations de commutations définies en équation (A.4). Cette condition impose que \mathcal{W} est hermitienne (ou auto-adjointe), i.e. $\mathcal{W}^{-1} = \mathcal{W}^\dagger$.

Cependant, la transformation (A.11) ne conserve pas le nombre de particules du système :

$$\hat{N}|\Phi\rangle = \sum_k c_k^\dagger c_k \neq A|\Phi\rangle\quad (\text{A.13})$$

Un multiplicateur de Lagrange λ appelé potentiel chimique (ou énergie de Fermi) est donc introduit afin de contraindre le nombre de particules du système, et donc de satisfaire l'équation suivante [251, 258] :

$$\langle\Phi|\hat{N}|\Phi\rangle = A\quad (\text{A.14})$$

L'hamiltonien du système est alors corrigé :

$$\mathcal{H}' = \mathcal{H} - \lambda\hat{N}\quad (\text{A.15})$$

Cette approche peut être appliquée sur différents opérateurs, afin de contraindre un certain nombre de valeurs physiques associées au système, par exemple le moment quadrupolaire. On parle alors d'équation HFB contrainte (CHFB).

Les matrices U et V permettent de définir la matrice de densité $\hat{\rho}$ (hermitienne) et le tenseur d'appariement $\hat{\kappa}$ (antisymétrique) [251] :

$$\hat{\rho}_{i,j} = \langle\Phi|c_j^\dagger c_i|\Phi\rangle = \left(V^* \otimes V^T\right)_{i,j}\quad (\text{A.16})$$

$$\hat{\kappa}_{i,j} = \langle\Phi|c_j c_i|\Phi\rangle = \left(V^* \otimes U^T\right)_{i,j}\quad (\text{A.17})$$

Une matrice de densité généralisée peut ainsi être définie :

$$\mathcal{R} = \begin{pmatrix} \hat{\rho} & \hat{\kappa} \\ -\hat{\kappa}^* & 1 - \hat{\rho}^* \end{pmatrix}\quad (\text{A.18})$$

À partir d'un hamiltonien de la forme (A.5) et du principe variationnel, on obtient les équations de Hartree-Fock-Bogoliubov :

$$\mathcal{H}' \begin{pmatrix} U_k \\ V_k \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \hat{h} - \lambda & \hat{\Delta} \\ -\hat{\Delta}^* & -\hat{h}^* + \lambda \end{pmatrix} \begin{pmatrix} U_k \\ V_k \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} U_k \\ V_k \end{pmatrix} E_k\quad (\text{A.19})$$

où $\hat{h} = \hat{t} + \hat{\Gamma}$ comme défini en équation (A.7) et $\hat{\Delta}$ est le potentiel d'appariement donné par $\hat{\Delta}_{ij} = \frac{1}{2} \sum_{k,\ell} \tilde{v}_{ij,k\ell} \hat{\kappa}_{k,\ell}$ [251]. Cette équation peut également s'exprimer sous une forme équivalente à l'équation de HF (A.8) :

$$[\mathcal{H}', \mathcal{R}] = 0 \quad (\text{A.20})$$

L'énergie associée à l'hamiltonien \mathcal{H}' est alors donnée par [25] :

$$E[\rho, \kappa] = \text{tr}(\hat{t}\hat{\rho}) + \frac{1}{2} \text{tr}(\hat{\Gamma}\hat{\rho}) + \frac{1}{2} \text{tr}(\hat{\Delta}\hat{\kappa}^*) = \sum_{i,j} \left[(\hat{t}_{ij} + \frac{1}{2}\hat{\Gamma}_{ij})\hat{\rho}_{ji} - \frac{1}{2}\hat{\Delta}_{ij}\hat{\kappa}_{ji}^* \right] \quad (\text{A.21})$$

L'équation (A.20) correspond au cas stationnaire. L'équation HFB dépendante du temps (TDHFB) est donnée par :

$$i\hbar \frac{\partial \mathcal{R}}{\partial t} = [\mathcal{H}'(t), \mathcal{R}(t)] \quad (\text{A.22})$$

A.4 Au-delà du champ moyen

QRPA – La méthode QRPA, pour *Quasiparticle Random Phase Approximation*, est une méthode qui permet de décrire les excitations collectives du noyau. Pour cela, la QRPA décrit les excitations à 2 quasi-particules (particule-trou, trou-trou et particule-particule), en utilisant l'opérateur de quasi-boson :

$$\theta_n^\dagger = \frac{1}{2} \sum_{i,j} (X_n^{ij} \beta_i^\dagger \beta_j^\dagger - Y_n^{ij} \beta_j \beta_i) \quad (\text{A.23})$$

où X_n^{ij} et Y_n^{ij} désignent l'amplitude de ces excitations [230]. Ces amplitudes servent notamment à calculer les probabilités de transitions électromagnétiques, utilisées dans le calcul des fonctions de force γ .

L'équation de la QRPA, dont sont solutions X_n et Y_n , peut s'obtenir à partir de l'équation TDHFB (A.22), et en supposant une excitation extérieure de faible amplitude [251, 259]. Sous forme matricielle, l'équation QRPA s'écrit alors :

$$\begin{pmatrix} A & B \\ B & A \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_n \\ Y_n \end{pmatrix} = \omega_n \begin{pmatrix} X_n \\ -Y_n \end{pmatrix} \quad (\text{A.24})$$

TDGCM – La méthode de la coordonnée génératrice dépendante du temps (TDGCM) est notamment utilisée pour décrire la fission sous l'hypothèse d'adiabaticité (voir Section 1.2.1). Dans cette approche, on suppose que le noyau composé peut être dynamiquement décrit par :

$$|\Psi(t)\rangle = \int f(\vec{q}, t) |\Phi(\vec{q})\rangle d\vec{q} \quad (\text{A.25})$$

où $\vec{q} = (q_1, \dots, q_N)$ est un vecteur de coordonnées collectives continues, et l'inconnue f est une fonction de pondération [25, 251]. Les fonctions d'ondes $|\Phi(\vec{q})\rangle$ (états générateurs) sont les solutions de l'équation HFB contrainte par les variables q_i , et vérifient donc $\langle \Phi(\vec{q}) | \hat{Q}_i | \Phi(\vec{q}) \rangle = q_i$ [25].

L'équation de Schrödinger associée à la fonction d'onde $|\Psi(t)\rangle$ (équation de Hill-Wheeler) est trop coûteuse à résoudre numériquement. Une manière de simplifier cette équation consiste alors à supposer que le recouvrement des états générateurs peut être décrit par une gaussienne : $\langle \Phi(\vec{q}) | \Phi(\vec{q}') \rangle \sim \exp(-[\vec{q} - \vec{q}']^2)$. Cette approximation se nomme GOA, pour *Gaussian Overlap Approximation*. L'équation à résoudre devient alors :

$$i\hbar \frac{\partial g(\vec{q}, t)}{\partial t} = \mathcal{H}_{coll}(\vec{q}) g(\vec{q}, t) = \left[-\frac{\hbar^2}{2} \sum_{k,\ell} \frac{\partial}{\partial q_k} B_{k,\ell}(\vec{q}) \frac{\partial}{\partial q_\ell} + V(\vec{q}) \right] g(\vec{q}, t) \quad (\text{A.26})$$

où $\mathcal{H}_{coll}(\vec{q})$ est l'hamiltonien collectif qui dépend du potentiel $V(\vec{q})$ et du tenseur d'inertie $B(\vec{q})$. La fonction $g(\vec{q}, t)$, qui contient toutes les informations sur la dynamique du système, s'obtient à partir de $f(\vec{q}, t)$ [25].

Méthode de pondération des γ prompts de fission

Dans cette annexe, nous présentons une dérivation de la méthode des aberrations Doppler (ou méthode de "pondération" [157]), utilisée en Section 3.3.2 pour obtenir la multiplicité moyenne des γ prompts de fission en fonction de la masse des fragments : $\bar{M}_\gamma(A)$.

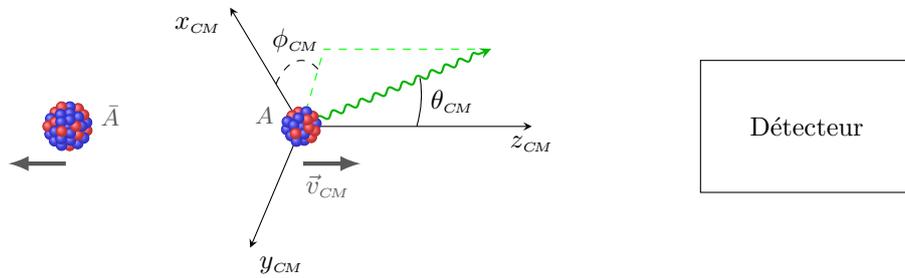


FIGURE B.1 – Émission des γ prompts de fission par un fragment en mouvement.

B.1 Effet Doppler et anisotropie

Les γ prompts de fission sont émis entre 10^{-14} s et 10^{-6} s après la fission [6], et environ 80% d'entre eux sont émis avant 0.1 ns [130]. Cette échelle de temps implique que les γ prompts sont émis avant que les fragments de fission ne soient stoppés dans la chambre d'ionisation, comme illustré en Figure B.2.

Ainsi, ces photons émis par une source en mouvement vont subir un effet Doppler. D'une part,

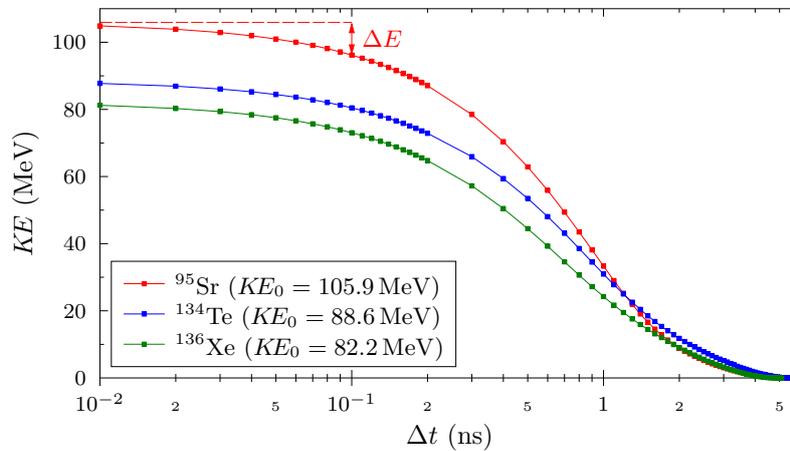


FIGURE B.2 – Estimation de l'énergie cinétique des fragments de fission en fonction du temps dans la chambre d'ionisation (méthane), à partir de calculs effectués avec le code SRIM [260].

la fréquence, et donc l'énergie du rayon γ dans le référentiel du laboratoire subit un décalage Doppler :

$$E_\ell = E_{CM} \times \frac{\sqrt{1 - \beta^2}}{1 - \beta \cos \theta_\ell} \quad (\text{B.1})$$

où $\beta = v/c$ est la vitesse réduite du fragment de fission.

D'autre part, l'angle d'émission dans le référentiel fixe du laboratoire (θ) est différent de l'angle d'émission dans le centre de masse (CM), selon la relation :

$$\cos(\theta_{CM}) = \frac{\cos(\theta_\ell) - \beta}{1 - \beta \cos(\theta_\ell)} \quad (\text{B.2})$$

Par conséquent, l'angle solide dans le référentiel du laboratoire est également affecté par cet effet :

$$\frac{d\Omega_{CM}}{d\Omega_\ell} = \frac{\phi_{CM} \sin \theta_{CM} d\theta_{CM}}{\phi_\ell \sin \theta_\ell d\theta_\ell} = \frac{d \cos \theta_{CM}}{d \cos \theta_\ell} = \frac{1 - \beta^2}{(1 - \beta \cos \theta_\ell)^2} \quad (\text{B.3})$$

Ce second effet est appelé l'aberration Doppler.

En effet, il induit une anisotropie de l'émission des γ dans le référentiel du laboratoire. Ainsi, le nombre de quanta émis dans une direction Ω est donné par [261, 262] :

$$N' = N_0 \frac{d\Omega_{CM}}{d\Omega_\ell} = N_0 \frac{1 - \beta^2}{(1 - \beta \cos \theta_\ell)^2} \quad (\text{B.4})$$

où N_0 désigne le nombre de photons émis dans la direction Ω par une source immobile.

