



**HAL**  
open science

## Mesure de la section efficace de fission du $^{233}\text{Pa}$

Michael Petit

► **To cite this version:**

Michael Petit. Mesure de la section efficace de fission du  $^{233}\text{Pa}$ . Physique [physics]. Université de bordeaux, 2002. Français. NNT : 2002BOR12554 . tel-04502106

**HAL Id: tel-04502106**

**<https://theses.hal.science/tel-04502106>**

Submitted on 13 Mar 2024

**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.

Public Domain

# THÈSE

PRÉSENTÉE À

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX-I

ÉCOLE DOCTORALE DE

SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par M. MICHAËL PETIT

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : NOYAUX, ATOMES, AGRÉGATS, PLASMAS

---

MESURE DE LA SECTION EFFICACE DE FISSION DU  $^{233}\text{Pa}$

---

Soutenue le 4 Octobre 2002

Après avis de : MM. R. Brissot  
L. Tassan-got

Rapporteurs

Devant la commission d'examen formée de :

MM. J.-N. Scheurer, Professeur, Université de Bordeaux I  
B. Haas, Directeur de recherche CNRS, CENBG  
MM. G. Barreau, Directeur de recherche CNRS, CENBG  
R. Brissot, Professeur, Institut National Polytechnique, Grenoble  
J.-P. Delaroche, Chef de laboratoire au CEA, Bruyères-le-Châtel  
L. Tassan-got, Directeur de recherche CNRS, IPN-Orsay

Président  
Rapporteur  
Examineurs

# THÈSE

PRÉSENTÉE À

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX-I

ÉCOLE DOCTORALE DE

SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par M. MICHAËL PETIT

POUR OBTENIR LE GRADE DE

**DOCTEUR**

SPÉCIALITÉ : NOYAUX, ATOMES, AGRÉGATS, PLASMAS

---

MESURE DE LA SECTION EFFICACE DE FISSION DU  $^{233}\text{Pa}$

---

Soutenue le 4 Octobre 2002

Après avis de : MM. R. Brissot Rapporteurs  
L. Tassan-got

Devant la commission d'examen formée de :

MM. J.-N. Scheurer,	Professeur, Université de Bordeaux I	Président
B. Haas,	Directeur de recherche CNRS, CENBG	Rapporteur
MM. G. Barreau,	Directeur de recherche CNRS, CENBG	Examineurs
R. Brissot,	Professeur, Institut National Polytechnique, Grenoble	
J.-P. Delaroche,	Chef de laboratoire au CEA, Bruyères-le-Châtel	
L. Tassan-got,	Directeur de recherche CNRS, IPN-Orsay	

*à Alice et al.*

*Il faut peu de mots pour exprimer l'essentiel*  
*Paul Eluard*

# Remerciements

Pour m'avoir accueilli et permis d'effectuer cette thèse au Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux-Gradignan, je remercie son directeur Pierre Aguer.

A travers Mrs J.P. Schapira et J.M. Loiseaux, je remercie le groupement GeDeON pour l'appui et le soutien financier apporté à ce travail.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à mon directeur de thèse, Mr Gérard Barreau surnomé amicalement "Le Boss". Ses qualités de travailleur, ses connaissances et ses multiples explications et conseils seront pour mon avenir des références et des atouts précieux. Je tiens également à lui exprimer ma profonde gratitude pour son encadrement attentif et présent. Je finirai en lui disant Merci, merci pour ses qualités humaines.

Je suis très reconnaissant à Mr Jean-Nicolas Scheurer d'avoir accepté d'être le président du jury. J'ai en particulier apprécié son côté atypique ainsi que les questions et remarques qui ont marqué son intérêt pour ce travail.

J'aimerais chaleureusement remercier Mrs Laurent Tassan-got et Roger Brissot qui ont accepté de juger cette thèse en qualité de rapporteurs. Qu'ils trouvent ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance au groupe de physique théorique du CEA de Bruyères-Le-Châtel dont le concours à été décisif. J'aimerai en particulier remercier Mr Jean-Paul Delaroche et ses collaborateurs Mrs Eric Baugé et Pascal Romain qui ont réalisés les calculs en modèle optique nécessaires à l'aboutissement de mon travail. Je remercie doublement Mr Jean-Paul Delaroche pour avoir également accepté de participer au jury de cette thèse.

Je remercie Mr Bernard Haas pour l'écoute attentive qu'il m'a apporté tout au long de cette thèse. Ces compétences et ces qualités sont particulièrement appréciables et diverses.

J'aimerai remercier l'ensemble des membres du jury pour leurs remarques et leurs suggestions qui ont permis d'améliorer grandement la qualité du manuscrit.

J'exprime ma profonde reconnaissance et mon amitié au groupe "Aval du Cycle" du laboratoire et à la collaboration ISN-Grenoble, CEA-Saclay. Je pense en particulier à Mourad Aïche qui mène 3-1 mais le match n'est pas terminé, à Serge Czajkowski pour nos longues discussions, à Christophe Theisen du CEA-Saclay dont les compétences ont été cruciales lors de la prise de données et à Annick Billebaud de l'ISN-Grenoble, la plus Lyonnaise des Grenobloise. J'ai également une pensée pour Nicolae Carjan, Margarit Rizea et Serban Misicu qui ont apporté un concours actif à ce travail. Certain noms ne sont pas présents mais dès lors que j'ai travaillé avec eux, je les remercie chaleureusement.

Je suis également reconnaissant à l'ancien responsable du DEA Instrumentations et Mesures, Mr Jacques Rouche qui s'est battu pour que je puisse obtenir la bourse ministérielle.

Je voudrais associer à ces remerciements l'ensemble du personnel du CENBG pour sa contribution au bon déroulement de cette thèse. Je pense en particulier, au personnel de l'atelier, du bureau d'études, de l'administration et des locataires du second étages du château.

J'aimerais également remercier Dimitris Karamanis, c'est un amis et un physicien de grande qualité qui m'a beaucoup manqué après son départ.

J'exprime toute mon amitié à mes collègues et amis du laboratoire, Christine Badimon, Ludovic Bonneau, Emmanuel Durand, Cedric Grosjean, Cecile Jollet, Roland Le Gallou, Sebastien Lemaire, Camille Negrevergne et David Samsøen pour ne citer que ceux qui me sont le plus proche.

A tous mes amis qui se reconnaîtront ici, je leur dis : Merci pour tout ce qu'ils m'ont apporté.

J'ai une pensée toute particulière pour mes parents qui m'ont toujours aidé durant mes longues années d'études. Ils m'ont donné ma chance, ce travail est un modeste aboutissement pour tous ce qu'ils ont fait. J'ai également une pensée pour toute ma famille et particulièrement pour Johann, Géraldine (*et al.*), Mille excuses pour tous mes manquements durant ces quatre années...

Alice a été privée de son papa pendant plusieurs semaines. J'espère désormais l'accompagner plus efficacement sur les chemins tortueux de sa vie.

Je terminerai en exprimant ma profonde gratitude à Marie et à sa famille, leurs soutiens et leurs encouragements ont toujours été constants et précieux.

# Table des matières

Introduction	5
--------------	---

<b>Chapitre 1</b>
-------------------

<b>Les filières du combustible</b>	<b>7</b>
------------------------------------	----------

1.1	La filière de l'uranium . . . . .	8
1.1.1	Les données nucléaires de la filière de l'uranium . . . . .	8
1.1.2	Avantages et inconvénients de la filière uranium . . . . .	11
1.2	La filière du thorium . . . . .	16
1.2.1	Avantages et inconvénients de la filière thorium . . . . .	17
1.2.2	Bilan et besoins en données nucléaires . . . . .	20

<b>Chapitre 2</b>
-------------------

<b>Rappels sur la fission</b>	<b>25</b>
-------------------------------	-----------

2.1	Le modèle de la goutte liquide . . . . .	26
2.1.1	Succès de la goutte liquide . . . . .	28
2.1.2	Les limites du modèle de la goutte liquide . . . . .	33
2.1.3	La méthode de Strutinsky . . . . .	34
2.1.4	Le modèle microscopique . . . . .	37
2.2	Mise en évidence expérimentale de la double barrière de fission . . . . .	40
2.2.1	Les isomères de forme . . . . .	42
2.2.2	Les structures intermédiaires . . . . .	42
2.2.3	Les résonances de vibration . . . . .	43
2.2.4	Paramétrisation de la barrière de fission . . . . .	45
2.2.5	Détermination expérimentale des paramètres de la barrière de fission	47
2.2.6	Systématique des barrières de fission . . . . .	49

**Chapitre 3**

**Méthode et dispositif expérimentaux**

**53**

3.1	Fission des noyaux de forte activité . . . . .	54
3.1.1	Les limites de la méthode . . . . .	57
3.1.2	La démarche . . . . .	61
3.2	Le dispositif expérimental : préliminaire . . . . .	62
3.2.1	Les caractéristiques cinématiques des réactions de transfert . . . . .	62
3.3	Détection des particules légères chargées . . . . .	65
3.3.1	Principe de fonctionnement d'un télescope . . . . .	65
3.3.2	Description du montage télescope utilisé . . . . .	66
3.3.3	Seuil de déclenchement . . . . .	67
3.4	Détection des fragments de fission. . . . .	67
3.4.1	Structure des cellules utilisées . . . . .	68
3.4.2	Principe de fonctionnement . . . . .	68
3.4.3	Résolution en énergie . . . . .	69
3.5	Dispositif expérimental . . . . .	73
3.5.1	Faisceaux et cibles . . . . .	73
3.5.2	Enceinte de mesures, description générale . . . . .	73
3.5.3	Emplacement des télescopes . . . . .	74
3.5.4	Positionnement des détecteurs fission de SAPHIR . . . . .	77
3.6	Electronique et acquisition . . . . .	80

**Chapitre 4**

**Analyse des données**

4.1	Introduction . . . . .	83
4.2	Etalonnage en énergie d'excitation . . . . .	86
4.3	Détermination des événements simples . . . . .	91
4.3.1	Détermination du nombre d'événements simples dans chaque voie . . . . .	91
4.4	Détermination du nombre de fissions par cellule . . . . .	97
4.5	Calcul de l'efficacité de SAPHIR . . . . .	104
4.5.1	Introduction . . . . .	104
4.5.2	Validation de la partie géométrique du programme de simulation . . . . .	105
4.5.3	Effet de la distribution angulaire . . . . .	105
4.6	Les probabilités de fission . . . . .	111
4.6.1	Probabilité de fission des Protactinium 232 et 233 . . . . .	114



4.7	Section efficace de fission . . . . .	118
4.8	Distribution en masse . . . . .	126
4.8.1	Détection en coïncidence des fragments . . . . .	126
4.8.2	Constitution des fichiers de traitement . . . . .	127
4.8.3	Détermination des masses des fragments . . . . .	127
4.8.4	Présentation des résultats . . . . .	133

<b>Chapitre 5</b>
-------------------

<b>Interprétation des résultats</b>	<b>139</b>
-------------------------------------	------------

5.1	Section efficace de formation du noyau composé . . . . .	140
5.2	Déexcitation du noyau composé . . . . .	144
5.2.1	Déexcitation du noyau composé par émission d'un neutron . . . . .	144
5.2.2	Déexcitation du noyau composé par émission gamma . . . . .	145
5.3	Probabilité de fission . . . . .	146
5.4	Les densités de niveaux . . . . .	149
5.4.1	Définition des effets de couches utilisés dans ce travail. . . . .	154
5.4.2	Structure des densités de niveaux en fonction de la déformation du noyau. . . . .	157
5.5	Détermination des barrières de fission . . . . .	158
5.6	Détermination des sections efficaces $^{233}\text{Pa}(n,n')$ et $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)$ . . . . .	162
	<b>Conclusion</b>	<b>167</b>
	<b>Annexe A Rapports <math>\Gamma_n/\Gamma_f</math></b>	<b>171</b>
	<b>Annexe B Probabilités de fission mesurées</b>	<b>173</b>
	<b>Annexe C Sections efficaces calculées</b>	<b>177</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>181</b>
	<b>Table des figures</b>	<b>187</b>
	<b>Liste des tableaux</b>	<b>193</b>



# Introduction

La poursuite de la production d'électricité à partir de la fission nucléaire fait l'objet d'un vaste débat dans la plupart des grands pays industrialisés. La France est directement concernée par ce débat puisque les trois quarts de sa production d'électricité sont d'origine nucléaire. Comme toute industrie, l'industrie nucléaire génère des déchets (radioactifs) en grande quantité dont la gestion et le stockage ont alerté l'opinion publique. Pour son maintien, cette industrie doit accroître la sûreté de ces installations (réacteur et usine de retraitement) et démontrer la maîtrise à long terme des déchets qu'elle produit. Dans cette perspective, on place aujourd'hui beaucoup d'espoir dans l'utilisation du cycle du thorium pour remplacer le cycle U-Pu actuellement utilisé dans les réacteurs à eau pressurisée du parc EDF. Les avantages de ce cycle sont connus depuis de nombreuses années : abondance des réserves de thorium, faible production d'actinides mineurs et capacité à régénérer sa propre matière fissile ( $^{233}\text{U}$ ) ; ils justifient les études développées au CNRS dans le cadre des réacteurs hybrides et des réacteurs à sel fondus tous deux capables d'utiliser le thorium comme combustible.

La simulation réaliste de ces nouveaux réacteurs se heurte actuellement au manque de données nucléaires fiables concernant le cycle du thorium. Les calculs de neutronique mis en jeu dans cette simulation nécessitent un ensemble cohérent de section efficace de capture et de fission des nombreux isotopes impliqués dans le cycle du thorium. Les évaluations récentes font apparaître de fortes disparités entre bases de données qui sont à l'origine d'un vaste effort international de mesures de sections efficaces induites par neutrons lents et rapides. Il s'agit de réactualiser (lorsqu'elles existent) des données nucléaires parfois très anciennes ou d'en apporter de nouvelles.

Dans ce travail nous nous sommes intéressé au  $^{233}\text{Pa}$  qui contrôle la régénération de l'élément fissile ( $^{233}\text{U}$ ) de la filière du thorium. Le noyau  $^{233}\text{Pa}$ , en raison de sa faible durée de vie représente un véritable défi pour les expérimentateurs. Ceci explique à la fois le manque de données nucléaires (section efficace de fission et de capture) et l'incohérence des bases de données nucléaires le concernant.

L'objet de ce mémoire concerne la détermination de la section efficace de fission du

$^{233}\text{Pa}$  induit par neutrons rapides. A cause de son activité spécifique élevé ( $7.7 \cdot 10^8 \text{ bq}/\mu\text{g}$ ) une mesure directe apparait difficile. Nous nous sommes donc tournés vers une approche originale proposée par Cramer et Britt en 1970. Celle-ci consiste à mesurer la probabilité de fission du noyau fissionnant ( $^{234}\text{Pa}$ ) puis à la multiplier par la section efficace de formation du noyau composé ( $^{233}\text{Pa}+n$ ). Le choix du couple cible-projectile ( $^{232}\text{Th}-^3\text{He}$ ) et le dispositif expérimental retenu nous ont permis de faire une vaste étude des caractéristiques des noyaux observés ( $^{231}\text{Th}$  et  $^{232,233,234}\text{Pa}$ ).

Ce mémoire est organisé en cinq chapitres.

Dans le premier chapitre, nous discuterons brièvement des avantages et des inconvénients induits par les filières de l'uranium et du thorium. La nécessité d'améliorer ou de compléter les données nucléaires du cycle du thorium est présentée.

Dans le deuxième chapitre, nous rappellerons brièvement nos connaissances actuelles de la fission. Nous présenterons la double barrière de fission et ses conséquences sur les sections efficaces de fission : le  $^{233}\text{Pa}$  fait partie de la région du thorium dont on connaît la complexité des barrières.

Le troisième chapitre présentera notre démarche expérimentale. Après avoir présenté les détecteurs utilisés, nous discuterons le dispositif expérimental adopté.

Le quatrième chapitre est consacré au traitement des données. Nous présenterons la calibration de nos détecteurs et nous expliciterons notre démarche pour mesurer les probabilités de fission que nous comparerons aux mesures antérieures lorsqu'elles existent. A partir du calcul de la section efficace de formation du noyau composé fissionnant, nous avons déterminé les sections efficaces de fission des noyaux  $^{230}\text{Th}$  et  $^{231,232,233}\text{Pa}$ . La validité de notre approche a été testée à partir des sections efficaces des noyaux  $^{230}\text{Th}$  et  $^{231}\text{Pa}$ . La section efficace de fission du  $^{233}\text{Pa}$  est ensuite comparée aux prévisions des bases de données. Nous terminerons ce chapitre en présentant la mesure de la distribution en masses des noyaux observés.

Le cinquième chapitre est consacré à l'analyse des sections efficaces de fission des noyaux  $^{231}\text{Pa}$  et  $^{233}\text{Pa}$ . Nous exposerons le modèle statistique employé en détaillant les paramètres d'entrées. Cette analyse nous a permis d'extraire les hauteurs des barrières de fission des noyaux  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$ . Pour terminer nous discuterons des sections efficaces de capture et de diffusion inélastique calculées pour le  $^{233}\text{Pa}$ .

# Chapitre 1

## Les filières du combustible

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>La filière de l'uranium</b>	<b>8</b>
1.1.1	Les données nucléaires de la filière de l'uranium	8
1.1.2	Avantages et inconvénients de la filière uranium	11
<b>1.2</b>	<b>La filière du thorium</b>	<b>16</b>
1.2.1	Avantages et inconvénients de la filière thorium	17
1.2.2	Bilan et besoins en données nucléaires	20

---

La production d'énergie nucléaire nécessite l'utilisation d'un combustible capable par fission de libérer de l'énergie.

Parmi les noyaux composant le combustible, il faut discerner plusieurs types : les noyaux fissiles qui sont capables de fissionner après la capture d'un neutron thermique (de faible énergie) et les noyaux fertiles qui, après la capture d'un neutron suivie de plusieurs désintégrations  $\beta^-$  conduisent à des noyaux fissiles. Le combustible est composé d'un mélange de ces deux types de noyaux selon certaines proportions.

Les principaux noyaux fissiles sont  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ .

Les principaux noyaux fertiles sont  $^{232}\text{Th}$  et  $^{238}\text{U}$ . Ils se trouvent de manière abondante dans l'écorce terrestre et leur extraction ne pose pas de problème insurmontable.

Parmi les noyaux fissiles, un seul,  $^{235}\text{U}$ , se trouve dans la nature. Le premier réacteur nucléaire, construit en 1942 aux États-Unis par Enrico Fermi, utilisait un combustible à base d'uranium. Les réacteurs suivants ont également utilisé l'uranium et ont participé à la fabrication d'armes nucléaires. La filière de l'uranium s'est ainsi imposée comme combustible pour les centrales nucléaires.

Néanmoins, les deux noyaux fertiles cités précédemment peuvent être à la base de deux filières différentes. La première est la filière de l'uranium composé d'un mélange

( $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ). La seconde, aussi prometteuse, est la filière du thorium dont le combustible possible serait un mélange ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ).

Ces deux filières vont maintenant être présentées en insistant sur les avantages de chacune ainsi que sur les données nucléaires disponibles, qu'elles soient mesurées ou évaluées. Ces évaluations provenant de compilations des données mesurées et/ou calculées.

## 1.1 La filière de l'uranium

La filière de l'uranium a été la première à être développée dans les domaines militaire et civil. Son intérêt premier est la possibilité d'obtenir assez facilement le combustible grâce à la présence dans la nature des noyaux  $^{235}\text{U}$  (fissile) et  $^{238}\text{U}$  (fertile). La production de  $^{239}\text{Pu}$  à des fins militaires a considérablement stimulé le programme de construction de réacteurs de la filière UNGG. En France, le premier réacteur nucléaire, prénommé Zoé, fut construit par le CEA et a fonctionné pour la première fois le 15 décembre 1948 pour une puissance de 150 kW. Arrêté en 1976, Zoé a marqué le coup d'envoi de l'intérêt français pour le nucléaire. Aujourd'hui, si la production d'électricité nucléaire reste marginale au niveau mondial, la part du nucléaire dans la production d'électricité en France est largement majoritaire avec plus de 75%, soit entre 900 et 1300 MW. Le choix du nucléaire dans les années 70 en France a répondu aux chocs pétroliers de 1973 et 1979, afin d'assurer une indépendance énergétique que le pays avait perdu avec la politique précédente du tout-pétrole.

Deux autres conséquences importantes pour la France ont accompagné le développement du nucléaire. La première est apparue dans le domaine militaire. Dans les années 1960, La France s'est dotée de l'arme nucléaire. La seconde, plus proche de nous, a été mise en lumière lors de la conférence de Kyoto (1997) sur le rejet des gaz à effet de serre. Les pays industrialisés se sont vus attribuer des objectifs de réduction de leurs émissions de gaz à effet de serre. Si l'Allemagne, disposant essentiellement de centrales thermiques (utilisant des combustibles fossiles) doit réduire ses émissions de 17% d'ici 2005, la France pourrait les maintenir à leur niveau de 1997.

### 1.1.1 Les données nucléaires de la filière de l'uranium

Il faut séparer en deux types les données nucléaires de cette filière.

Les premières concernent le combustible à proprement parler :

On distingue ici deux catégories : l'une concerne les principaux éléments du combustible comme les sections efficaces de capture de  $^{238}\text{U}$  (figure 1.1(a)), de fission du  $^{239}\text{Pu}$  (figure 1.1(b)) et de  $^{235}\text{U}$ . Cette dernière est considérée comme un standard "fission" de référence dans les mesures de sections efficaces. Ces sections efficaces sont maintenant très bien

connues (de l'ordre de quelques % ou mieux). Elles ont permis d'optimiser le rendement des réacteurs et les évaluations ne présentent plus de grandes différences. La seconde catégorie concerne les autres noyaux présents au moment de la mise en route du réacteur ou créés lors de son fonctionnement par différents processus nucléaires (capture, désintégration, fission etc). Pour cette deuxième catégorie, il faut évaluer les données au cas par cas. Certaines sont capitales comme pour le  $^{239}\text{Pu}$  issu de la capture d'un neutron par l' $^{238}\text{U}$  suivie de deux désintégrations  $\beta^-$ .

D'autres sont plus marginales comme pour le  $^{239}\text{Np}$  produit en permanence dans le réacteur mais dont la courte demi-vie (2.3 jours) n'induit pas de forte concentration. Les sections efficaces de capture et de fission du  $^{239}\text{Np}$  sont représentées sur les figures (1.1(c) et (d)). Il est important de préciser que ces sections efficaces sont seulement calculées. Ainsi, la section efficace de fission provient de celle du  $^{237}\text{Np}$  après correction des énergies de liaison du dernier neutron, alors que la section efficace de capture est une simple évaluation à partir de la formule empirique :

$$\sigma(E(\text{eV}))(n, \gamma) = 77.0 \cdot \sqrt{\frac{0.0253}{E}} b \quad (1.1)$$

Ce noyau pourrait faire l'objet d'une étude similaire à celle présentée dans ce travail pour le  $^{233}\text{Pa}$ .

D'autres noyaux sont également présents dans un réacteur en fonctionnement comme des Américium ou des Curium, issus de captures et désintégrations successives à partir du  $^{239}\text{Pu}$ , et des produits de fission. On obtient toute une gamme de noyaux dont les différentes sections efficaces sont plus ou moins bien connues. Elles sont cependant suffisantes pour assurer le bon fonctionnement du réacteur.

Actuellement, deux types de combustible sont utilisés dans les centrales nucléaires : le MOX(60% des réacteurs) et le UOX(40% des réacteurs) dont un bilan quantitatif des noyaux présents lors du chargement et du déchargement est présenté dans les tableaux (1.2) et (1.3). Parmi les noyaux produits il existe pour les Américium et les Curium des projets d'incinération. La constitution de données nucléaires fiables pour permettre ces projets paraît indispensable. Pour ce type de noyaux dont la demande est importante les expérimentateurs se heurtent à un problème de cible. En effet, il est aujourd'hui difficile de se procurer des quantités de matière suffisantes pour permettre de réaliser des mesures. Pour les produits de fission, des projets de transmutation sont à l'étude et des mesures de sections efficaces sont demandées pour en évaluer la faisabilité. Parmi les différents produits de fission présentés dans le tableau (1.1), nous pouvons constater que certains sont transmutables. Des mesures de sections efficaces de capture radiative ont été réalisées pour  $^{99}\text{Tc}$  et sont en cours pour  $^{129}\text{I}$ .

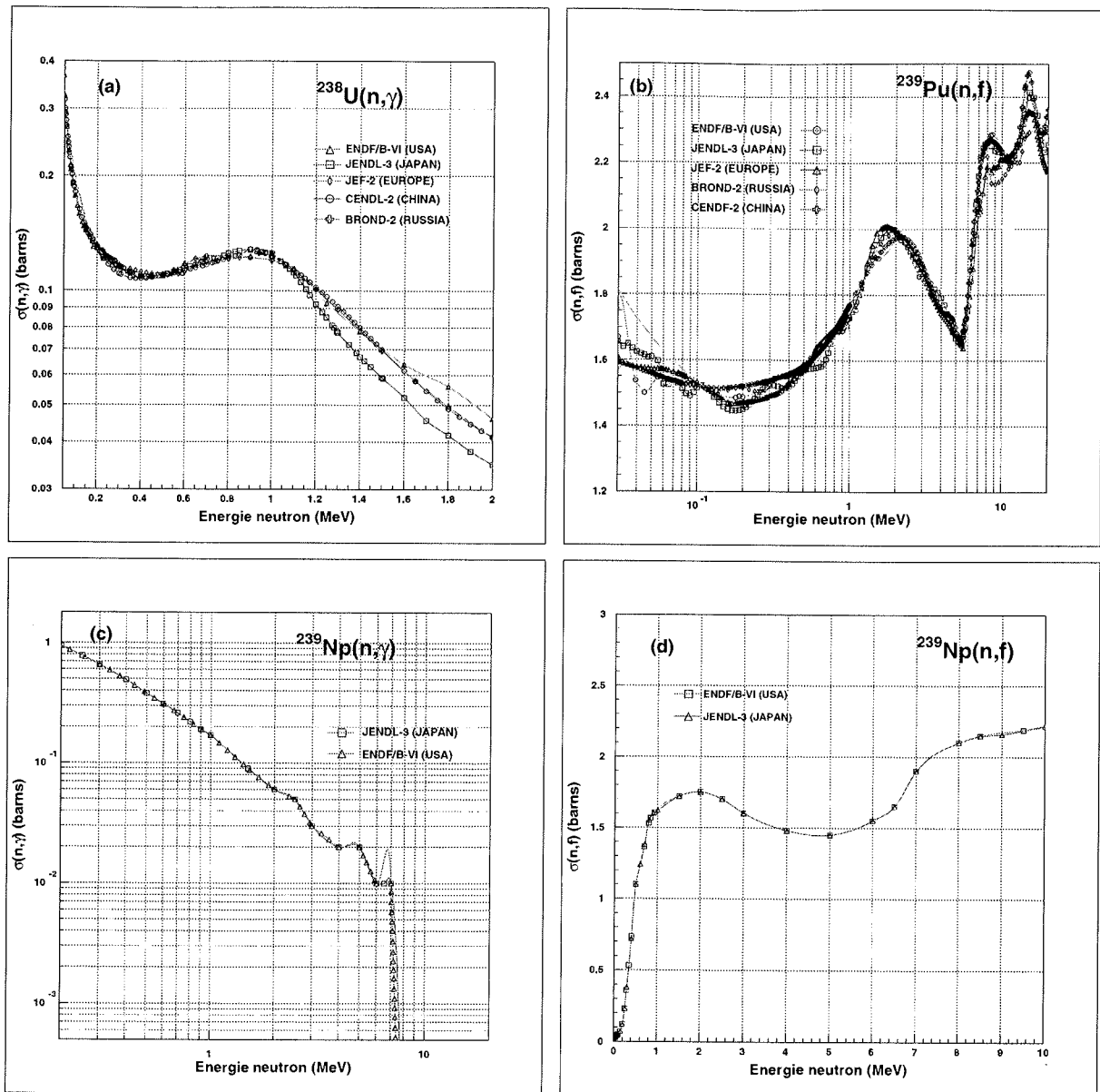


FIG. 1.1: Sections efficaces de fission et/ou de capture de noyaux présents dans la filière de l'uranium, évaluation par différentes bases de données.



	Demi-vie (ans)	$\sigma$ (barns)		$T_{1/2}$		transmutation
		rapide	thermique	rapide	thermique	
$^{79}\text{Se}$	$6.5 \cdot 10^4$	0.03	0.1	730	2200	-?-
$^{90}\text{Sr}$	29	0.01	0.14	2200	1600	non
$^{93}\text{Zr}$	$1.5 \cdot 10^6$	0.03	0.28	730	790	oui
$^{94}\text{Nb}$	$2.0 \cdot 10^4$	0.04	2.2	550	100	oui?
$^{99}\text{Tc}$	$2.1 \cdot 10^5$	0.4	4.3	110	51	oui
$^{107}\text{Pd}$	$6.5 \cdot 10^6$	0.5	0.3	44	730	oui
$^{126}\text{Sn}$	$1.0 \cdot 10^5$	0.005	0.05	4400	4400	-?-
$^{129}\text{I}$	$1.6 \cdot 10^7$	0.14	4.3	160	51	oui
$^{135}\text{Cs}$	$2.3 \cdot 10^6$	0.07	1.3	310	170	oui
$^{137}\text{Cs}$	30	0.01	0.02	2200	11000	non
$^{151}\text{Sm}$	89	0.7	700	31	0.3	non?

TAB. 1.1: Possibilités de transmutation des principaux produits de fission. Spectre rapide : énergie = 0.2 MeV,  $\phi = 10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>/s, Spectre thermique : énergie = 1 eV,  $\phi = 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>/s.  $T_{1/2}$  est la demi-vie par transmutation, obtenue par  $T_{1/2} = \ln(2)/\sigma\phi$  (en années)

Ainsi, les raisons de cette demande concernent moins le fonctionnement des réacteurs que l'avenir des déchets nucléaires qu'ils produisent.

Le second type de données a pour origine le contrôle du réacteur. Il s'agit du Cadmium des barres de contrôle qui absorbent le surplus de neutrons, empêchant l'emballement critique du réacteur, ou encore les matériaux ralentisseurs comme l'eau lourde.

Ils rentrent dans une catégorie que l'on pourrait appeler la sécurité du réacteur, et ont fait l'objet de nombreuses études ; ils sont maintenant parfaitement maîtrisés.

### 1.1.2 Avantages et inconvénients de la filière uranium

#### les avantages

Le premier avantage de cette filière est son développement industriel. Durant la seconde moitié du 20<sup>ème</sup> siècle, la quasi-totalité de la production d'énergie nucléaire mondiale s'est tournée vers l'uranium. Son industrie est maintenant bien rodée depuis l'extraction du minerai jusqu'à son retraitement. Aucun investissement tant dans le domaine de la recherche (mesures expérimentales, études de faisabilité, mises au point de techniques de traitement ou de retraitement du combustible) que dans celui du développement (techniques d'extraction, constructions d'usines de retraitement ou d'enrichissements du minerai) n'est plus nécessaire. Il "suffit" donc de construire la centrale nucléaire pour pouvoir l'utiliser. C'est ainsi que la France a vendu des centrales "clés en main".