On introduit alors la variable α qui quantifie l'anisotropie de l'émission des γ dans le référentiel du laboratoire, et qui est définie par [157, 158] :

$$\alpha = \frac{N(\theta) - N(\theta + \pi)}{N(\theta) + N(\theta + \pi)} \quad (\text{B.5})$$

Dans le cas où les fragments sont immobiles, on a $N_0(\theta) = N_0(\theta + \pi)$ et donc $\alpha_0 = 0$, indépendamment de l'orientation du moment angulaire des fragments de fission. Dans le cas présent, les fragments sont en mouvement ($\beta > 0$) et l'anisotropie α s'exprime donc :

$$\alpha = \frac{2\beta \cos \theta_\ell}{1 + \beta^2 \cos^2 \theta_\ell} \quad (\text{B.6})$$

Comme les fragments sont relativement lents ($\beta \ll 1$), on peut appliquer un développement de Taylor à l'équation (B.6) :

$$\alpha \underset{\beta \rightarrow 0}{=} \alpha(0) + \beta \times \frac{\partial \alpha}{\partial \beta}(0) + o(\beta^2) \quad (\text{B.7})$$

On obtient alors l'expression simplifiée de l'anisotropie, telle que donnée dans [157, 158] :

$$\alpha(\beta, \theta_\ell) \simeq 2\beta \cos \theta_\ell \quad (\text{B.8})$$

De même, l'énergie totale E'_{tot} des quanta émis dans le référentiel du laboratoire par les fragments va présenter une certaine anisotropie, à laquelle s'ajoute le décalage Doppler :

$$E'_{tot} = N' \times \langle E_\ell \rangle = N_0 \times \langle E_{CM} \rangle \times \frac{(1 - \beta^2)^{3/2}}{(1 - \beta \cos \theta_\ell)^3} \quad (\text{B.9})$$

De manière analogue à α défini en équation (B.6), on définit alors l'anisotropie de l'énergie totale des γ :

$$\alpha_E = \frac{E'_{tot}(\theta) - E'_{tot}(\theta + \pi)}{E'_{tot}(\theta) + E'_{tot}(\theta + \pi)} = \frac{3\beta \cos \theta_\ell + \beta^3 \cos^3 \theta_\ell}{1 + 3\beta^2 \cos^2 \theta_\ell} \quad (\text{B.10})$$

Cette expression peut être simplifiée en y appliquant le développement de Taylor. Finalement, on obtient [157, 158] :

$$\alpha_E(\beta, \theta_\ell) \simeq 3\beta \cos \theta_\ell \quad (\text{B.11})$$

Ainsi, qu'il s'agisse de la multiplicité des γ prompts, ou de leur énergie totale, l'anisotropie associée est maximale pour des rayonnements émis dans la même direction que les fragments de fission ($\theta = 0$), et dépend linéairement de la vitesse des fragments.

B.2 Pondération

Dans un souci de simplification du problème, nous allons considérer que les fragments sont émis dans la direction des détecteurs γ . Nous appellerons alors "fragment direct" le fragment (de masse A) émis vers le détecteur, et "fragment indirect" le fragment complémentaire (de masse $\bar{A} = 252 - A$)¹ émis dans la direction opposée, comme illustré en Figure B.1.

Ainsi, le nombre n_γ de photons détectés par le détecteur peut être décomposé selon deux contributions :

- Les photons issus du fragment direct, pour lesquels $\theta_\ell \simeq 0$
- Les photons issus du fragment indirect, pour lesquels $\theta_\ell \simeq \pi$

Ainsi, on a [157, 158] :

$$n_\gamma(A) = N(A) \times \left[\omega(A) \times (1 + \alpha_A) + \omega(\bar{A}) \times (1 - \alpha_{\bar{A}}) \right] \times \varepsilon_\gamma \quad (\text{B.12})$$

où $N(A)$ désigne le nombre de fragments de masse A émis dans cette direction, $\omega_\gamma(A)$ le nombre total de γ émis par ce fragment, et ε_γ l'efficacité de détection des photons. On pose également $\alpha_A = \alpha(\beta_A, \theta = 0) = -\alpha(\beta_A, \theta = \pi) = 2\beta_A$, où β_A est la vitesse du fragment de masse A .

De même, quand le fragment direct est le complémentaire de masse \bar{A} , on a :

$$n_\gamma(\bar{A}) = N(\bar{A}) \times \left[\omega(\bar{A}) \times (1 + \alpha_{\bar{A}}) + \omega(A) \times (1 - \alpha_A) \right] \times \varepsilon_\gamma \quad (\text{B.13})$$

À partir des équations (B.12) et (B.13), on obtient alors l'expression de $\omega(A)$ [158, 262] :

$$\omega(A) = \frac{1}{2(\alpha_A + \alpha_{\bar{A}})} \left[\frac{n_\gamma(A)}{N(A)} (1 + \alpha_{\bar{A}}) - \frac{n_\gamma(\bar{A})}{N(\bar{A})} (1 - \alpha_{\bar{A}}) \right] \times \frac{1}{\varepsilon_\gamma} \quad (\text{B.14})$$

Un aspect important de ces équations est la prise en compte au premier ordre de l'asymétrie du dispositif expérimental [59] : $N(A) \neq N(\bar{A})$ (cf Figure 3.2).

Enfin, il convient de noter que les équations précédentes dépendent implicitement de l'énergie des fragments : $\omega(A) := \omega(A, \beta) := \omega(A, TKE)$. Ainsi, la multiplicité moyenne en fonction de la masse des fragments est donnée par :

$$\bar{M}_\gamma(A) = \frac{\sum_{TKE} \omega(A, TKE) \times [N(A, TKE) + N(\bar{A}, TKE)]}{\sum_{TKE} [N(A, TKE) + N(\bar{A}, TKE)]} \quad (\text{B.15})$$

La même analyse de données peut être mise en place pour l'énergie totale des γ prompts de fission. Pour cela, on note $\lambda_A = \alpha_E(\beta_A, \theta = 0) = -\alpha_E(\beta_A, \theta = \pi) = 3\beta_A$, et on obtient alors :

$$\omega_E(A, TKE) := \omega_E(A) = \frac{1}{2(\lambda_A + \lambda_{\bar{A}})} \left[\frac{E_\gamma(A)}{N(A)} (1 + \lambda_{\bar{A}}) - \frac{E_\gamma(\bar{A})}{N(\bar{A})} (1 - \lambda_{\bar{A}}) \right] \times \frac{1}{\varepsilon_\gamma} \quad (\text{B.16})$$

où E_γ désigne l'énergie totale des photons déposée dans le détecteur.

1. Bien que les γ prompts de fission soient émis par les fragments post-neutrons, il est nécessaire pour appliquer cette méthode d'étudier les fragments pré-neutrons, pour lesquels la masse du complémentaire est connue et unique.

B.3 Pertes d'énergie

Afin de proposer une description physique la plus complète possible, la perte d'énergie des fragments avant l'émission des γ prompts est prise en compte dans l'analyse des données [262]. Ainsi, la vitesse des fragments est estimée par :

$$\beta_A = \sqrt{2 \frac{KE}{A}} = \sqrt{\frac{2}{A} \left(\frac{\bar{A}}{A_{CN}} TKE - \Delta E(A, TKE) \right)} \quad (\text{B.17})$$

où ΔE est la perte d'énergie des fragments dans la chambre d'ionisation, estimée à l'aide du code SRIM [260]. D'une part, les fragments perdent une partie de leur énergie lors de leur trajet dans le gaz (méthane), en supposant que celui-ci dure 0.1 ns avant l'émission des γ prompts [59, 262]. D'autre part, les fragments indirects subissent une certaine perte d'énergie dans le support en Nickel, ce qui est également pris en compte [59, 262].

Cependant, la prise en compte rigoureuse de cette contribution dans la procédure décrite précédemment induit une asymétrie de second ordre dans la mesure où le support n'est présent que d'un côté de la chambre. Ainsi, si l'on note $\alpha_A^{(2)}$ l'anisotropie obtenue en prenant en compte la perte d'énergie dans le support, et $\alpha_A^{(1)}$ celle obtenue en prenant uniquement en compte la perte d'énergie dans le gaz, les équations (B.12) et (B.13) doivent respectivement être réécrites selon :

$$n_\gamma(A) = N(A) \times \left[\omega(A) \times \left(1 + \alpha_A^{(1)} \right) + \omega(\bar{A}) \times \left(1 - \alpha_A^{(2)} \right) \right] \times \varepsilon_\gamma \quad (\text{B.18})$$

$$n_\gamma(\bar{A}) = N(\bar{A}) \times \left[\omega(\bar{A}) \times \left(1 + \alpha_A^{(1)} \right) + \omega(A) \times \left(1 - \alpha_A^{(2)} \right) \right] \times \varepsilon_\gamma \quad (\text{B.19})$$

Comme cette perte d'énergie supplémentaire est faible devant l'énergie cinétique des fragments, on calcule que $(\alpha_A^{(1)} - \alpha_A^{(2)}) < 0.005$, et on peut donc utiliser l'approximation $(1 + \alpha_A^{(1)} - \alpha_A^{(2)}) \simeq 1$, afin d'obtenir :

$$\omega(A) = \frac{1}{2(\alpha_A^* + \alpha_{\bar{A}}^*)} \left[\frac{n_\gamma(A)}{N(A)} (1 + \alpha_A^*) - \frac{n_\gamma(\bar{A})}{N(\bar{A})} (1 - \alpha_{\bar{A}}^*) \right] \times \frac{1}{\varepsilon_\gamma} \quad (\text{B.20})$$

Cette équation est similaire à l'équation (B.14), à la différence que nous utilisons une anisotropie moyenne, qui prend en compte la perte d'énergie des fragments des deux côtés de la chambre d'ionisation : $\alpha_A^* = (\alpha_A^{(1)} + \alpha_A^{(2)})/2$.

B.4 Incertitudes

Enfin, plusieurs sources d'incertitudes sont à considérer dans cette procédure. Tout d'abord, le nombre de fragments $N(A)$ génère une incertitude statistique : $\sigma_N = \sqrt{N}$ (en supposant une distribution de Poisson). D'autre part, le nombre de photons émis par fragment, $\tilde{n}_\gamma = n_\gamma/\varepsilon_\gamma$, est déterminé par déconvolution des spectres de γ prompts de fission (voir Section 3.3.2). Cette déconvolution induit des incertitudes statistiques et systématiques, qui sont propagées pour chaque quantité $\omega(A, TKE)$ selon :

$$\sigma_\omega^2 = \sum_x \left(\frac{\partial \omega}{\partial x} \right)^2 \sigma_x^2 \quad (\text{B.21})$$

où x parcourt les 4 contributions supposées indépendantes : $N(A)$, $N(\bar{A})$, $\tilde{n}_\gamma(A)$ et $\tilde{n}_\gamma(\bar{A})$.

De plus, la vitesse β utilisée dans cette procédure est la vitesse pré-neutron des fragments, et non pas la vitesse post-neutron. Comme évoqué en Section 2.3.6, l'hypothèse selon laquelle la vitesse des fragments est inchangée par l'émission des neutrons n'est vraie qu'en moyenne, en

supposant que cette émission est isotrope [119]. Cette hypothèse induit alors une dispersion σ_β , qui a été estimée à l'aide de FIFRELIN, ainsi que la corrélation de cette dispersion entre deux fragments complémentaires. Ces valeurs ont été introduites dans la propagation des erreurs, en tant qu'incertitudes systématiques :

$$\sigma_{syst,\beta}^2 = \left(\frac{\partial\omega}{\partial\beta_A}\right)^2 \sigma_{\beta_A}^2 + \left(\frac{\partial\omega}{\partial\beta_{\bar{A}}}\right)^2 \sigma_{\beta_{\bar{A}}}^2 + 2 \left(\frac{\partial\omega}{\partial\beta_A}\right) \left(\frac{\partial\omega}{\partial\beta_{\bar{A}}}\right) \text{cov}(\beta_A, \beta_{\bar{A}}) \quad (\text{B.22})$$

$$= \frac{1}{(\beta_A + \beta_{\bar{A}})^2} \left[\omega_A^2 \sigma_{\beta_A}^2 + \omega_{\bar{A}}^2 \sigma_{\beta_{\bar{A}}}^2 - 2\omega_A \omega_{\bar{A}} \text{cov}(\beta_A, \beta_{\bar{A}}) \right] \quad (\text{B.23})$$

Enfin, l'estimation de la perte d'énergie des fragments dans le gaz de la chambre d'ionisation suppose que les γ prompts sont émis 0.1 ns après la fission, ce qui est une approximation conservatrice, dans la mesure où la plupart des photons sont émis plus tôt [130]. De ce fait, il est possible que la perte d'énergie soit surestimée dans notre procédure. Pour tenir compte de ce phénomène, une incertitude systématique a été introduite, qui correspond à la différence avec un calcul sans perte d'énergie dans le gaz [59] :

$$\sigma_\Delta = \left| \bar{M}_\gamma(A) - \bar{M}_\gamma(A, \Delta E_{gaz} = 0) \right| \quad (\text{B.24})$$

Schémas de niveaux nucléaires

Dans cette annexe sont regroupés les schémas de niveaux nucléaires simplifiés des isomères décrits en Section 3.4 (Figures C.1 à C.20). Ces schémas de niveaux sont extraits de la base de données NuDat3.0 [163].

Les transitions sélectionnées lors de l'analyse des coïncidences γ - γ et/ou des coïncidences retardées (voir les Sections 3.4.1 et 3.4.4, respectivement) sont indiquées en bleu. Des transitions supplémentaires, non utilisées dans l'analyse des données, sont indiquées en magenta.

Les Figures C.3 à C.20 ont été construites à l'aide du logiciel `lvl_builder`¹.

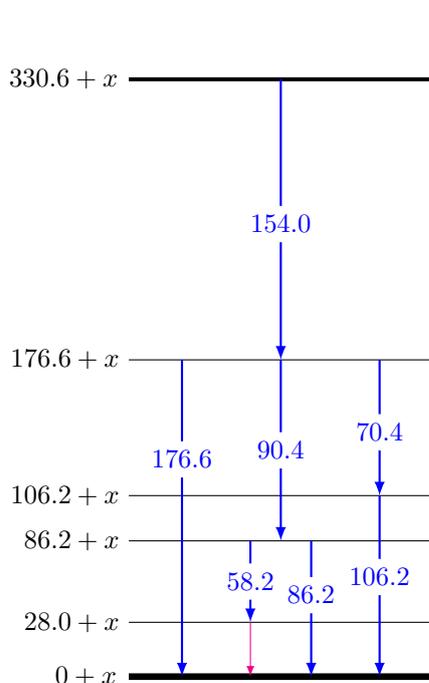


FIGURE C.1 – ^{108}Tc

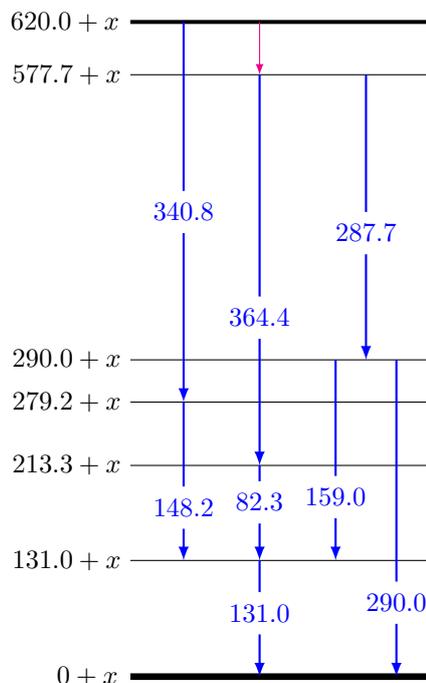


FIGURE C.2 – ^{146}La

1. P.-L. Tai, http://peiluan-tai.com/programs/lvl_builder.html

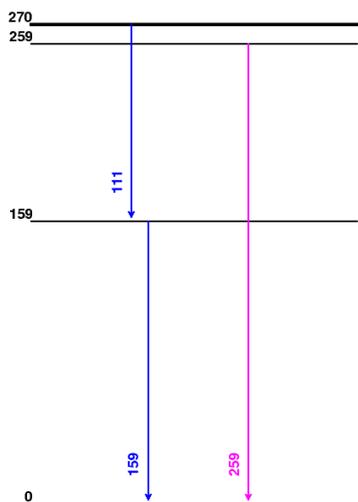


FIGURE C.3 – ^{88}Br

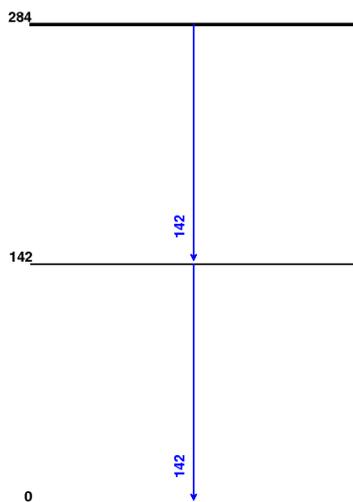


FIGURE C.4 – ^{92}Rb

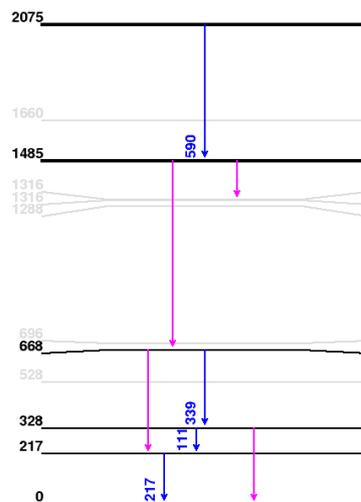


FIGURE C.5 – ^{94}Rb

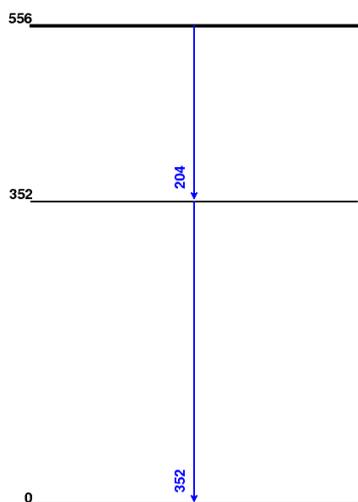


FIGURE C.6 – ^{95}Sr

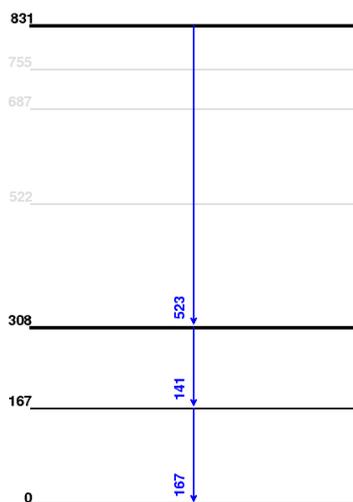


FIGURE C.7 – ^{97}Sr

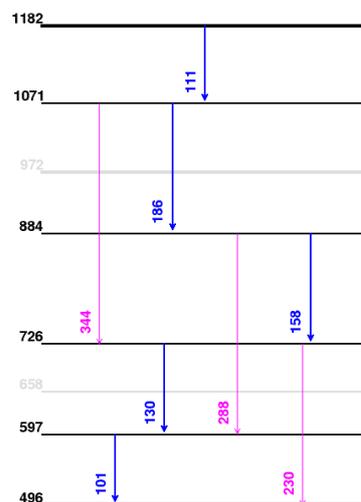


FIGURE C.8 – ^{98}Y

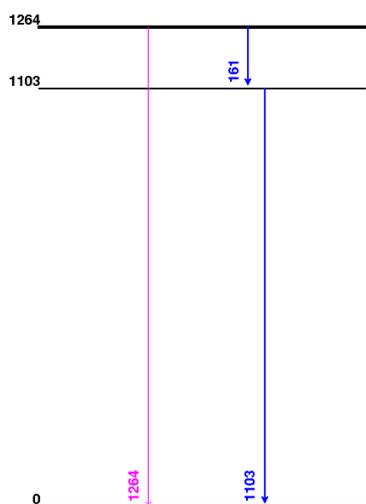


FIGURE C.9 – ^{97}Zr

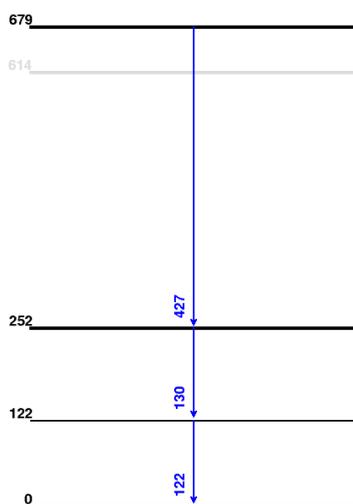


FIGURE C.10 – ^{99}Zr

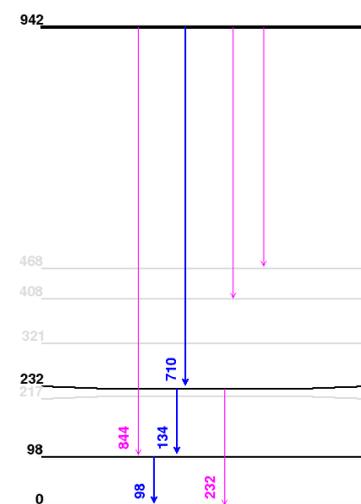


FIGURE C.11 – ^{101}Zr

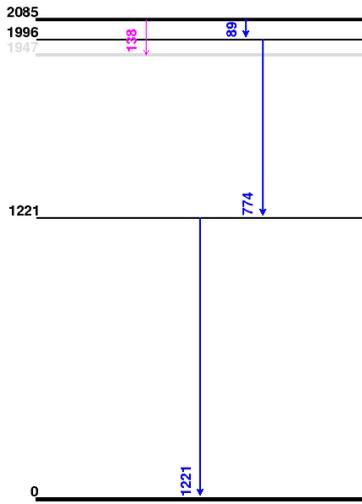


FIGURE C.12 – ^{130}Sn

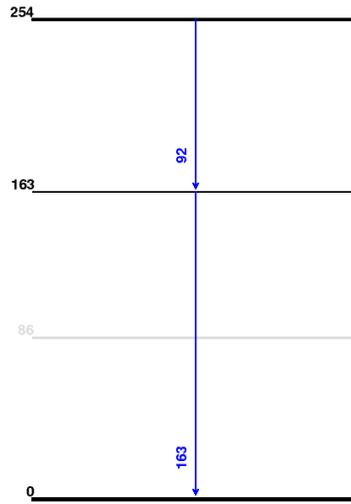


FIGURE C.13 – ^{132}Sb

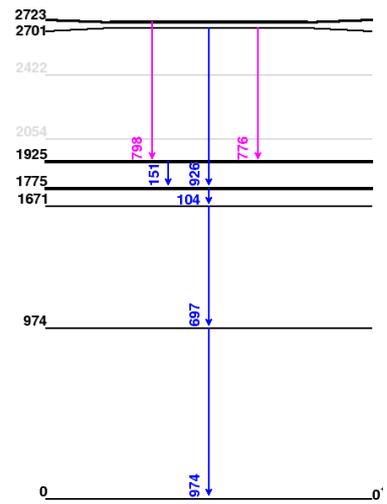


FIGURE C.14 – ^{132}Te



FIGURE C.15 – ^{133}Te



FIGURE C.16 – ^{134}Te

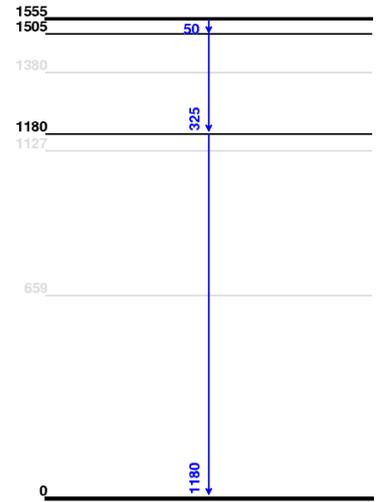


FIGURE C.17 – ^{135}Te

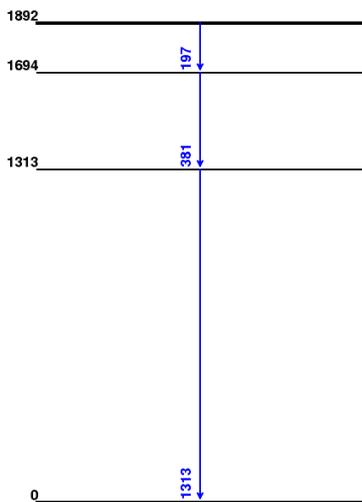


FIGURE C.18 – ^{136}Xe



FIGURE C.19 – ^{137}Xe

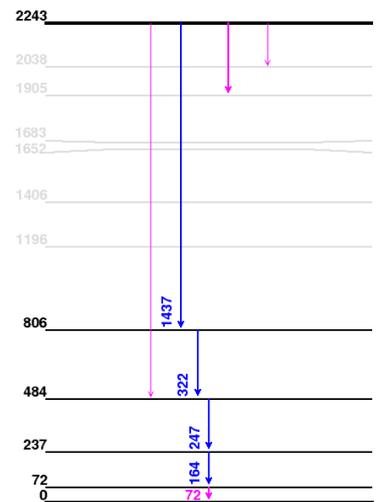


FIGURE C.20 – ^{152}Nd

Caractéristiques moyennes des PFGS obtenus avec VESPA

Le tableau D.1 récapitule les caractéristiques moyennes des PFGS obtenus avec l'ensemble des détecteurs de VESPA. Une partie de ces données apparaissent par ailleurs en Figure 3.7 et dans les Tableaux 3.4 et 3.5 du présent manuscrit.

Détecteur	\bar{M}_γ (γ /fission)	$E_{\gamma,tot}$ (MeV/fission)	ε_γ (MeV)	ΔE_γ (MeV)	Δt (ns)
A11218	$8.51^{+0.06}_{-0.11}$	$7.00^{+0.05}_{-0.09}$	0.82 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–5; +5]
	$8.37^{+0.07}_{-0.08}$	$6.89^{+0.06}_{-0.07}$	0.82 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–3; +3]
	$8.38^{+0.07}_{-0.11}$	$6.98^{+0.05}_{-0.09}$	0.83 ± 0.01	0.1 – 7.0	[–5; +5]
A14400	$9.03^{+0.12}_{-0.15}$	$7.35^{+0.09}_{-0.12}$	0.81 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–5; +5]
	$8.90^{+0.11}_{-0.14}$	$7.33^{+0.09}_{-0.12}$	0.82 ± 0.01	0.1 – 7.0	[–5; +5]
	8.87 ± 0.12	7.25 ± 0.10	0.82 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–3; +3]
IKDA	7.96 ± 0.08	6.63 ± 0.07	0.83 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–5; +5]
	7.86 ± 0.08	6.62 ± 0.07	0.84 ± 0.01	0.1 – 7.0	[–5; +5]
	7.82 ± 0.04	6.54 ± 0.03	0.84 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–3; +3]
Q489	9.30 ± 0.20	7.67 ± 0.16	0.82 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–5; +2.5]
	9.20 ± 0.20	7.65 ± 0.16	0.83 ± 0.01	0.1 – 7.0	[–5; +2.5]
Q491	9.27 ± 0.22	7.68 ± 0.18	0.83 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–5; +2.5]
	9.17 ± 0.22	7.67 ± 0.18	0.84 ± 0.01	0.1 – 7.0	[–5; +2.5]
5414	9.21 ± 0.20	7.66 ± 0.16	0.83 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–5; +2.5]
	9.11 ± 0.20	7.65 ± 0.16	0.84 ± 0.01	0.1 – 7.0	[–5; +2.5]
5415	9.22 ± 0.21	7.60 ± 0.17	0.82 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–5; +2.5]
	9.11 ± 0.21	7.59 ± 0.18	0.83 ± 0.01	0.1 – 7.0	[–5; +2.5]
5416	9.23 ± 0.20	7.56 ± 0.16	0.82 ± 0.01	0.08 – 8.0	[–5; +2.5]
	9.13 ± 0.19	7.54 ± 0.16	0.83 ± 0.01	0.1 – 7.0	[–5; +2.5]

TABLEAU D.1 – Observables γ moyennes obtenues après déconvolution des spectres γ mesurés avec VESPA, pour différentes coupures en temps et en énergie.