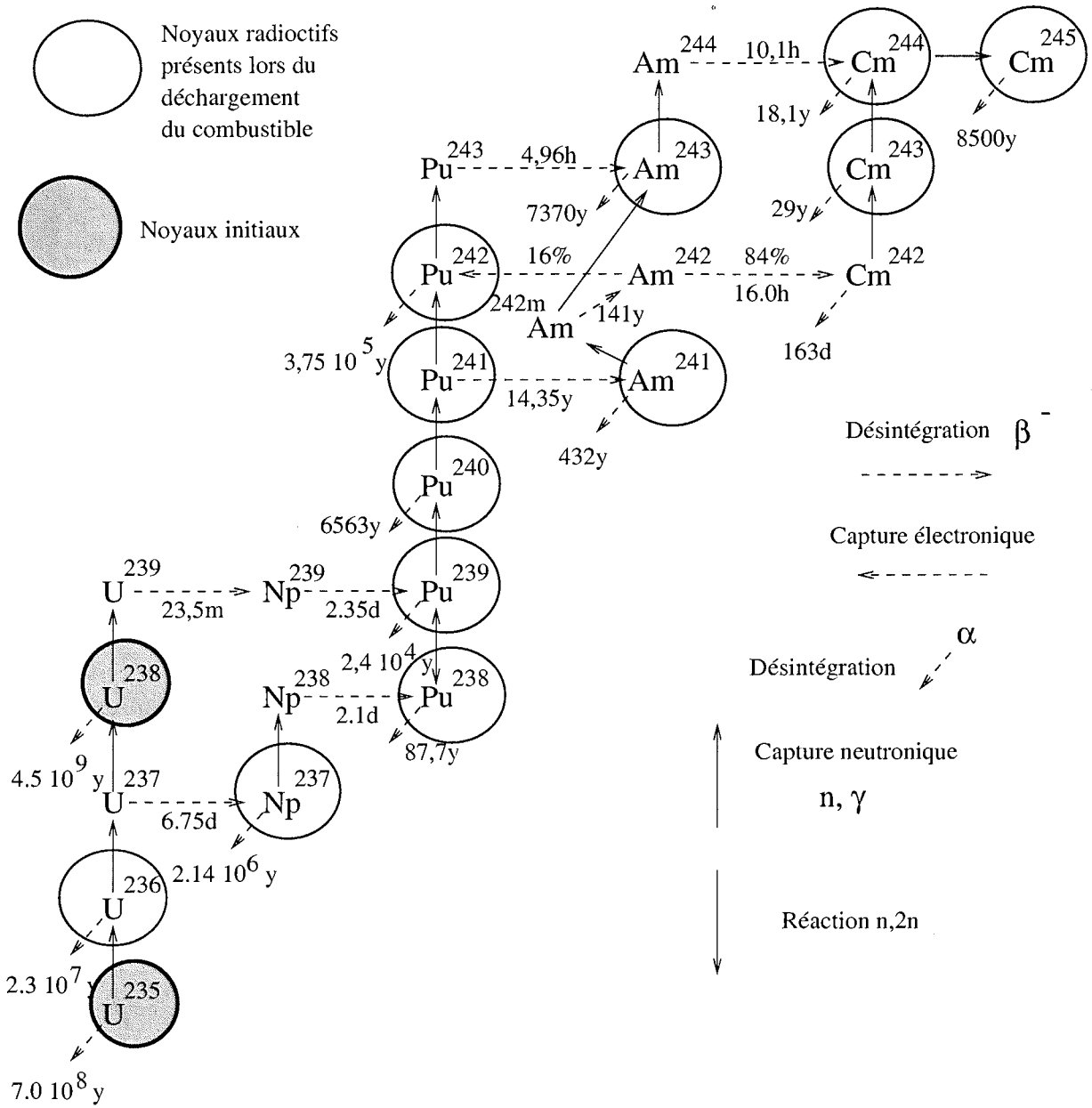


FIG. 1.2: Chaîne des noyaux formés par la filière uranium

De plus, certains pays disposant d'une industrie nucléaire se sont lancés avec succès dans la construction de bâtiments navals mûs par propulsion nucléaire (sous-marins, porte-avions). Leur autonomie énergétique est considérable et ces bâtiments sont capables de faire plusieurs fois le tour de la planète sans escale à des vitesses importantes. Leurs performances sont aujourd'hui inégalables par d'autres moyens.

### les inconvénients

La production d'énergie nucléaire pose plusieurs problèmes.

Le premier concerne la criticité des réacteurs actuels. Les conséquences de l'accident de Tchernobyl en 1986 ont été désastreuses. La contamination de toute l'Europe par le nuage radioactif ainsi que le manque de transparence des différentes autorités politiques de l'époque ont profondément marqué les esprits. Même s'il est difficile aujourd'hui de savoir quelle est la contribution du principal accident civil nucléaire de l'histoire sur l'émergence électorale des partis écologistes en Europe, ceux-ci conditionnent souvent leur participation à un gouvernement par des concessions importantes dans le domaine du nucléaire (arrêt de Superphenix en France, abandon "définitif" du nucléaire en Allemagne et en Belgique).

Le second point concerne la gestion des déchets issus du combustible utilisé. L'industrie nucléaire en France produit plusieurs tonnes de déchets nucléaires (produits de fission, Actinides mineurs) pour lesquels les solutions à longue échéance sont difficiles à trouver. La loi Bataille du 31 décembre 1991 tente de donner un cadre légal à la gestion des déchets (transmutation, incinération, enfouissement, etc). Elle fixe un calendrier aux scientifiques pour étudier les différentes solutions envisageables. Ainsi, en 2006, à partir des données scientifiques disponibles, une décision doit être prise.

Un troisième point concerne l'épuisement des ressources en  $^{235}\text{U}$ . Si l'uranium est relativement abondant dans la nature, le taux de l'isotope  $^{235}\text{U}$  n'est que de 0.72% en raison de sa demi-vie plus courte ( $7.04 \cdot 10^8$  ans) que celle de l' $^{238}\text{U}$  ( $4.47 \cdot 10^9$  ans). Il apparaît que les ressources en  $^{235}\text{U}$  pourraient manquer.

Ces trois problèmes majeurs qui limitent l'utilisation de l'uranium dans le domaine de la production d'énergie pourraient être en partie résolus par le développement d'une autre filière: la filière du thorium.

Isotope	Demi-vie (années)	Chargement		Déchargement	
		kg/TWhel	kg/année	kg/TWhel	kg/année
$^{235}\text{U}$	$7.08 \cdot 10^8$	6.7	11.1	3.5	5.8
$^{236}\text{U}$	$2.34 \cdot 10^7$			0.7	1.2
$^{238}\text{U}$	$4.47 \cdot 10^9$	2704	4478	2573	4261
$^{238}\text{Pu}$	87.7	6.8	11.3	7.5	12.4
$^{239}\text{Pu}$	24119	126	209	63.5	105.2
$^{240}\text{Pu}$	6569	59.5	98.5	52.8	87.4
$^{241}\text{Pu}$	14.4	26.9	44.5	24.6	40.7
$^{242}\text{Pu}$	$3.70 \cdot 10^5$	18.7	31.0	21.5	35.6
$^{237}\text{Np}$	$2.14 \cdot 10^6$			0.5	0.8
$^{241}\text{Am}$	432.2			8.7	14.4
$^{243}\text{Am}$	7380			5.4	9.0
$^{243}\text{Cm}$	28.5			0.04	0.1
$^{244}\text{Cm}$	18.1			2.4	4.0
$^{245}\text{Cm}$	8500			0.3	0.5
$^{90}\text{Sr}$	28			0.9	1.5
$^{93}\text{Zr}$	$1.5 \cdot 10^6$			1.8	3.0
$^{99}\text{Tc}$	$2.1 \cdot 10^5$			2.9	4.8
$^{107}\text{Pd}$	$6.5 \cdot 10^6$			1.9	3.2
$^{129}\text{I}$	$1.57 \cdot 10^7$			0.8	1.3
$^{135}\text{Cs}$	$2.0 \cdot 10^6$			2.9	4.8
$^{137}\text{Cs}$	30			4.3	7.1

TAB. 1.2: Inventaire du combustible (MOX) d'une centrale PWR de 900 MWel au chargement et au déchargement (après un refroidissement de 4 ans).

Isotope	Demi-vie (années)	Chargement		Déchargement	
		kg/TWhel	kg/année	kg/TWhel	kg/année
$^{235}\text{U}$	$7.08 \cdot 10^8$	136	751	40	221
$^{236}\text{U}$	$2.34 \cdot 10^7$			16	88
$^{238}\text{U}$	$4.47 \cdot 10^9$	3757	20734	3661	20204
$^{238}\text{Pu}$	87.7			0.6	3.3
$^{239}\text{Pu}$	24119			22.3	123.1
$^{240}\text{Pu}$	6569			8.6	47.5
$^{241}\text{Pu}$	14.4			4.6	25.4
$^{242}\text{Pu}$	$3.70 \cdot 10^5$			1.9	10.5
$^{237}\text{Np}$	$2.14 \cdot 10^6$			1.6	8.8
$^{241}\text{Am}$	432.2			0.8	4.4
$^{243}\text{Am}$	7380			0.4	2.2
$^{243}\text{Cm}$	28.5			0	0
$^{244}\text{Cm}$	18.1			0.09	0.5
$^{245}\text{Cm}$	8500			0.01	0.06
$^{90}\text{Sr}$	28			1.9	10.5
$^{93}\text{Zr}$	$1.5 \cdot 10^6$			2.8	15.5
$^{99}\text{Tc}$	$2.1 \cdot 10^5$			3.2	17.7
$^{107}\text{Pd}$	$6.5 \cdot 10^6$			0.8	4.4
$^{129}\text{I}$	$1.57 \cdot 10^7$			0.7	3.9
$^{135}\text{Cs}$	$2.0 \cdot 10^6$			1.4	7.7
$^{137}\text{Cs}$	30			4.4	24.3

TAB. 1.3: Inventaire du combustible (UOX) d'une centrale PWR de 900 MWel au chargement et au déchargement (après un refroidissement de 3 ans).

## 1.2 La filière du thorium

La filière du thorium apparaît comme "la petite soeur" de la filière uranium. En effet, son principe en est très proche. Un noyau fertile, le  $^{232}\text{Th}$ , capture un neutron et après deux désintégrations  $\beta^-$  successives donne le noyau  $^{233}\text{U}$  fissile. Un surplus de noyaux fissiles ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ) est nécessaire pour amorcer le réacteur.

Le potentiel de cette filière a été remarqué dès les années 1950. Le Canada et l'Inde l'ont développée pour construire plusieurs réacteurs au thorium, contournant ainsi le manque d' $^{235}\text{U}$  nécessaire à la construction d'un réacteur "classique". Au cours des années 1980, les projets de réacteurs à sel fondu à base de thorium et le projet connu sous le nom de système hybride (figure 1.3) l'ont remise au premier plan. Le projet de système hybride consiste à piloter un réacteur au thorium avec un accélérateur de protons de haute intensité et de haute énergie. Il fait actuellement l'objet d'une intense recherche dont les acteurs français (CEA, CNRS, EDF) sont réunis au sein du groupement de recherche GEDEON (GEstion des DÉchets et Options Nouvelles).

En matière de sécurité, le projet de réacteur hybride est une solution très intéressante. Le fonctionnement du réacteur, sous critique, est assuré par un apport externe de neutrons, provenant de l'interaction d'un faisceau de protons avec une cible composée d'un élément lourd. L'arrêt de l'accélérateur suffirait pour que le réacteur s'éteigne en quelques microsecondes.

Pour ce qui est de la gestion des déchets actuellement produits par l'industrie nucléaire, ce type de réacteur serait capable d'en accepter certains afin de les incinérer ou de les transmuter. Ceci permettrait de diminuer la quantité de déchets ultimes.

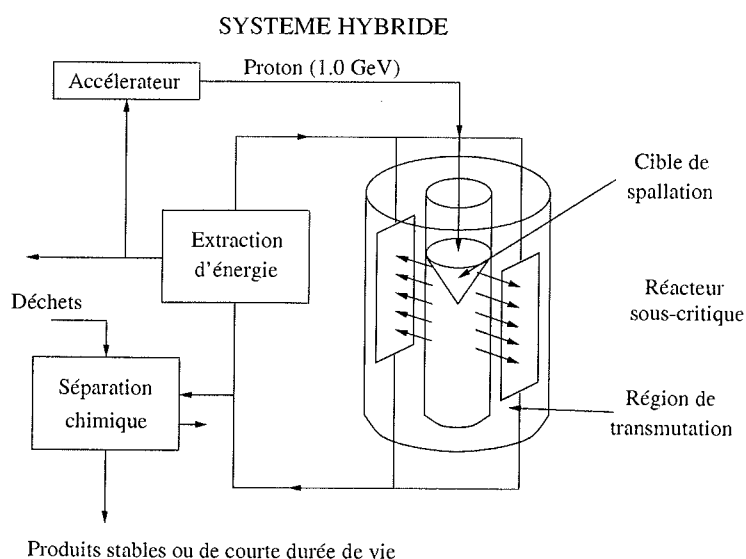


FIG. 1.3: Schéma d'un système hybride (d'après [BOW92])

### 1.2.1 Avantages et inconvénients de la filière thorium

#### les avantages

Si la filière thorium suscite de nombreuses recherches et un grand intérêt dans la communauté scientifique, c'est en raison des nombreux avantages qu'est susceptible d'apporter l'exploitation industrielle de la filière thorium. Voici résumés les avantages théoriques qu'apporterait cette filière.

- tout d'abord, le  $^{232}\text{Th}$ , point de départ de la filière, est très abondant dans la nature. En effet la demi-vie du  $^{232}\text{Th}$  ( $1.4 \cdot 10^{10}$  ans) est trois fois supérieure à la demi-vie de l' $^{238}\text{U}$  ( $4.4 \cdot 10^9$  ans). L'abondance des réserves en thorium s'explique par la relative stabilité du  $^{232}\text{Th}$ .

- ensuite, la probabilité de fission de l' $^{233}\text{U}$  (91.8%) est supérieure à celle du  $^{239}\text{Pu}$  (84.1%). La rentabilité énergétique de la filière est ainsi améliorée.

- la plus forte probabilité de fission de l' $^{233}\text{U}$  ainsi que sa masse doivent induire une diminution importante de la production d'Actinides mineurs comme le montre la figure (1.4) comparée à la figure équivalente de la filière uranium (1.2).

- enfin, l'utilisation de cette filière rendrait difficile la fabrication et le transport en secret de bombes nucléaires à base d' $^{233}\text{U}$ . En effet, l' $^{233}\text{U}$  provoque inévitablement la présence d' $^{232}\text{U}$ . Ce noyau se désintègre par émission  $\alpha$  vers le  $^{228}\text{Th}$ , se qui induit la présence d'un  $\gamma$  dur de 2.615 MeV (figure 1.5). Sa détection serait suffisante pour signer la présence de l' $^{233}\text{U}$  et/ou du  $^{232}\text{Th}$ .

Tous les avantages associés à la filière thorium décrits ici se heurtent à des inconvénients importants mais surmontables.

#### les inconvénients

Le premier inconvénient concerne le développement de la filière et son industrialisation. Le projet est certes lancé mais ne devrait pas aboutir avant une dizaine d'années si le calendrier est respecté. De nombreux investissements sont nécessaires tant dans le domaine de la recherche que du développement. En particulier, le projet de réacteur hybride tel qu'il est pensé prévoit la construction d'un accélérateur de protons de plusieurs GeV avec une intensité de l'ordre du milli-ampère, d'une cible de spallation et d'un massif en plomb permettant la convection de la chaleur dans le réacteur. De nombreuses recherches sur ces trois points sont actuellement en cours : la construction d'un réacteur hybride constituerait une prouesse technologique.

Un autre inconvénient de la filière apparaît dans le domaine de l'extraction du minerai de thorium. Le  $^{232}\text{Th}$  a une demi-vie très longue, néanmoins, lorsqu'il se désintègre par émission alpha il génère une chaîne de décroissance (figure 1.5) qui se termine par le





$^{208}\text{Pb}$  stable. L'émission en fin de chaîne d'un photon dur de 2.615 MeV ( $A\gamma(2.615\text{ MeV}) = 4.07 \cdot 10^6\text{ Bq/kg}$ ) pose des problèmes de radioprotection pour les ouvriers travaillant à l'extraction du minerai et au retraitement du combustible usé. Des techniques spécifiques doivent donc être mises au point pour assurer leur sécurité.

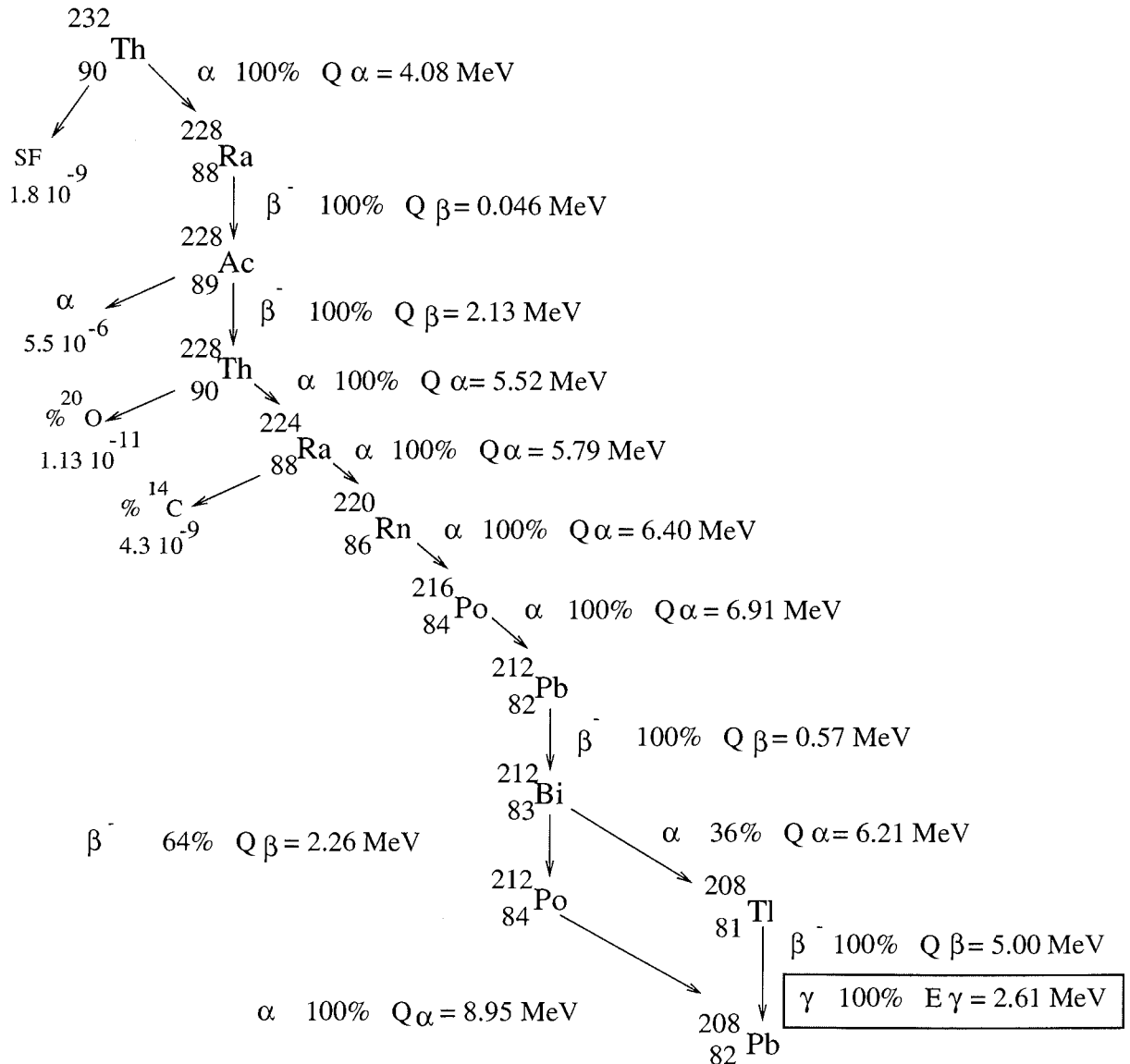


FIG. 1.5: Filiation radioactive issue de la désintégration  $\alpha$  du  $^{232}\text{Th}$

Actuellement, les projets associés à la filière du thorium sont dans une phase préliminaire avec en particulier la collecte de données nucléaires à laquelle participe mon groupe d'accueil du CEN-Bordeaux-Gradignan: Aval du cycle. Il s'agit de réactualiser des données parfois anciennes dont les évaluations diffèrent, ou de réaliser des mesures expérimentales là où les données sont inexistantes. Pour bien se rendre compte des besoins,

voici un bilan des principales données nucléaires demandées.

## 1.2.2 Bilan et besoins en données nucléaires

Pour illustrer le bilan et les besoins en données nucléaires nous avons représenté la filière du thorium simplifiée sur la figure (1.6). Il est possible de la comparer à la filière uranium de la figure (1.7). Dans l'analogie filière uranium-filière thorium, les noyaux  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{Pa}$  et  $^{233}\text{U}$  de la filière thorium jouent respectivement les rôles des noyaux  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Np}$  et  $^{239}\text{Pu}$  de la filière uranium.

Comme le montre la figure (1.6), la production de  $^{233}\text{U}$  est contrôlée par le  $^{233}\text{Pa}$  dont la compétition entre accumulation, désintégration et réaction ((n,f) et (n, $\gamma$ )) produit les effets suivants.

- La capture d'un neutron par le  $^{233}\text{Pa}$  modifie l'équilibre neutronique dans le milieu du réacteur. Or, le bilan neutronique du cycle du Thorium est particulièrement tendu puisque l'on dispose de peu de neutrons pour assurer à la fois la production d'énergie par la fission de  $^{233}\text{U}$  et sa régénération à partir de la capture d'un neutron par le  $^{232}\text{Th}$ .
- La longue période de désintégration du  $^{233}\text{Pa}$  ( $T_{1/2}=27$  jours) comparée à celle du noyau équivalent ( $^{239}\text{Np}$ ) ( $T_{1/2}=2.35$  jours) dans la filière actuelle (U-Pu) se traduit en fonctionnement par une perte de réactivité suivie après l'arrêt du réacteur d'un surcroît de réactivité: ce dernier phénomène constitue ce que l'on appelle l'effet protactinium.

La détermination des sections efficaces de capture et de fission du  $^{233}\text{Pa}$  apparaît donc indispensable. Ainsi, la section efficace de fission doit être connue avec une précision de l'ordre de 15%.

Regardons maintenant les sections efficaces de la filière du thorium évaluées par les grandes banques de données.

Tout d'abord, la section efficace de capture du  $^{232}\text{Th}$  est représentée sur la figure (1.8(a)). Cette section efficace, demandée à 2%, près est la porte d'entrée de la filière. Nous pouvons constater que les différentes évaluations diffèrent jusqu'à 30%. Une nouvelle mesure a été effectuée auprès de l'accélérateur Van de Graaff de Bordeaux et a permis de valider l'évaluation contenue dans la base de données japonaise JENDL-3 entre 50 et 800 keV et au-dessus de 1.5 MeV. Les valeurs obtenues entre 0.8 et 1.5 MeV sont systématiquement inférieures aux différentes évaluations. Ce travail a été réalisé par D. Karamanis, M. Petit *et al.* et a fait l'objet d'une publication dans Nuclear Science and Engineering [KAR01].

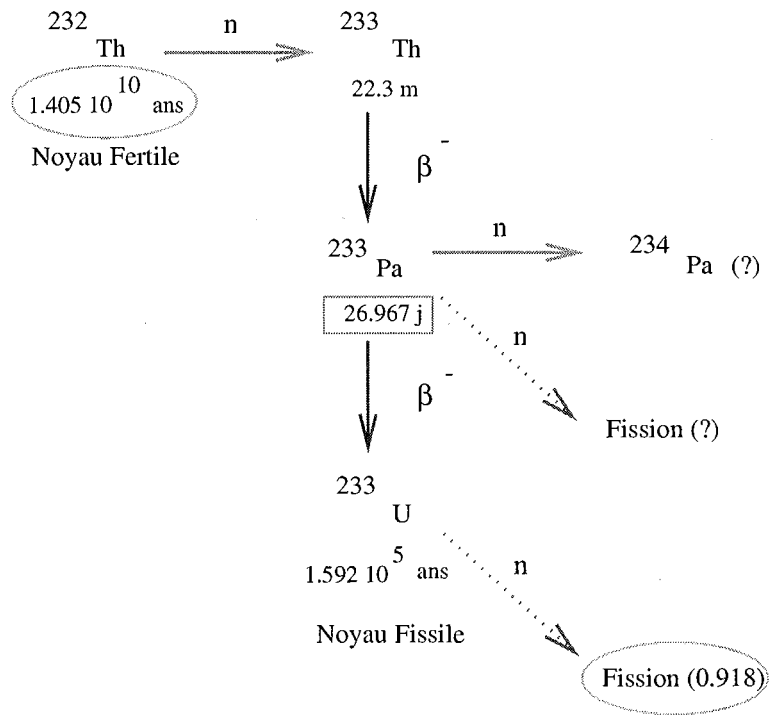


FIG. 1.6: Schéma simplifié de la filière du thorium

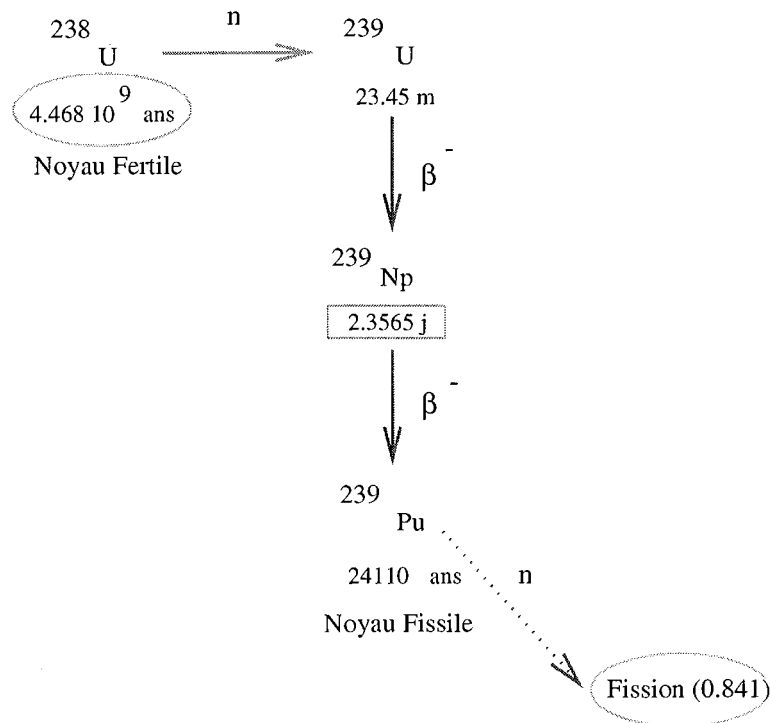


FIG. 1.7: Schéma simplifié de la filière de l'uranium

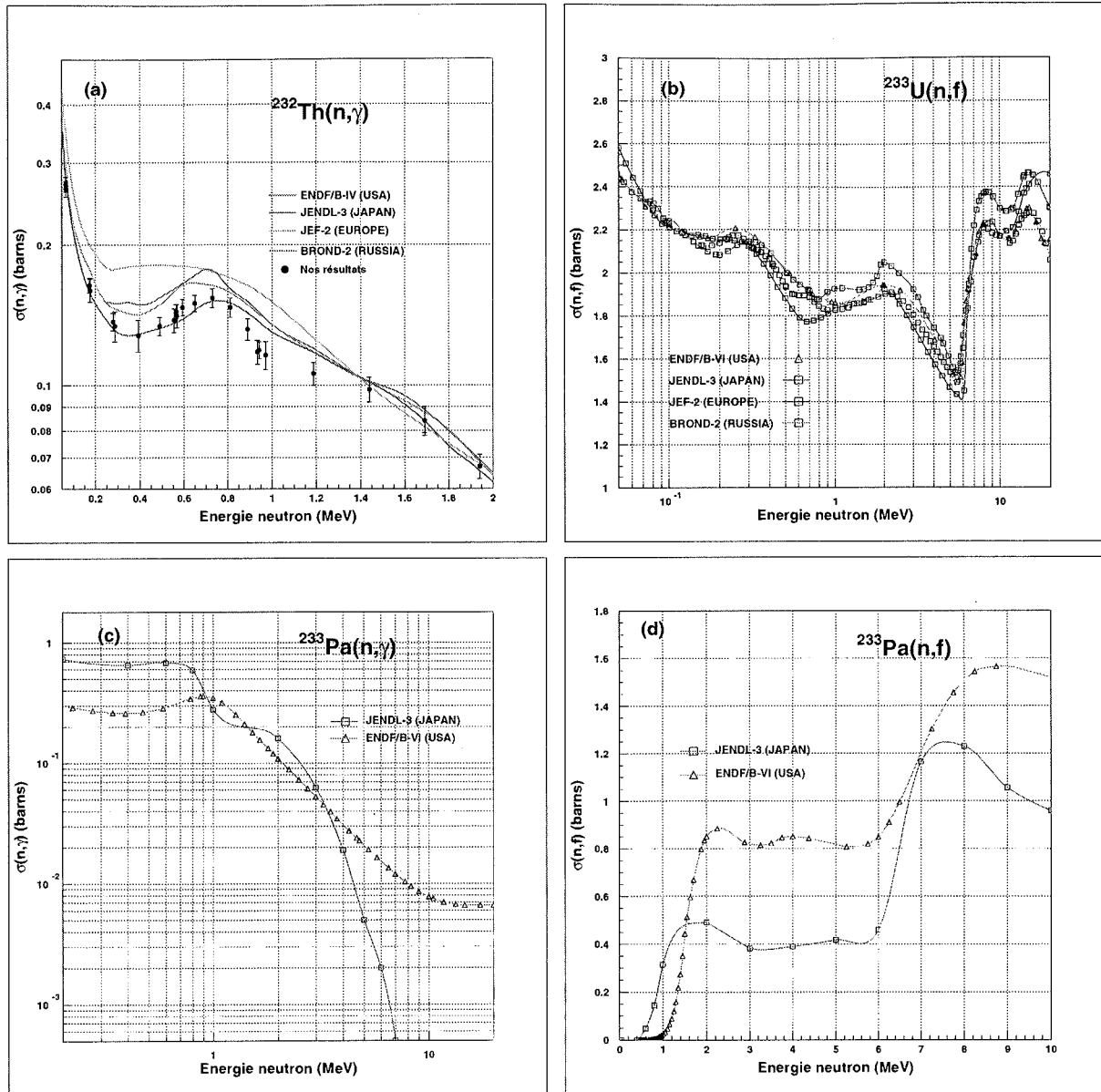


FIG. 1.8: Sections efficaces de fission et/ou de capture de noyaux présents dans la filière du thorium ; évaluées dans différentes bases de données et résultats expérimentaux obtenus dans notre laboratoire pour la réaction  $^{232}\text{Th}(n,\gamma)^{233}\text{Th}$ .

Ensuite, la section efficace de fission de  $^{233}\text{U}$  est représentée sur la figure (1.8(b)). Cette section efficace demandée avec une précision de 1% constitue la réaction exothermique principale de la filière. Les différentes évaluations sont relativement concordantes mais une nouvelle évaluation paraît néanmoins indispensable et constitue actuellement un sujet d'étude au sein du groupe Aval du Cycle de Bordeaux.

Enfin, les sections efficaces de capture et de fission du  $^{233}\text{Pa}$  sont représentées sur la figure (1.8(c) et (d)). Ces données sont uniquement évaluées et nous allons préciser comment.

L'évaluation de la section efficace de fission du  $^{233}\text{Pa}$  par ENDF/B-VI (Etats-Unis) a été réalisée à partir de celle de  $^{238}\text{U}$  renormalisée par des méthodes différentes suivant les gammes d'énergie. L'évaluation de JENDL-3 (Japon) a été réalisée à partir des probabilités de fission des  $^{231,232,233}\text{Pa}$  mesurées par Gavron *et al.* [GAV76].