Remarques sur l'étude et le calcul de corrélations

Les corrélations neutron/ γ peuvent être étudiées événement par événement (voir [246]) ou bien fragment par fragment (voir [154]). Dans le second cas, une troisième variable, l'énergie d'excitation, est implicitement utilisée (voir Section 5.3.2.3).

Ainsi, dans cette annexe, différents *toy models* seront utilisés afin d'illustrer la différence entre ces deux calculs de corrélations. Nous allons en particulier montrer comment l'analyse fragment par fragment peut induire des corrélations artificielles entre les deux variables étudiées, du fait de la présence d'une variable tierce.

Un *toy model* est un calcul Monte-Carlo simple, qui consiste donc à échantillonner un ensemble de variables aléatoires N fois (ici $N = 10^6$) pour étudier différentes valeurs d'intérêt. Le générateur de nombre aléatoire utilisé ici est le générateur TRandom3¹ de ROOT.

Pour commencer, nous allons raisonner sur un cas très simple, où X et Y sont deux variables aléatoires indépendantes, qui suivent une distribution normale de moyenne $\mu = 50$ et d'écart-type $\sigma = 20$. Nous introduisons alors une troisième variable Z égale à la somme des deux précédentes : $Z = X + Y$. Les corrélations entre X et Y sont représentées en Figure E.1.

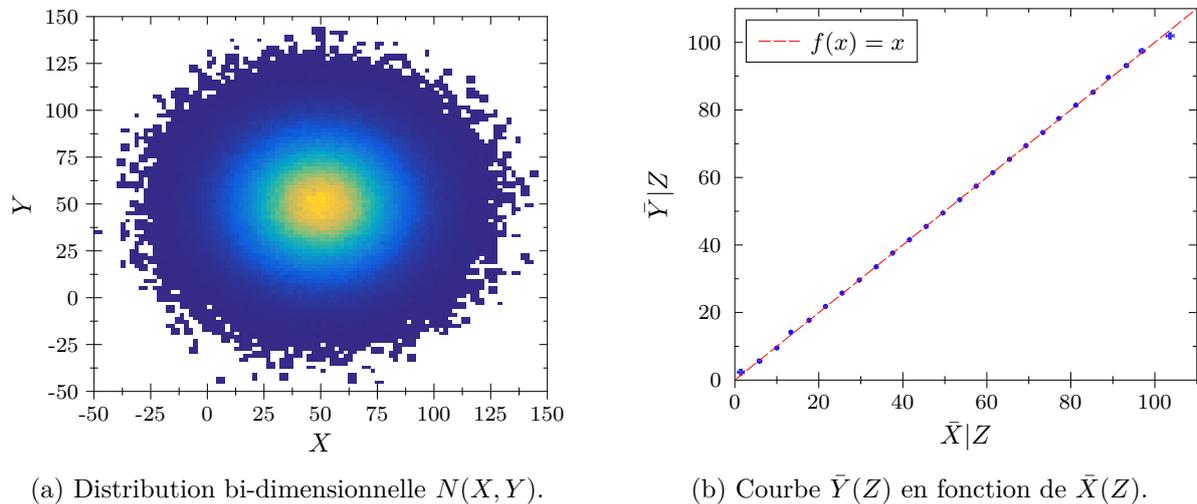


FIGURE E.1 – Corrélations entre X et Y , événement par événement et à partir de $Z = X + Y$.

Dans le cadre de l'étude événement par événement de ces variables, on calcule le coefficient de corrélation, défini par :

$$\text{corr}(X, Y) = \frac{\text{cov}(X, Y)}{\sigma_X \sigma_Y} = \frac{\sum_i (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{[\sum_i (x_i - \bar{x})^2][\sum_i (y_i - \bar{y})^2]}} \quad (\text{E.1})$$

Ainsi, à l'issue de ce calcul, on obtient bien que $\text{corr}(X, Y) = 0$, étant donné que les variables sont indépendantes. Cette absence de corrélation s'observe également sur la distribution

1. <https://root.cern.ch/doc/master/classTRandom3.html>

bi-dimensionnelle de ces variables, représentée en Figure E.1a. Néanmoins, si l'on représente $\bar{Y} = E(Y|Z)$ en fonction de $\bar{X} = E(X|Z)$, on obtient une relation parfaitement linéaire, comme représenté en Figure E.1b. En effet, X et Y ont par construction un rôle symétrique, d'où : $E(X|Z) = E(Y|Z) = Z/2$.

Ainsi, nous voyons à travers cet exemple que \bar{X} et \bar{Y} peuvent être linéairement liés alors que X et Y sont indépendants. Cet effet est provoqué par l'introduction de la variable Z , qui dépend de ces deux variables.

Pour aller plus loin dans l'étude des corrélations, nous allons utiliser un *toy model* plus élaboré, et un peu plus représentatif de l'émission des neutrons et des γ prompts de fission.

Dans ce nouveau modèle, la variable-somme Z n'est plus calculée à partir de X et Y , mais est échantillonnée à partir d'une distribution normale de moyenne $\mu_Z = 100$ et d'écart-type $\sigma_Z = 20$. Les variables d'intérêt X et Y sont ensuite définies selon :

$$X = \frac{1}{2}Z + \sigma_X \times G \quad \text{et} \quad Y = Z - aX \quad (\text{E.2})$$

où G est une variable aléatoire qui suit une loi normale centrée réduite ($\mu = 0$ et $\sigma = 1$). σ_X et a sont alors des paramètres du modèle, dont nous allons étudier l'impact sur la corrélation entre X et Y , et \bar{X} et \bar{Y} . Pour cela, trois paramétrages différents ont été utilisés, et sont représentés dans les Figures E.2, E.3a et E.4.

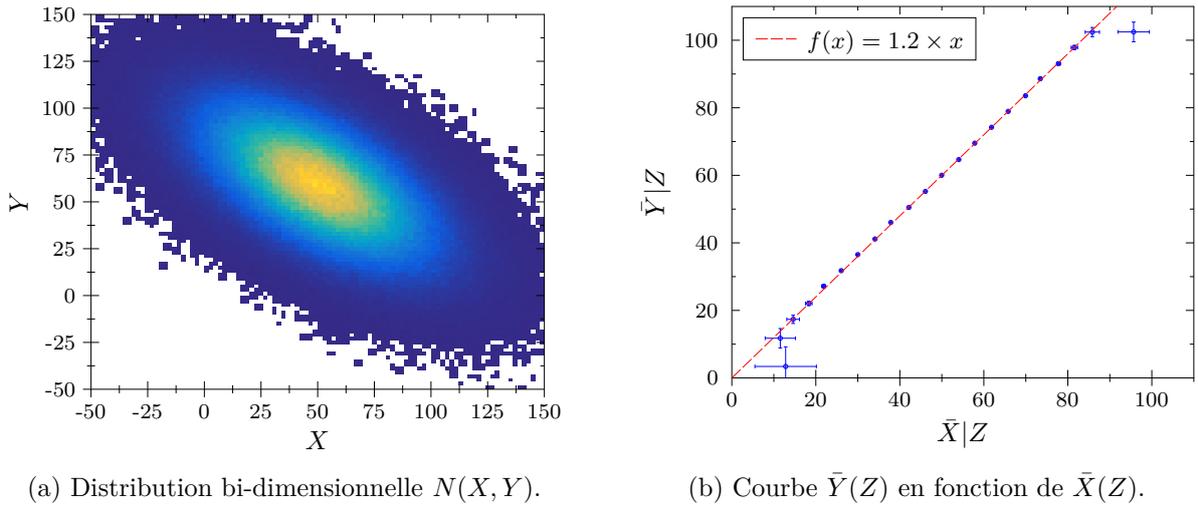


FIGURE E.2 – Corrélations entre X et Y , événement par événement et à partir de la variable Z , avec $a = 0.8$ et $\sigma_X = 25$. La corrélation événement par événement vaut $\text{corr}(X, Y) = -0.6$.

Pour commencer, nous pouvons montrer qu'une telle relation entre X , Y et Z induit une relation linéaire entre \bar{X} et \bar{Y} . En effet :

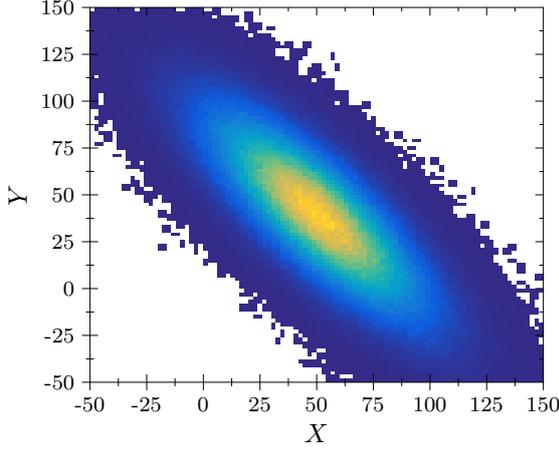
$$E(X|Z) = \frac{1}{n} \sum_i x_{i,z=Z} = Z/2 \quad (\text{E.3})$$

$$E(Y|Z) = \frac{1}{n} \sum_i y_{i,z=Z} = \frac{1}{n} \sum_i (Z - a \times x_{i,z=Z}) = Z(1 - a/2) \quad (\text{E.4})$$

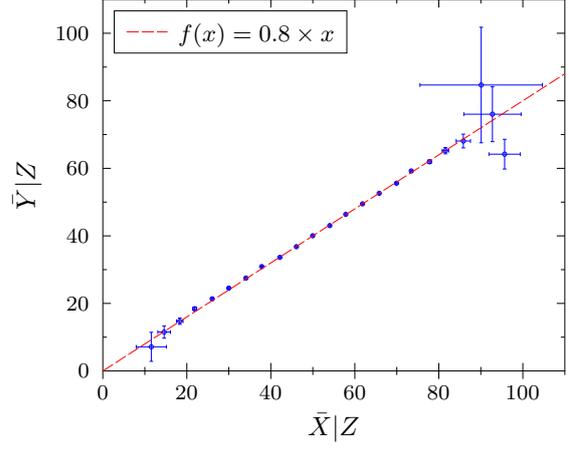
et donc :

$$E(Y|Z) = E(X|Z) \times (2 - a) \quad (\text{E.5})$$

Ainsi, la pente entre \bar{X} et \bar{Y} est directement liée au paramètre a . Ainsi, les Figures E.2b et E.3b représentent les droites $\bar{Y}(\bar{X})$ obtenues pour $a = 0.8$ et $a = 1.2$, respectivement (avec

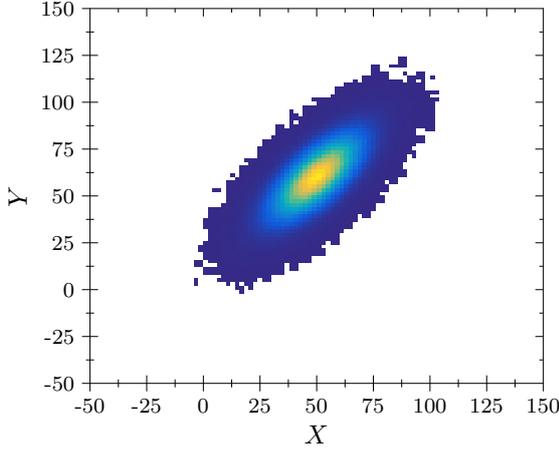


(a) Distribution bi-dimensionnelle $N(X, Y)$.

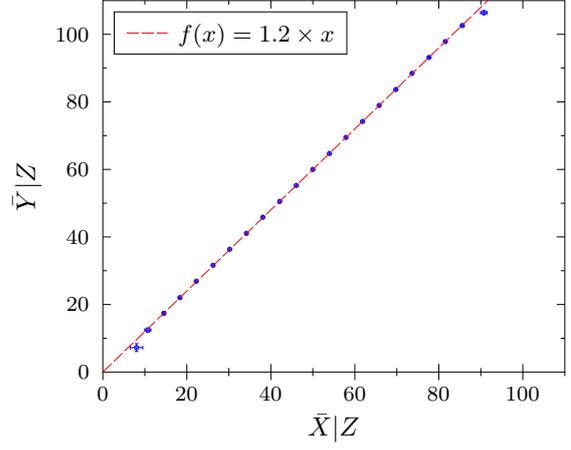


(b) Courbe $\bar{Y}(Z)$ en fonction de $\bar{X}(Z)$.

FIGURE E.3 – Corrélations entre X et Y , événement par événement et à partir de la variable Z , avec $a = 1.2$ et $\sigma_X = 25$. La corrélation événement par événement vaut $\text{corr}(X, Y) = -0.8$.



(a) Distribution bi-dimensionnelle $N(X, Y)$.



(b) Courbe $\bar{Y}(Z)$ en fonction de $\bar{X}(Z)$.

FIGURE E.4 – Corrélations entre X et Y , événement par événement et à partir de la variable Z , avec $a = 0.8$ et $\sigma_X = 5$. La corrélation événement par événement vaut $\text{corr}(X, Y) = 0.7$.

$\sigma_X = 25$ dans les deux cas). On remarque que la pente observée entre ces deux observables est bien en accord avec la relation (E.5). On remarque également en Figures E.2a et E.3a que la corrélation réelle entre X et Y dépend également de a .

En effet, la covariance entre les variables X et Y s'exprime selon :

$$\text{cov}(X, Y) = \text{cov}\left(\frac{Z}{2} + \sigma_X G, Z\left[1 - \frac{a}{2}\right] - a\sigma_X G\right) \quad (\text{E.6})$$

$$= \frac{1}{2} \left[1 - \frac{a}{2}\right] \text{cov}(Z, Z) - a\sigma_X^2 \text{cov}(G, G) \quad (\text{E.7})$$

$$= \left(\frac{1}{2} - \frac{a}{4}\right) \sigma_Z^2 - a\sigma_X^2 \quad (\text{E.8})$$

Nous voyons donc que $\text{cov}(X, Y)$ dépend non seulement de a , mais également de σ_X , et donc de la largeur de la distribution associée à la variable X . Ainsi, en changeant ce paramètre, la corrélation entre X et Y peut devenir positive, comme représenté en Figure E.4a, sans que cela impacte \bar{X} , \bar{Y} , ni la pente de la droite $\bar{Y}(\bar{X})$ (voir la Figure E.4b, par comparaison avec la Figure E.2b).

Bibliographie

- [1] O. Hahn et F. Strassmann, *Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle*, *Naturwissenschaften* **27**(1), 11–15 (1939).
- [2] L. Meitner et O. R. Frisch, *Disintegration of Uranium by Neutrons : a New Type of Nuclear Reaction*, *Nature* **143**(3615), 239–240 (1939).
- [3] N. Bohr, *Neutron Capture and Nuclear Constitution*, *Nature* **137**(3461), 344–348 (1936).
- [4] O. R. Frisch, *Physical Evidence for the Division of Heavy Nuclei under Neutron Bombardment*, *Nature* **143**(3616), 276–276 (1939).
- [5] N. Bohr et J. A. Wheeler, *The Mechanism of Nuclear Fission*, *Physical Review* **56**(5), 426–450 (1939).
- [6] C. Wagemans, ed., *The Nuclear Fission Process*, CRC Press (1991).
- [7] V. M. Strutinsky, *Shell effects in nuclear masses and deformation energies*, *Nuclear Physics A* **95**(2), 420–442 (1967).
- [8] V. M. Strutinsky, “Shells” in deformed nuclei, *Nuclear Physics A* **122**(1), 1–33 (1968).
- [9] A. V. Karpov, A. Kelić et K.-H. Schmidt, *On the topographical properties of fission barriers*, *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics* **35**(3), 035104 (2008).
- [10] A. N. Andreyev, K. Nishio et K.-H. Schmidt, *Nuclear fission : a review of experimental advances and phenomenology*, *Reports on Progress in Physics* **81**(1), 016301 (2018).
- [11] A. Michaudon, “Nuclear Fission”. Dans M. Baranger et E. Vogt (dir.), *Advances in Nuclear Physics*, vol. 6, Springer US, p. 1–217 (1973).
- [12] U. Brosa, S. Grossmann et A. Müller, *Nuclear scission*, *Physics Reports* **197**(4), 167–262 (1990).
- [13] F.-J. Hambsch, A. Tudora, G. Vladuca et S. Oberstedt, *Prompt fission neutron spectrum evaluation for $^{252}\text{Cf}(sf)$ in the frame of the multi-modal fission model*, *Annals of Nuclear Energy* **32**(10), 1032–1046 (2005).
- [14] P. Reuss, *Précis de Neutronique*, EDP Sciences (2003).
- [15] S. Vermote, C. Wagemans, O. Serot et al., *Ternary particle emission in spontaneous fission of ^{250}Cf and ^{252}Cf and in neutron induced fission of ^{249}Cf and ^{251}Cf* , *Nuclear Physics A* **837**(3), 176–194 (2010).
- [16] N. Kornilov, *Fission Neutrons : Experiments, Evaluation, Modeling and Open Problems*, Springer International Publishing (2015).
- [17] N. Schunck et D. Regnier, *Theory of nuclear fission*, *Progress in Particle and Nuclear Physics* **125**, 103963 (2022).
- [18] B. D. Wilkins, E. P. Steinberg et R. R. Chasman, *Scission-point model of nuclear fission based on deformed-shell effects*, *Phys. Rev. C* **14**(5), 1832–1863 (1976).
- [19] J.-F. Lemaître, S. Goriely, S. Hilaire et J.-L. Sida, *Fully microscopic scission-point model to predict fission fragment observables*, *Phys. Rev. C* **99**(3), 034612 (2019).
- [20] Y. Abe, S. Ayik, P.-G. Reinhard et E. Suraud, *On stochastic approaches of nuclear dynamics*, *Physics Reports* **275**(2), 49–196 (1996).

- [21] M. D. Usang, F. A. Ivanyuk, C. Ishizuka et S. Chiba, *Effects of microscopic transport coefficients on fission observables calculated by the Langevin equation*, *Phys. Rev. C* **94**(4), 044602 (2016).
- [22] A. J. Sierk, *Langevin model of low-energy fission*, *Phys. Rev. C* **96**(3), 034603 (2017).
- [23] J. Randrup et P. Möller, *Brownian Shape Motion on Five-Dimensional Potential-Energy Surfaces :Nuclear Fission-Fragment Mass Distributions*, *Phys. Rev. Lett.* **106**(13), 132503 (2011).
- [24] M. Verrière et M. R. Mumpower, *Improvements to the macroscopic-microscopic approach of nuclear fission*, *Phys. Rev. C* **103**(3), 034617 (2021).
- [25] N. Schunck et L. M. Robledo, *Microscopic theory of nuclear fission : a review*, *Reports on Progress in Physics* **79**(11), 116301 (2016).
- [26] H. Goutte, J. F. Berger, P. Casoli et D. Gogny, *Microscopic approach of fission dynamics applied to fragment kinetic energy and mass distributions in ^{238}U* , *Phys. Rev. C* **71**(2), 024316 (2005).
- [27] D. Regnier, N. Dubray, N. Schunck et M. Verrière, *Fission fragment charge and mass distributions in $^{239}\text{Pu}(n,f)$ in the adiabatic nuclear energy density functional theory*, *Phys. Rev. C* **93**(5), 054611 (2016).
- [28] M. Verrière, N. Schunck et D. Regnier, *Microscopic calculation of fission product yields with particle-number projection*, *Phys. Rev. C* **103**(5), 054602 (2021).
- [29] C. Simenel et A. S. Umar, *Formation and dynamics of fission fragments*, *Phys. Rev. C* **89**(3), 031601 (2014).
- [30] A. Bulgac, S. Jin, K. J. Roche et al., *Fission dynamics of ^{240}Pu from saddle to scission and beyond*, *Phys. Rev. C* **100**(3), 034615 (2019).
- [31] A. Bulgac, S. Jin et I. Stetcu, *Nuclear Fission Dynamics : Past, Present, Needs, and Future*, *Frontiers in Physics* **8**, 63 (2020).
- [32] R. Bernard, H. Goutte, D. Gogny et W. Younes, *Microscopic and nonadiabatic Schrödinger equation derived from the generator coordinate method based on zero- and two-quasiparticle states*, *Phys. Rev. C* **84**(4), 044308 (2011).
- [33] D. Regnier, N. Dubray, M. Verrière et N. Schunck, *FELIX-2.0 : New version of the finite element solver for the time dependent generator coordinate method with the Gaussian overlap approximation*, *Computer Physics Communications* **225**, 180–191 (2018).
- [34] G. Scamps et C. Simenel, *Impact of pear-shaped fission fragments on mass-asymmetric fission in actinides*, *Nature* **564**(7736), 382–385 (2018).
- [35] N. Schunck, “Theory of Fission Product Yields”. Dans *FIESTA Fission School & Workshop*, LANL (2017).
- [36] A. Tudora et F. J. Hambsch, *Comprehensive overview of the Point-by-Point model of prompt emission in fission*, *Eur. Phys. J. A* **53**(8), 159 (2017).
- [37] D. G. Madland et J. R. Nix, *New Calculation of Prompt Fission Neutron Spectra and Average Prompt Neutron Multiplicities*, *Nuclear Science and Engineering* **81**(2), 213–271 (1982).
- [38] V. Weisskopf, *Statistics and Nuclear Reactions*, *Physical Review* **52**(4), 295–303 (1937).
- [39] R. Capote, Y.-J. Chen, F.-J. Hambsch et al., *Prompt Fission Neutron Spectra of Actinides*, *Nuclear Data Sheets* **131**, 1–106 (2016).
- [40] J. M. Verbeke, J. Randrup et R. Vogt, *Fission Reaction Event Yield Algorithm, FREYA — For event-by-event simulation of fission*, *Computer Physics Communications* **191**, 178–202 (2015).

- [41] J. M. Verbeke, J. Randrup et R. Vogt, *Fission Reaction Event Yield Algorithm FREYA 2.0.2*, *Computer Physics Communications* **222**, 263–266 (2018).
- [42] J. Randrup et R. Vogt, *Refined treatment of angular momentum in the event-by-event fission model FREYA*, *Phys. Rev. C* **89**(4), 044601 (2014).
- [43] R. Capote *et al.*, *RIPPL – Reference Input Parameter Library for Calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations*, *Nuclear Data Sheets* **110**(12), 3107–3214 (2009).
- [44] R. Vogt et J. Randrup, *Improved modeling of photon observables with the event-by-event fission model FREYA*, *Phys. Rev. C* **96**(6), 064620 (2017).
- [45] R. Vogt et J. Randrup, *Angular momentum effects in fission*, *Phys. Rev. C* **103**(1), 014610 (2021).
- [46] B. Becker, P. Talou, T. Kawano *et al.*, *Monte Carlo Hauser-Feshbach predictions of prompt fission γ rays : Application to $n_{th}+^{235}\text{U}$, $n_{th}+^{239}\text{Pu}$, and $^{252}\text{Cf}(sf)$* , *Phys. Rev. C* **87**(1), 014617 (2013).
- [47] P. Talou, I. Stetcu, P. Jaffke *et al.*, *Fission fragment decay simulations with the CGMF code*, *Computer Physics Communications* **269**, 108087 (2021).
- [48] W. Hauser et H. Feshbach, *The Inelastic Scattering of Neutrons*, *Physical Review* **87**(2), 366–373 (1952).
- [49] T. Kawano, P. Talou, M. B. Chadwick et T. Watanabe, *Monte Carlo Simulation for Particle and γ -Ray Emissions in Statistical Hauser-Feshbach Model*, *J. Nucl. Sci. Technol.* **47**(5), 462–469 (2010).
- [50] T. Kawano, “CoH3 : The Coupled-Channels and Hauser-Feshbach Code”. Dans J. Escher *et al.* (dir.), *Proceedings of the 6th International Workshop on Compound-Nuclear Reactions and Related Topics CNR*18*, Springer Proceedings in Physics vol. 254, Springer International Publishing, p. 27–34 (2021).
- [51] A. E. Lovell, T. Kawano, S. Okumura *et al.*, *Extension of the Hauser-Feshbach fission fragment decay model to multichance fission*, *Phys. Rev. C* **103**(1), 014615 (2021).
- [52] S. Okumura, T. Kawano, P. Jaffke *et al.*, *$^{235}\text{U}(n,f)$ Independent fission product yield and isomeric ratio calculated with the statistical Hauser-Feshbach theory*, *J. Nucl. Sci. Technol.* **55**(9), 1009–1023 (2018).
- [53] O. Litaize et O. Serot, *Investigation of phenomenological models for the Monte Carlo simulation of the prompt fission neutron and γ emission*, *Phys. Rev. C* **82**(5), 054616 (2010).
- [54] O. Litaize, O. Serot et L. Berge, *Fission modelling with FIFRELIN*, *Eur. Phys. J. A* **51**(12), 177 (2015).
- [55] K.-H. Schmidt, B. Jurado, C. Amouroux et C. Schmitt, *General Description of Fission Observables : GEF Model Code*, *Nuclear Data Sheets* **131**, 107–221 (2016).
- [56] K.-H. Schmidt, B. Jurado et C. Schmitt, *General description of fission observables : The GEF code*, *EPJ Web of Conferences* **146**, 04001 (2017).
- [57] K.-H. Schmidt et B. Jurado, *Entropy Driven Excitation Energy Sorting in Superfluid Fission Dynamics*, *Phys. Rev. Lett.* **104**(21), 212501 (2010).
- [58] A. Göök, F.-J. Hamsch, S. Oberstedt et M. Vidali, *Prompt neutrons in correlation with fission fragments from $^{235}\text{U}(n,f)$* , *Phys. Rev. C* **98**, 044615 (2018).
- [59] M. Travar, V. Piau, A. Göök *et al.*, *Experimental information on mass- and TKE-dependence of the prompt fission γ -ray multiplicity*, *Phys. Lett. B* **817**, 136293 (2021).
- [60] L. Gaudefroy, T. Roger, J. Pancin *et al.*, *A twin Frisch-grid ionization chamber as a selective detector for the delayed gamma-spectroscopy of fission fragments*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **855**, 133–139 (2017).