L'évaluation de la section efficace de capture du  $^{233}\text{Pa}$  par ENDF/B-VI a été réalisée à partir de celle de  $^{238}\text{U}$  avec renormalisation par rapport à celle de  $^{236}\text{U}$ . Celle de JENDL-3 est réalisée à partir du code CASTHY avec l'utilisation des paramètres de densité de niveaux de Gilbert-Cameron au-dessus de 0.5 MeV et la prise en compte des niveaux discrets du  $^{233}\text{Pa}$  au-dessous.

Les sections efficaces demandées dans la filière du thorium sont résumées et présentées sur la figure (1.9) [KUZ97].

Dans la suite de ce travail, les bases de données ENDF/B-VI (Etats-Unis) et JENDL-3 (Japon) [NNDC] seront notées ENDF et JENDL.

### Connaissance expérimentale du $^{233}\text{Pa}$

Comme nous l'avons constaté, les évaluations des différentes bases de données présentent une disparité importante pour les sections efficaces de capture et de fission du  $^{233}\text{Pa}$ . Ces disparités résultent du faible nombre de mesures réalisées. Le site [NNDC] indique dix-huit mesures par cinq auteurs différents et sept références pour la section efficace de capture du  $^{233}\text{Pa}$ . Toutes ces mesures ont été réalisées à l'énergie thermique ( $E_n=0.0253$  eV). Elles présentent une importante disparité (entre 19 et 151 barns).

Pour la section efficace de fission du  $^{233}\text{Pa}$ , l'activité élevée de ce noyau ( $7.7 \cdot 10^8$  Bq/ $\mu\text{g}$ ) rend difficile une mesure directe. La quantité de matière doit être limitée et le dispositif expérimental de détection optimisé. De plus, la durée de l'expérience doit être courte pour limiter la contribution de son descendant direct,  $^{233}\text{U}$  (noyau fissile) dont la section efficace de fission est plus élevée que celle du  $^{233}\text{Pa}$  (noyau non fissile). Ces contraintes expliquent la quasi-absence de mesures de sections efficaces neutroniques (capture et fission). Lorsque cette étude a commencé (Juin 1999), une seule mesure de la section efficace de fission avait été publiée en 1967 [GUN67]. Cette mesure avait été

réalisée avec des neutrons issus d'un réacteur, et dont le spectre en énergie était mal défini: la contribution des neutrons thermiques et épithermiques étant incertaine. La valeur présentée ( $775 \pm 190$  mb) est une section efficace moyennée.

Le principal objectif de ce travail sera de déterminer la section efficace de fission du  $^{233}\text{Pa}$  pour une gamme d'énergie de neutron comprise entre 0 et 15 MeV.

Lors de cette mesure, nous aurons également la possibilité de déterminer les sections efficaces de fission des noyaux  $^{231}\text{Pa}$  et  $^{230}\text{Th}$ . La comparaison de nos mesures avec les sections efficaces de fission mesurées en réaction induite par neutron nous permettra de valider notre approche.

### Transformations nucléaires dans le cycle Th-U

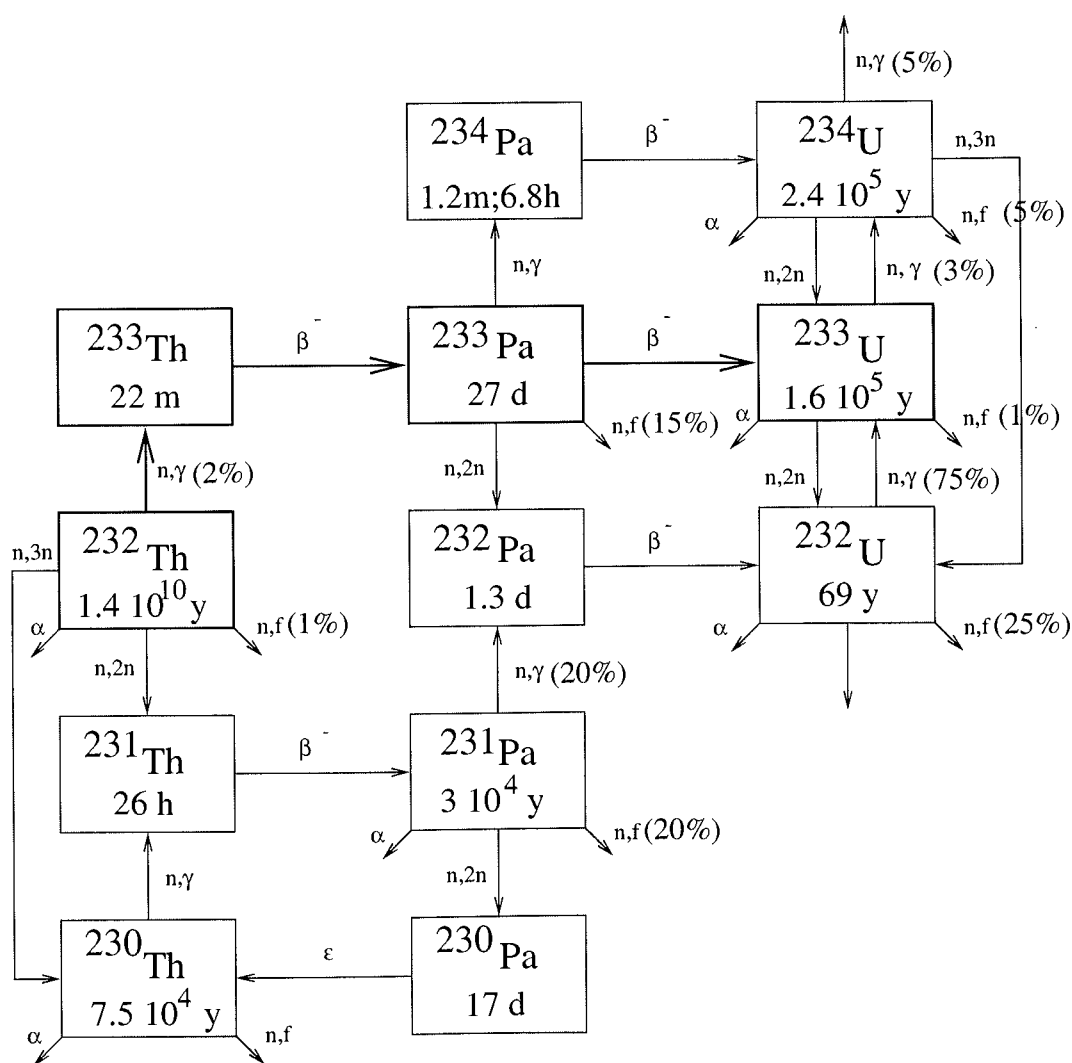


FIG. 1.9: Principales données demandées dans la filière du thorium, avec les incertitudes maximales tolérées [KUZ97]

# Chapitre 2

## Rappels sur la fission

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Le modèle de la goutte liquide</b>	<b>26</b>
2.1.1	Succès de la goutte liquide	28
2.1.2	Les limites du modèle de la goutte liquide	33
2.1.3	La méthode de Strutinsky	34
2.1.4	Le modèle microscopique	37
<b>2.2</b>	<b>Mise en évidence expérimentale de la double barrière de fission</b>	<b>40</b>
2.2.1	Les isomères de forme	42
2.2.2	Les structures intermédiaires	42
2.2.3	Les résonances de vibration	43
2.2.4	Paramétrisation de la barrière de fission	45
2.2.5	Détermination expérimentale des paramètres de la barrière de fission	47
2.2.6	Systématique des barrières de fission	49

---

La fission présente aujourd'hui un regain d'intérêt caractérisé par une demande importante concernant les données nucléaires pour le cycle du thorium. Les études théoriques qui ont permis d'expliquer qualitativement le mécanisme de la fission sont connues depuis de nombreuses années. Nous allons dans cette partie présenter les principaux modèles. Nous en rappellerons les hypothèses de base en explicitant les limites de chacune d'entre elles.

## 2.1 Le modèle de la goutte liquide

Ce modèle proposé par Bohr et Wheeler [BOH39] juste après la découverte de la fission a permis d'expliquer dans les grandes lignes le mécanisme de la fission.

Le processus de fission peut être résumé par une succession de trois étapes. La compétition entre les forces de surface attractives et les forces coulombiennes répulsives induisent des oscillations dans la déformation du noyau. S'il se déforme jusqu'à un point critique appelé point-selle, les forces répulsives deviennent prépondérantes et vont entraîner d'une manière irréversible le noyau vers des déformations de plus en plus grandes jusqu'à la scission en deux ou plusieurs fragments de masse similaire. Ce phénomène très exothermique (200 MeV/fission pour un Uranium) sera suivi par la désexcitation des fragments de fission.

Le modèle de la goutte liquide reste souvent, malgré sa simplicité, le point de départ de nombreuses études sur la fission.

L'énergie de liaison du noyau peut être déterminée à partir de la formule semi-empirique de Weizsäcker [WEI35] dépendant du nombre de nucléons ( $A$ ) et du nombre de protons ( $Z$ ).

$$B(A, Z) = U_v \cdot A - U_s \cdot A^{\frac{2}{3}} - U_c \cdot \frac{Z^2}{A^{\frac{1}{3}}} - U_t \cdot \frac{(N - Z)^2}{A} + (\delta, 0, -\delta) \quad (2.1)$$

$$U_v \simeq 16 \text{ MeV} \quad U_s \simeq 17 \text{ MeV} \quad U_c \simeq 0.7 \text{ MeV} \quad U_t \simeq 12 \text{ MeV}, \quad (2.2)$$

Avec ( $U_v \cdot A$ ) terme de volume, ( $U_s \cdot A^{\frac{2}{3}}$ ) terme de surface, ( $U_c \cdot \frac{Z^2}{A^{\frac{1}{3}}}$ ) terme coulombien, ( $U_t \cdot \frac{(N-Z)^2}{A}$ ) terme d'asymétrie proton-neutron et ( $\delta, 0, -\delta$ ), paramètre dépendant du caractère respectivement impair-impair, impair ou pair-pairs du noyau (avec  $\delta = \frac{12}{\sqrt{A}}$  MeV).

Dans la formule de l'énergie de liaison de Weizsäcker, seuls les termes coulombiens et de surface dépendent de la forme du noyau.

Le noyau est considéré comme une goutte liquide incompressible et uniformément chargée. Son évolution est traitée dans le cadre de la mécanique classique. Les forces de surface attractives et coulombiennes répulsives sont les seules prises en compte pour assurer la stabilité du noyau. Pour de petites oscillations de type quadrupolaire autour de la forme sphérique stable, l'énergie potentielle du noyau s'écrit :

$$E(\{\beta\}) = E_{\text{sphérique}} + \Delta E_C(\{\beta\}) + \Delta E_S(\{\beta\}) \quad (2.3)$$

Où  $\{\beta\}$  représente la déformation autour de la forme stable,  $\Delta E_C(\{\alpha\})$  et  $\Delta E_S(\{\alpha\})$  correspondant respectivement aux variations des énergies coulombienne et de surface avec la déformation du noyau. Pour de petites déformations, l'énergie potentielle du noyau augmente jusqu'à atteindre une déformation critique, c'est le point-selle. Puis, pour des



déformations plus grandes, l'énergie potentielle diminue jusqu'à la déformation critique où le noyau se sépare en deux fragments, c'est la scission. L'augmentation puis la diminution de l'énergie potentielle du noyau avec la déformation permet de définir la barrière de fission qui représente l'énergie minimum qu'il faut apporter au noyau pour lui permettre de fissionner (figure 2.1).

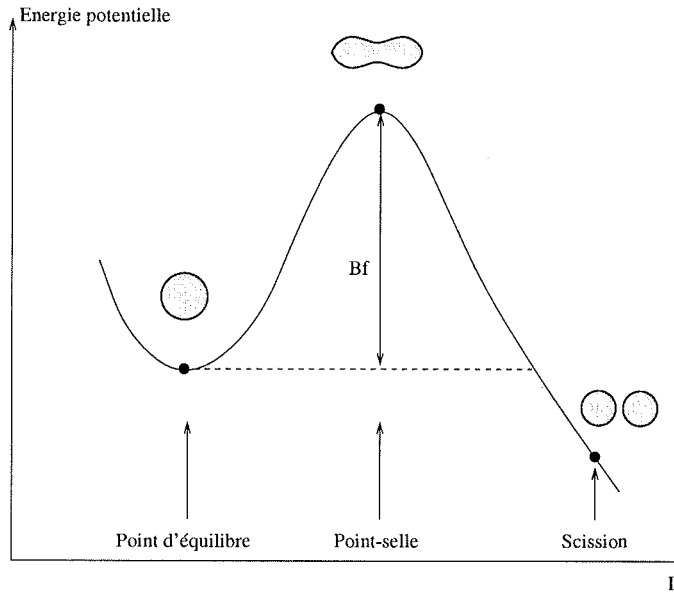


FIG. 2.1: Représentation schématique de l'évolution de l'énergie potentielle en fonction de la déformation dans un processus de fission. Cette courbe présente 3 points importants (●): le point d'équilibre, le point-selle et la scission. La barrière de fission ( $B_f$ ) est la différence entre l'énergie du noyau au point-selle et l'énergie du noyau à l'équilibre.

La notion de barrière de fission prévue dans le cadre du modèle de la goutte liquide est fondamentale pour interpréter des données expérimentales telles que les seuils de fission ou les périodes de fission spontanée.

Dans le cadre de ce modèle, la stabilité vis-à-vis de la fission est caractérisée par le paramètre de fissilité.

$$\chi = \frac{E_C(\{\alpha_0\})}{2E_S(\{\alpha_0\})} = \frac{Z^2/A}{50.883 \left[ 1 - 1.7826 \left( \frac{N-Z}{A} \right)^2 \right]} \quad (2.4)$$

A titre d'exemple, le tableau (2.1) indique le paramètre de fissilité pour plusieurs Actinides.

Pour des paramètres de fissilité inférieurs à 0.67 ( $A \sim 190$  U.M.A<sup>(1)</sup>), le modèle de la goutte liquide s'accorde assez bien avec l'expérience. La fission symétrique est constatée,

1. Unité de Masse Atomique

	$^{232}\text{Th}$	$^{232}\text{Pa}$	$^{234}\text{Pa}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{243}\text{Am}$	$^{298}\text{114}$
$\chi$	0.754	0.741	0.763	0.761	0.798	0.951

 TAB. 2.1: Paramètre de fissilité  $\chi$  pour plusieurs Actinides.

les barrières de fission sont correctement reproduites.

### 2.1.1 Succès de la goutte liquide

La présence d'une barrière de fission prévue par la goutte liquide joue un rôle essentiel dans la fission induite par neutron. Sa mise en évidence a expliqué dans les années 40 le caractère fissile et non fissile des Actinides. Pour des énergies de neutron proches de l'énergie thermique, l'énergie d'excitation du noyau composé formé est voisine de l'énergie de liaison de son dernier neutron ( $Bn$ ). Cette énergie de liaison présente un effet de structure (pair-impair) dû à la force d'appariement. Elle est systématiquement plus élevée pour les noyaux composés comportant un nombre pair de neutrons. Le tableau (2.2) illustre cet effet. Pour plusieurs noyaux ( $Z,N$ ), ce tableau présente l'énergie de liaison du dernier neutron et la barrière de fission du noyau composé ( $Z,N+1$ ) ( $Bf$ ). Les deux dernières colonnes contiennent la pénétrabilité de la barrière ( $Pf$ ) pour une énergie d'excitation égale à  $Bn$  et les sections efficaces de fission correspondantes ( $\sigma(n,f)$ ). On peut apprécier la probabilité de fission  $Pf$  à partir de la pénétrabilité d'une barrière assimilée à une parabole inversée donnée par l'expression (2.5) :

$$Pf = \frac{1}{1 + \exp(-2\pi \frac{E^* - Bf}{\hbar\omega})}, \quad (2.5)$$

où  $E^*$  est l'énergie d'excitation du noyau et  $\hbar\omega$  est la courbure de la barrière de fission (équation 2.20).

Noyau cible ( $Z,N$ )	$Bn$ (MeV) ( $Z,N+1$ )	$Bf$ (MeV) ( $Z,N+1$ )	$Pf$	$\sigma(n,f)$ (barn) $E_n \sim 0.025$ eV
$^{232}\text{Th}$ ( $N=142$ )	4.78	6.40	$4.10^{-5}$	$3.10^{-4}$
$^{238}\text{U}$ ( $N=146$ )	4.81	6.20	$1.6^{-4}$	0.
$^{233}\text{Pa}$ ( $N=142$ )	5.25	$\sim 6.00^{**}$	$8.07^{-5}$	$< 0.1^*$
$^{233}\text{U}$ ( $N=141$ )	6.84	6.00	0.990	531
$^{235}\text{U}$ ( $N=143$ )	6.50	5.90	0.977	582

TAB. 2.2: Effet de structure (pair-impair) sur différents noyaux et conséquence sur la fission. (\*) d'après [KAR98]. (\*\*) d'après la systématique.

L'effet d'appariement peut atteindre 2 MeV alors que les barrières de fission varient

peu d'un noyau à l'autre et restent voisines de 6 MeV. La fission d'un noyau est dominée par la différence entre son énergie d'excitation et sa barrière de fission.

Les pénétrabilités reportées dans le tableau (2.2) permettent de distinguer deux sortes de noyaux. Les noyaux fissionnant avec un nombre impair de neutrons pour lesquels la pénétrabilité est proche de l'unité et les noyaux fissionnant avec un nombre pair de neutrons pour lesquels la pénétrabilité est très faible.

On considère donc deux familles de noyaux cibles :

- Les noyaux fissiles qui conduisent, après capture d'un neutron thermique, à des noyaux composés dont l'énergie d'excitation est supérieure à la barrière de fission.
- Les noyaux non fissiles qui conduisent, après capture d'un neutron thermique, à des noyaux composés dont l'énergie d'excitation est inférieure à la barrière de fission.

Dans cette famille, certains noyaux non fissiles sont appelés noyaux fertiles. Ils jouent un rôle fondamental dans les réacteurs. Ce sont les noyaux  $^{232}\text{Th}$  et  $^{238}\text{U}$ , qui conduisent, après capture d'un neutron suivie de deux désintégrations  $\beta^-$  successives, aux noyaux fissiles respectifs  $^{233}\text{U}$  et de  $^{239}\text{Pu}$ .

C'est par l'allure de leurs sections efficaces de fission que ces deux familles de noyaux se distinguent (figures 2.2).

### Les noyaux non fissiles

Ce sont les noyaux cibles pairs en neutrons ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ). Le  $^{233}\text{Pa}$  qui constitue le but principal de cette étude fait partie de cette famille. Pour les trois noyaux non fissiles présentés sur la figure (2.2b), la section efficace de fission présente un plateau entre l'énergie seuil et six MeV. Ce plateau correspond à la fission de première chance. Par convention, le seuil fission est identifié à l'énergie neutron pour laquelle la section efficace de fission est égale à la moitié de la valeur du plateau. Au-delà de six MeV, le seuil de fission de seconde chance est atteint : il correspond à l'ouverture de la réaction  $(n,n'f)$ . Après émission d'un neutron, le noyau résiduel dispose encore d'une énergie d'excitation supérieure à son seuil de fission.

### Les noyaux fissiles

Ce sont les noyaux cibles impairs en neutrons ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ). La section efficace de fission du  $^{239}\text{Pu}$  (2.2a) fait apparaître trois domaines d'énergie :

- Le domaine thermique ( $E_n < 0.1$  eV) : la section efficace de fission peut atteindre plusieurs centaines de barns. On retrouve ici le comportement en  $1/\sqrt{E_n(\text{eV})}$  caractéristique de cette région d'énergie.
- Le domaine des résonances ( $0.1 < E_n < 1$  à 10 keV) : les variations des sections efficaces de fission peuvent dépasser le millier de barns. La section efficace au voisinage

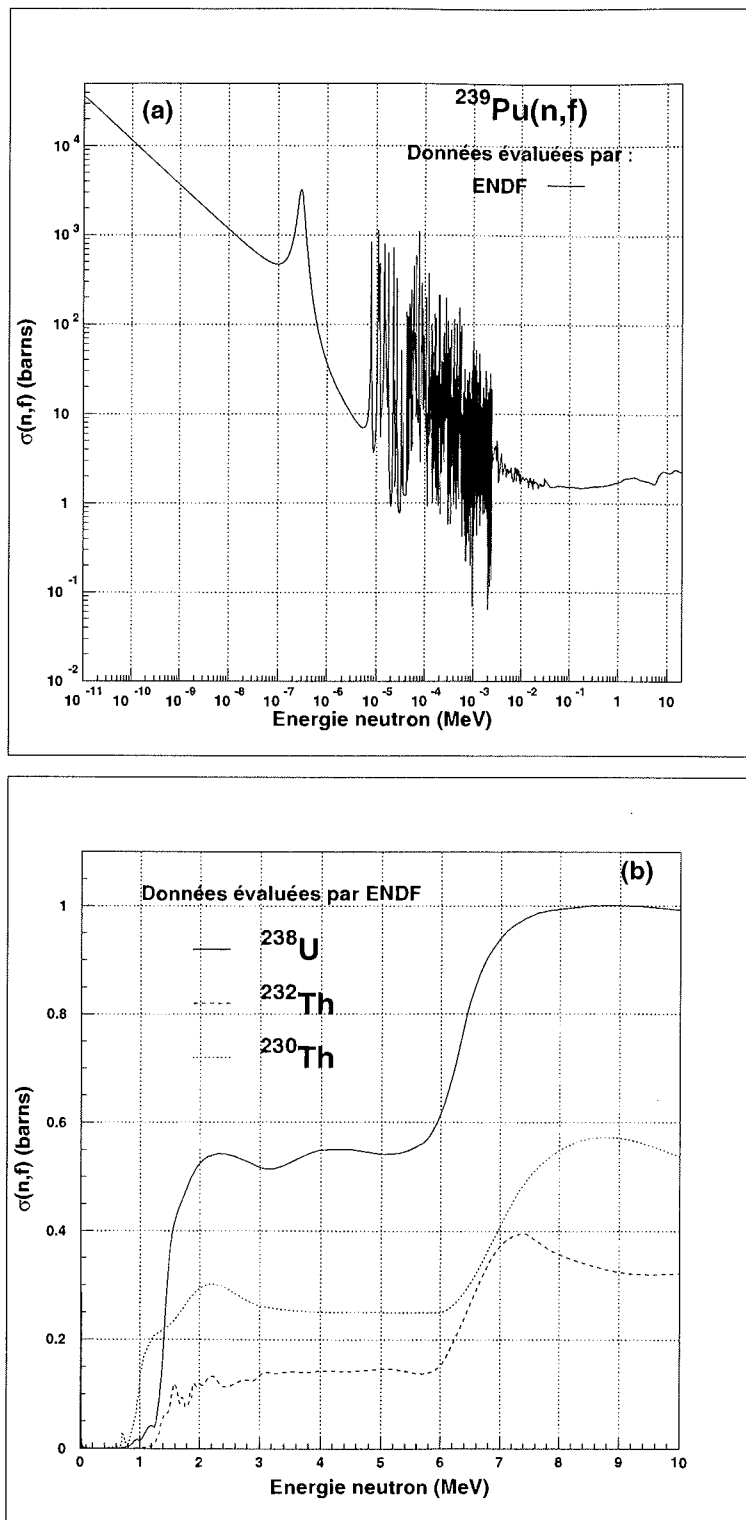


FIG. 2.2: Sections efficaces de fission pour un noyau fissile (a) et des noyaux non fissiles (b)

d'une résonance suit la formule de Breit et Wigner :

$$\sigma(n, f) = \pi \lambda^2 g(J) \frac{\Gamma_n \Gamma_f}{(E_n - E_R)^2 + \Gamma_T^2/4}, \quad (2.6)$$

où  $g(J) = \frac{2J+1}{2(I+1)}$  est le poids statistique du moment angulaire  $J$  dans la réaction,  $I$  est le spin de la cible,  $E_n$  et  $E_R$  sont les énergies du neutron incident et de la résonance considérée.  $\Gamma_{(f;n)}$  sont les largeurs partielles associées aux voies de désexcitations fission ( $f$ ) et neutron ( $n$ ),  $\Gamma_T$  est la somme des largeurs partielles ouvertes.

Ces résonances correspondent aux niveaux excités du noyau composé pour des énergies légèrement supérieures à l'énergie de liaison du dernier neutron. A cette énergie d'excitation (de 5.5 à 6.5 MeV pour les Actinides), la densité de niveaux est très grande mais leur résolution est possible à partir de la spectroscopie par temps de vol des neutrons. Dans le cas des noyaux fissiles, plusieurs centaines de résonances ont été identifiées dans une bande étroite d'énergie d'excitation de 0.5 keV. Si aucune théorie n'est encore parvenue à prévoir les propriétés individuelles de ces niveaux, leurs propriétés statistiques sont en revanche maintenant bien connues. Pour un échantillon de résonances dont on a pu déterminer le spin et la parité, leur espacement suit la loi de Wigner :

$$P(x = \frac{D}{\bar{D}}) = \frac{\pi}{2} x \exp \frac{-\pi x^2}{4} dx, \quad (2.7)$$

où  $P(x)$  représente la probabilité d'observer un espacement réduit  $D/\bar{D}$  compris entre  $x$  et  $x + dx$ . Cette loi montre que la probabilité d'avoir un espacement petit  $D \ll \bar{D}$  est faible. C'est l'effet de répulsion des niveaux (de même spin et même parité).

Les distributions des largeurs partielles neutrons, gamma et fission ( $\Gamma_n, \Gamma_\gamma, \Gamma_f$ ) sont bien représentées par des distributions de  $\chi^2$  à  $\nu$  degrés de liberté (équation 2.8) dont la variance est :  $\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2 = \frac{2}{\nu}$ ,  $x = \Gamma_i / \bar{\Gamma}_i$

$$f_\nu(x = \frac{\Gamma_i}{\bar{\Gamma}_i}) = \frac{\nu/2}{\Gamma(\nu/2)} \left(\frac{\nu x}{2}\right)^{\nu/2-1} \exp(-\frac{\nu}{2}x), \quad (2.8)$$

où  $\Gamma(\nu/2)$  est la valeur de la fonction mathématique "gamma" pour  $\nu/2$ . Dans le cadre de l'analyse statistique développée par Porter et Thomas [POR56], le nombre de degrés de liberté  $\nu$  est identifié au nombre de voies de sortie ouvertes dans les différents modes de désexcitation du noyau composé.

Pour la diffusion élastique des neutrons "s" ( $\ell=0$ ), il n'existe qu'une voie de sortie ( $\nu=1$ ).

Pour la capture radiative, la désexcitation du noyau composé par émission  $\gamma$  comporte un grand nombre de transitions possibles. Les largeurs partielles de capture radiative sont

bien représentées par une loi de  $\chi^2$  de 20 à 50 degrés de liberté. Les distributions sont pratiquement gaussiennes et varient peu autour de la valeur moyenne. C'est pourquoi la largeur totale de capture radiative est souvent supposée constante (entre 30 et 50 meV selon les Actinides).

En revanche, l'expérience montre que, d'une résonance à l'autre, les largeurs de fission présentent d'importantes fluctuations, incompatibles avec un processus à grand nombre de voies de sortie comme pourrait le suggérer le nombre élevé de fragments de fission. La solution de ce problème a été apportée par A. Bohr à partir de la redéfinition du concept de voies de sortie pour la fission. Nous reviendrons un peu plus tard sur cette théorie.

- Le domaine rapide ( $E_n > 1$  keV) : c'est le domaine des résonances non résolues ; on observe un fond continu qui décroît avec l'énergie pour se stabiliser autour de 1 à 2 barns à 10 MeV d'énergie neutron. La valeur de la section efficace de fission apparaît comme une moyenne sur un intervalle d'énergie (2.9).

$$\langle \sigma(n, f) \rangle = \frac{1}{\Delta E} \int_{\Delta E} \sigma(n, f)(E_n) dE_n \quad (2.9)$$

où  $\Delta E$  est un intervalle d'énergie caractérisé par la résolution.

### Théorie des états de transition

Cette théorie associée à la goutte liquide a permis d'interpréter de nombreux résultats de la fission induite par neutron ou photon. Elle déborde donc du simple cadre du domaine des neutrons de résonance. Adaptée à notre image actuelle de la fission, elle présente encore l'approche fondamentale pour expliquer le processus de fission au voisinage du seuil.

La théorie de Bohr considère que la plus grande partie de l'énergie d'excitation (5-6 MeV) du noyau fissionnant est convertie en énergie de déformation lorsque celui-ci franchit la barrière de fission. A son sommet, le noyau est donc froid. L'hypothèse de Bohr repose sur le fait que le noyau ne peut alors exister que dans des états quantiques bien déterminés dont les propriétés sont similaires aux états collectifs de basse énergie du noyau au voisinage de l'équilibre du fondamental. Parmi ces états se trouvent les états de transition vers la fission de même spin et de même parité que les résonances. Ces états de transition sont les voies de sortie du phénomène de fission. Un état de transition est déterminé par son énergie disponible  $\varepsilon k$  (au-dessus de la barrière de fission la plus basse  $\varepsilon k=0$ ), sa parité  $\pi$ , son moment angulaire total  $J$  et par la projection  $K$  de  $J$  sur l'axe de déformation du noyau. Pour chaque état  $(J, \pi)$  du noyau composé, on définit le nombre effectif  $N_{eff}^{J, \pi}$  de voies de sortie par :

$$N_{eff}^{J, \pi} = \sum_{K=J^\pi} P_f(\pi, K = J) \quad (2.10)$$

Le nombre effectif est égal au nombre  $\nu_f$  de voies de fission si toutes les pénétrabilités  $P_f(\pi, K = J)$  sont égales à l'unité. C'est-à-dire :  $N_{eff} \leq \nu_f$ .

La conséquence immédiate de la théorie de Bohr est que la largeur partielle de fission dépend du moment angulaire total  $J$ , la plus grande correspondant au seuil le plus bas. Cette hypothèse est bien vérifiée pour le noyau fissile  $^{239}\text{Pu}$  ( $1/2^+$ ) où la capture d'un neutron  $\ell=0$  conduit aux deux familles de résonance :  $J = 0^+$  et  $J = 1^+$ . Comme le prévoit la théorie de Bohr, les résonances de spin  $J=0^+$  sont associées en grande partie à l'état de transition construit sur la barrière la plus basse ( $0^+$ ) du  $^{240}\text{Pu}$ . En revanche, pour  $^{235}\text{U}$  ( $7/2^-$ ), les voies de transition associées aux résonances  $3^-$  et  $4^-$  n'ont pas encore été clairement identifiées.

### 2.1.2 Les limites du modèle de la goutte liquide

Très rapidement, plusieurs constatations expérimentales sont venues contredire les prévisions du modèle de la goutte liquide.

#### L'état fondamental déformé pour les Actinides

Les expérimentateurs ont observé que les Actinides sont déformés dans leur état fondamental alors que le modèle de la goutte liquide les prévoit sphériques.

#### La fission asymétrique

Le modèle prévoit une fission symétrique due à la forme du noyau au passage du point-selle. Or, pour des noyaux de masse supérieure au Radium ( $^{226}\text{Ra}$ ), la distribution en masse des fragments de fission est asymétrique. Les fragments de fission dont le nombre de protons et de neutrons est proche des nombres magiques 50 et 82 sont privilégiés. Ce qui suggère que l'asymétrie de masse est due à des effets de couches.

#### Les isomères

En 1962, Polikanov *et al.* [POL62] ont accidentellement découvert une substance radioactive décroissant par fission spontanée avec une demi-vie de 14 ms. Cette substance a été identifiée par Flerov et Polikanov comme étant  $^{242}\text{Am}$ . Cette fission spontanée provient d'un état très déformé de  $^{242}\text{Am}$  appelé isomère de forme. Depuis cette découverte, de nombreux isomères de forme ont été observés principalement dans la région des Actinides. Ils sont tous caractérisés par des déformations importantes, des énergies d'excitation voisines de 3 MeV et des périodes inférieures à quelques dizaines de millisecondes.

L'existence de ces isomères de forme est incompatible avec le modèle de la goutte liquide. En effet, ce modèle prévoit que seul un noyau sphérique ne peut exister.

## Les structures intermédiaires

L'utilisation de la technique du temps de vol a permis d'améliorer considérablement la résolution en énergie des neutrons et c'est ainsi qu'a été mise en évidence la présence de structures intermédiaires sous le seuil fission des noyaux dits non-fissiles. Les premières structures intermédiaires observées l'ont été dans les sections efficaces de fission du  $^{238}\text{Np}$  et du  $^{240}\text{Pu}$ . Il s'agissait de résonances dont l'espacement régulier allait à l'encontre de la répartition statistique des résonances observées dans les noyaux fissiles voisins ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ).

## Conclusion

Les prévisions du modèle de la goutte liquide présentent de nombreuses divergences avec les expériences effectuées sur la fission des Actinides. Ces écarts ne sont pas surprenants. En effet, le modèle de la goutte liquide est purement macroscopique et ne tient absolument pas compte du caractère individuel des nucléons. De plus, ce modèle est très dépendant de la formule de masse (2.1) qui présente de nombreux écarts avec les masses mesurées expérimentalement. Ces écarts sont fortement influencés par l'existence de couches fermées. Le modèle macroscopique n'ayant pas apporté satisfaction, un modèle microscopique prenant en compte l'existence de ces couches fermées a été développé. Ce modèle n'avait pas donné satisfaction jusqu'à une période récente. C'est pourquoi Strutinsky a proposé dans les années 60-70 une méthode qui prend en compte un modèle hybride macroscopique-microscopique.

### 2.1.3 La méthode de Strutinsky

La solution proposée par Myers et Swiatecki [MYE66] mais développée par Strutinsky [STR67] consiste à concilier modèles macroscopique et microscopique. Pour simplifier, la barrière de fission est encore calculée par le modèle de la goutte liquide (modèle macroscopique), la non-uniformité de la densité d'état au voisinage de la surface de Fermi apporte seulement des corrections aux prévisions du modèle de la goutte liquide (modèle microscopique).

#### Présentation de la méthode de Strutinsky

Le calcul de l'énergie potentielle du noyau par la méthode de Strutinsky nécessite plusieurs opérations :

- Premièrement, il faut définir des paramètres permettant de décrire la forme du noyau au cours de sa déformation.



- Deuxièmement, il faut calculer l'énergie potentielle  $V_{GL}(\alpha)$  de la goutte liquide en fonction de la déformation  $\alpha$  du noyau.

- Troisièmement, il faut générer en fonction de ces déformations le puits de potentiel du modèle en couches et déterminer les états de protons et de neutrons par la résolution de l'équation de Schrödinger.

L'évolution de l'énergie potentielle du noyau avec la déformation peut alors se modéliser de la manière suivante :

$$V(\alpha) = V_{GL}(\alpha) + \Sigma_{P,N} \Delta V_c(\alpha) + \Sigma_{P,N} \Delta V_p(\alpha), \quad (2.11)$$

où  $\Delta V_c(\alpha)$  et  $\Delta V_p(\alpha)$  sont respectivement les corrections de couches et d'appariement introduites pour rendre compte du comportement individuel des protons et des neutrons dans le noyau.

Nous allons préciser la méthode de calcul des corrections microscopiques qui constituent la partie la plus originale de la méthode de Strutinsky.

### Calcul des correction de couches

La correction de couche pour un type de nucléon (par exemple les protons) s'exprime de la manière suivante :

$$\Delta V_c(\alpha) = \Sigma_{i=1}^N \epsilon_i(\alpha) - \Sigma_{i=1}^N \bar{\epsilon}_i(\alpha), \quad (2.12)$$

avec  $\epsilon_i$  les énergies des  $N$  états de protons les plus liés et  $\bar{\epsilon}_i$  les énergies moyennes de ces états en l'absence d'effet de couches.

On peut expliciter le premier terme du second membre de l'équation (2.12) :

$$\Sigma_{i=1}^N \epsilon_i(\alpha) = \int_0^{E_f} \epsilon \bar{g}_N(\epsilon, \alpha) d\epsilon, \quad (2.13)$$

avec l'énergie de Fermi  $E_f$  reliée au nombre de neutrons par l'équation :

$$N = 2 \int_0^{E_f} \bar{g}_N(\epsilon, \alpha) d\epsilon. \quad (2.14)$$

Le facteur 2 indique qu'il faut 2 protons pour remplir une orbite.  $\bar{g}_N$  est la densité moyenne continue des états de protons obtenue par Strutinsky à partir de la densité discrète lissée :

$$\bar{g}_N = \int_{-\infty}^{+\infty} g_{oN}(\epsilon', \alpha) \cdot f(\epsilon, \epsilon') d\epsilon', \quad (2.15)$$

où la densité d'états discrets est donnée par :

$$g_{oN} = \Sigma_{i=1}^N \delta[\epsilon - \epsilon_i(\alpha)]. \quad (2.16)$$

La fonction de lissage demande à être choisie de manière attentive. En effet,  $\bar{g}_N$  doit rendre compte des variations lentes, à longue portée, de l'énergie en faisant disparaître les variations rapides dues aux effets de couche. La fonction de lissage choisie est du type :

$$f(\epsilon, \epsilon') = \frac{1}{\gamma\sqrt{\pi}}\rho(\epsilon')e^{-\frac{\epsilon'^2}{\gamma^2}}, \quad (2.17)$$

où  $\rho(\epsilon')$  est un polynôme de degré pair en  $\epsilon'$ , la largeur  $\gamma$  de la gaussienne est choisie du même ordre de grandeur que l'intervalle d'énergie séparant deux couches principales, ce qui donne :  $\gamma = \hbar\omega_o \simeq 7$  à  $8$  MeV. La densité de niveaux  $\bar{g}_N(\epsilon, \alpha)$  ainsi obtenue varie lentement avec l'énergie et ne présente plus de fluctuation due aux discontinuités et aux effets de couche présents dans la densité de niveau discrète  $g_{oN}(\epsilon, \alpha)$ .

Les corrections de couches  $\Delta V_c(\alpha)$  calculées à partir des densités de niveaux continues présentent des variations dépendant de la déformation, du nombre de protons et du nombre de neutrons. La correction de couche est calculée pour un potentiel de Nilsson. Pour une déformation nulle, la correction de couche dépend du degré de remplissage de la dernière couche. L'existence de ces corrections de couche explique la déformation de certains noyaux dans leur état fondamental. En effet, l'amplitude des corrections est suffisante pour l'emporter sur l'énergie potentielle calculée dans le cadre du modèle de la goutte liquide.

### Calcul des corrections d'appariement

Le Hamiltonien du noyau dans le cadre du modèle en couches n'est qu'une approximation de l'Hamiltonien réel. La principale interaction "oubliée" par le modèle en couches est l'interaction d'appariement s'exerçant entre deux nucléons du même type occupant la même orbite avec des spins anti-parallèles par définition. Qualitativement, cette interaction a pour effet d'augmenter l'énergie de liaison de ces nucléons. L'énergie potentielle du noyau est donc diminuée.

Cette interaction peut être directement prise en compte en remplaçant les énergies  $\epsilon_i$  des états de particule par les énergies  $\epsilon'_i$  des états de quasi-particule correspondant à la relation suivante :

$$\epsilon'_i = \sqrt{\epsilon_i^2 + \Delta(\epsilon_i)^2} - \Delta_o, \quad (2.18)$$

où  $\Delta_o$  et  $\Delta(\epsilon_i)$  sont respectivement les énergies d'appariement calculées à l'énergie de Fermi et à l'énergie  $\epsilon_i$ ; leurs expressions peuvent être obtenues à partir du spectre des états de particule  $\epsilon_i$ , dans le cadre de la théorie B.C.S [BAR57].

La correction d'appariement sera d'autant plus grande que la densité d'état est grande près de la surface de Fermi. Elle aura donc pour effet de diminuer les corrections de couches qui restent cependant prépondérantes.

## Les conséquences de la méthode de Strutinsky

La méthode de correction de couches proposée par Strutinsky a eu dans le domaine de la fission et de la stabilité des noyaux lourds une importance considérable. Elle a représenté une avancée majeure dans la compréhension des noyaux lourds et toute une physique s'est développée autour des résultats prédits par ce modèle (fission spontanée, recherche d'isomère de forme, calcul des barrières de fission etc) [HOW80].

La conséquence fondamentale des calculs de Strutinsky, c'est la mise en évidence de correction de couches positives ou négatives suivant le nombre de protons ou de neutrons et de la déformation. Les résultats des calculs de Strutinsky sont présentés sur la figure (2.4). Il est important de noter que plusieurs types de potentiel ou de forme du noyau fissionnant ont été essayés et que les résultats obtenus sont assez similaires.

Pour les Actinides ( $Z=90\dots98$ ,  $N=140\dots150$ ). En assimilant le noyau déformé à un ellipsoïde de révolution (rapport grand axe sur petit axe :  $a/c$ ), on observe (figure 2.3) un premier minimum ( $\beta_I$ ) pour une déformation  $a/c \simeq 1.3$  et un second minimum ( $\beta_{II}$ ) pour  $a/c \simeq 2$ . Le premier minimum correspond à une déformation de l'état fondamental et le deuxième à un second puits caractéristique de la région des Actinides. Ces prévisions théoriques confirmées expérimentalement permettent d'introduire une notion fondamentale : la double barrière de fission encadrant un minimum super-déformé. Une représentation schématique des barrières de fission de trois noyaux ( $Z=90, 94$  et  $98$ ) est présentée sur la figure (2.5). On constate que la hauteur du second maximum décroît en fonction de  $Z$ ; ce résultat s'explique dans la mesure où le deuxième maximum suit le comportement de la barrière goutte liquide.

### 2.1.4 Le modèle microscopique

A la fin des années 70, la méthode de Strutinsky s'est imposée très rapidement dans l'étude du phénomène de fission. Elle fut dès l'origine qualifiée d'approche phénoménologique ou encore semi-classique car elle combine sans l'expliquer les aspects macroscopique et quantiques du noyau.

En 1973, H. Flocard *et al* [FLO73] réalise le premier calcul self-consistant de la barrière du  $^{240}\text{Pu}$  à partir d'une force nucléon-nucléon du type Skyrme. Le calcul conduit bien à une barrière à deux bosses mais les barrières obtenues s'avèrent beaucoup plus élevées que celles obtenues par la méthode de Strutinsky. Les approches microscopiques vont ensuite connaître une progression régulière pour aboutir à la fin des années 80 à des barrières de fission compatibles avec l'expérience. Ces progrès, réalisés par le groupe de physique théorique de Bruyères-le-Châtel [BER84] reposent essentiellement sur les points suivants :

- la maîtrise des techniques Hartree-Fock-Bogolyubov pour décrire notamment les

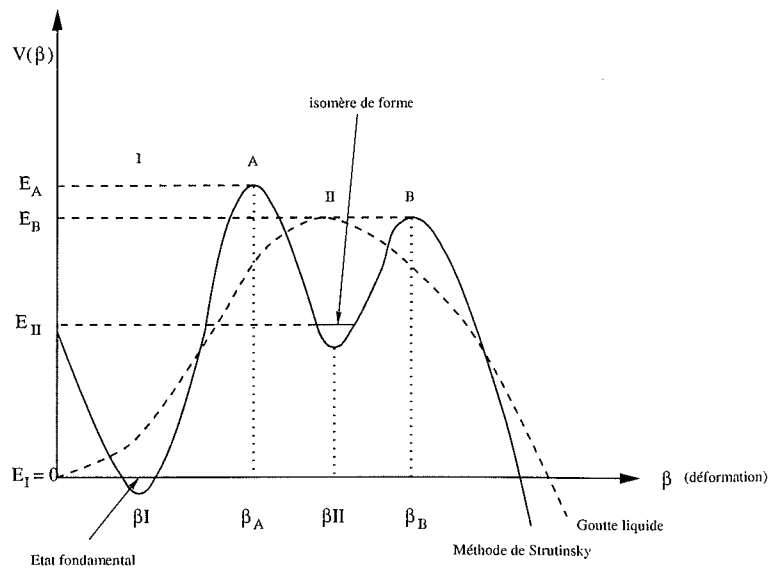


FIG. 2.3: Variation de l'énergie potentielle de déformation du noyau suivant la trajectoire d'énergie la plus faible.

corrélations d'appariement et les inclues dans les effets des champs moyens. Ces calculs sont du type contraints : des champs extérieurs auxiliaires permettent de rendre compte des aspects collectifs de la dynamique du processus de fission. Cette approche permet de générer un ensemble continu d'états qui représentent la totalité des configurations que le système est susceptible d'adopter au cours de son évolution,

- une nouvelle paramétrisation de la force nucléon-nucléon développée par Gogny [DEC80] et employée avec succès pour décrire les noyaux dans leurs états fondamentaux (énergies de liaison, déformation, excitations de basses énergies). La souplesse de sa paramétrisation en fait un outil bien adapté pour décrire les processus nucléaires de grandes amplitudes comme la fission,

- la prise en compte des ruptures de symétrie du noyau sur le chemin de la fission en considérant que le noyau peut rompre sa symétrie axiale au niveau de la première barrière et qu'il peut être instable vis-à-vis de l'asymétrie de masse au niveau de la deuxième barrière. Nous verrons un peu plus loin l'influence de l'asymétrie de masse sur la structure de la seconde barrière de fission des Actinides légers.

Grâce à son caractère fondamental, l'approche microscopique a permis de compléter et d'approfondir les calculs phénoménologiques fondés sur la méthode de Strutinsky.

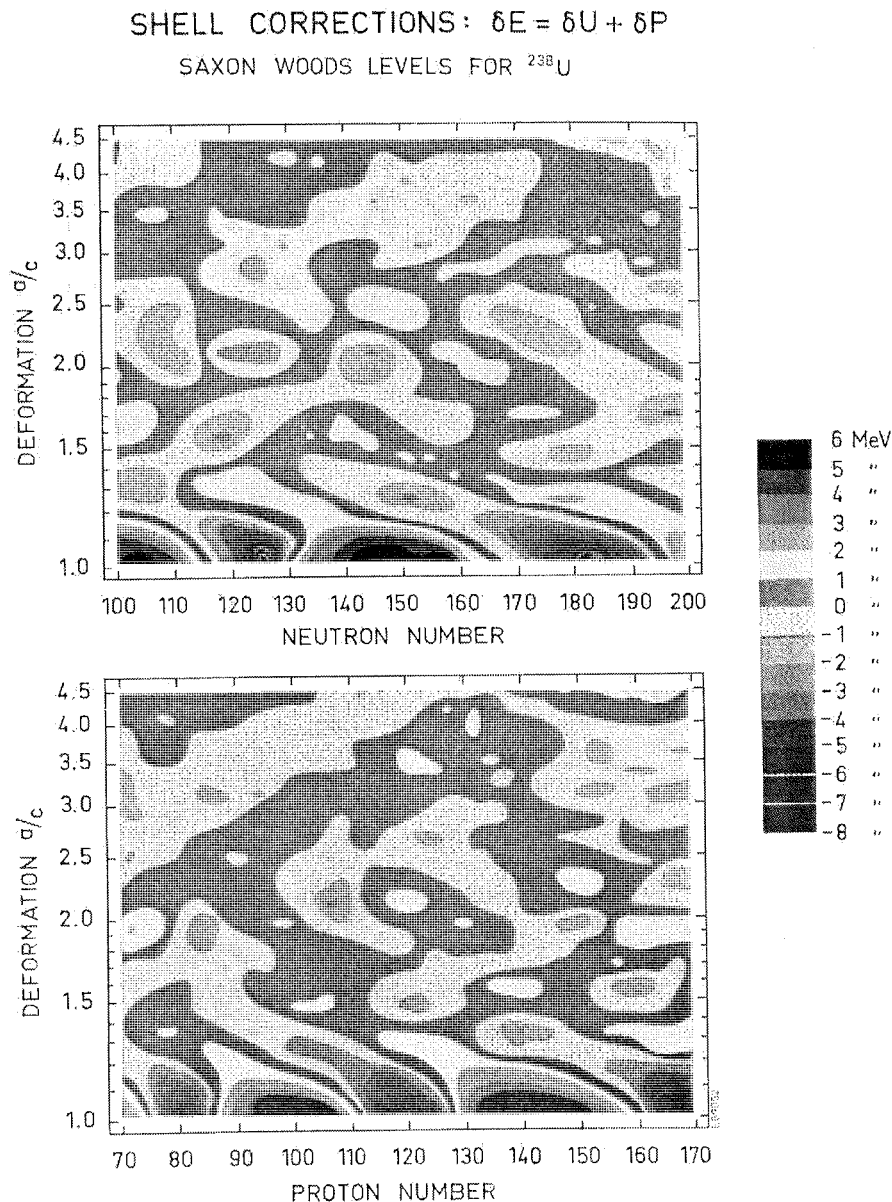


Fig. 1. Contour maps of the shell energy correction including pairing calculated according to refs.<sup>1,2)</sup> with single-particle diagrams based on Saxon-Woods potentials<sup>3,31)</sup>. The authors are indebted to H. C. Pauli for communicating his results<sup>3)</sup> prior to publication.

FIG. 2.4: Cartes de la correction de couche totale comprenant la correction d'appariement. Les niveaux de particules indépendantes sont calculés au moyen d'un potentiel de Woods-Saxon (d'après [BJO69]).

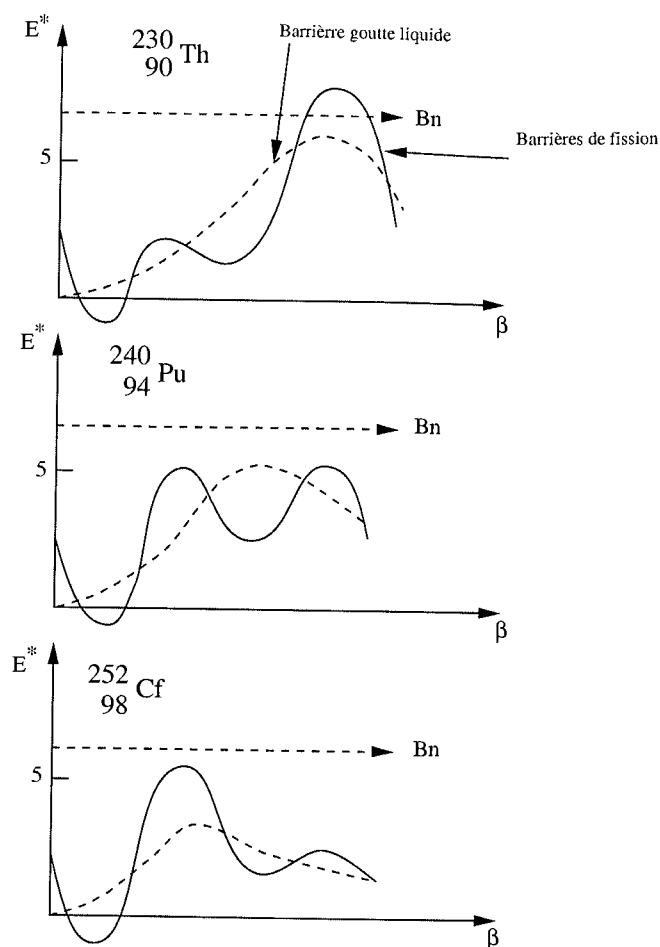


FIG. 2.5: Allure schématique des barrières de fission déterminées par la méthode de Strutinsky comparées aux barrières correspondantes calculées dans le cadre du modèle de la goutte liquide. ( $B_n$  est l'énergie de liaison du dernier neutron pour le noyau considéré) [BAR00]

## 2.2 Mise en évidence expérimentale de la double barrière de fission

La présence d'un second puits induit une stabilité du noyau pour des déformations proches de celui-ci.

Les états de classe I correspondent au premier puits dont la déformation est comparable à celle du noyau dans son état fondamental. Les états de classe II, beaucoup plus déformés, sont localisés dans le second puits (figure 2.6).

Nous allons maintenant exposer les données expérimentales qui ont permis de mettre en évidence la double barrière de fission. Trois types de données sont exposés : les isomères de forme, les structures intermédiaires et les résonances de vibration.

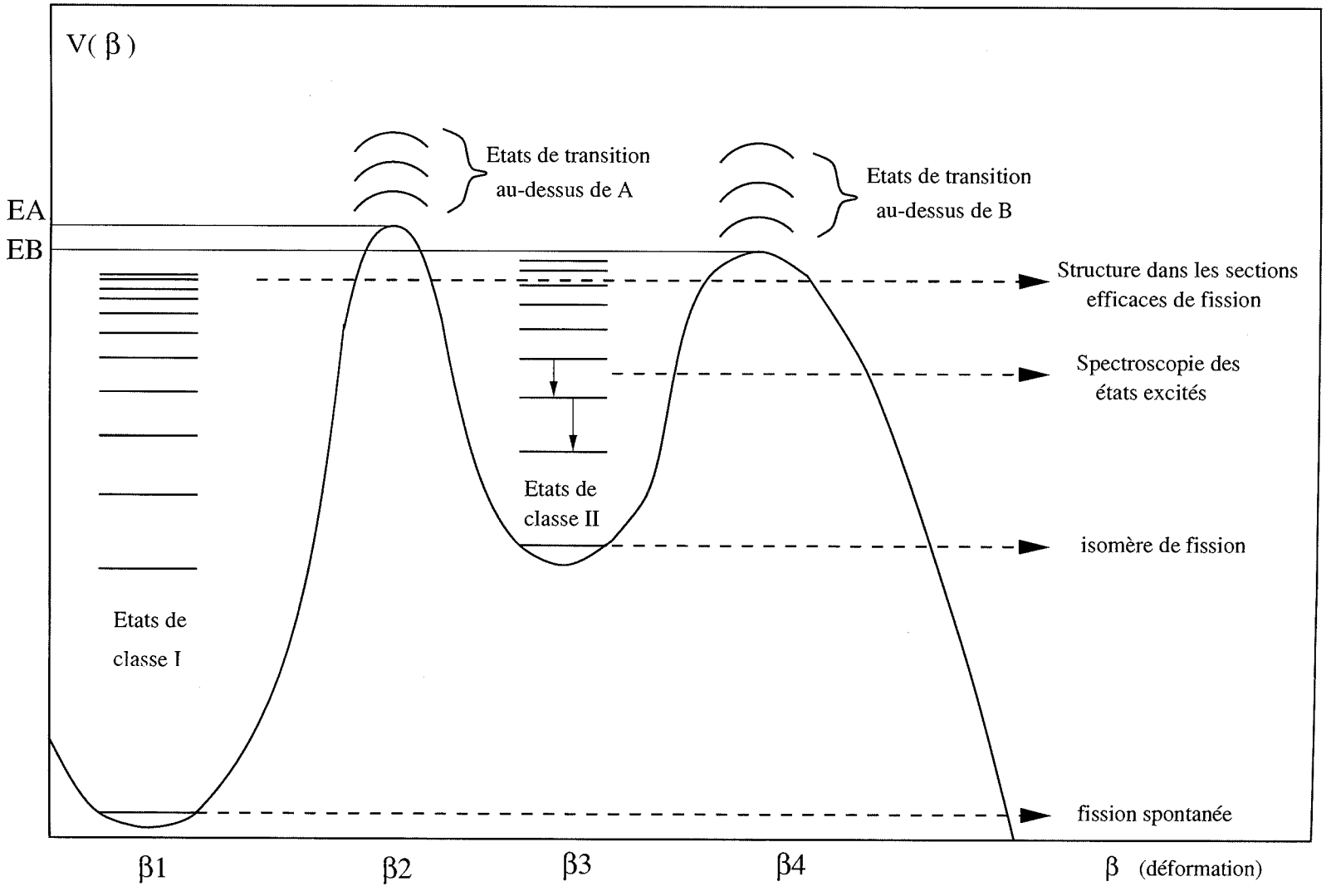


FIG. 2.6: Hiérarchie des états du noyau fissionnant en fonction de sa déformation et conséquences expérimentales.

### 2.2.1 Les isomères de forme

Ils correspondent à des états de classe II d'énergie la plus faible possible. Leur désexcitation peut se faire soit par fission après traversée de la seconde barrière soit par émission gamma après traversée de la première barrière. Un noyau formé disposant d'une énergie d'excitation supérieure à la hauteur des barrières de fission fissionne avec une probabilité proche de un alors que la probabilité qu'il retombe dans le fondamental ou dans l'un des premiers états excités du second puits est de l'ordre de  $10^{-4}$ ,  $10^{-5}$ . L'étude expérimentale de ces isomères de forme est donc très difficile. Plusieurs dizaines d'isomères ont pu être mis en évidence dans la zone  $92 \leq Z \leq 97$  et  $141 \leq N \leq 151$  [MET80].

La détermination par Specht *et al.* [SPE72] d'un moment d'inertie d'un isomère du  $^{240}\text{Pu}$  deux fois supérieur à celui de son fondamental a constitué la première preuve expérimentale de la présence d'un second puits.

En 1977 Habs *et al.* [HAB77] ont réussi à déterminer la durée de vie des premiers états de la bande de rotation construite sur l'isomère de  $8 \mu\text{s}$  du  $^{239}\text{Pu}$ . Les valeurs du moment quadrupolaire électrique évaluées par les auteurs sont nettement plus élevées que celles mesurées pour les états du premier puits des noyaux pair-pairs voisins ( $^{238}\text{Pu}$  et  $^{240}\text{Pu}$ ). En assimilant le noyau à un ellipsoïde de révolution uniformément chargé, le rapport grand axe sur petit axe est voisin de 2. Ce résultat a constitué la première preuve directe et décisive que les isomères de forme correspondent à une déformation plus grande que l'état fondamental.

### 2.2.2 Les structures intermédiaires

Dans le second puits, l'énergie d'excitation disponible est utilisée en partie sous forme d'énergie de déformation. L'espacement moyen des états de classe II est donc plus grand que celui des états de classe I. Les états des deux puits sont couplés par effet tunnel à travers la première barrière. Ainsi lorsqu'un état de classe I et un état de classe II de même spin et de même parité ont des énergies proches, leur couplage est très important, la probabilité de fission de l'état de classe I est alors considérablement plus grande. Dans ce cas, la section efficace de fission présente une structure intermédiaire caractérisée par des groupements de résonances étroites. Elles sont associées aux états de classe I, correspondant aux énergies des états de classe II qui jouent le rôle d'états portes ou d'états relais vers la fission. Cet effet apparaît dans la section efficace de fission du  $^{237}\text{Np}$ . Pour des énergies neutron d'environ 40 eV où la résolution expérimentale est suffisante, les états composés du premier puits sont bien séparés (figure 2.7). A plus haute énergie, la résolution se détériore mais les états composés du second puits ont également été isolés. En 1973, Keyworth *et al.* [KEY73] ont montré que les neuf résonances composant la structure intermédiaire à  $E_n = 40$  eV présentent toutes le même spin et la même parité ( $J^\pi = 3^+$ )



qui caractérisent l'état de classe II responsable de la structure.

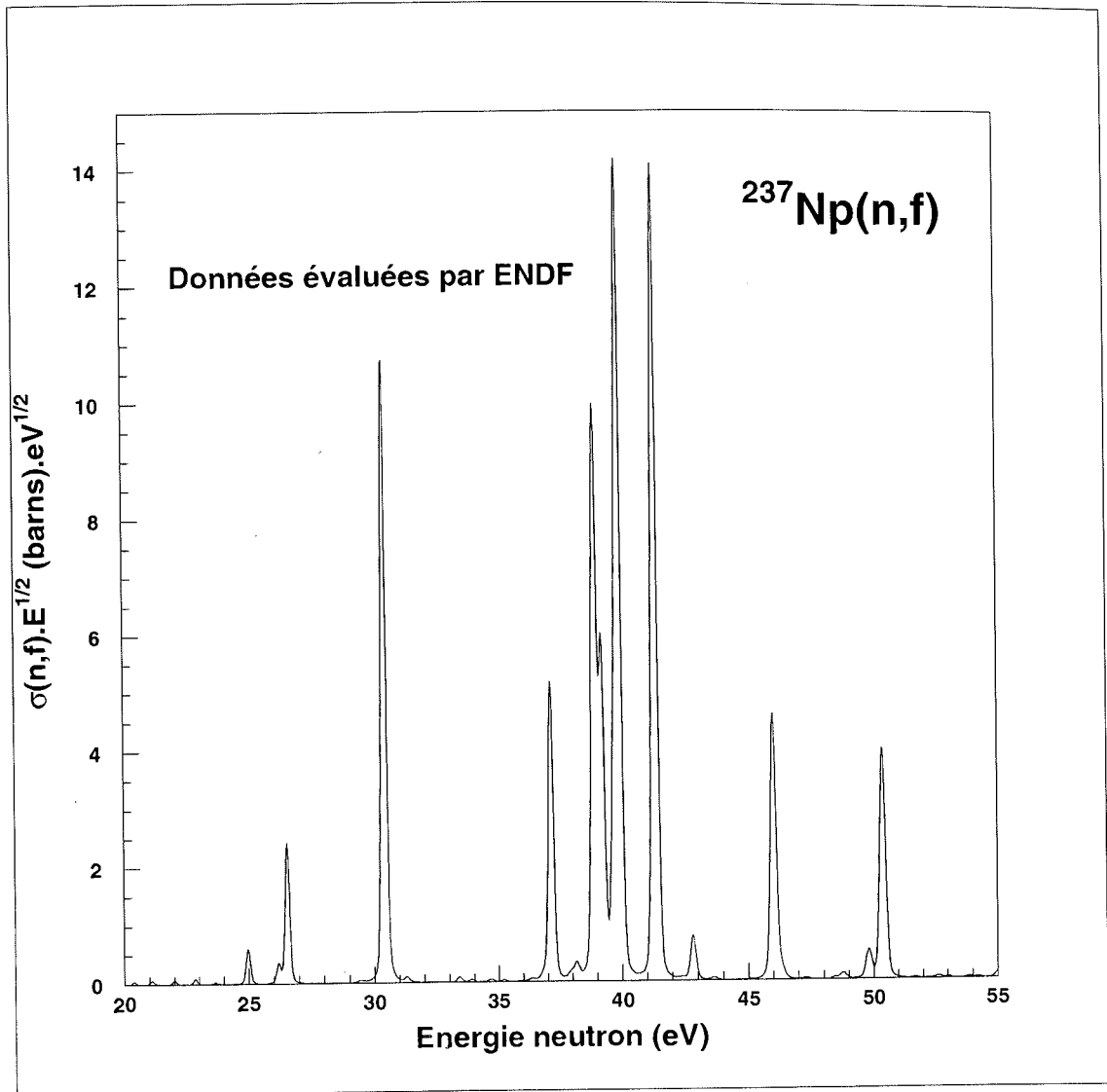


FIG. 2.7: Section efficace de fission multipliée par  $\sqrt{\text{Energie(eV)}}$  du Neptunium-237 induite par neutron entre 20 et 55 eV.

### 2.2.3 Les résonances de vibration

Le second puits conduit à l'existence d'états de vibration de classe II (par analogie avec les états de vibration de classe I localisés dans le premier puits).

Lorsque l'énergie d'excitation du noyau est proche des maxima de la barrière de fission, les états de vibration  $\beta$  de classe I ont une demi-vie courte comparée à celle du noyau composé formé, car l'énergie concentrée dans le degré de liberté collectif associé à

l'élongation du noyau se répartit très rapidement entre les différents degrés de liberté du noyau. Les états de vibration du premier puits ont donc une largeur très grande et sont fortement couplés aux états composés de classe I voisins.