- [61] A. Al-Adili, D. Tarrío, K. Jansson *et al.*, *Prompt fission neutron yields in thermal fission of ^{235}U and spontaneous fission of ^{252}Cf* , *Phys. Rev. C* **102**, 064610 (2020).
- [62] A. Gavron, *Correction of experimental results in fission experiments : I. Dispersion corrections*, *Nuclear Instruments and Methods* **115**(1), 93–98 (1974).
- [63] D. Doré, F. Farget, F.-R. Lecolley *et al.*, *FALSTAFF : A New Tool for Fission Fragment Characterization*, *Nuclear Data Sheets* **119**, 346–348 (2014).
- [64] L. Thulliez, *Caractérisation des fragments de fission et développement du dispositif expérimental FALSTAFF*. *Thèse de doctorat*, Université Paris-Saclay (2017).
- [65] C. W. Arnold, F. Tovesson, K. Meierbachtol *et al.*, *Development of position-sensitive time-of-flight spectrometer for fission fragment research*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **764**, 53–58 (2014).
- [66] K. Meierbachtol, F. Tovesson, D. Shields *et al.*, *The SPIDER fission fragment spectrometer for fission product yield measurements*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **788**, 59–66 (2015).
- [67] S. G. Warren, *Development of the STEFF detector for the neutron Time Of Flight facility (n_TOF)*, *CERN*. *Thèse de doctorat*, University of Manchester (2016). [CERN-THESIS-2016-368](#).
- [68] N. V. Sosnin, *Atomic Number and Gamma-ray Measurements from Neutron-induced Fission at the ILL and n_ToF* . *Thèse de doctorat*, University of Manchester (2020). [CERN-THESIS-2020-108](#).
- [69] M. Frégeau, S. Oberstedt, T. Gamboni *et al.*, *First results from the new double velocity–double energy spectrometer VERDI*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **817**, 35–41 (2016).
- [70] A. Al-Adili, K. Jansson, D. Tarrío *et al.*, *Studying fission neutrons with 2E-2v and 2E*, *EPJ Web of Conferences* **169**, 00002 (2018).
- [71] A. Chebboubi, *Contribution à l'étude de la fission nucléaire : de LOHENGRIN à FIPPS*. *Thèse de doctorat*, Université Grenoble Alpes (2015).
- [72] A. Chebboubi, G. Kessedjian, O. Litaize *et al.*, *Kinetic energy dependence of fission fragment isomeric ratios for spherical nuclei ^{132}Sn* , *Phys. Lett. B* **775**, 190–195 (2017).
- [73] J. N. Nicholson, *Determination of fission fragment angular momentum from isomeric ratio measurement*. *Thèse de doctorat*, Université Grenoble Alpes (2021).
- [74] G. Boutoux, G. Bélier, A. Chatillon *et al.*, *The SOFIA Experiment*, *Physics Procedia* **47**, 166–171 (2013).
- [75] E. Pellereau, J. Taïeb, A. Chatillon *et al.*, *Accurate isotopic fission yields of electromagnetically induced fission of ^{238}U measured in inverse kinematics at relativistic energies*, *Phys. Rev. C* **95**(5), 054603 (2017).
- [76] K. Boretzky, I. Gašparić, M. Heil *et al.*, *NeuLAND : The high-resolution neutron time-of-flight spectrometer for R3B at FAIR*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **1014**, 165701 (2021).
- [77] M. Rejmund, B. Lecornu, A. Navin *et al.*, *Performance of the improved larger acceptance spectrometer : VAMOS++*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **646**(1), 184–191 (2011).
- [78] M. Caamaño, O. Delaune, F. Farget *et al.*, *Isotopic yield distributions of transfer- and fusion-induced fission from $^{238}\text{U}+^{12}\text{C}$ reactions in inverse kinematics*, *Phys. Rev. C* **88**(2), 024605 (2013).
- [79] D. Ramos, M. Caamaño, F. Farget *et al.*, *Isotopic fission-fragment distributions of ^{238}U , ^{239}Np , ^{240}Pu , ^{244}Cm , and ^{250}Cf produced through inelastic scattering, transfer, and fusion reactions in inverse kinematics*, *Phys. Rev. C* **97**(5), 054612 (2018).
- [80] M. Jandel, B. Baramsai, T. A. Bredeweg *et al.*, *Correlated fission data measurements with DANCE and NEUANCE*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **882**, 105–113 (2018).

- [81] M. Heil, R. Reifarh, M. M. Fowler *et al.*, *A 4π BaF₂ detector for (n,γ) cross-section measurements at a spallation neutron source*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **459**(1), 229–246 (2001).
- [82] M. Lebois, N. Jovančević, D. Thisse *et al.*, *The ν -ball γ -spectrometer*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **960**, 163580 (2020).
- [83] J. Wilson, D. Thisse, M. Lebois *et al.*, *High resolution gamma-ray spectroscopy of fast-neutron induced fission*, *EPJ Web of Conferences* **256**, 00019 (2021).
- [84] K. J. Kelly, M. Devlin, J. M. O’Donnell *et al.*, *Measurement of the $^{239}\text{Pu}(n,f)$ prompt fission neutron spectrum from 10 keV to 10 MeV induced by neutrons of energy 1–20 MeV*, *Phys. Rev. C* **102**(3), 034615 (2020).
- [85] M. J. Marath, R. C. Haight, R. Vogt *et al.*, *Measured and simulated $^{252}\text{Cf}(sf)$ prompt neutron-photon competition*, *Phys. Rev. C* **97**(4), 044622 (2018).
- [86] A. Mattera, S. Zhu, A. Hayes et E. Mccutchan, *Nuclear Data Sheets for A=252*, *Nuclear Data Sheets* **172**, 543–587 (2021).
- [87] E. V. D. van Loef, P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk *et al.*, *High-energy-resolution scintillator : Ce^{3+} activated LaBr_3* , *Applied Physics Letters* **79**(10), 1573–1575 (2001).
- [88] E. V. D. van Loef, P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk *et al.*, *Scintillation properties of $\text{LaBr}_3:\text{Ce}^{3+}$ crystals : fast, efficient and high-energy-resolution scintillators*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **486**(1-2), 254–258 (2002).
- [89] K. S. Shah, J. Glodo, M. Klugerman *et al.*, *$\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ scintillators for gamma-ray spectroscopy*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **50**(6), 2410–2413 (2003).
- [90] G. Bizarri et P. Dorenbos, *Charge carrier and exciton dynamics in $\text{LaBr}_3:\text{Ce}^{3+}$ scintillators : Experiment and model*, *Phys. Rev. B* **75**(18), 184302 (2007).
- [91] P. Li, S. Gridin, K. B. Ucer *et al.*, *Picosecond absorption spectroscopy of self-trapped excitons and transient Ce states in LaBr_3 and $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$* , *Phys. Rev. B* **97**(14), 144303 (2018).
- [92] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4ème édition, John Wiley & Sons (2010).
- [93] G. G. Gilmore, *Practical Gamma-ray Spectrometry*, 2nde édition, John Wiley & Sons (2008).
- [94] J. Glodo, W. W. Moses, W. M. Higgins *et al.*, *Effects of Ce concentration on scintillation properties of $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$* , *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **52**(5), 1805–1808 (2005).
- [95] P. Lecoq, “Scintillation Detectors for Charged Particles and Photons”. Dans C. W. Fabjan et H. Schopper (dir.), *Particle Physics Reference Library : Volume 2 : Detectors for Particles and Radiation*, Springer International Publishing, p. 45–89 (2020).
- [96] J. T. M. de Haas et P. Dorenbos, *Methods for Accurate Measurement of the Response of Photomultiplier Tubes and Intensity of Light Pulses*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **58**(3), 1290–1296 (2011).
- [97] P. R. Menge, G. Gautier, A. Iltis *et al.*, *Performance of large lanthanum bromide scintillators*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **579**(1), 6–10 (2007).
- [98] R. De Leo, L. Lagamba et R. Perrino, *Time resolution of a scintillator-photodetector assembly*, *The European Physical Journal Plus* **135**(1), 14 (2020).
- [99] R. Nicolini, F. Camera, N. Blasi *et al.*, *Investigation of the properties of a $1''\times 1''$ $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ scintillator*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **582**(2), 554–561 (2007).
- [100] B. D. Milbrath, R. C. Runkle, T. W. Hossbach *et al.*, *Characterization of alpha contamination in lanthanum trichloride scintillators using coincidence measurements*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **547**(2-3), 504–510 (2005).

- [101] A. Göök. Communication privée (2019).
- [102] O. R. Frisch, *Isotope Analysis of Uranium Samples by Means of Alpha-Rays Groups*. BR-49, British Atomic Energy Project (1942).
- [103] O. Bunemann, T. E. Cranshaw et J. A. Harvey, *Design of Grid Ionization Chambers*, *Canadian Journal of Research* **27a**(5), 191–206 (1949).
- [104] W. Shockley, *Currents to Conductors Induced by a Moving Point Charge*, *Journal of Applied Physics* **9**(10), 635–636 (1938).
- [105] S. Ramo, *Currents Induced by Electron Motion*, *Proceedings of the IRE* **27**(9), 584–585 (1939).
- [106] A. Göök, F.-J. Hamsch, A. Oberstedt et S. Oberstedt, *Application of the Shockley–Ramo theorem on the grid inefficiency of Frisch grid ionization chambers*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **664**(1), 289–293 (2012).
- [107] C. Budtz-Jørgensen, H.-H. Knitter, C. Straede *et al.*, *A twin ionization chamber for fission fragment detection*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **258**(2), 209–220 (1987).
- [108] A. Göök, W. Geerts, F.-J. Hamsch *et al.*, *A position-sensitive twin ionization chamber for fission fragment and prompt neutron correlation experiments*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **830**, 366–374 (2016).
- [109] A. Göök, M. Chernykh, J. Enders *et al.*, *Particle emission angle determination in Frisch grid ionization chambers by electron drift-time measurements*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **621**, 401–405 (2010).
- [110] E. Birgersson, A. Oberstedt, S. Oberstedt et F.-J. Hamsch, *Properties of the reaction $^{238}\text{U}(n,f)$ at the vibrational resonances*, *Nuclear Physics A* **817**(1-4), 1–34 (2009).
- [111] B. D. Wilkins, M. J. Fluss, S. B. Kaufman *et al.*, *Pulse-height defects for heavy ions in a silicon surface-barrier detector*, *Nuclear Instruments and Methods* **92**(3), 381–391 (1971).
- [112] J. B. Moulton, J. E. Stephenson, R. P. Schmitt et G. J. Wozniak, *A new method for calibrating the pulse-height defect in solid state detectors*, *Nuclear Instruments and Methods* **157**(2), 325–331 (1978).
- [113] H. W. Schmitt, W. M. Gibson, J. H. Neiler *et al.*, “Absolute Energy Calibration of Solid-State Detectors for Fission Fragments and Heavy Ions”. Dans *Physics and Chemistry of Fission*, vol. I, IAEA, p. 531–546 (1965).
- [114] S. B. Kaufman, E. P. Steinberg, B. D. Wilkins *et al.*, *A calibration procedure for the response of silicon surface-barrier detectors to heavy ions*, *Nuclear Instruments and Methods* **115**(1), 47–55 (1974).
- [115] F.-J. Hamsch, J. Van Aarle et R. Vogt, *Is there a pulse height defect for methane ?*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **361**(1-2), 257–262 (1995).
- [116] F. Tovesson, F.-J. Hamsch, S. Oberstedt et H. Bax, *Fission Fragment Properties and the Problem of The Pulse Height Defect*, *J. Nucl. Sci. Technol.* **39**(sup2), 673–676 (2002).
- [117] A. Göök. Communication privée (2020).
- [118] A. Göök, F.-J. Hamsch et M. Vidali, *Prompt neutron multiplicity in correlation with fragments from spontaneous fission of ^{252}Cf* , *Phys. Rev. C* **90**, 064611 (2014).
- [119] J. Terrell, *Neutron Yields from Individual Fission Fragments*, *Physical Review* **127**(3), 880–904 (1962).
- [120] R. A. Cecil, B. D. Anderson et R. Madey, *Improved predictions of neutron detection efficiency for hydrocarbon scintillators from 1 MeV to about 300 MeV*, *Nuclear Instruments and Methods* **161**(3), 439–447 (1979).
- [121] F. T. Kuchnir et F. J. Lynch, *Time Dependence of Scintillations and the Effect on Pulse-Shape Discrimination*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **15**(3), 107–113 (1968).