En revanche, pour une même énergie d'excitation, les états de vibration  $\beta$  de classe II sont faiblement couplés aux états du premier puits à cause de la première barrière, et aux états composés du second puits car l'énergie d'excitation disponible est plus faible.

Si l'on suppose que tous les degrés de liberté du noyau sont fortement couplés dans le premier puits, le noyau fissionnant est assimilable à une onde plane traversant une double barrière de potentiel. Pour des énergies d'excitation inférieures à la hauteur des barrières, sa pénétrabilité présente alors des résonances aux énergies correspondant aux états de vibration  $\beta$  du second puits (figure 2.8).

Ce phénomène explique les résonances situées au voisinage du seuil de fission des noyaux de la région Thorium-Plutonium [BJO80].

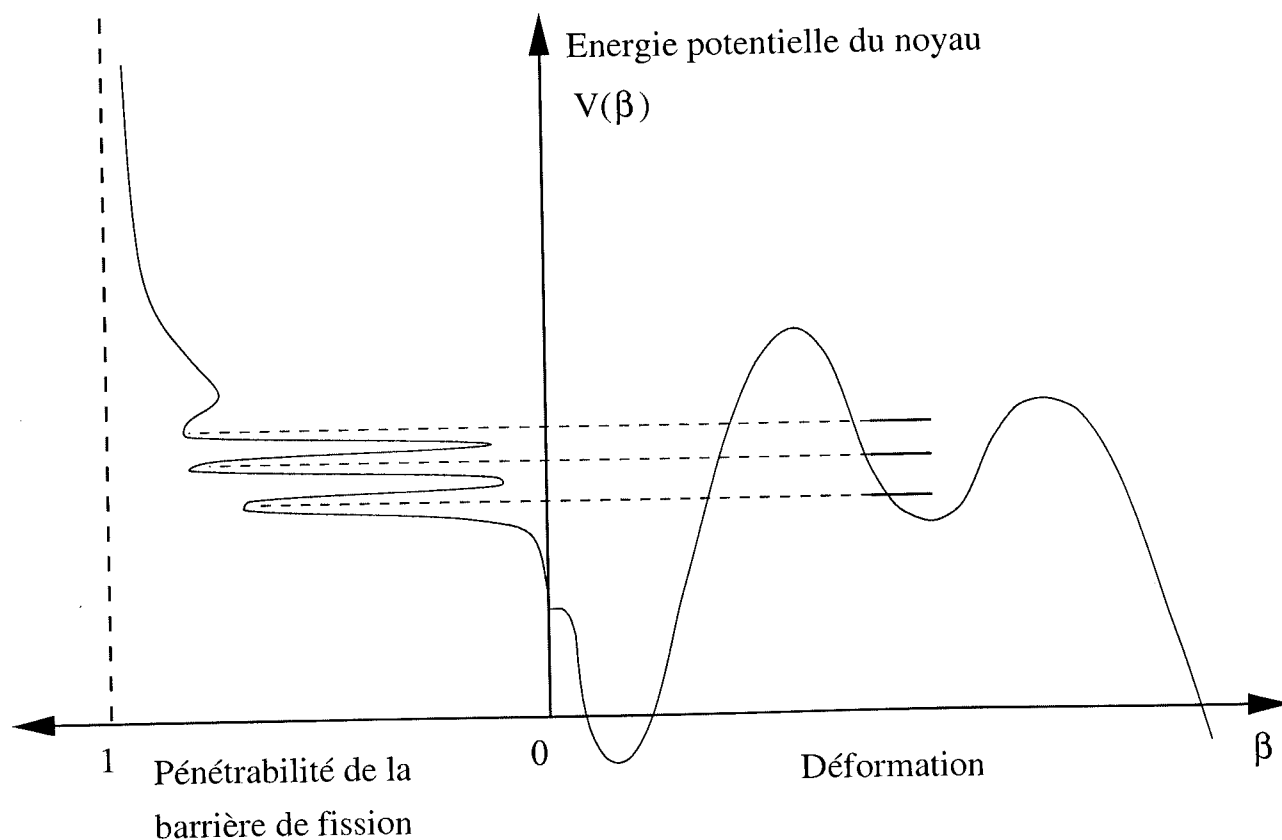


FIG. 2.8: Illustration schématique du phénomène de résonances de vibration sous le seuil de fission

### 2.2.4 Paramétrisation de la barrière de fission

Comme la forme très précise des barrières de fission n'est pas connue a priori, il est indispensable de les caractériser avec un minimum de paramètres. Nous avons adopté la paramétrisation la plus utilisée qui consiste à représenter les barrières de fission à l'aide de paraboles jointives. Cette paramétrisation facilite le calcul de la pénétrabilité de la double barrière.

La barrière de fission paramétrisée avec une dimension (la déformation  $\beta$ ) est présentée sur la figure (2.9). Pour des déformations voisines de  $\beta_I$ ,  $\beta_A$ ,  $\beta_{II}$  et  $\beta_B$ , l'énergie potentielle  $V(\beta)$  est définie par les relations suivantes :

$$V(\beta) = E_i \pm \frac{\mu_i \omega_i^2}{2} (\beta - \beta_i)^2, \quad (2.19)$$

avec  $i = I, A, II$  et  $B$ , et  $\mu_i$  le paramètre d'inertie du noyau dans le degré de liberté  $\beta$  associé à la fission.

Cependant, il est plus habituel de décrire la courbure des puits et des barrières par les quantités :

$$\hbar\omega_i = \sqrt{\frac{\text{courbure}}{\mu_i}} \quad (2.20)$$

Ces quantités ( $\hbar\omega_i$ ) ont la dimension d'une énergie et permettent de caractériser entièrement la pénétrabilité à travers les barrières. Les signes plus et moins dans l'équation (2.19) correspondent respectivement aux puits de potentiel harmonique  $I$  et  $II$  et aux puits de potentiel harmonique inversés  $A$  et  $B$ .

La mécanique quantique impose l'énergie des états fondamentaux dans les puits  $I$  et  $II$  :

$$E_I^o = \frac{\hbar\omega_I}{2} \quad (2.21)$$

$$E_{II}^o = \frac{\hbar\omega_{II}}{2} \quad (2.22)$$

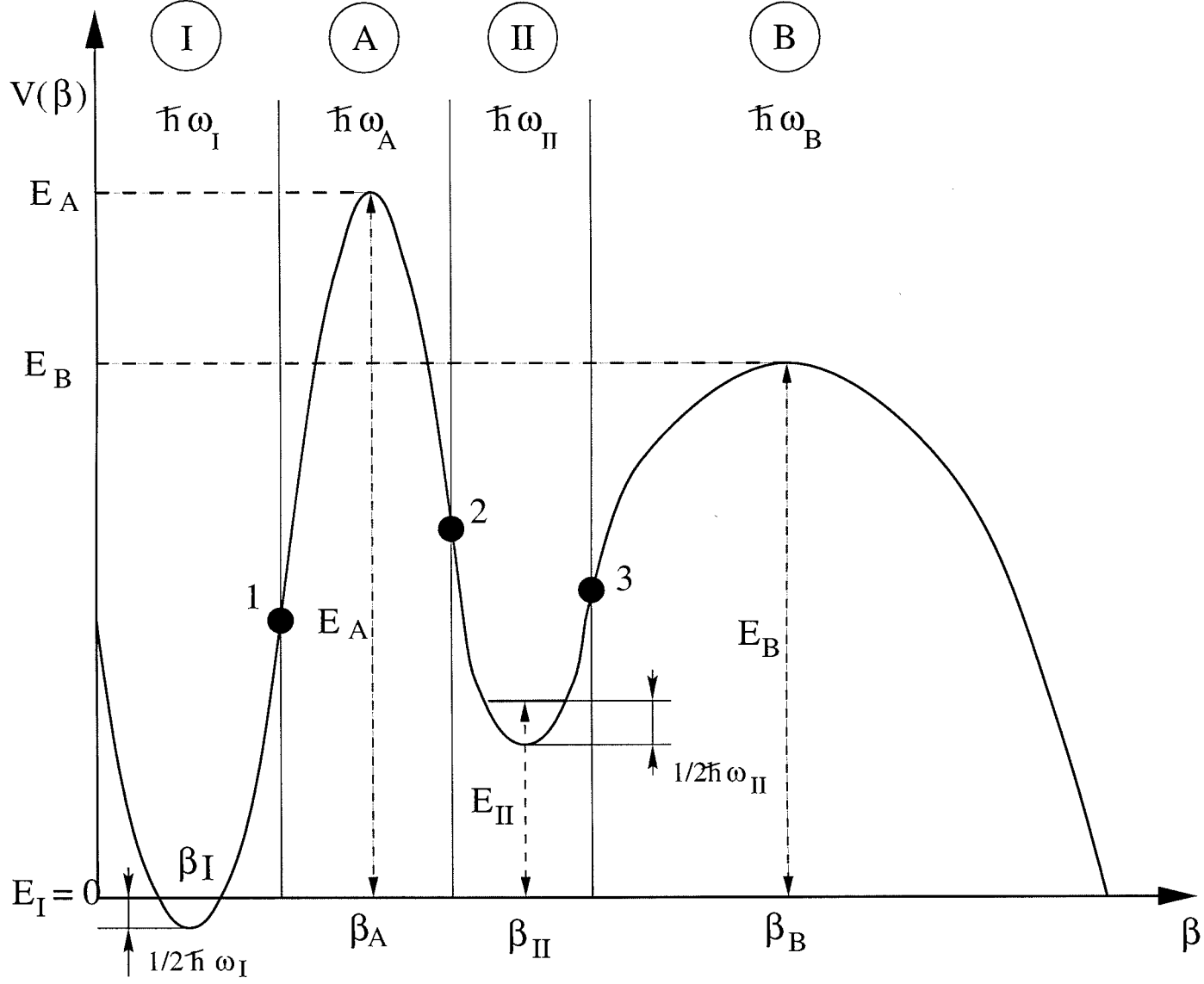


FIG. 2.9: Représentation de la barrière de fission à deux maxima au moyen de paraboles jointives.

## 2.2.5 Détermination expérimentale des paramètres de la barrière de fission

Comme nous l'avons montré, la fission est un problème à plusieurs dimensions. Les techniques expérimentales actuelles sont encore incapables d'explorer complètement la surface d'énergie potentielle associée. L'analyse des données expérimentales va seule donner les extrêmes de la double barrière de fission : la hauteur des deux barrières et du second puits ( $E_{II}$ ) par rapport au fondamental du noyau fissionnant. Pour les expérimentateurs, la double barrière est associée à une série de paraboles jointives (figure 2.9) dont la pénétrabilité peut être calculée numériquement (équation 2.5). Chaque barrière est définie par sa hauteur  $E_i$  et son épaisseur  $\hbar\omega_i$ . Ces paramètres sont rarement déterminés simultanément mais font appel à des mesures croisées basées essentiellement sur l'étude des isomères de forme, des sections efficaces de fission et des probabilités de fission.

### - isomère de forme.

Ces isomères de forme sont créés par réaction du type  $(p,xn)$ ,  $(d,xn)$ ,  $(\alpha,xn)$ . Les fonctions d'excitation de ces réactions présentent un seuil qui fixe en principe la valeur  $E_{II}$  du deuxième puits. La période de fission retardée permet ensuite de déterminer la hauteur et l'épaisseur de la deuxième barrière.

### - Section efficace et probabilité de fission.

Comme nous l'avons signalé, l'existence de la double barrière a permis d'expliquer les structures que l'on observe dans la fission induite par neutron thermique ou rapide au voisinage du seuil de fission des noyaux non fissiles. La mise en évidence de ces structures et la réalisation de mesures systématiques sont à l'origine d'un vaste effort expérimental déployé durant la décennie 1970-1980. Il s'agissait alors de résoudre ces structures en énergie à partir de mesures de section efficace de fission à très haute résolution. C'est à cette époque que sont réalisées les premières mesures dites de temps de vol de neutron. Ce type d'expérience est effectué au moyen d'un faisceau pulsé d'électrons bombardant une cible lourde. Chaque impulsion d'électrons produit par réaction  $(\gamma,n)$  et  $(\gamma,fn)$  une bouffée de neutrons possédant un spectre continu en énergie. L'énergie des neutrons est mesurée par temps de vol entre la détection des  $\gamma$  et la détection des fragments émis par la cible à étudier. La future ligne de temps de vol du CERN (n-TOF) doit permettre d'améliorer la résolution de ce type de mesure. L'utilisation de base de temps de vol long (185 mètres) permet d'atteindre une excellente résolution en énergie (à 1 MeV  $\sim$  1 keV). Ces performances ont évidemment un revers lié à la longueur de la base de temps de vol donc à la durée des mesures. Enfin, comme pour toutes les mesures de fission induite par neutron, les noyaux accessibles sont généralement proches de la vallée de stabilité.

A notre connaissance, seul le noyau cible  $^{232}\text{Th}$  a fait l'objet de telles mesures. Nous savons que la fission peut être induite non seulement par neutron mais également par fais-

ceau de particules légères chargées (p, d,  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ ). Néanmoins, ces mesures ne permettent pas d'atteindre la résolution des mesures par temps de vol. La détection des particules légères chargées détectées par un semi-conducteur (accompagné de fission) limite principalement la résolution à 50 keV. Elle peut atteindre une dizaine de keV en utilisant un spectromètre magnétique mais là aussi, il s'agit de mesures difficiles et longues dont l'exemple le plus connu est la mesure déjà mentionnée de la probabilité de fission du  $^{240}\text{Pu}$  [SPE69].

Parmi celles-ci, les réactions à deux corps ((d,pf);(t,pf); ...) ont été utilisées dès les années 50 pour déterminer le seuil de fission des noyaux fissiles pair-pairs, impossibles à obtenir en réaction induite par neutron. Ce type d'expérience permet de mesurer la probabilité de fission à partir du rapport des sections efficaces de transfert  $\sigma(d,pf)$  et  $\sigma(d,p)$ . La détection du proton en coïncidence avec les fragments de fission permet, à partir de la cinématique, de calculer l'énergie d'excitation du noyau de recul. Depuis les premières mesures effectuées par Stockes, Northrop et Boyer [STO58], ces réactions de transfert ont été largement utilisées à partir de faisceau de Deuteron, Triton, Hélium-3 ou Hélium-4. Ce large éventail de particules légères chargées assure une très grande souplesse dans le choix de la cible et du noyau fissionnant (fissile ou non fissile).

Cet avantage par rapport aux mesures par temps de vol se retrouve également dans la quantité de matière nécessaire pour la cible. Il suffit généralement de 50 à 100  $\mu\text{g}$  de matière en réaction de fission induite par transfert, alors qu'il en faut 10 à 100 fois plus en réaction de fission induite par neutron. C'est ainsi que les probabilités de fission ont été mesurées pour plusieurs noyaux, et pour certains d'entre eux, à partir de plusieurs réactions de transfert complémentaires. La probabilité de fission de plusieurs noyaux composés (Z,N) a été comparée à la section efficace de fission des noyaux cibles associés (Z,N-1) : c'est le cas notamment des mesures du type (d,pf) et des mesures (n,f) utilisant le même noyau cible (Z,N-1).

Pour ces noyaux, la probabilité de fission augmente, comme la section efficace de fission, très rapidement pour des énergies d'excitation proches des barrières. Dans cette région d'énergie, peuvent apparaître des résonances correspondant aux états de vibration localisés dans le deuxième puits.

L'analyse des probabilités de fission (ou/et des sections efficaces de fission induite par neutron) permet en principe de déterminer les hauteurs et les largeurs des barrières de fission. Cette analyse est effectuée en comparant les données expérimentales aux prévisions théoriques d'un modèle statistique de type Hauser-Feshbach qui permet de calculer les différentes voies de sortie du noyau composé (fission,  $\gamma$ , émission de neutron). L'analyse des résonances (lorsqu'elles existent) permet normalement de déterminer tous les paramètres de la double barrière y compris la hauteur du deuxième puits, à partir de la position mesurée de la résonance que l'on compare alors à la pénétrabilité complète de la double

barrière. Il s'agit dans ce cas d'analyses complexes effectuées pour trois réactions de fission induite par neutron sur des noyaux non fissiles ( $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{230}\text{Th}$  et  $^{232}\text{Th}$ ).

## 2.2.6 Systématique des barrières de fission

Les nombreuses données expérimentales accumulées depuis une trentaine d'années ont permis de déterminer les barrières de fission des noyaux lourds compris entre le Thorium ( $Z=90$ ) et le Californium ( $Z=98$ ) (figure 2.10). La précision sur ces valeurs se situe entre 0.3 et 0.5 MeV. La figure (2.11) illustre la confrontation entre ces valeurs et différents calculs théoriques [BRI79]. On remarquera que la première barrière reste au voisinage de 6 MeV alors que la seconde décroît de 6.5 MeV à 4 MeV entre les Thorium et les Curium. La hauteur du second puits ( $E_{II}$ ) varie peu et se situe entre 2 et 3 MeV pour les noyaux situés au-delà de l'Uranium. L'accord avec les calculs théoriques va dépendre des degrés de liberté pris en compte pour les calculs d'énergie potentielle. Tous les calculs s'accordent sur l'importance des ruptures de symétrie décrivant l'évolution du noyau fissionnant.

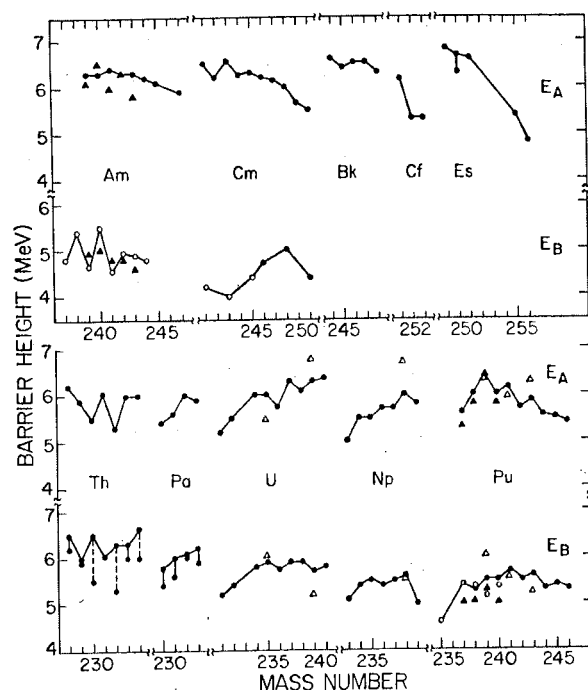


FIG. 2.10: Systématique des barrières de fission ( $E_A$ ,  $E_B$ ) extraite de données expérimentales [BRI79].

Les premiers calculs réalisés à l'aide de la méthode de Strutinsky par Larsson et Leander [LAR73] et les calculs plus récents du groupe de physique théorique de Bruyères-le-Châtel [BER84] montrent que le noyau perd sa symétrie axiale au passage de la première

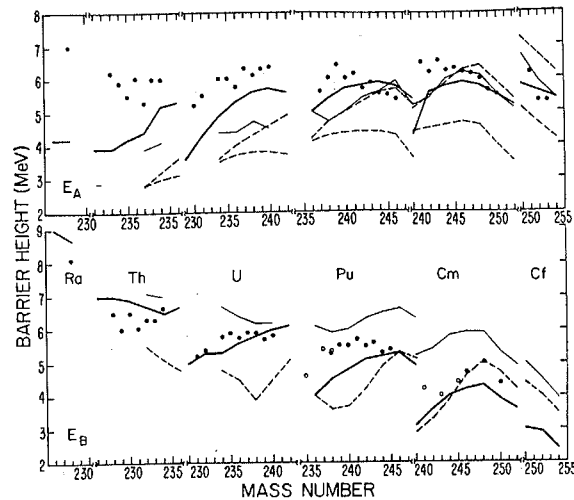


FIG. 2.11: Comparaison des barrières de fission expérimentales avec différents calculs théoriques. Ligne en gras [MOL72], petite ligne continue [PAU71], ligne discontinue [MOL74]

barrière. Cette rupture de symétrie axiale affecte surtout les Actinides lourds de  $Z > 92$ .

La rupture de la symétrie par réflexion au niveau de la seconde barrière a été reconnue très tôt après les premiers calculs de barrière réalisés à l'aide de la méthode de Strutinsky. Là encore, les derniers calculs microscopiques confirment ces ruptures de symétrie par réflexion. Leur prise en compte abaisse la deuxième barrière (symétrique) d'environ 3 MeV pour le  $^{240}\text{Pu}$ . Dans la région des Actinides légers ( $Z=90$ ), l'effet de couches associé à la rupture de symétrie par réflexion creuse au sommet de la seconde barrière un puits peu profond (1 à 2 MeV). Ce phénomène est à l'origine du troisième puits hyper-déformé mis en évidence pour la première fois pour les systèmes fissionnants  $^{232}\text{Pa}$  [SIC76], et  $^{230,231,233}\text{Th}$  [BLO82], [BLO88] et [BLO89]. Dans les années 80, J. Blons du groupe de Saclay est à l'origine d'une étude systématique de ce troisième puits hyperdéformé. Il a montré que ce phénomène affectait non seulement la région du Thorium ( $Z=90$ ) mais aussi celle des Uranium ( $Z=92$ ). Des mesures récentes [KRA98] confirment l'existence de ce troisième puits pour les noyaux fissionnants  $^{234}\text{U}$  et  $^{236}\text{U}$ . La présence de ce troisième puits est donc tout à fait envisageable pour le  $^{234}\text{Pa}$ . La figure (2.12) présente les calculs de Howard et Möller [HOW80] pour les noyaux  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{Pa}$  et  $^{240}\text{Pu}$ . Il s'agit de calculs du type Strutinsky qui illustrent la complexité des barrières de fission de ces noyaux comparées à celles du  $^{240}\text{Pu}$  dont le profil des barrières est maintenant bien connu expérimentalement.



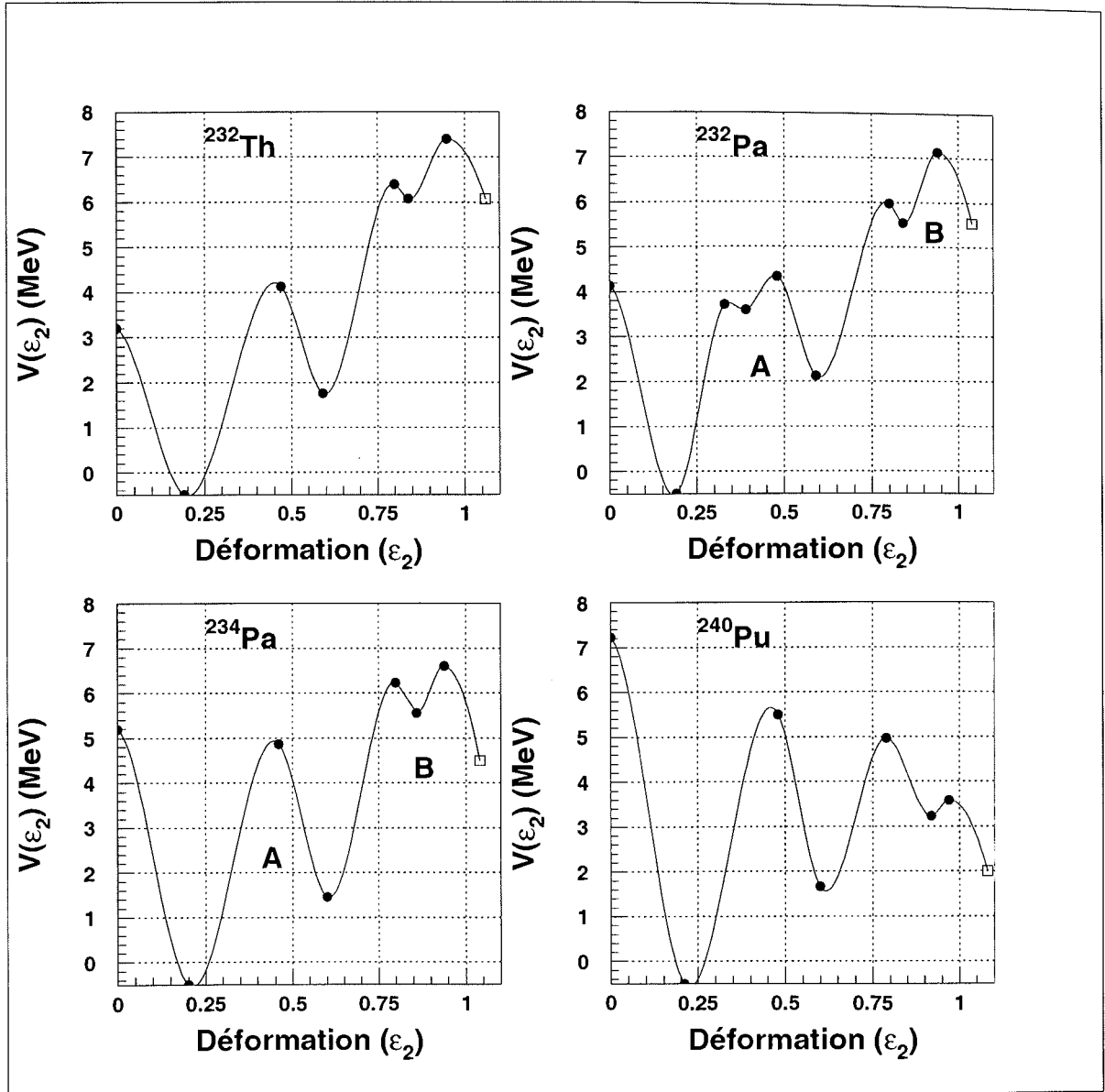


FIG. 2.12: Barrières de fission de quatre noyaux ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{Pa}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ) calculées par Howard et Möller [HOW80]. ( $\square$  est rajouté arbitrairement)



# Chapitre 3

## Méthode et dispositif expérimentaux

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Fission des noyaux de forte activité . . . . .</b>	<b>54</b>
3.1.1	Les limites de la méthode . . . . .	57
3.1.2	La démarche . . . . .	61
<b>3.2</b>	<b>Le dispositif expérimental : préliminaire . . . . .</b>	<b>62</b>
3.2.1	Les caractéristiques cinématiques des réactions de transfert . . . . .	62
<b>3.3</b>	<b>Détection des particules légères chargées . . . . .</b>	<b>65</b>
3.3.1	Principe de fonctionnement d'un télescope . . . . .	65
3.3.2	Description du montage télescope utilisé . . . . .	66
3.3.3	Seuil de déclenchement . . . . .	67
<b>3.4</b>	<b>Détection des fragments de fission. . . . .</b>	<b>67</b>
3.4.1	Structure des cellules utilisées . . . . .	68
3.4.2	Principe de fonctionnement . . . . .	68
3.4.3	Résolution en énergie . . . . .	69
<b>3.5</b>	<b>Dispositif expérimental . . . . .</b>	<b>73</b>
3.5.1	Faisceaux et cibles . . . . .	73
3.5.2	Enceinte de mesures, description générale . . . . .	73
3.5.3	Emplacement des télescopes . . . . .	74
3.5.4	Positionnement des détecteurs fission de SAPHIR . . . . .	77
<b>3.6</b>	<b>Electronique et acquisition . . . . .</b>	<b>80</b>

---

### 3.1 Fission des noyaux de forte activité

Les filières uranium et thorium présentent toutes deux des Actinides de forte radiotoxicité. C'est évidemment le cas dans la filière uranium pour les Actinides mineurs (Americium et Curium) dont l'activité massique peut atteindre quelques  $10^3$  bq/ $\mu$ g. C'est également le cas dans la filière du thorium pour les noyaux  $^{231;233}\text{Pa}$ ,  $^{237}\text{Np}$  et  $^{232;234}\text{U}$ . Actuellement, la plupart de ces isotopes ne sont pas disponibles à cause de leur radioactivité élevée et/ou de la fermeture ou de l'absence d'unités spécialisées capables de fabriquer des cibles de forte activité. Pour contourner cette difficulté, nous nous sommes orientés vers une approche originale proposée dès le début des années 1970 par Cramer et Britt [CRA70]. Ces deux physiciens étaient alors confrontés à un problème proche du nôtre : comment mesurer la section efficace de fission de noyaux à très courte durée de vie tels que ceux formés par capture multiple de neutrons dans le flux intense d'un réacteur rapide.

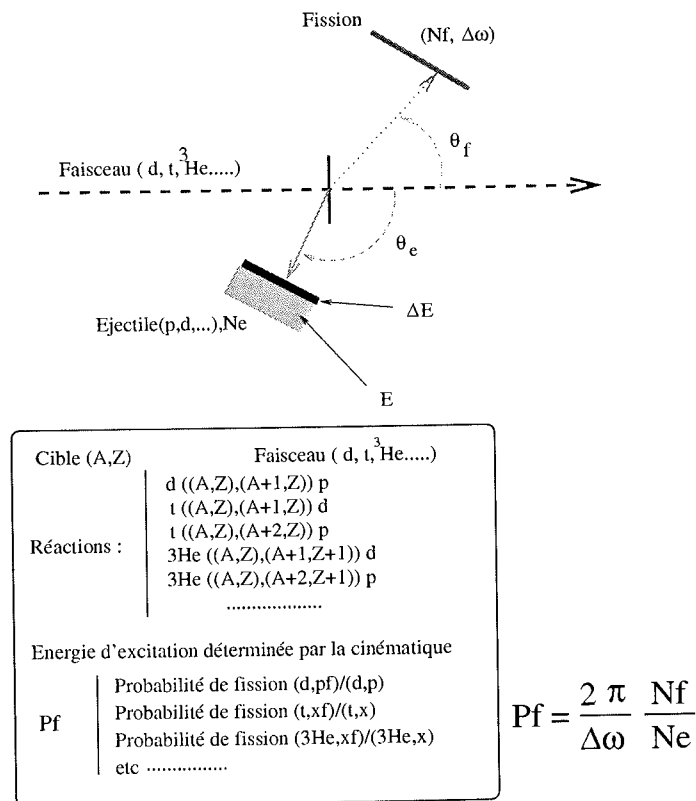


FIG. 3.1: Principe schématique des réactions de transfert.

Ces noyaux à courte durée de vie (qui varient de quelques jours à quelques ms) apparaissent très tôt dans l'irradiation par neutron des combustibles ( $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) et ( $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ ). L'idée, que nous avons reprise, consiste à utiliser une réaction de transfert pour former le noyau composé dont on veut détecter la fission. Le principe des réactions de transfert

est présenté schématiquement sur la figure (3.1). Considérons un faisceau de particules légères (un faisceau d' $^3\text{He}$  par exemple) dirigé sur une cible stable  $(A,Z)$ . La détection de l'éjectile  $(p,d,t,\alpha)$  détermine le noyau formé et son énergie d'excitation. La détection en coïncidence de son éventuelle fission par un détecteur fission (d'ouverture angulaire  $\Delta\omega$ ) donne accès à sa probabilité de fission  $(Pf)$ . Nous expliciterons plus en détail ce calcul au chapitre 4.

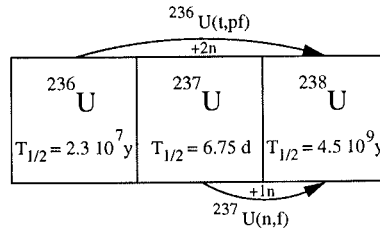


FIG. 3.2: Exemple de l'intérêt d'une réaction de transfert

Comme indiqué sur la figure (3.2), la capture d'un neutron par l'Uranium-237 (6.75 jours) conduit au noyau fissionnant  $^{238}\text{U}$  ( $4.51 \cdot 10^9$  années) que l'on peut également former à partir du transfert de deux neutrons au noyau  $^{236}\text{U}$  ( $2.39 \cdot 10^7$  années). La possibilité d'accélérer un faisceau de triton de 18 MeV a permis dans le passé de déterminer les probabilités de fission des noyaux  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{240}\text{U}$ . Les sections efficaces de fission associées aux réactions  $^{233}\text{Th}(n,f)$  et  $^{239}\text{U}(n,f)$  ont été calculées en multipliant les probabilités de fission mesurées des noyaux  $^{234}\text{Th}$  et  $^{240}\text{U}$  par le calcul de la section efficace de formation du noyau composé correspondante ( $^{233}\text{Th}+n$  et  $^{239}\text{U}+n$ ). On parle alors de section efficace de fission "simulée" pour reprendre l'expression utilisée par Britt [BRI79b].