- [122] L. M. Bollinger et G. E. Thomas, *Measurement of the Time Dependence of Scintillation Intensity by a Delayed-Coincidence Method*, *Review of Scientific Instruments* **32**(9), 1044–1050 (1961).
- [123] N. Kornilov, *Verification of the ^{252}Cf Standard in the Energy Range 2-20 MeV*, Rapport INDC(USA)-108, IAEA, (2015).
- [124] A. Göök, F.-J. Hambsch et S. Oberstedt, *Prompt neutron emission and energy balance in $^{235}\text{U}(n,f)$* , *EPJ Web of Conferences* **146**, 04007 (2017).
- [125] S. Agostinelli et al., *GEANT4 — a simulation toolkit*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **506**(3), 250–303 (2003).
- [126] J. Allison et al., *Recent developments in GEANT4*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **835**, 186–225 (2016).
- [127] F. Salvat, J. M. Fernández-Varea et J. Sempau, *PENELOPE-2008 : A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport*, Rapport Technique 6416, NEA, (2009).
- [128] J. Sempau, J. M. Fernández-Varea, E. Acosta et F. Salvat, *Experimental benchmarks of the Monte Carlo code PENELOPE*, *Nucl. Instr. and Meth. B* **207**(2), 107–123 (2003).
- [129] Z. S. Hartwig et P. Gumplinger, *Simulating response functions and pulse shape discrimination for organic scintillation detectors with Geant4*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **737**, 155–162 (2014).
- [130] K. Skarsvåg, *Time distribution of γ -rays from spontaneous fission of ^{252}Cf at short times*, *Nuclear Physics A* **253**(2), 274–288 (1975).
- [131] S. Hauf, M. Kuster, M. Batič et al., *Radioactive Decays in Geant4*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **60**(4), 2966–2983 (2013).
- [132] R. Brun et F. Rademakers, *ROOT – An object oriented data analysis framework*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **389**(1), 81–86 (1997). Voir également <https://root.cern/>.
- [133] H. Henschel, A. Kohnle, H. Hipp et G. Gönnerwein, *Absolute measurement of velocities, masses and energies of fission fragments from californium-252 (SF)*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **190**(1), 125–134 (1981).
- [134] R. Schmidt et H. Henschel, *Comparison of the spontaneous fission of ^{244}Cm and ^{252}Cf : (I). Fragment masses and kinetic energies*, *Nuclear Physics A* **395**(1), 15–28 (1983).
- [135] N. Varapai, *Développement d'un dispositif expérimental basé sur la digitalisation des signaux et dédié à la caractérisation des fragments de fission et des neutrons prompts émis*. Thèse de doctorat, Université Bordeaux I (2006).
- [136] S. Oberstedt, R. Billnert, T. Belgya et al., *High-precision prompt- γ -ray spectral data from the reaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$* , *Phys. Rev. C* **90**(2), 024618 (2014).
- [137] W. Mannhart, “Evaluation of the ^{252}Cf fission neutron spectrum between 0 MeV and 20 MeV”. Dans *Proceedings of an advisory group meeting on properties of neutron sources*, IAEA, p. 158–171 (1987). IAEA-TECDOC-410.
- [138] A. Gatera, *Prompt gamma-ray emission in nuclear fission and its contribution to the nuclear de-excitation of fission fragments*. Thèse de doctorat, Ghent University (2019). <http://hdl.handle.net/1854/LU-8641429>.
- [139] P. C. Hansen, *Numerical tools for analysis and solution of Fredholm integral equations of the first kind*, *Inverse Problems* **8**(6), 849–872 (1992).
- [140] G. D’Agostini, *A multidimensional unfolding method based on Bayes’ theorem*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **362**(2), 487–498 (1995).
- [141] T. Adye, “Unfolding algorithms and tests using RooUnfold”. Dans H. Prosper et L. Lyons (dir.), *Proceedings of the PHYSTAT 2011 Workshop on Statistical Issues Related to Discovery Claims in Search Experiments and Unfolding*, CERN, p. 313–318 (2011). <https://gitlab.cern.ch/RooUnfold/RooUnfold>.

- [142] Y. Vardi, L. A. Shepp et L. Kaufman, *A Statistical Model for Positron Emission Tomography*, *Journal of the American Statistical Association* **80**(389), 8–20 (1985).
- [143] A. Oberstedt, R. Billnert, F.-J. Hamsch et S. Oberstedt, *Impact of low-energy photons on the characteristics of prompt fission γ -ray spectra*, *Phys. Rev. C* **92**(1), 014618 (2015).
- [144] A. Oberstedt, A. Gatera, A. Göök et S. Oberstedt, *Time response and its impact on prompt fission gamma-ray spectra characteristics*, *Eur. Phys. J. A* **56**(7), 196 (2020).
- [145] L. Qi, M. Lebois, J. N. Wilson *et al.*, *Statistical study of the prompt-fission γ -ray spectrum for $^{238}\text{U}(n,f)$ in the fast-neutron region*, *Phys. Rev. C* **98**(1), 014612 (2018).
- [146] A. Chyzh, C. Y. Wu, E. Kwan *et al.*, *Evidence for the stochastic aspect of prompt γ emission in spontaneous fission*, *Phys. Rev. C* **85**(2), 021601 (2012).
- [147] V. V. Verbinski, H. Weber et R. E. Sund, *Prompt Gamma Rays from $^{235}\text{U}(n,f)$, $^{239}\text{Pu}(n,f)$, and Spontaneous Fission of ^{252}Cf* , *Phys. Rev. C* **7**(3), 1173–1185 (1973).
- [148] F. Pleasonton, R. L. Ferguson et H. W. Schmitt, *Prompt gamma rays emitted in the thermal neutron-induced fission of ^{233}U , ^{235}U , and ^{239}Pu and the spontaneous fission of ^{252}Cf* , Rapport Technique ORNL-4844, Oak Ridge National Laboratory, (1972).
- [149] K. Skarsvåg, *Differential angular distribution of prompt gamma rays from spontaneous fission of ^{252}Cf* , *Phys. Rev. C* **22**, 638–650 (1980).
- [150] E. Nardi, A. Gavron et Z. Fraenkel, *Total Energy Associated with Prompt γ -Ray Emission in the Spontaneous Fission of ^{252}Cf* , *Phys. Rev. C* **8**(6), 2293–2297 (1973).
- [151] T. Wang, G. Li, L. Zhu *et al.*, *Correlations of neutron multiplicity and γ -ray multiplicity with fragment mass and total kinetic energy in spontaneous fission of ^{252}Cf* , *Phys. Rev. C* **93**(1), 014606 (2016).
- [152] M. Wang, W. J. Huang, F. G. Kondev *et al.*, *The AME 2020 atomic mass evaluation (II). Tables, graphs and references*, *Chinese Physics C* **45**(3), 030003 (2021).
- [153] A. C. Wahl, *Nuclear-charge distribution and delayed-neutron yields for thermal-neutron-induced fission of ^{235}U , ^{233}U , and ^{239}Pu and for spontaneous fission of ^{252}Cf* , *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **39**(1), 1–156 (1988).
- [154] H. Nifenecker, C. Signarbieux, M. Ribrag *et al.*, *Gamma-neutron competition in the de-excitation mechanism of the fission fragments of ^{252}Cf* , *Nuclear Physics A* **189**(2), 285–304 (1972).
- [155] S. A. E. Johansson, *Gamma de-excitation of fission fragments : (I). Prompt radiation*, *Nuclear Physics* **60**(3), 378–400 (1964).
- [156] P. Glässel, R. Schmid-Fabian, D. Schwalm *et al.*, *^{252}Cf fission revisited — new insights into the fission process*, *Nuclear Physics A* **502**, 315–324 (1989).
- [157] H. Maier-Leibnitz, H. W. Schmitt et P. Armbruster, “Average number and energy of gamma-rays emitted as a function of fragment mass in ^{235}U thermal-neutron-induced fission”. Dans *Proceedings of the Symposium on the Physics and Chemistry of Fission*, vol. II, IAEA, p. 143 (1965).
- [158] F. Pleasonton, R. L. Ferguson et H. W. Schmitt, *Prompt Gamma Rays Emitted in the Thermal-Neutron-Induced Fission of ^{235}U* , *Phys. Rev. C* **6**(3), 1023–1039 (1972).
- [159] P. Armbruster, H. Labus et K. Reichelt, *Investigation on the Primary Spins of the ^{235}U Fission Fragments*, *Zeitschrift für Naturforschung A* **26**(3), 512 (1971).
- [160] F. Pleasonton, *Prompt γ -rays emitted in the thermal-neutron induced fission of ^{233}U and ^{239}Pu* , *Nuclear Physics A* **213**(2), 413–425 (1973).
- [161] V. Piau, O. Litaize, A. Chebboubi *et al.*, *Neutron and gamma multiplicities calculated in the consistent framework of the Hauser-Feshbach Monte Carlo code FIFRELIN*. Soumis à *Physics Letters B* (2022).

- [162] S. Oberstedt. Communication privée (2020).
- [163] NuDat, National Nuclear Data Center, <https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/>.
- [164] O. Litaize, A. Chebboubi, O. Serot *et al.*, *Influence of nuclear structure data on fission observables*, *EPJ Nuclear Sciences & Technologies* **4**, 28 (2018).
- [165] F. James, *Minuit Function Minimization and Error Analysis*, CERN Program Library Long Writeup D506, CERN, (1994).
- [166] K. P. Burnham et D. R. Anderson, *Model Selection and Multimodel Inference : A Practical Information-Theoretic Approach*, Springer New York (2002).
- [167] F. Boulay, G. S. Simpson, Y. Ichikawa *et al.*, *g Factor of the ^{99}Zr (7/2+) Isomer : Monopole Evolution in the Shape-Coexisting Region*, *Phys. Rev. Lett.* **124**(11), 112501 (2020).
- [168] J. K. Hwang, A. V. Ramayya, J. H. Hamilton *et al.*, *Half-lives of several states in neutron-rich nuclei from spontaneous fission of ^{252}Cf* , *Phys. Rev. C* **69**(5), 057301 (2004).
- [169] E. H. Wang, W. Lewis, C. J. Zachary *et al.*, *New levels and reinvestigation of octupole correlations in $^{146,147}\text{La}$* , *Eur. Phys. J. A* **53**(12), 234 (2017).
- [170] I. Tsekhanovich, G. S. Simpson, W. Urban *et al.*, *Short-lived isomers in ^{94}Rb* , *Phys. Rev. C* **78**(1), 011301 (2008).
- [171] G. Häfner, R. Lozeva, H. Naïdja *et al.*, *Spectroscopy and lifetime measurements in $^{134,136,138}\text{Te}$ isotopes and implications for the nuclear structure beyond $N=82$* , *Phys. Rev. C* **103**(3), 034317 (2021).
- [172] N. Nica, *Nuclear Data Sheets for $A = 97$* , *Nuclear Data Sheets* **111**(3), 525–716 (2010).
- [173] A. Złomaniec, H. Faust, J. Genevey *et al.*, *Half-life of the 830.2 keV isomer in ^{97}Sr* , *Phys. Rev. C* **72**(6), 067302 (2005).
- [174] T. Rząca-Urban, W. Urban, M. Czerwiński *et al.*, *Low-spin excitations in ^{97}Zr* , *Phys. Rev. C* **98**(6), 064315 (2018).
- [175] M. Lammer *et al.*, “Wahl’s models for nuclear-charge distribution”. Dans *Compilation and Evaluation of Fission Yield Nuclear Data*, IAEA, p. 58 (2000). IAEA-TECDOC-1168.
- [176] O. Litaize *et al.*, *FIFRELIN User Guide*, Rapport Technique, CEA Cadarache, (2022).
- [177] A. V. Ignatyuk, G. N. Smirenkin et A. Tishin, *Phenomenological description of energy dependence of the level density parameter*, *Yadernaya Fizika* **21**(3), 485–490 (1975).
- [178] S. K. Kataria, V. S. Ramamurthy et S. S. Kapoor, *Semiempirical nuclear level density formula with shell effects*, *Phys. Rev. C* **18**(1), 549–563 (1978).
- [179] V. S. Ramamurthy, S. K. Kataria et S. S. Kapoor, “Review of Recent Phenomenological Approaches to the Description of Nuclear Level Densities”. Dans *Proceedings of the IAEA Advisory Group Meeting on Basic and Applied Problems of Nuclear Level Density*, IAEA, p. 187 (1983). INDC(USA)-094/L.
- [180] A. Mengoni et Y. Nakajima, *Fermi-Gas Model Parametrization of Nuclear Level Density*, *J. Nucl. Sci. Technol.* **31**(2), 151–162 (1994).
- [181] W. D. Myers et W. J. Swiatecki, *Nuclear masses and deformations*, *Nuclear Physics* **81**(1), 1–60 (1966).
- [182] G. Audi, A. Wapstra et C. Thibault, *The Ame2003 atomic mass evaluation : (II). Tables, graphs and references*, *Nuclear Physics A* **729**(1), 337–676 (2003).
- [183] O. Litaize, *Contribution à l’étude de la désexcitation des fragments de fission primaires pour l’estimation des observables de fission*. Habilitation à Diriger des Recherches, Université Grenoble-Alpes, (2019).
- [184] D. G. Jenkins et J. L. Wood, *Nuclear Data – A primer*, IOP Publishing (2021).
- [185] P. Tamagno et O. Litaize, *Impact of nuclear inertia momenta on fission observables*, *EPJ Web of Conferences* **193**, 01004 (2018).

- [186] A. Bulgac, I. Abdurrahman, K. Godbey et I. Stetcu, *Fragment Intrinsic Spins and Fragments' Relative Orbital Angular Momentum in Nuclear Fission*, *Phys. Rev. Lett.* **128**(2), 022501 (2022).
- [187] H. A. Bethe, *An Attempt to Calculate the Number of Energy Levels of a Heavy Nucleus*, *Physical Review* **50**(4), 332–341 (1936).
- [188] H. A. Bethe, *Nuclear Physics B. Nuclear Dynamics, Theoretical*, *Reviews of Modern Physics* **9**(2), 69–244 (1937).
- [189] C. Bloch, *Theory of Nuclear Level Density*, *Physical Review* **93**(5), 1094–1106 (1954).
- [190] A. S. Vorobyev, V. N. Dushin, F. Hamsch *et al.*, *Prompt Neutron Emission from Fragments in Spontaneous Fission of $^{244,248}\text{Cm}$ and ^{252}Cf* , *AIP Conference Proceedings* **798**(1), 255–262 (2005).
- [191] A. Gilbert et A. G. W. Cameron, *A Composite Nuclear-Level Density Formula with Shell Corrections*, *Canadian Journal of Physics* **43**(8), 1446–1496 (1965).
- [192] T. Belgya *et al.*, *Handbook for calculations of nuclear reaction data, RIPL-2*, IAEA (2006). IAEA-TECDOC-1506.
- [193] D. Régnier, *Contribution à l'étude des gammas prompts de fission*. Thèse de doctorat, Université de Grenoble (2013).
- [194] D. Regnier, O. Litaize et O. Serot, *Preliminary Results of a Full Hauser-feshbach Simulation of the Prompt Neutron and Gamma Emission from Fission Fragments*, *Physics Procedia* **47**, 47–52 (2013).
- [195] D. Regnier, O. Litaize et O. Serot, *An improved numerical method to compute neutron/gamma deexcitation cascades starting from a high spin state*, *Computer Physics Communications* **201**, 19–28 (2016).
- [196] J. Raynal, *Notes on ECIS94*, Rapport Technique CEA-N-2772, CEA Saclay, (1994).
- [197] A. J. Koning, S. Hilaire et M. C. Duijvestijn, “TALYS-1.0”. Dans *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, EDP Sciences, p. 211–214 (2007).
- [198] A. J. Koning et J. P. Delaroche, *Local and global nucleon optical models from 1 keV to 200 MeV*, *Nuclear Physics A* **713**(3-4), 231–310 (2003).
- [199] T. Kibédi, T. W. Burrows, M. B. Trzhaskovskaya *et al.*, *Evaluation of theoretical conversion coefficients using BrIcc*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **589**(2), 202–229 (2008).
- [200] F. Bečvář, *Simulation of γ cascades in complex nuclei with emphasis on assessment of uncertainties of cascade-related quantities*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **417**(2), 434–449 (1998).
- [201] C. E. Porter et R. G. Thomas, *Fluctuations of Nuclear Reaction Widths*, *Physical Review* **104**(2), 483–491 (1956).
- [202] A. Chebboubi. Communication privée (2022).
- [203] S. F. Mughabghab et C. Dunford, *Nuclear Level Density and the Effective Nucleon Mass*, *Phys. Rev. Lett.* **81**(19), 4083–4086 (1998).
- [204] S. Goriely, *A new nuclear level density formula including shell and pairing correction in the light of a microscopic model calculation*, *Nuclear Physics A* **605**(1), 28–60 (1996).
- [205] L. Thulliez, O. Litaize et O. Serot, *Sensitivity studies of spin cut-off models on fission fragment observables*, *EPJ Web of Conferences* **111**, 10003 (2016).
- [206] A. J. Koning, S. Hilaire et S. Goriely, *Global and local level density models*, *Nuclear Physics A* **810**(1-4), 13–76 (2008).
- [207] T. Ericson, *The statistical model and nuclear level densities*, *Advances in Physics* **9**(36), 425–511 (1960).
- [208] S. Hilaire et S. Goriely, *Global microscopic nuclear level densities within the HFB plus combinatorial method for practical applications*, *Nuclear Physics A* **779**, 63–81 (2006).

- [209] S. Hilaire, J. P. Delaroche et M. Girod, *Combinatorial nuclear level densities based on the Gogny nucleon-nucleon effective interaction*, *Eur. Phys. J. A* **12**(2), 169–184 (2001).
- [210] S. Goriely, S. Hilaire et A. J. Koning, *Improved microscopic nuclear level densities within the Hartree-Fock-Bogoliubov plus combinatorial method*, *Phys. Rev. C* **78**(6), 064307 (2008).
- [211] S. Hilaire, M. Girod, S. Goriely et A. J. Koning, *Temperature-dependent combinatorial level densities with the D1M Gogny force*, *Phys. Rev. C* **86**(6), 064317 (2012).
- [212] S. Goriely, M. Samyn et J. M. Pearson, *Further explorations of Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov mass formulas. VII. Simultaneous fits to masses and fission barriers*, *Phys. Rev. C* **75**(6), 064312 (2007).
- [213] S. Goriely, S. Hilaire, M. Girod et S. Péru, *First Gogny-Hartree-Fock-Bogoliubov Nuclear Mass Model*, *Phys. Rev. Lett.* **102**(24), 242501 (2009).
- [214] P. Demetriou et S. Goriely, *Microscopic nuclear level densities for practical applications*, *Nuclear Physics A* **695**(1-4), 95–108 (2001).
- [215] J. M. Blatt et V. F. Weisskopf, “Interaction of Nuclei with Electromagnetic Radiation”. Dans *Theoretical Nuclear Physics*, Springer New York, p. 583–669 (1979).
- [216] D. Brink, *Some aspects of the interaction of light with matter*. Thèse de doctorat, University of Oxford (1955).
- [217] P. Axel, *Electric Dipole Ground-State Transition Width Strength Function and 7-Mev Photon Interactions*, *Physical Review* **126**(2), 671–683 (1962).
- [218] M. A. Lone, “Photon Strength Functions”. Dans R. E. Chrien et W. R. Kane (dir.), *Neutron Capture Gamma-Ray Spectroscopy*, Springer US, p. 161–180 (1979).
- [219] H. Steinwedel et J. D. Jensen, *Hydrodynamik von Kerndipolschwingungen*, *Zeitschrift für Naturforschung A* **5**(8), 413–420 (1950).
- [220] G. A. Bartholomew, E. D. Earle, A. J. Ferguson *et al.*, “Gamma-Ray Strength Functions”. Dans M. Baranger et E. Vogt (dir.), *Advances in Nuclear Physics*, vol. 7, Springer US, p. 229–324 (1973).
- [221] S. Goriely, P. Dimitriou, M. Wiedeking *et al.*, *Reference database for photon strength functions*, *Eur. Phys. J. A* **55**(10), 172 (2019).
- [222] M. Markova, A. C. Larsen, P. von Neumann-Cosel *et al.*, *Nuclear level densities and γ -ray strength functions in $^{120,124}\text{Sn}$ isotopes : Impact of Porter-Thomas fluctuations*, *Phys. Rev. C* **106**, 034322 (2022).
- [223] J. Kopecky et R. E. Chrien, *Observation of the M1 giant resonance by resonance averaging in ^{106}Pd* , *Nuclear Physics A* **468**(2), 285–300 (1987).
- [224] S. G. Kadenskij, V. P. Markushev et V. I. Furman, *Radiative widths of neutron resonances and giant dipole resonances*, *Yadernaya Fizika* **37**(2), 277–283 (1983).
- [225] J. Kopecky, “Gamma-Ray Strength Functions”. Dans *Handbook for Calculations of Nuclear Reaction Data Reference Input Parameter Library*, IAEA, p. 97–112 (1998). IAEA-TECDOC-1034.
- [226] S. Goriely et E. Khan, *Large-scale QRPA calculation of E1-strength and its impact on the neutron capture cross section*, *Nuclear Physics A* **706**(1-2), 217–232 (2002).
- [227] M. Martini, S. Péru, S. Hilaire *et al.*, *Large-scale deformed quasiparticle random-phase approximation calculations of the γ -ray strength function using the Gogny force*, *Phys. Rev. C* **94**(1), 014304 (2016).
- [228] S. Goriely, S. Hilaire, S. Péru *et al.*, *Gogny-Hartree-Fock-Bogolyubov plus quasiparticle random-phase approximation predictions of the M1 strength function and its impact on radiative neutron capture cross section*, *Phys. Rev. C* **94**(4), 044306 (2016).

- [229] S. Goriely, S. Hilaire, S. Péru et K. Sieja, *Gogny-HFB+QRPA dipole strength function and its application to radiative nucleon capture cross section*, *Phys. Rev. C* **98**(1), 014327 (2018).
- [230] S. Péru et H. Goutte, *Role of deformation on giant resonances within the quasiparticle random-phase approximation and the Gogny force*, *Phys. Rev. C* **77**(4), 044313 (2008).
- [231] S. Péru et M. Martini, *Mean field based calculations with the Gogny force : Some theoretical tools to explore the nuclear structure*, *Eur. Phys. J. A* **50**(5), 88 (2014).
- [232] M. Krtička, S. Goriely, S. Hilaire *et al.*, *Constraints on the dipole photon strength functions from experimental multistep cascade spectra*, *Phys. Rev. C* **99**(4), 044308 (2019).
- [233] L. Thulliez, O. Litaize, O. Serot et A. Chebboubi, *Neutron and γ multiplicities as a function of incident neutron energy for the $^{237}\text{Np}(n,f)$ reaction*, *Phys. Rev. C* **100**(4), 044616 (2019).
- [234] P. Marević, N. Schunck, J. Randrup et R. Vogt, *Angular momentum of fission fragments from microscopic theory*, *Phys. Rev. C* **104**(2), L021601 (2021).
- [235] A. Bulgac, I. Abdurrahman, S. Jin *et al.*, *Fission Fragment Intrinsic Spins and Their Correlations*, *Phys. Rev. Lett.* **126**(14), 142502 (2021).
- [236] J. N. Wilson, D. Thisse, M. Lebois *et al.*, *Angular momentum generation in nuclear fission*, *Nature* **590**(7847), 566–570 (2021).
- [237] A. Chebboubi, O. Litaize et O. Serot, *Impact of FIFRELIN input parameters on fission observables*, *EPJ Web of Conferences* **193**, 01003 (2018).
- [238] A. Chyzh, C. Y. Wu, E. Kwan *et al.*, *Total prompt γ -ray emission in fission of ^{235}U , $^{239,241}\text{Pu}$, and ^{252}Cf* , *Phys. Rev. C* **90**, 014602 (2014).
- [239] T. E. Valentine, *Evaluation of prompt fission gamma rays for use in simulating nuclear safeguard measurements*, *Annals of Nuclear Energy* **28**(3), 191–201 (2001).
- [240] O. Litaize, O. Serot, L. Thulliez et A. Chebboubi, *Prompt particle emission in correlation with fission fragments*, *EPJ Web of Conferences* **146**, 04006 (2017).
- [241] D. Regnier, O. Litaize et O. Serot, *Monte Carlo Investigation on the Average Prompt Neutron Multiplicity as a Function of the Total Kinetic Energy and Mass of the Fragments from ^{252}Cf Spontaneous Fission*, *Nuclear Science and Engineering* **174**(1), 103–108 (2013).
- [242] R. Schwengner, *Low-energy behavior of $E2$ strength functions*, *Phys. Rev. C* **90**(6), 064321 (2014).
- [243] V. M. Strutinsky, *Angular Anisotropy of Gamma Quanta that Accompany Fission*, *JETP (Soviet Physics)* **10**, 613–615 (1960).
- [244] A. Oberstedt, R. Billnert, A. Gatera *et al.*, *Prompt gamma rays from $^{252}\text{Cf}(sf)$ and their angular distributions*, *EPJ Web of Conferences* **169**, 00014 (2018).
- [245] A. Chalil. Communication privée (2022).
- [246] S. Marin, V. A. Protopopescu, R. Vogt *et al.*, *Event-by-event neutron–photon multiplicity correlations in $^{252}\text{Cf}(sf)$* , *Nucl. Instr. and Meth. A* **968**, 163907 (2020).
- [247] O. Litaize. Communication privée (2022).
- [248] A. S. Vorobyev, O. A. Shcherbakov, A. M. Gagarski *et al.*, *Investigation of the prompt neutron emission mechanism in low energy fission of $^{235,233}\text{U}(n_{th}, f)$ and $^{252}\text{Cf}(sf)$* , *EPJ Web of Conferences* **8**, 03004 (2010).
- [249] A. Göök, F.-J. Hamsch et S. Oberstedt, *Neutron Multiplicity Correlations with Fission Fragment Mass and Energy from $^{239}\text{Pu}(n,f)$* , *EPJ Web of Conferences* **239**, 05009 (2020).
- [250] C. Tsuchiya, Y. Nakagome, H. Yamana *et al.*, *Simultaneous Measurement of Prompt Neutrons and Fission Fragments for $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$* , *J. Nucl. Sci. Technol.* **37**(11), 941–948 (2000).

-
- [251] P. Ring et P. Schuck, *The Nuclear Many-Body Problem*, Springer-Verlag (1980).
- [252] T. H. R. Skyrme, *CVII. The nuclear surface*, *Philosophical Magazine* **1**(11), 1043–1054 (1956).
- [253] T. H. R. Skyrme, *The effective nuclear potential*, *Nuclear Physics* **9**(4), 615–634 (1959).
- [254] M. Bender, P.-H. Heenen et P.-G. Reinhard, *Self-consistent mean-field models for nuclear structure*, *Reviews of Modern Physics* **75**(1), 121–180 (2003).
- [255] D. Gogny, “Self-consistent pairing calculations”. Dans G. Ripka et M. Porneuf (dir.), *Proceedings of the international conference on nuclear self-consistent fields*, International Centre for Theoretical Physics (Trieste), p. 333–352 (1975).
- [256] J. Dechargé et D. Gogny, *Hartree-Fock-Bogolyubov calculations with the D1 effective interaction on spherical nuclei*, *Phys. Rev. C* **21**(4), 1568–1593 (1980).
- [257] F. Chappert, N. Pillet, M. Girod et J.-F. Berger, *Gogny force with a finite-range density dependence*, *Phys. Rev. C* **91**(3), 034312 (2015).
- [258] H. Mang, *The self-consistent single-particle model in nuclear physics*, *Physics Reports* **18**(6), 325–368 (1975).
- [259] E. Khan, N. Sandulescu, M. Grasso et N. Van Giai, *Continuum quasiparticle random phase approximation and the time-dependent Hartree-Fock-Bogoliubov approach*, *Phys. Rev. C* **66**(2), 024309 (2002).
- [260] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler et J. Biersack, *SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010)*, *Nucl. Instr. and Meth. B* **268**(11), 1818–1823 (2010). Voir également <http://www.srim.org/>.
- [261] K. Skarsvåg et I. Singstad, *Angular correlation of fission fragments and prompt γ rays from spontaneous fission of ^{252}Cf* , *Nuclear Physics* **62**(1), 103–112 (1965).
- [262] M. Travar, *Multiplicity of prompt γ -rays in respect to fission fragment mass and TKE in ^{252}Cf spontaneous fission*, Rapport Technique, EC-JRC Geel, (2020).