Nous allons maintenant préciser les formulations théoriques associées respectivement à la fission induite par neutron d'un noyau  $A-1$  et la probabilité de fission du noyau  $A$ . Dans les deux cas, il s'agit d'un mécanisme en deux étapes que nous avons illustré à partir de la figure (3.3).

- Formation d'un noyau composé à l'énergie d'excitation  $E^*$  de spin  $J$  et de parité  $\pi$ .
    - Avec la probabilité  $(\alpha_t(E^*, J, \pi))$  en réaction de transfert.
    - Avec la probabilité  $(\alpha_n(E_n, J, \pi))$  en réaction induite par neutron.
  - Désexcitation du noyau par fission.
    - Par réaction de transfert, on mesure la probabilité de fission  $(P_f(E^*))$ .
    - En réaction induite par neutron, on mesure la section efficace de fission  $(\sigma_F(E_n))$ .
- La section efficace de fission d'un noyau  $A$  s'écrit :

$$\sigma_F(E_n) = \sigma_{NC}(E_n) \cdot \sum_{J,\pi} \left( \alpha_n(E_n, J, \pi) \cdot \frac{\Gamma_f(E_n, J, \pi)}{\sum_i \Gamma_i(E_n, J, \pi)} \right), \quad (3.1)$$

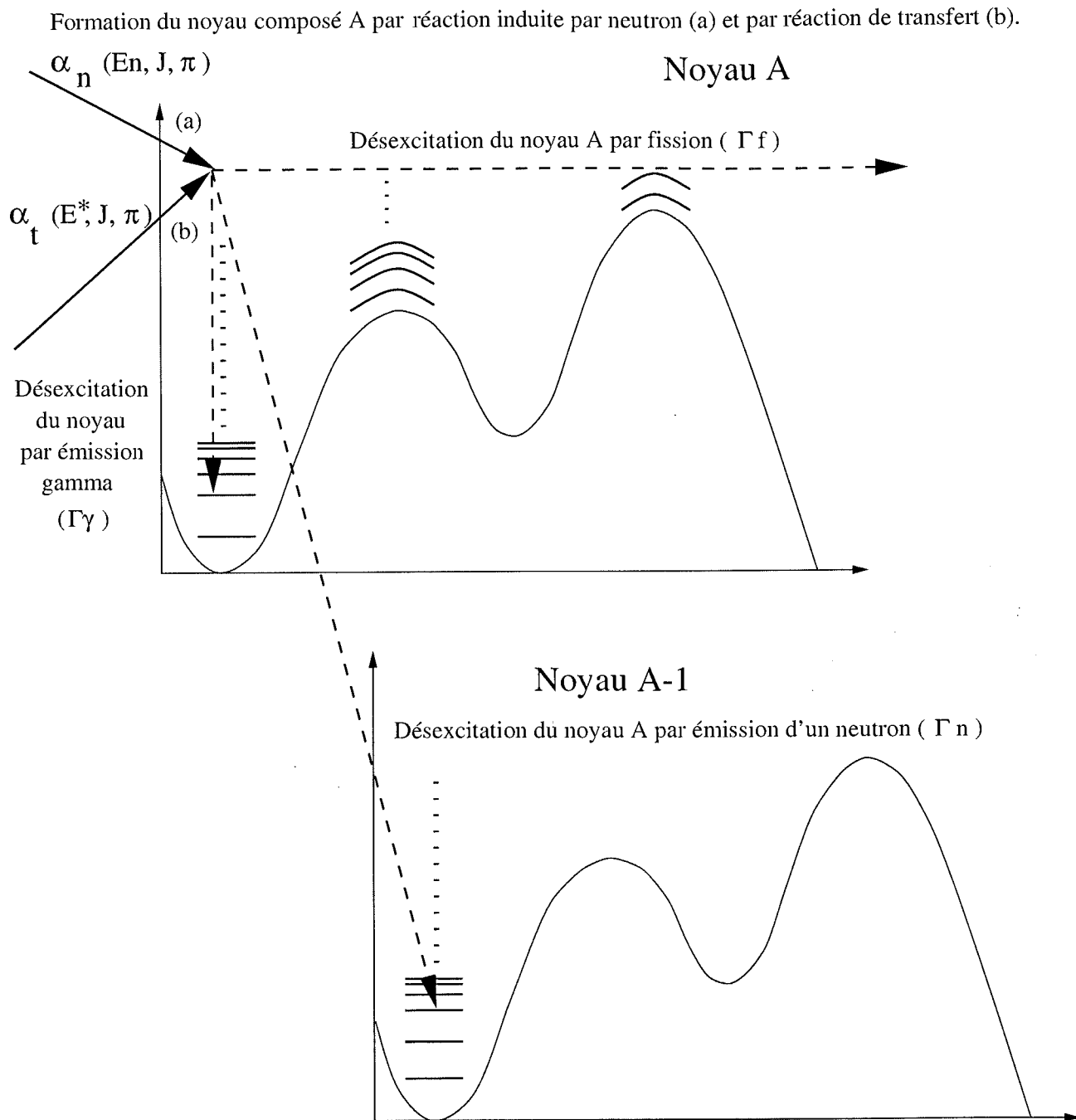


FIG. 3.3: Représentation schématique des différents modes de formation et de désexcitation du noyau composé

où  $\sigma_{NC}(En)$  représente la section efficace de formation du noyau composé A, alors que le rapport  $\Gamma_f/(\sum_i \Gamma_i)$  représente la probabilité de fission des états  $(E^*, J, \pi)$ . Nous avons supposé que seules les voies d'émission de neutron (diffusions élastique et inélastique) et d'émission  $\gamma$  (capture) étaient en compétition avec la fission.

La probabilité de fission du noyau composé A formé par réaction de transfert s'écrit :

$$P_f(E^*) = \sum_{J,\pi} (\alpha_t(E^*, J, \pi) \cdot \frac{\Gamma_f(E^*, J, \pi)}{\sum_i \Gamma_i(E^*, J, \pi)}). \quad (3.2)$$

La relation entre l'énergie cinétique équivalente du neutron incident  $(En)$  et l'énergie d'excitation  $(E^*)$  est donnée par la relation :

$$E^* = Bn + En \cdot \frac{A-1}{A}, \quad (3.3)$$

où  $Bn$  désigne l'énergie de liaison du dernier neutron dans le noyau composé.

L'examen de la relation (3.1) montre que la section efficace de fission induite par neutron est le produit de la section efficace de formation du noyau composé par la probabilité de fission. Celle-ci est en moyenne équivalente à celle mesurée par réaction de transfert (3.2). Nous disposons là, moyennant le calcul de  $\sigma_{NC}$ , d'un moyen de déterminer la section efficace de fission induite par neutron à partir d'une réaction de transfert.

### 3.1.1 Les limites de la méthode

Elles découlent directement du mécanisme de réaction si l'on compare les moments orbitaux ( $\ell$ ) transférés par capture de neutron et par les réactions de transfert les plus utilisées dans ce type d'expérience (d,p), ( $^3\text{He},x$ ).

La distribution des valeurs de  $\ell$  concernant la capture de neutrons provient d'un calcul en modèle optique sur lequel nous reviendrons plus tard. Comme le montre la figure (3.4), pour des énergies de neutron inférieures à deux MeV, le moment angulaire moyen ( $\ell$ ) transféré par réaction de capture neutronique est inférieur de un à deux  $\hbar$  à ceux calculés pour les réactions de transfert (d,p), ( $^3\text{He},d$ ) et ( $^3\text{He},t$ ). A plus haute énergie ( $>2$  MeV) ces différences s'atténuent. Elles ne doivent pas, en moyenne, se traduire par de grandes différences sur les probabilités de fission.

La gamme d'énergie de neutron ( $E_n \simeq 0-2$  MeV) correspond, pour les noyaux non fissiles, à une énergie voisine de la hauteur des barrières de fission. Cette région est plus sensible à la forme de la double barrière et à sa pénétrabilité, qui se manifeste par l'apparition de résonances. Celles-ci sont associées aux états de vibration du second puits. Il s'agit d'états quantiques dont l'observation expérimentale dépend évidemment de la

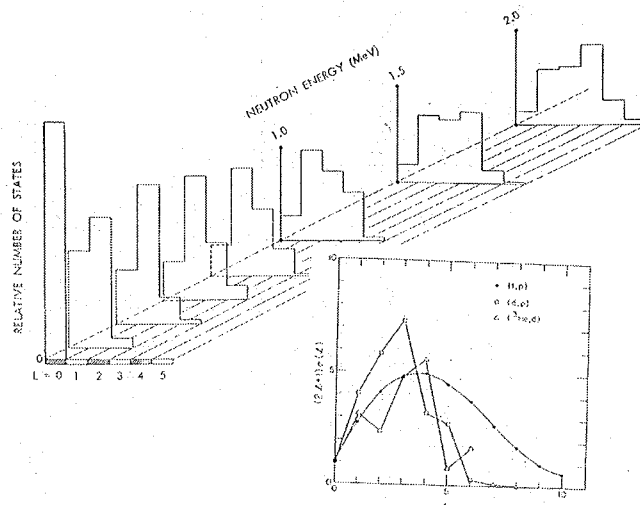


FIG. 3.4: Distribution des moments angulaires orbitaux  $l$  transférés en réaction induite par neutrons (à gauche) et par réaction de transfert  $(d,p)$ ,  $(t,p)$  et  $({}^3\text{He},d)$  pour des éjectiles détectés à  $90^\circ$  du faisceau incident (à droite).

réaction choisie pour observer le phénomène. Un exemple connu [BLO84] concerne la résonance de vibration observée à  $E_n=730$  keV dans la réaction  ${}^{230}\text{Th}(n,f)$ . Des mesures à haute résolution ont permis de montrer que cette résonance du noyau fissionnant  ${}^{231}\text{Th}$  est construite à partir d'une bande de rotation dont les quatre premiers membres ont été identifiés  $(1/2; 3/2; 5/2; 7/2)$  en capture de neutron. C'est à partir d'une réaction  ${}^{230}\text{Th}(d,pf)$  que la même bande de rotation a été observée jusqu'au spin  $J=11/2$  [BLO88].

Cet exemple illustre ici la similitude de ces deux réactions. Soulignons également que les résonances de vibration ont été observées dans quelques noyaux ( ${}^{231,233}\text{Th}$  et  ${}^{232}\text{Pa}$ ) toujours au voisinage ou sous le seuil de fission, c'est-à-dire à des énergies d'excitation où la densité des états de transition est suffisamment faible.

Ce travail ne concerne pas l'étude de ces résonances de vibration. Son but est la détermination de la section efficace moyenne de la réaction  ${}^{233}\text{Pa}(n,f)$ , conformément à la démarche proposée par Cramer et Britt. Dans ce contexte, la sélectivité en moment angulaire des différentes réactions que nous venons de mentionner ne devrait pas jouer un rôle important dans la fission, comme le montre la systématique des rapports des largeurs partielles  $(\Gamma_n/\Gamma_f)$  [VAN73].

Aux énergies d'excitation qui nous concernent, la fission et l'émission de neutrons sont les deux phénomènes prédominants devant l'émission  $\gamma$  ( $\Gamma_\gamma \ll \Gamma_n$  et  $\Gamma_\gamma \ll \Gamma_f$ ). Dans ces conditions, la probabilité de fission se résume à l'équation (3.4) pour les réactions de transfert :



$$P_f = \frac{\langle \Gamma_f \rangle}{\langle \Gamma_f \rangle + \langle \Gamma_n \rangle} \quad (3.4)$$

En réaction induite par neutron, ce rapport est obtenu en comparant la section efficace de fission et la section efficace totale de réaction.

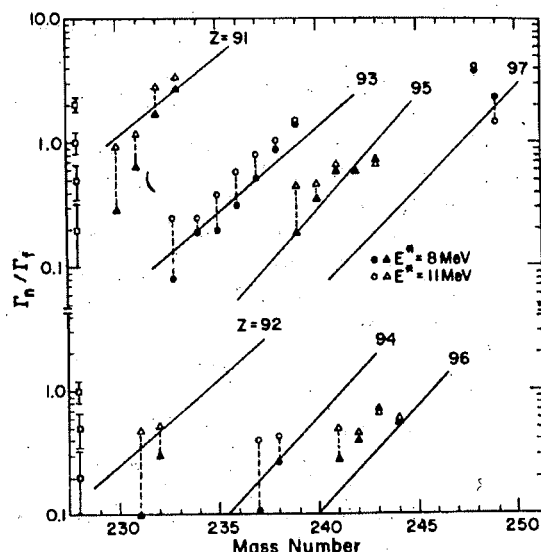


FIG. 3.5: Rapports des  $\Gamma_n/\Gamma_f$  déduits de mesures de probabilités de fission à 8 et 11 MeV d'énergie d'excitation. Les droites représentent la systématique de Vandenbosch et Huizenga [VAN73]. Les points à gauche indiquent les incertitudes sur  $\Gamma_n/\Gamma_f$  provenant des 10% d'incertitude sur les probabilités de fission (d'après [GAV76]).

La figure (3.5) montre l'évolution des rapports  $\Gamma_n/\Gamma_f$  extraits des mesures par réaction de transfert ( $^3\text{He,df}$ ) et ( $^3\text{He,tf}$ ) sur plusieurs Actinides, de  $Z=91$  à 96. Les points expérimentaux correspondent à deux énergies d'excitation du noyau fissionnant. Les courbes en trait plein représentent la systématique de Vandenbosch et Huizenga [VAN73]. Elles regroupent des données obtenues par réactions induites par neutron, photon et spallation. Cette figure montre que les rapports  $\Gamma_n/\Gamma_f$  extraits des mesures de transfert sont en bon accord avec la systématique, pour une série d'isotopes, ils s'alignent sur une droite. Ces similitudes montrent (aux incertitudes d'analyse près qui sont de l'ordre de 10%) que dans les réactions de fission induites par neutron, par particule légère chargée et par photon, les rapports  $\Gamma_n/\Gamma_f$  dépendent peu de l'énergie d'excitation et du moment angulaire du noyau fissionnant.

A partir de ces remarques, Britt et Wilhelmy [BRI79b] ont déterminé les sections efficaces de fission de plusieurs Actinides dont plusieurs noyaux cibles impair-pairs sont intéressants pour les réacteurs. Il s'agit des noyaux :  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{237}\text{Np}$  et  $^{241,243}\text{Am}$ .

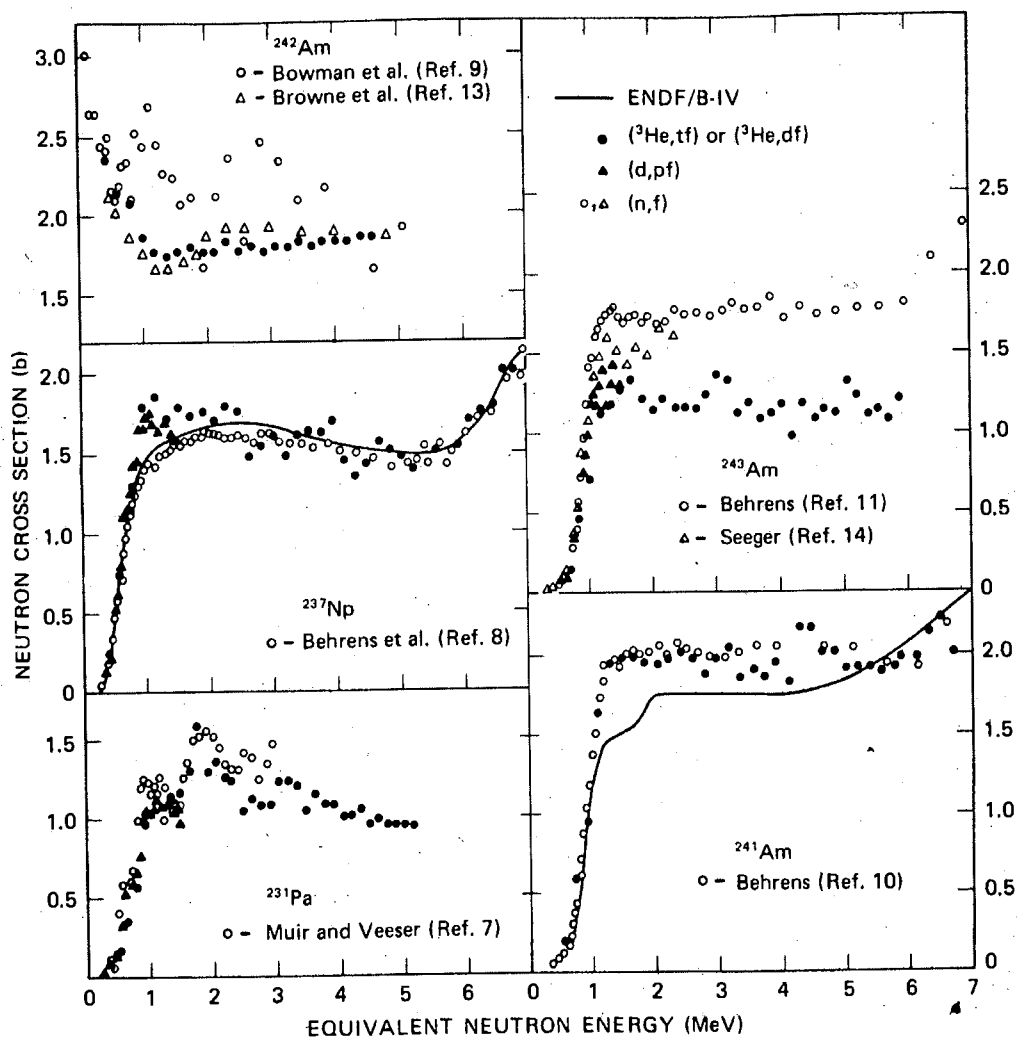


Fig. 2. Simulated neutron cross sections compared to direct neutron measurements and to the ENDF/B-IV cross-section evaluation.

FIG. 3.6: Sections efficaces de fission calculées à partir de réactions de transfert comparées à des mesures équivalentes induites par neutron et aux différentes évaluations de ENDF/B-IV (d'après [BRI79b])

La figure (3.6) présente leurs résultats et leurs confrontations avec les sections efficaces de fission mesurées directement. Dans tous les cas, l'allure de la section efficace de fission au voisinage du seuil est correctement reproduite par réaction de transfert. Globalement, l'accord est satisfaisant pour les noyaux  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{237}\text{Np}$  et  $^{241,242}\text{Am}$ . En revanche, la section efficace de fission pour la réaction  $^{243}\text{Am}(n,f)$  est environ deux fois plus faible que celle mesurée par Behrens [BEH76]. Ce désaccord est mentionné par Britt et Wilhelmy. Il peut surprendre, sachant que la même réaction de transfert ( $^3\text{He},d$ ) a été utilisée pour simuler la réaction  $^{241}\text{Am}(n,f)$ . Les mesures effectuées par Behrens sont environ 40% supérieures aux valeurs recommandées par ENDF pour les énergies de neutron comprises entre 1 et

6 MeV.

### 3.1.2 La démarche

#### choix du couple cible-projectile

Sur les bases du travail effectué à Los Alamos, la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}^*$  a été choisie pour déterminer la section efficace de fission de la réaction  $^{233}\text{Pa}(n,f)$ . Ce choix a été dicté par les considérations suivantes :

- Utilisation d'une cible facile à obtenir et de faible activité  $\alpha$ .
- Utilisation d'un couple cible-projectile le plus simple possible. A partir des éléments cibles les moins radioactifs et les plus faciles à obtenir ( $^{232}\text{Th}$  et  $^{235}\text{U}$ ), les réactions suivantes ont été sélectionnées.

Cible	moment angulaire	Nucléon à transférer	Projectile	Chaleur de la réaction (MeV)	Type de la réaction
$^{232}_{90}\text{Th}$	$0^+$	1p,1n	$^3\text{He}$	+2.745	tranfert
$^{235}_{92}\text{U}$	$7/2^+$	-1p,0n	Deuton	-1.219	"pick-up"

TAB. 3.1: Réactions possibles pour former le noyau fissionnant  $^{234}\text{Pa}$

La réaction  $^{235}\text{U}(d,^3\text{He})^{234}\text{Pa}^*$  n'a pas été retenue pour les raisons suivantes :

- Le moment angulaire de la cible ( $7/2$ ) paraît trop élevé (pour éviter les effets de moment angulaire s'ils existent).
- Le deuton incident se casse dans le champ coulombien de la cible. Cette cassure peut introduire une correction de 20 à 30% sur la probabilité de fission. Cette correction est difficile à évaluer et nécessite une mesure complémentaire en réaction (t,p) pour former le même noyau fissionnant. Cette mesure complémentaire est évidemment hors de portée puisque la cible nécessaire ( $^{232}\text{Pa}$ ) de courte durée de vie ( $T_{1/2}=1.3$  jour) ainsi que le faisceau de tritium sont tout à fait inaccessibles.

Le couple ( $^{232}\text{Th},^3\text{He}$ ) représente le meilleur choix possible puisqu'il permet naturellement de réduire un éventuel effet de moment angulaire. Malheureusement, la réaction ( $^3\text{He},p$ ) a été peu ou jamais utilisée pour les noyaux lourds. A partir des mesures effectuées sur des noyaux plus légers pour l'étude de la structure nucléaire, il est raisonnable de penser que le moment angulaire moyen transféré reste voisin de ceux calculés pour les réactions ( $^3\text{He},d$ ) ou ( $^3\text{He},t$ ). Les réactions  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},d)^{233}\text{Pa}^*$  et  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},t)^{232}\text{Pa}^*$  ont déjà été étudiées à Los Alamos et, comme nous l'avons vu, la réaction ( $^3\text{He},t$ ) a été utilisée avec succès pour déterminer la section efficace de fission de la réaction  $^{231}\text{Pa}(n,f)$ . La mesure des probabilités de fission des noyaux  $^{231}\text{Th}$  et  $^{232,233}\text{Pa}$  a été le deuxième objectif de ce travail.

## 3.2 Le dispositif expérimental : préliminaire

Le but de l'expérience consiste à former le  $^{234}\text{Pa}$  à partir de la réaction de transfert  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}^*$  puis de mesurer sa probabilité de fission en fonction de son énergie d'excitation.

Il convient en premier lieu de définir un dispositif expérimental permettant de réaliser cette mesure. L'expérience est basée sur l'identification des noyaux créés et la détermination de leur énergie d'excitation suivies de la détection en coïncidence de leur éventuelle fission.

Le dispositif expérimental doit permettre :

- L'identification des différentes voies de réactions associées au couple cible-projectile ( $^{232}\text{Th}, ^3\text{He}$ ). Pour cela, nous devons déterminer la nature et l'énergie de la particule légère (éjectile) qui va signer la réaction.
- La détection en coïncidence de l'éventuelle fission des noyaux associés aux particules légères chargées. Il est possible de compléter cette étude avec une mesure de la distribution en masse par la détection en coïncidence des deux fragments issus d'une fission.

### 3.2.1 Les caractéristiques cinématiques des réactions de transfert

#### Les noyaux associés aux éjectiles

Les réactions de transfert associées au couple cible-projectile ( $^{232}\text{Th}, ^3\text{He}$ ) sont les suivantes (tableau 3.2) :

Couple Cible-Projectile	Nature de l'éjectile	particules transférés	noyau formé	Chaleur de la réaction (MeV)	Barrière* coulombienne (MeV)
$^{232}\text{Th}-^3\text{He}$	Proton	1p,1n	$^{234}\text{Pa}$	+2.745	28.47
$^{232}\text{Th}-^3\text{He}$	Deuton	1p,0n	$^{233}\text{Pa}$	-0.246	28.47
$^{232}\text{Th}-^3\text{He}$	Triton	1p,-1n	$^{232}\text{Pa}$	-0.513	28.47
$^{232}\text{Th}-^3\text{He}$	Alpha	0p,-1n	$^{231}\text{Th}$	+14.14	28.47

TAB. 3.2: Réactions de transferts possibles à partir du couple cible-projectile ( $^{232}\text{Th}-^3\text{He}$ ).

\* calcul réalisé avec  $r=r_0 A^{1/3}$  où  $r_0=1.2$  fermi

## La cinématique des réactions de transfert

Les réactions de transfert sont des réactions à deux corps dont nous allons maintenant préciser les équations issues de la cinématique nécessaires à notre étude.

- Les paramètres de la voie d'entrée sont :
  - l'énergie cinétique et la masse du projectile ( $E_{pro}$ ,  $m_{pro}$ )
  - la masse de la cible ( $m_{cib}$ )
- Les paramètres de la voie de sortie sont :
  - l'énergie cinétique, la masse et l'angle d'émission de l'éjectile ( $E_{éje}$ ,  $m_{éje}$ ,  $\theta_{éje}$ )
  - l'énergie cinétique, la masse, l'angle d'émission et l'énergie d'excitation du noyau de recul ( $E_{rec}$ ,  $m_{rec}$ ,  $\theta_{rec}$ ,  $E^*$ )

La figure (3.7) résume les différentes données cinématiques d'une réaction de transfert.

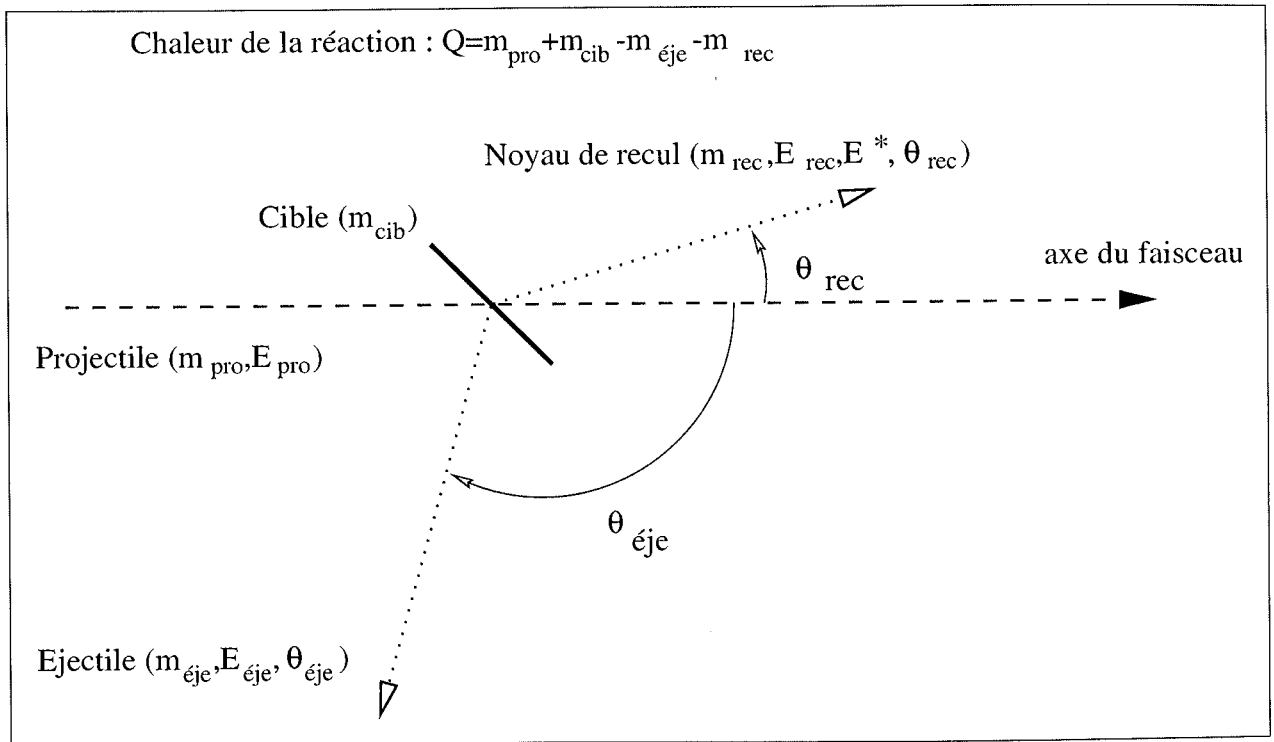


FIG. 3.7: Les données cinématiques d'une réaction de transfert

A partir de la conservation de l'énergie (3.5) et de l'impulsion (3.7), il est possible d'établir facilement la relation donnant l'énergie d'excitation du noyau composé en fonction des grandeurs cinématiques définies précédemment.

### 1- Conservation de l'énergie

$$E_{éjé} = E_{pro} - E_{rec} - E_{rec}^* + Q \quad (3.5)$$

$$\text{avec : } Q = m_{pro} + m_{cib} - m_{éjé} - m_{rec} \quad (3.6)$$

2- Conservation de l'impulsion

$$\vec{p}_{pro} = \vec{p}_{éjé} + \vec{p}_{rec} \quad (3.7)$$

Où  $\vec{p}_{pro}$ ,  $\vec{p}_{éjé}$  et  $\vec{p}_{rec}$  sont respectivement les quantités de mouvement du projectile, de l'éjectile et du noyau de recul.

L'énergie d'excitation du noyau de recul s'exprime en fonction de l'énergie de l'éjectile :

$$E^* = E_{pro} + Q - E_{éjé} - \frac{1}{m_{rec}} [\alpha_{pro} + [\alpha_{éjé} - 2\sqrt{(\alpha_{pro} \cdot \alpha_{éjé})} \cdot \cos(\theta_{éjé})]], \quad (3.8)$$

$$\text{avec } \alpha_{pro} = m_{pro} \cdot E_{pro}, \quad (3.9)$$

$$\text{et } \alpha_{éjé} = m_{éjé} \cdot E_{éjé}. \quad (3.10)$$

Il est également possible de calculer l'énergie de l'éjectile en fonction de l'énergie d'excitation du noyau de recul :

$$E_{éjé} = \frac{\left[ \alpha^{1/2} \cos(\theta_{éjé}) + \sqrt{[\alpha \cos(\theta_{éjé}) + m_{com}(E_{pro}(m_{rec} - m_{pro}) + m_{rec}(Q - E^*))]} \right]^2}{(m_{com})^2} \quad (3.11)$$

$$\text{avec } \alpha = m_{pro} \cdot E_{pro} \cdot m_{éjé}, \quad (3.12)$$

$$\text{et } m_{com} = m_{pro} + m_{cib} = m_{éjé} + m_{rec}. \quad (3.13)$$

L'angle et l'énergie du noyau de recul sont également obtenus directement par la conservation de l'énergie et de l'impulsion. Les relations ainsi mises en évidence sont les suivantes :

$$\text{Energie de recul : } E_{rec} = E_{pro} - E_{éjé} - E^* + Q, \quad (3.14)$$

$$\text{et Angle de recul : } \theta_{rec} = \arcsin \left( \sqrt{\frac{m_{éjé} \cdot E_{éjé}}{m_{rec} \cdot E_{rec}}} \cdot \sin(\theta_{éjé}) \right). \quad (3.15)$$

### 3.3 Détection des particules légères chargées

Les éjectiles sont des particules légères chargées (protons, deutons, tritons et alphas); la méthode la plus simple pour obtenir simultanément leur nature et leur énergie consiste à utiliser un détecteur de type télescope.

Ce dispositif permet d'obtenir, sous un faible encombrement, un ensemble de détection offrant une réponse rapide en temps et une bonne résolution en énergie.

#### 3.3.1 Principe de fonctionnement d'un télescope

Un détecteur télescope se compose de deux détecteurs semi-conducteurs au silicium montés en série et dont le premier est monté en transmission, ceci de telle sorte qu'une particule incidente passe à travers le premier détecteur où elle est ralentie. Elle y perd une quantité d'énergie  $\Delta E_i$  (proportionnelle à sa masse  $m$ , sa charge  $z$  et son énergie). Elle entre ensuite dans le second détecteur où elle dépose toute son énergie résiduelle ( $E_r$ ).

Il est possible de démontrer [KNO79] que le produit  $\Delta E_i \times E_r$  est proportionnel à  $mz^2$ . Ce produit identifie donc la nature de la particule; la somme  $\Delta E_i + E_r$  donne son énergie initiale.

#### Identification des particules

Plusieurs méthodes sont possibles pour identifier une particule. La première repose sur une sélection graphique à partir de la représentation à deux dimensions de  $\Delta E_i \times E_r$ . La seconde, numérique et plus rapide, consiste à utiliser l'approche décrite par Goulding [GOU69]. Elle se base sur l'observation suivante: le parcours  $R$  et l'énergie  $E$  pour une grande gamme de particules chargées peuvent être reliés en première approximation par:

$$R(E) = a.E^b, \quad (3.16)$$

où  $a$  et  $b$  sont des constantes.

Si la particule dépose une énergie  $\Delta E_i$  dans le détecteur monté en transmission  $\Delta E_t$  d'épaisseur  $\Delta t$  puis son énergie restante  $E_r$  dans le détecteur  $E_t$ , alors on a (3.17). En remplaçant  $R(E)$ , on obtient alors (3.18).

$$\Delta t = R(E_r + \Delta E_i) - R(E_r) \quad (3.17)$$

$$\frac{\Delta t}{a} = [E_r + \Delta E_i]^b - E_r^b \quad (3.18)$$

La valeur de  $a$  est une constante proportionnelle à  $1/mz^2$ , donc à un type de particule légère chargée. La valeur de  $b$  ne change pas beaucoup pour des ions de masse similaire:  $b$  vaut 1.73 pour un proton et 1.65 pour des ions Carbone. Les particules que nous allons observer allant du proton à l'Helium-4, nous avons donc choisi:  $b = 1.73$ . L'équation d'identification employée est donnée par (3.19):

$$I = (\Delta E_i + E_r)^{1.73} - E_r^{1.73}, \quad (3.19)$$

où  $I$  dépend du type de particule et de l'épaisseur du détecteur  $\Delta t$ .

### 3.3.2 Description du montage télescope utilisé

La figure (3.8) présente le type de montage télescope utilisé. Deux montages ont été réalisés et utilisés.

Les détecteurs  $\Delta E_t$  (c) sont composés de silicium de type implantés. Les épaisseurs des deux  $\Delta E_t$  sont respectivement de  $300 \mu\text{m}$  et de  $150 \mu\text{m}$ .

Les détecteurs  $E_t$  (d) sont du type siliciums compensés au Litium (SiLi) de 5 mm d'épaisseur, suffisante pour arrêter les protons les plus énergétiques que l'on souhaite détecter ( $\sim 30 \text{ MeV}$ ).

Un collimateur en tantale (b) améliore la résolution par la diminution de l'ouverture angulaire et évite les effets de bord du détecteur  $E_t$ .

Une feuille en aluminium (a) de  $30 \mu\text{m}$  arrête les fragments de fission qui peuvent endommager le silicium du détecteur  $\Delta E_t$ . Elle est suffisamment mince pour ne pas détériorer d'une manière significative l'énergie des particules légères chargées.

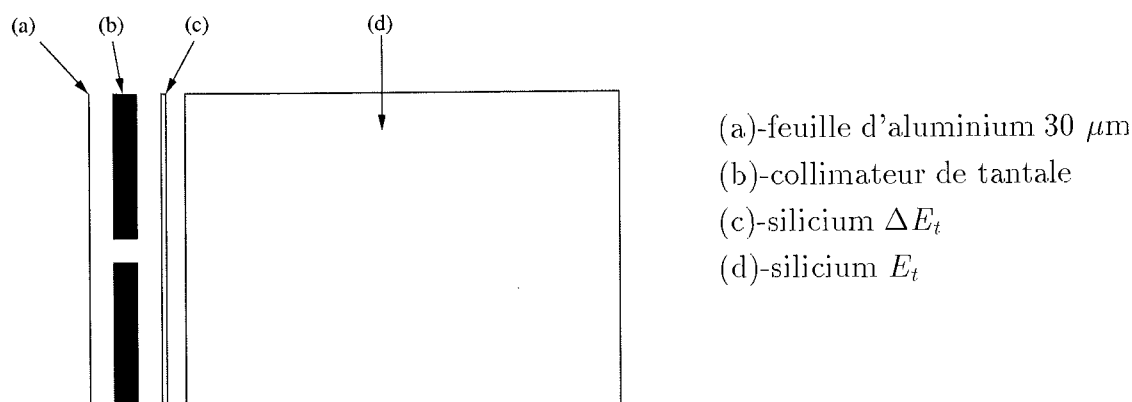


FIG. 3.8: Schéma du montage télescope



### 3.3.3 Seuil de déclenchement

Les télescopes présentent, pour chaque type de particule, un seuil de détection ( $E_{seuil}$ ). Celui-ci représente l'énergie minimale qu'il faut à une particule incidente pour pouvoir être détectée après traversée de la feuille d'aluminium et du détecteur  $\Delta E_t$ . Le tableau (3.3) présente les seuils de détection expérimentaux comparés aux seuils calculés à partir des tables de pertes d'énergie de Ziegler [ZIG77b]. L'accord entre les seuils théoriques et expérimentaux est très bon.

Épaisseur du $\Delta E_t$ en $\mu\text{m}$	Particule incidente (p,d,t, $\alpha$ )	Seuil calculé $E_c > E_{seuil}$ (MeV)	Seuil expérimental $E_c > E_{seuil}$ (MeV)	Seuil calculé $E^* < E_{seuil}^*$ (MeV)
300	Proton	6.44	6.33	$E^* < 25.9$
300	Deuton	8.52	8.29	$E^* < 20.8$
300	Triton	10.02	9.97	$E^* < 19.0$
300	Alpha	25.77	25.80	$E^* < 17.5$
150	Proton	4.55	4.23	$E^* < 27.7$
150	Deuton	5.92	6.13	$E^* < 23.2$
150	Triton	6.89	6.77	$E^* < 21.9$
150	Alpha	18.04	17.99	$E^* < 24.9$

TAB. 3.3: Seuil de détection des détecteurs télescopes.  $E_c$  est l'énergie cinétique de la particule incidente

## 3.4 Détection des fragments de fission.

Le dispositif de détection de fragments a été réalisé à partir de cellules photovoltaïques du même type que celles qui convertissent le rayonnement solaire en électricité. Les premières études effectuées par Siegert [SIE79] ont permis de montrer que ces cellules étaient bien adaptées à la détection des fragments de fission. En collaboration avec le C.E.N Saclay, mon groupe d'accueil a pu montrer que ces cellules pouvaient avantageusement remplacer les détecteurs silicium ou les compteurs à gaz en raison de leur facilité d'emploi et de leur faible coût. Ces caractéristiques nous ont permis de réaliser un dispositif performant pour mesurer l'énergie, la distribution en masse et la distribution angulaire des fragments.

Nous allons brièvement exposer les caractéristiques et les propriétés des cellules photovoltaïques que nous avons utilisées.

### 3.4.1 Structure des cellules utilisées

Il s'agit de cellules photovoltaïques standard de forme rectangulaire ( $\sim 20 \times 40 \text{ mm}^2$ ) composées d'une plaquette de silicium monocristalline de type  $pn^+$ . La face avant de la plaquette est équipée d'une grille métallique recouverte d'une couche mince anti-reflet de  $\text{TiO}_2$  (100 nanomètres) qui donne son aspect bleuté aux cellules.

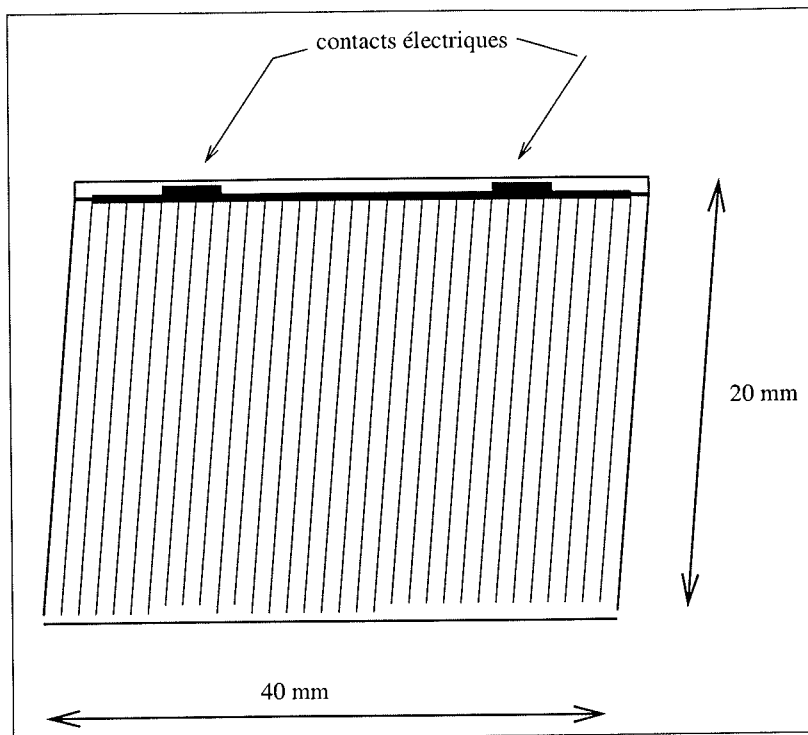


FIG. 3.9: Aspect de la face avant de la cellule monocristalline  $800 \text{ mm}^2$

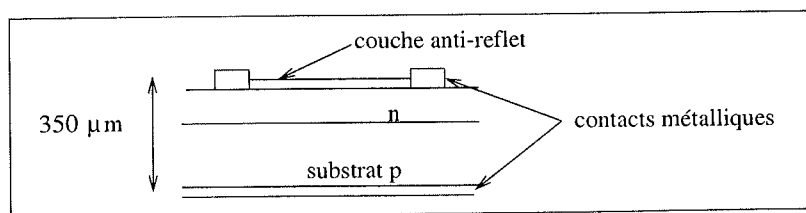


FIG. 3.10: Coupe transversale de la cellule

### 3.4.2 Principe de fonctionnement

Bien que réalisées à partir du même matériau que les détecteurs à jonction couramment utilisés en physique nucléaire, ces cellules présentent un mode de fonctionnement très différent. Leur capacité statique est très supérieure ( $\sim 50 \text{ nF/cm}^2$ ) à celle des détecteurs

silicium ( $0.1$  à  $0.01$  nF/cm<sup>2</sup>). Inversement, leur résistance inverse ( $\sim 0.1$ - $1$   $\Omega$ cm) est environ 100 fois plus faible que celle des détecteurs à jonction. Cette dernière propriété est la cause d'un courant inverse important qui interdit l'application d'une tension de polarisation. La zone désertée ne peut donc être augmentée comme c'est le cas pour les détecteurs à jonction. Cette zone désertée est extrêmement faible ( $0.3$   $\mu$ m) devant le parcours des fragments de fission dans le silicium ( $\sim 10$   $\mu$ m) et les paires électrons-trous sont créés en majorité dans le substrat de silicium.

Malgré l'absence de champ électrique, la collection des charges s'effectue par conduction selon le phénomène du "funneling" (funnel=entonnoir) proposé par Hsieh *et al.* [HSI81].

Qualitativement, ce phénomène de funneling se déroule de la manière suivante. Le passage du fragment de fission produit en quelques picosecondes une colonne de plasma d'un rayon de 100 nm avec une densité de l'ordre de  $10^{18}$  à  $10^{19}$  paires électron-trou par cm<sup>3</sup>, c'est-à-dire très supérieure à la densité de dopage du substrat. Cette colonne de plasma provoque une distorsion de la zone désertée en direction du substrat à la manière d'un entonnoir. Ce plasma cylindrique est composé de trous au centre et d'électrons à la périphérie, ce qui crée un champ électrique radial. La séparation des charges dans l'entonnoir s'effectue par l'intermédiaire de deux modes : séparation radiale vers le substrat  $p$  pour les trous et longitudinale vers la zone  $n^+$  pour les électrons.

Le phénomène du funneling se termine lorsque la concentration de paires dans le plasma est voisine de celle des porteurs dans le substrat.

Le temps de collection de charges par "funneling" est de l'ordre de 5 ns, ce qui est 30 fois plus rapide que par diffusion (160 ns) [YIM89].

Néanmoins, pour la même quantité de charges libérées, l'échelon de tension équivalent ( $Q=C.\Delta V$ ) est environ 500 fois plus faible que celui délivré par un détecteur silicium. L'utilisation de ces cellules nécessite donc l'emploi d'un préamplificateur très performant que nous avons développé en collaboration avec le service d'électronique du C.E.N Saclay.

### 3.4.3 Résolution en énergie

Les performances des cellules photovoltaïques monocristallines ont été étudiées à partir des fragments issus de la fission spontanée du <sup>252</sup>Cf. Les procédures mises en œuvre sont celles habituellement utilisées pour caractériser la réponse des détecteurs silicium aux ions lourds. Les figures (3.11(b) et 3.11(a)) présentent respectivement les spectres en amplitude des fragments de fission du <sup>252</sup>Cf délivrés par la cellule monocristalline et par un détecteur à semiconducteur. Nous retrouvons la distribution en masses des fragments de fission avec ses deux larges pics associés respectivement aux fragments lourds ( $H$ ) et légers ( $L$ ). Selon les critères définis par Schmitt *et al.* [SCH66], la qualité d'un détecteur

fission est caractérisée par le rapport  $N_L/N_V$ .  $N_L$  et  $N_H$  sont les intensités des pics associés respectivement aux fragments légers et lourds,  $N_V$  est fond de la vallée séparant ces deux pics. Ce rapport représente bien la qualité du détecteur, c'est-à-dire sa résolution en énergie. Pour les cellules que nous avons utilisées, ce rapport ( $N_L/N_V=2.77$ ) est très proche de celui d'un détecteur silicium ( $N_L/N_V=2.78$ ). Comme les détecteurs silicium, la réponse en amplitude des cellules présente une dépendance avec la masse et l'énergie du fragment de fission détecté. Une étude de cette réponse a été réalisée à partir de fragments de fission séparés en masse et en énergie auprès du séparateur Lohengrin de l'I.L.L de Grenoble. La figure (3.11(c)) présente la réponse énergie-amplitude pour des fragments de masse comprise entre 86 et 145 U.M.A. On notera que l'on retrouve ici un phénomène bien connu pour les détecteurs à jonction : à énergie égale, l'amplitude de l'impulsion  $X$  diminue lorsque la masse  $M$  de fragment augmente.

Cette mesure a permis de montrer que la méthode de calibration utilisée pour les détecteurs à jonction pouvait s'appliquer aux cellules photovoltaïques. Cette méthode fait appel aux positions des pics lourds ( $P_H$ ) et légers ( $P_L$ ) du  $^{252}\text{Cf}$  et repose sur la relation (3.20)

$$E(\text{MeV}) = \frac{a_o}{P_L - P_H}(X - P_L) + \frac{a}{P_L - P_H}M(X - P_L) + b_o + bM. \quad (3.20)$$

Les quatre constantes  $a_o$ ,  $a$ ,  $b_o$  et  $b$  ont été déterminées à partir de la mesure en fragments séparés pour les cellules monocristallines. Ces coefficients, utilisés par la suite dans ce travail, sont comparés dans le tableau (3.4) aux valeurs de référence pour les détecteurs silicium. On notera que la réponse des cellules photovoltaïques monocristallines présentent une dépendance en masse plus forte que celle des détecteurs silicium.

	$a_o$ (MeV)	$a$ (MeV.(U.M.A) <sup>-1</sup> )	$b_o$ (MeV)	$b$ (MeV.(U.M.A) <sup>-1</sup> )
Cellules monocristallines	22.500	0.0377	84.66	0.155
Barrière de surface	24.300	0.0283	90.397	0.115

TAB. 3.4: Coefficients de la relation (3.20) pour les calibrations des cellules photovoltaïques monocristallines et des barrières de surface.

### Mesures de position

Nous avons pu mettre en évidence [PET98] une propriété intéressante des cellules photovoltaïques monocristallines concernant la localisation du point d'impact des fragments

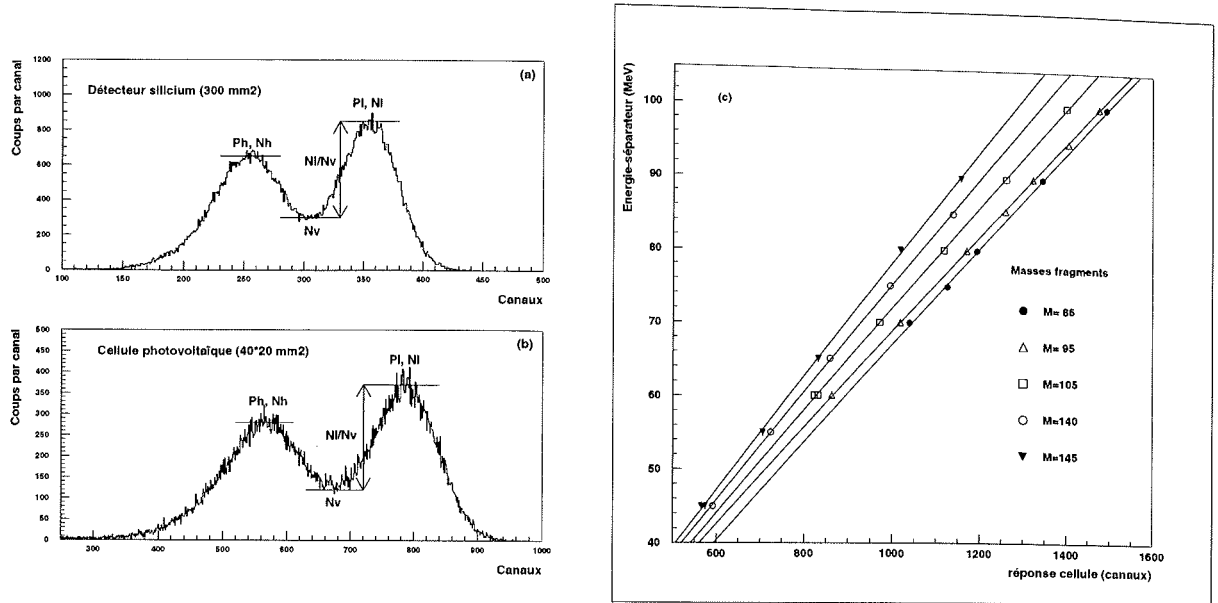


FIG. 3.11: Spectres en amplitude des fragments de fission du  $^{252}\text{Cf}$  délivrés par la cellule monocristalline (b) et par un détecteur à semiconducteur (a). Réponse amplitude des cellules en fonction de la masse du fragment détecté (c).

arrivant sur la face avant de cette cellule de grande dimension. Dans certaines applications (spectroscopie  $\gamma$  des fragments de fission), les dimensions de cette cellule peuvent être gênantes lorsque la distance cible-détecteur est du même ordre de grandeur. Il devient alors difficile de définir précisément la direction du fragment pour corriger les énergies des  $\gamma$  émis en vol par ce fragment (correction de l'effet Doppler).

Le montage suivant a été réalisé à partir d'une source mince de  $^{252}\text{Cf}$  placée entre la cellule et un détecteur à barrière de surface: la cellule est placée à 20 mm de la source de  $^{252}\text{Cf}$ . Un masque, placé devant la cellule, est percé de deux fentes rectangulaires distantes de 23 mm. Chacune des fentes de hauteur 15 mm présente une largeur projetée sur la cellule de 5 mm. Cette géométrie très compacte nous est imposée par la très faible activité de la source de  $^{252}\text{Cf}$ . Les deux fragments étant détectés en coïncidence, le rôle de la barrière de surface est de fournir un signal prompt ( $t_0$ ) signant la fission. Les extrémités de la cellule sont reliées à deux préamplificateurs délivrant chacun l'énergie et l'instant d'arrivée ( $e_1, t_1 - t_0, e_2, t_2 - t_0$ ) du fragment associé à celui détecté par le détecteur à barrière de surface.

Il s'agissait là d'étudier les possibilités de la grille équipant la face avant de ces cellules: un premier essai a été effectué à partir de la division des charges collectées aux extrémités de la cellule mais sans résultat, compte tenu de la faible résistivité de la grille.

Le deuxième essai a concerné la mesure du temps de transport des charges de la

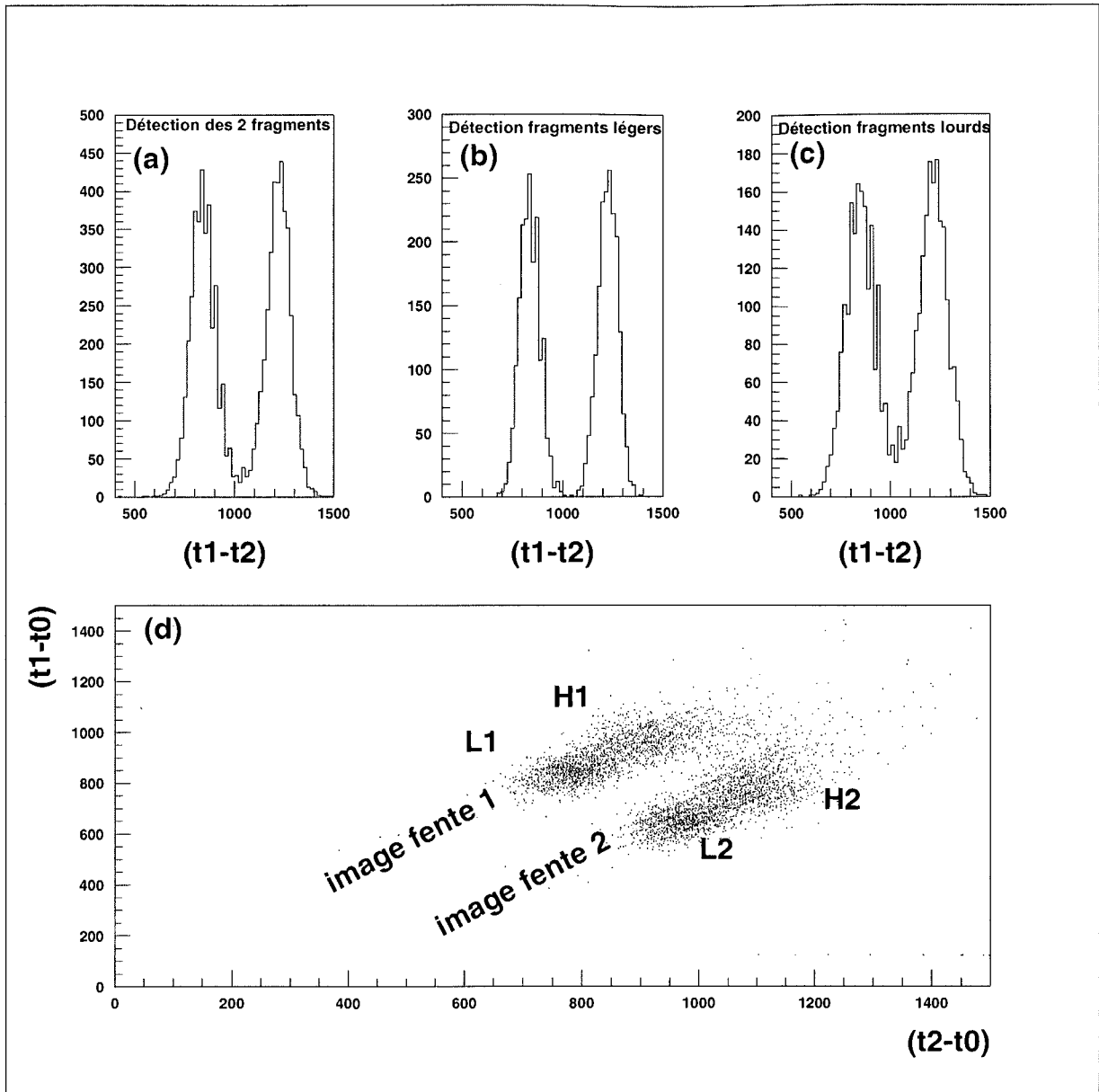


FIG. 3.12: Mesures de position réalisées avec un masque percé de deux fentes rectangulaires, ensemble des fragments (lourds et légers) (a), pour les fragments légers (b) et pour les fragments lourds (c). Diagramme de corrélation des temps d'arrivées des signaux (d), les fragments légers (L1 et L2) ont en moyenne un temps d'arrivée du signal plus court que les fragments lourds (H1 et H2)

position où elles sont créés jusqu'aux extrémités de la face avant de la cellule.

Les paramètres ( $t1 - t0$ ) et ( $t2 - t0$ ) ont été analysés sur une plage en temps de 200 ns codée sur 2048 canaux.

Le diagramme de corrélation des temps mesurés aux bornes de la cellule est présenté sur la figure (3.12(d)). On y retrouve l'image des deux fentes (1) et (2). Les différences (projetées)  $t1 - t2$  sont présentées sur les figures (3.12(a, b, c)), les positions moyennes des deux fentes images sont séparées de 36 ns, soit un pas d'environ 1.6 ns/mm. La résolution sur la mesure des positions est de 7.5 mm pour l'ensemble des fragments (lourds et légers) détectés par la cellule (a), de 5 mm pour les fragments légers (b) et de 8.7 mm pour les fragments lourds (c). Ces résolutions ne sont pas comparables à celles obtenues à partir d'un détecteur silicium à localisation. Néanmoins, elles offrent, pour un coût modeste, des perspectives intéressantes.

## 3.5 Dispositif expérimental

### 3.5.1 Faisceaux et cibles

L'expérience a eu lieu à l'IPN d'Orsay en novembre 2000 auprès de l'accélérateur Tandem. Cette accélérateur est une machine électrostatique (tension maximale 15 MV). Le faisceau d'Helium-3, utilisé en continu, est accéléré à 24 MeV pour la calibration des détecteurs télescopes et à 30 MeV pour l'expérience proprement dite. L'intensité du faisceau était d'environ 30 nano-Ampères particules.

Trois cibles différentes ont été utilisées, toutes fournies par le service des cibles de l'IPN d'Orsay. La première était composée d'un dépôt de  $^{208}\text{Pb}$  de  $86 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  sur un support de  $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  de  $^{12}\text{C}$  pour calibrer les télescopes. La seconde d'un dépôt de  $^{232}\text{Th}$  de  $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  sur un support de  $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  de  $^{12}\text{C}$  pour l'expérience proprement dite. La troisième se compose de  $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  de  $^{12}\text{C}$  pour réaliser une mesure de bruit de fond.

### 3.5.2 Enceinte de mesures, description générale

La chambre de réaction utilisée, de diamètre 30 cm, est composée de deux hémisphères que l'on peut découpler pour intervenir sur le dispositif expérimental. Elle est couplée au vide de l'accélérateur. Le faisceau traverse la chambre. Il est arrêté dans une cage de Faraday située à 4 mètres de la cible. Les détecteurs télescope et fission sont placés de part et d'autre de la cible. Ils reposent sur deux plateaux indépendants qui permettent de positionner les détecteurs par rapport au faisceau et à la cible.

### 3.5.3 Emplacement des télescopes

Deux montages télescopes ont été placés dans l'enceinte de mesure. Le premier montage ( $\Delta E_t, E_t$ ) (A) équipé d'un détecteur  $\Delta E_t$  de 300  $\mu\text{m}$  est placé à  $90^\circ$  du faisceau incident. Pour réduire les pertes d'énergie des particules légères dans la cible et son support, la cible est inclinée à  $45^\circ$  par rapport à l'axe du faisceau, le support de carbone se situant côté télescope. Cette disposition de la cible est choisie pour limiter la quantité de matière que devront traverser les fragments de fission. Le second télescope (montage B) équipé d'un détecteur  $\Delta E_t$  de 150  $\mu\text{m}$  a été placé à  $130^\circ$  du faisceau incident. Les montages A et B sont situés respectivement à 5 cm et 7 cm de la cible. Ce décalage est imposé par l'encombrement géométrique des deux ensembles dans le plan de réaction.

Le tableau (3.5) présente les angles solides ( $\Delta\omega$ ) et les efficacités ( $\Delta\Omega$ ) calculées (fraction de  $4\pi$ ) des deux montages télescope utilisés.

Télescope	$\Delta\omega$ (st)	$\Delta\Omega$ (%)
$90^\circ$	0.0265	0.211
$130^\circ$	0.0127	0.101

TAB. 3.5: Angles solides sous-tendus par les télescopes et efficacités

On remarquera que les particules légères sont détectées aux angles arrières ( $\Theta \geq 90^\circ$ ). Cette disposition est dictée par les considérations suivantes :

- Maintenir le taux de comptage des  $^3\text{He}$  diffusés à un niveau acceptable.
- Favoriser les plus faibles moments angulaires transférés dans les réactions  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},\text{X})$ .
- Limiter la contribution des réactions parasites sur le support de carbone. Il s'agit en particulier de la réaction  $^{12}\text{C}(^3\text{He},\text{p})^{14}\text{N}^*$ . Plus d'une vingtaine de niveaux excités de l'Azote-14 ont déjà été observés à partir de cette réaction. Pour illustrer leur contribution (parasite) à la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},\text{p})$ , nous avons reporté sur la figure (3.13) l'évolution de l'énergie du proton en fonction de son angle de détection. Cette évolution est tracée pour l'état fondamental et les premiers états excités de l'Azote-14 ainsi que pour différentes énergies d'excitation du noyau fissionnant  $^{234}\text{Pa}$ .

Deux remarques s'imposent :

- Pour une énergie d'excitation donnée, l'énergie de l'éjectile varie quasi-linéairement avec l'angle de détection. De plus, la pente de cette droite est d'autant plus forte que la masse du noyau de recul est faible ( $^{14}\text{N}$  et  $^{234}\text{Pa}$ ). Il s'agit d'un effet cinématique bien connu pour ces réactions à deux corps, et qui a la conséquence suivante :



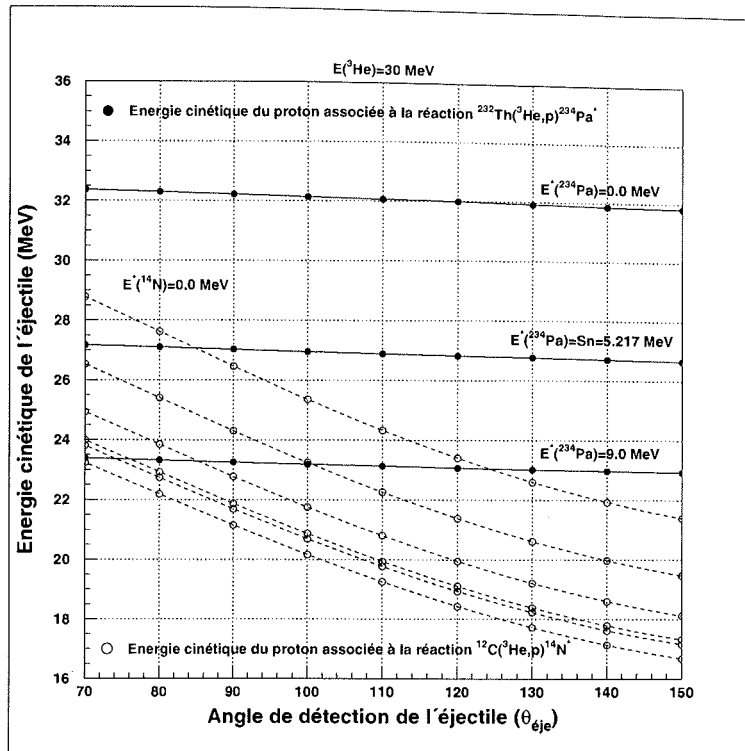


FIG. 3.13: Variation de l'énergie des protons en fonction de son angle de détection pour la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}^*$  et les premiers états excités du noyau  $^{14}\text{N}$  formé dans la réaction parasite  $^{12}\text{C}(^3\text{He},p)^{14}\text{N}^*$

- La contribution de la réaction parasite  $^{12}\text{C}(^3\text{He},p)^{14}\text{N}^*$  intervient à plus haute énergie d'excitation dans la voie  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)$  lorsque le proton est détecté à  $130^\circ$ , cette position étant plus favorable que celle à  $90^\circ$ . En revanche, et pour les deux positions, les lignes protons associées aux états excités de l'Azote-14 vont être considérablement élargies par effet cinématique. A  $90^\circ$ , cet élargissement est de 115 keV par degré pour la réaction  $^{12}\text{C}(^3\text{He},p)^{14}\text{N}^*$ . Il est beaucoup plus faible (15 keV/degré) pour la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}^*$ . Cet élargissement nous a conduit à équiper les télescopes de colli-mateurs de diamètre utile égal à 9 mm. Ceci entraîne une ouverture utile de  $10^\circ$  pour le montage A et de  $7^\circ$  pour le montage B. Pour les deux montages, la résolution en énergie de l'éjectile et donc en énergie d'excitation du noyau fissionnant est fixée par la cinématique.

Ces effets de dispersion angulaire (donc d'énergie cinétique) ont été étudiés à partir d'une simulation de type Monte-Carlo, sur lequel nous reviendrons par la suite. La figure (3.14) présente la distribution angulaire des éjectiles arrivants sur la face avant des télescopes placés à  $90^\circ$  et  $130^\circ$ . Les effets cinématiques mis en jeu dans les réactions  $^{12}\text{C}(^3\text{He},p)^{14}\text{N}$  et  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}$  apparaissent clairement sur la figure (3.15) présentant les distributions en énergie cinétique des éjectiles pour les deux montages télescope.

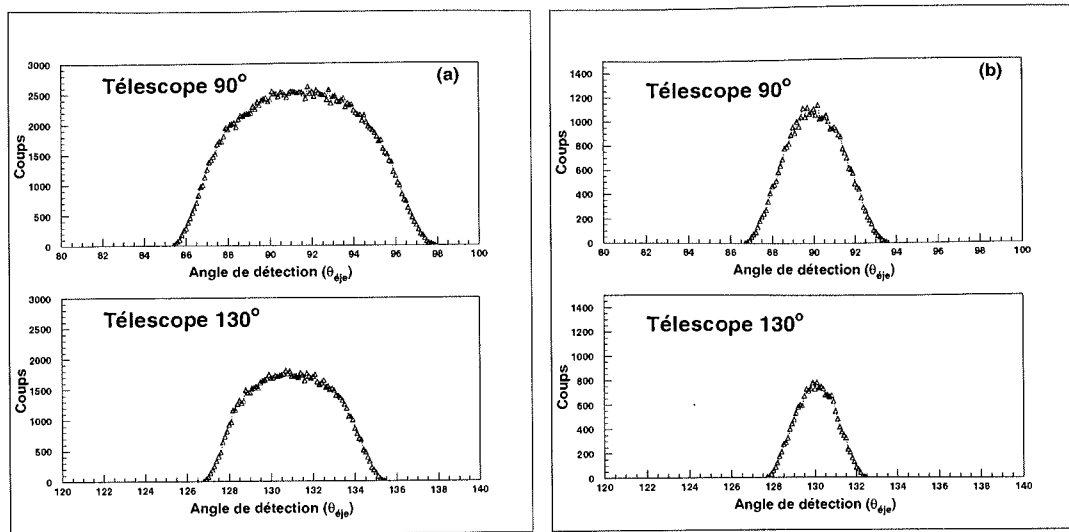


FIG. 3.14: Distribution angulaire des éjectiles arrivant sur la face avant des télescopes pour les collimateurs de 9 mm (expérience (a)) et de 2 mm (calibration (b)).

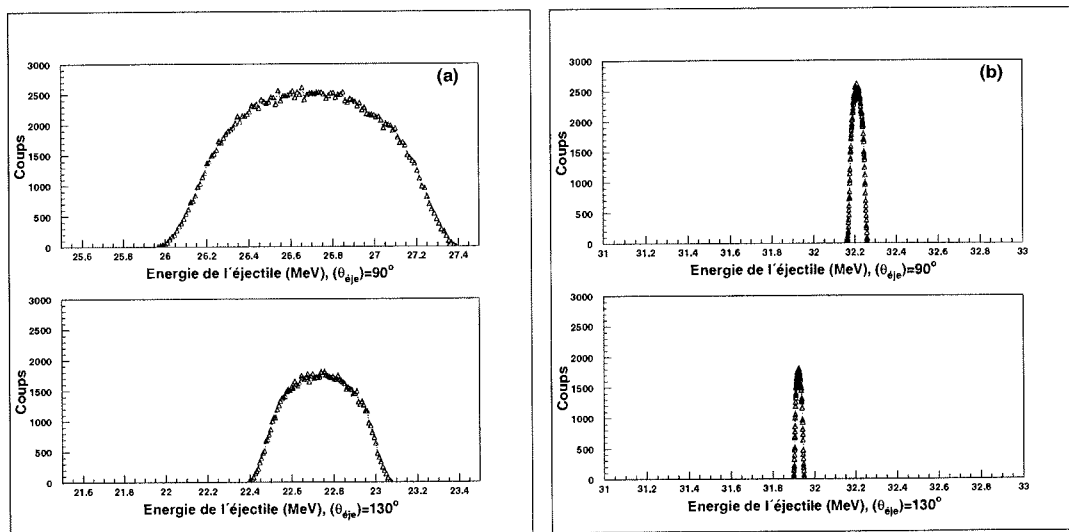


FIG. 3.15: Energies des éjectiles associées au niveau fondamental de l'Azote-14 (a) et du Protactinium-234 (b) tracées sur une même gamme d'énergie cinétique ( $\Delta E_c = 2$  MeV).

### 3.5.4 Positionnement des détecteurs fission de SAPHIR

Le dispositif choisi répond aux exigences suivantes :

- Une grande efficacité de détection.
- Une granularité suffisante pour mesurer les distributions angulaires des fragments de fission.

La géométrie adoptée comprend 15 cellules photovoltaïques de  $\sim 800 \text{ mm}^2$  réparties en cinq plans disposés sur un cylindre de 5 cm de rayon. Ce cylindre est perpendiculaire au plan de réaction défini par le faisceau et les télescopes. Il repose sur une platine mobile (orientable). La répartition des plans de cellules est choisie pour mesurer la distribution angulaire des fragments par rapport à l'axe moyen du noyau de recul qui fixe la direction de référence de la distribution angulaire ( $0^\circ$ ). L'angle moyen de recul varie de  $13^\circ$  à  $54^\circ$  pour les réactions ( $(^3\text{He},p)$ ,  $(^3\text{He},d)$ ,  $(^3\text{He},t)$  et  $(^3\text{He},\alpha)$ ). Le montage est ajusté pour la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)$ . Comme le montre le tableau (3.6), cet angle moyen varie évidemment avec la réaction de transfert, l'angle d'observation et l'énergie de l'éjectile.

réaction	$\Theta_{éjé}$	$\Theta_{rec}$ ( $E^*=0 \text{ MeV}$ )	$\Theta_{rec}$ ( $E^*=10 \text{ MeV}$ )	$\Theta_{rec}$ ( $E^*=20 \text{ MeV}$ )
$^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}$	$90^\circ$	$30.8^\circ$	$26.4^\circ$	$20.2^\circ$
$^{232}\text{Th}(^3\text{He},d)^{233}\text{Pa}$	$90^\circ$	$38.7^\circ$	$33.0^\circ$	$24.0^\circ$
$^{232}\text{Th}(^3\text{He},t)^{232}\text{Pa}$	$90^\circ$	$44.2^\circ$	$38.3^\circ$	$28.6^\circ$
$^{232}\text{Th}(^3\text{He},\alpha)^{231}\text{Th}$	$90^\circ$	$54.0^\circ$	$50.4^\circ$	$45.4^\circ$
$^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}$	$130^\circ$	$18.2^\circ$	$16.0^\circ$	$12.8^\circ$
$^{232}\text{Th}(^3\text{He},d)^{233}\text{Pa}$	$130^\circ$	$21.9^\circ$	$19.2^\circ$	$14.9^\circ$
$^{232}\text{Th}(^3\text{He},t)^{232}\text{Pa}$	$130^\circ$	$24.5^\circ$	$21.7^\circ$	$17.0^\circ$
$^{232}\text{Th}(^3\text{He},\alpha)^{231}\text{Th}$	$130^\circ$	$29.1^\circ$	$27.4^\circ$	$25.1^\circ$

TAB. 3.6: Variation de l'angle moyen de recul du noyau fissionnant en fonction de son énergie d'excitation

En raison de l'encombrement mécanique, 4 plans de cellules sont placés à l'avant dans le plan de réaction. Leur position par rapport au faisceau sont à  $\Theta_{cel}=27^\circ, 56^\circ, 85^\circ$  et  $114^\circ$ . Hors plan, l'ouverture angulaire est de  $\pm 51^\circ$ . La première position ( $\Theta_{cel}=27^\circ$ ) est imposée par la proximité du faisceau, la dernière par l'angle limite de détection des fragments après traversée du dépôt de thorium (zone d'ombre). Le cinquième plan est placé à  $180^\circ$  du premier, il complète la distribution angulaire aux angles arrières. Cet arrangement nous a permis de détecter les deux fragments en coïncidence afin d'en déterminer les masses.

L'efficacité du montage a été déterminée à partir d'un code de simulation de type Monte-Carlo. Elle atteint 48.4%, en bon accord avec une mesure de contrôle effectuée

avec une source calibrée de  $^{252}\text{Cf}$ .

Le dispositif expérimental ainsi mis au point afin de répondre au mieux aux différents objectifs de l'étude est présenté schématiquement sur la figure (3.16). La photo (3.17) le montre installé sur la ligne d'expérience à Orsay.

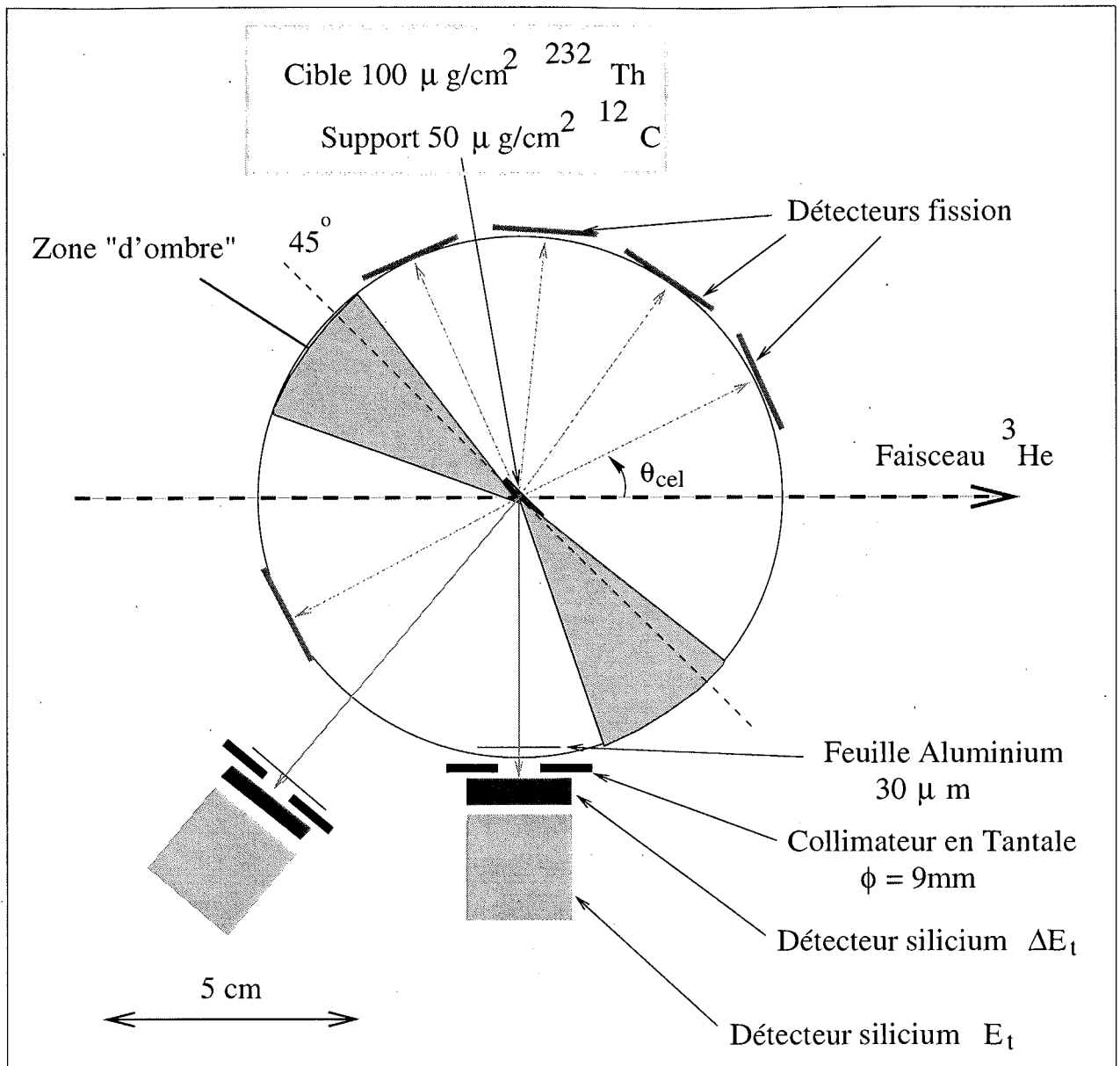


FIG. 3.16: Schéma du dispositif expérimental

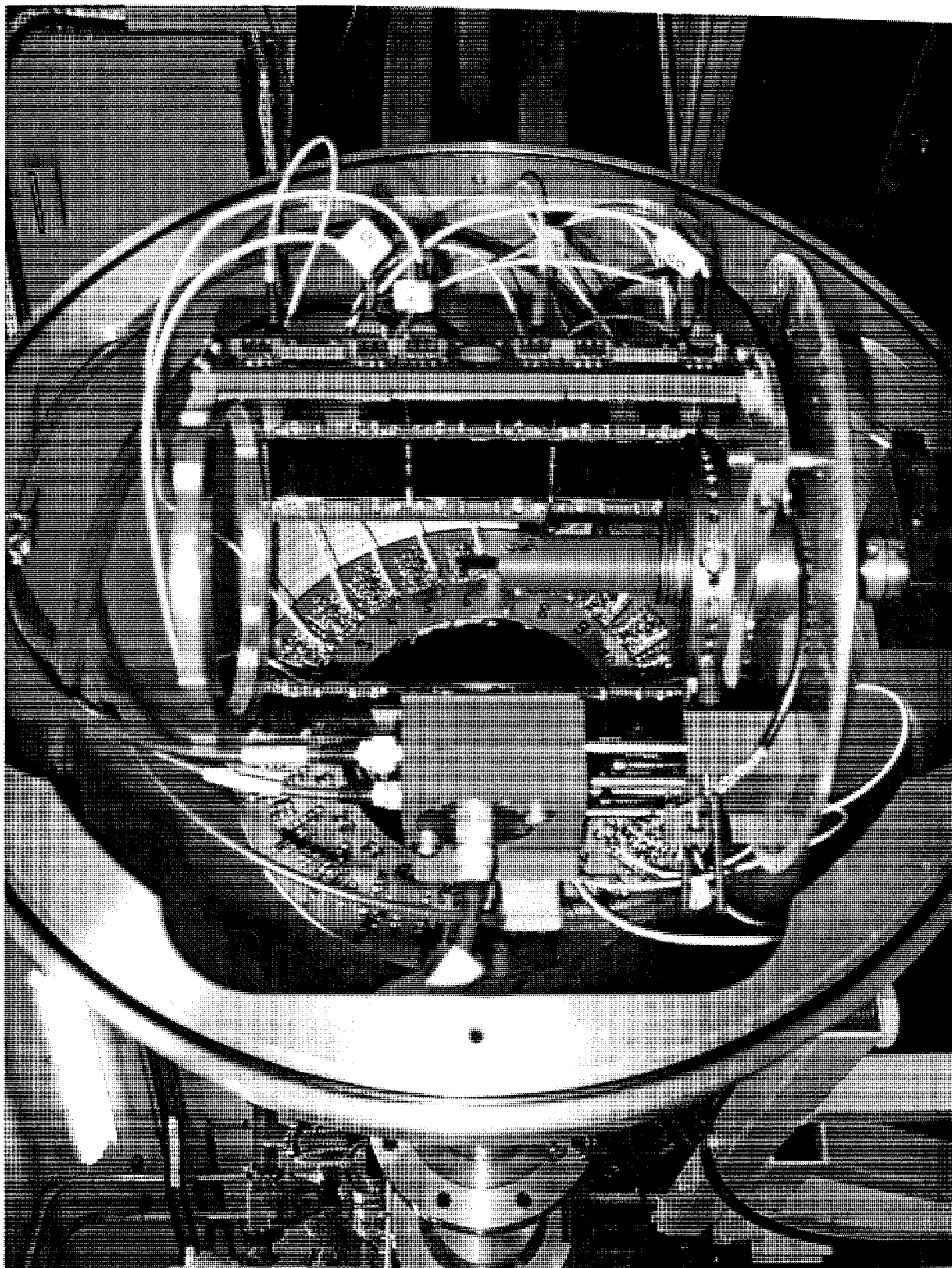


FIG. 3.17: Photo du dispositif expérimental installé sur la ligne d'expérience du Tandem d'Orsay

## 3.6 Electronique et acquisition

Notre dispositif expérimental délivre les informations suivantes :

Deux impulsions ( $\Delta E_i, E_r$ ) pour chaque télescope et zéro, une ou deux impulsions provenant des cellules.

Dans son principe, l'expérience consiste à mesurer deux types d'évènements :

- Les évènements simples à partir de la mesure en coïncidence des informations ( $\Delta E_i, E_r$ ) délivrées par chaque télescope. Ces évènements simples permettent de signer la voie de réaction. Ils correspondent à quatre lignes de mesures.
- Les évènements où l'un des télescopes est en coïncidence avec au moins une des 15 cellules du détecteur de fragments de fission. Ils correspondent à 15 lignes de mesures. Le nombre relativement élevé de lignes nous a conduit à utiliser le système d'acquisition du projet SAPHIR développé pour les cellules photovoltaïques. Ce système comprend deux cartes au format VXI. Elles possèdent chacune 16 voies.

La première carte est dédiée aux 15 voies cellules. Ces voies traitent les signaux provenant des préamplificateurs des cellules placées dans l'enceinte de détection.

Chaque voie délivre une information énergie (amplification et codage sur 8192 canaux) et une information temps (amplification, discrimination, analyse du temps d'arrivée codé sur 8 K).

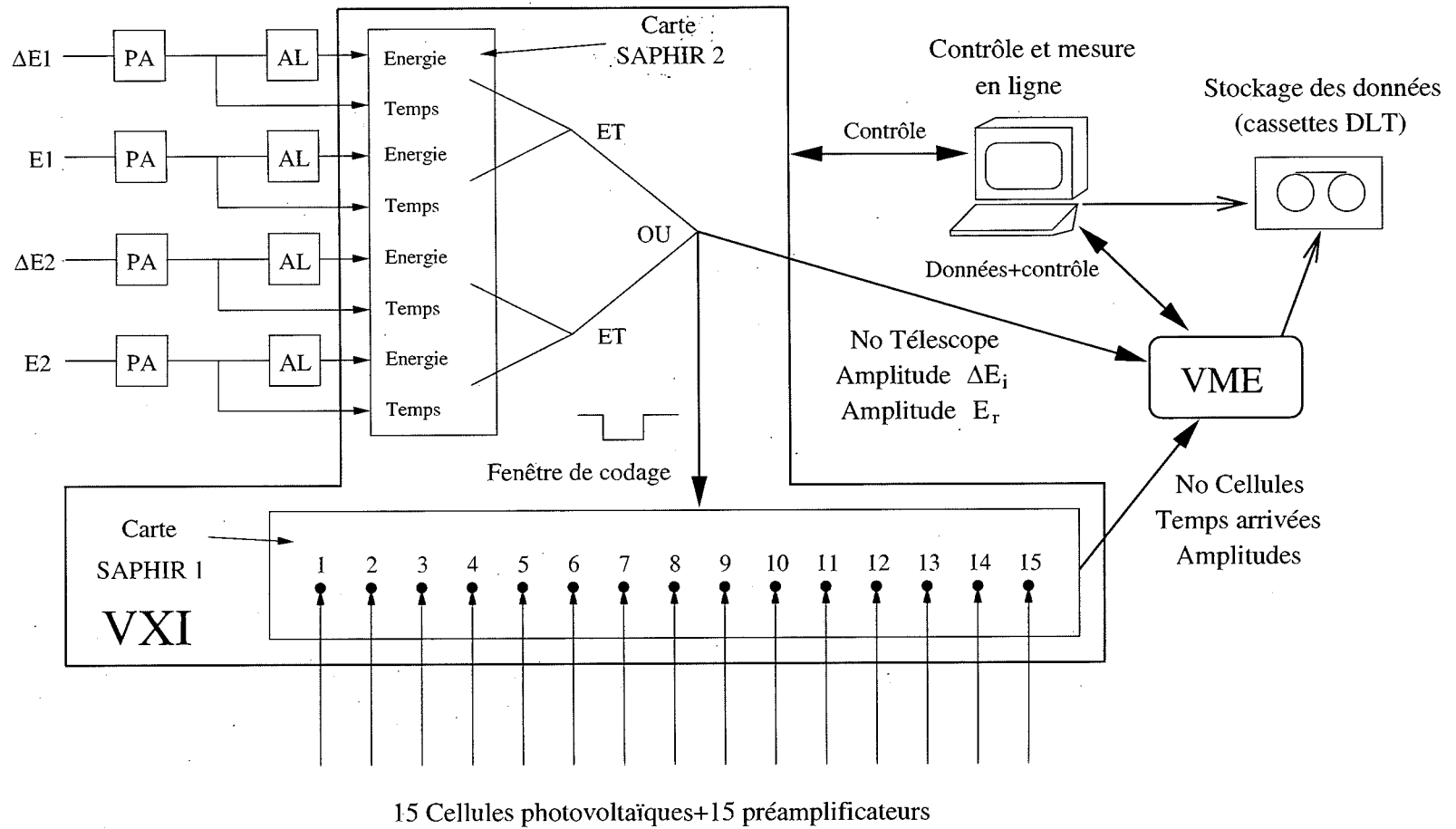
La carte est équipée d'un OU logique et d'un signal somme dont l'amplitude est proportionnelle au nombre de voies (cellules) touchées.

La seconde carte gère les quatre impulsions ( $\Delta E_1, \Delta E_2, E_1, E_2$ ) des deux télescopes. Leurs amplifications sur les voies temps et énergie sont réalisées à l'aide d'une électronique NIM externe. La présence en coïncidence des informations  $\Delta E_i$  et  $E_i$  sur l'un des télescopes fournit le signal de déclenchement de l'acquisition. Le codage et la lecture des paramètres  $\Delta E_i$  et  $E_r$  du télescope et la prise en compte éventuelle des évènements fission correspondant (numéro de cellule, amplitude et temps d'arrivée du signal dans une fenêtre d'analyse de 390 ns déclenchée par le télescope) sont alors effectués.

Cette logique de fonctionnement permet d'enregistrer tous les évènements nécessaires à la mesure (évènements simples et en coïncidence avec la fission).

Un contrôle continu du bon fonctionnement de la mesure et de l'acquisition est effectué en ligne dans un environnement multi-fenêtres. La figure (3.18) résume schématiquement le dispositif électronique.

FIG. 3.18: Principe schématique du dispositif électronique



PA : Préamplificateur

AL : Amplificateur linéaire





# Chapitre 4

## Analyse des données

### Sommaire

---

4.1	Introduction . . . . .	83
4.2	Etalonnage en énergie d'excitation . . . . .	86
4.3	Détermination des événements simples . . . . .	91
4.3.1	Détermination du nombre d'événements simples dans chaque voie	91
4.4	Détermination du nombre de fissions par cellule . . . . .	97
4.5	Calcul de l'efficacité de SAPHIR . . . . .	104
4.5.1	Introduction . . . . .	104
4.5.2	Validation de la partie géométrique du programme de simulation	105
4.5.3	Effet de la distribution angulaire . . . . .	105
4.6	Les probabilités de fission . . . . .	111
4.6.1	Probabilité de fission des Protactinium 232 et 233 . . . . .	114
4.7	Section efficace de fission . . . . .	118
4.8	Distribution en masse . . . . .	126
4.8.1	Détection en coïncidence des fragments . . . . .	126
4.8.2	Constitution des fichiers de traitement . . . . .	127
4.8.3	Détermination des masses des fragments . . . . .	127
4.8.4	Présentation des résultats . . . . .	133

---

### 4.1 Introduction

Le but de l'analyse est de déterminer la probabilité de fission des noyaux formés dans les réactions de transfert  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},\text{X})$  où  $\text{X}=(\text{p},\text{d},\text{t},\alpha)$  identifie la voie de réaction.

En termes de section efficace, cette probabilité de fission s'exprime par le rapport suivant :

$$Pf(E^*) = \frac{\sigma(^3He, Xf)(E^*)}{\sigma(^3He, X)(E^*)}, \quad (4.1)$$

où  $E^*$  représente l'énergie d'excitation du noyau de recul,  $\sigma(^3He, X)(E^*)$  la section efficace de transfert ( $^3He, X$ ) et  $\sigma(^3He, Xf)(E^*)$  la section efficace de la même réaction accompagnée de la fission du noyau de recul.

A partir des données enregistrées, ces sections efficaces interviennent de la manière suivante :

$$\sigma(^3He, X)(E^*)\phi N_c = \frac{N_{sim}(E^*)}{\Delta\omega_T}, \quad (4.2)$$

où  $\Delta\omega_T$  est l'angle solide sous-tendu par le télescope ayant détecté l'éjectile.  $N_c$  et  $\phi$  sont le nombre de noyau cible et le flux d' $^3He$ .  $N_{sim}(E^*)$  est le taux de comptage en direct des éjectiles (p,d,t, $\alpha$ ) arrivant sur le télescope pour une énergie d'excitation donnée. Cette écriture sera ensuite réutilisé dans la suite de ce travail.

Considérons maintenant les éjectiles en coïncidence avec la fission du noyau de recul dont la direction définit le référentiel du centre de masse ( $cm$ ). Dans ce référentiel, la distribution angulaire des fragments peut être définie par :

$$\frac{P_{ff}(\theta_{cm})}{2} = \frac{(1 + \sum_n g_{2n} \cdot P_{2n}(\cos(\theta_{cm})))}{4\pi}. \quad (4.3)$$

où  $P_{ff}$  est la probabilité d'avoir un fragment de fission émis à l'angle  $\theta_{cm}$ .

Le développement en polynôme de degré pair et le facteur 2 traduit l'émission de deux fragments par fission. Par rapport à la direction du noyau de recul, c'est-à-dire pour une énergie d'excitation donnée, le nombre de fissions à une énergie d'excitation ( $E^*$ ) et un angle ( $\theta_{cm}$ ) s'écrit :

$$\frac{d\sigma}{d\omega}(\theta_{cm}, E^*)\phi N_c = \frac{d\sigma}{d\omega}(^3He, Xf)(E^*)\phi N_c \frac{(1 + \sum_n g_{2n} \cdot P_{2n}(\cos(\theta_{cm})))}{4\pi}. \quad (4.4)$$

En intégrant cette expression sur tout l'espace on obtient le nombre total de fissions pour l'énergie d'excitation considérée ( $N_{ftot}(E^*)$ ) :

$$\sigma(^3He, Xf)(E^*)\phi N_c = \frac{1}{2} N_{ftot}(E^*). \quad (4.5)$$

le facteur  $1/2$  tenant compte de l'émission de deux fragments lors d'une fission.

Pour un détecteur fission, d'angle solide  $\Delta\omega_f$ , placé à l'angle  $\theta_f$ , la section efficace de la réaction  $\sigma(^3He, Xf)(E^*)$  peut s'écrire en fonction du taux de comptage comme :

$$\sigma(^3He, Xf)(E^*)\phi N_c = \frac{4\pi}{\int_{\Delta\omega_f} (1 + \sum_n g_{2n} \cdot P_{2n}(\cos(\theta_f))) d\omega} \frac{\frac{1}{2} N f_{tot}(E^*) \Delta_{lab}}{\Delta\omega_f \Delta\omega_T \Delta_{cm}}, \quad (4.6)$$

le rapport  $\Delta_{lab}/\Delta_{cm}$  décrivant le passage du référentiel du centre de masse à celui du laboratoire. L'intégrale de l'équation (4.6) peut aussi s'écrire comme :

$$\int_{\Delta\omega_f} (1 + \sum_n g_{2n} \cdot P_{2n}(\cos(\theta_f))) d\omega = f_{D.A}(E^*) \quad (4.7)$$

L'anisotropie de la réaction donc la fonction  $f_{D.A}$ , dépend de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant.

La section efficace  $\sigma(^3He, Xf)(E^*)$  peut donc s'exprimer en fonction du taux de comptage total  $N f_{tot}(E^*)$  et des angles solides dans le centre de masse sommés sur tous les détecteurs  $\Delta\omega_{f-tot}$  :

$$\sigma(^3He, Xf)(E^*)\phi N_c = \frac{4\pi}{f_{D.A}(E^*)} \frac{\frac{1}{2} N f_{tot}(E^*) \Delta_{lab}}{\Delta\omega_{f-tot} \Delta\omega_T \Delta_{cm}}. \quad (4.8)$$

En remplaçant les sections efficaces de fission définies par les équations (4.2) et (4.8) dans l'équation (4.1), on obtient la probabilité de fission calculée pour un seul détecteur fission :

$$Pf(E^*) = \frac{2\pi}{f_{D.A}(E^*) \cdot \Delta\omega_{f-tot} \cdot \frac{\Delta_{cm}}{\Delta_{lab}}} \frac{N f_{tot}(E^*)}{N_{sim}(E^*)}. \quad (4.9)$$

En regroupant ensuite les termes de cinématique et de distribution angulaire (équation 4.11), nous pouvons écrire la probabilité de fission comme (4.10) :

$$Pf(E^*) = \frac{2\pi}{\Delta\omega_{f-tot}} \cdot fac(E^*) \cdot \frac{N f_{tot}(E^*)}{N_{sim}(E^*)}, \quad (4.10)$$

$$\text{avec } fac(E^*) = \frac{\Delta_{lab}}{\Delta_{cm}} \cdot \frac{1}{f_{D.A}(E^*)}. \quad (4.11)$$

$$eff(E^*) = \frac{\Delta\omega_{f-tot}}{2\pi} \cdot \frac{1}{fac(E^*)} \quad (4.12)$$

L'équation (4.12) correspond à la probabilité que SAPHIR détecte un événement fission en fonction de l'énergie d'excitation ( $eff(E^*)$ ). Ce qui nous permet d'explicitier l'équation (4.13) utilisée pour calculer les probabilités de fission.

$$Pf(E^*) = \frac{1}{eff(E^*)} \cdot \frac{N_{fis}(E^*)}{N_{sim}(E^*)} \quad (4.13)$$

La relation (4.13) comprend trois grandeurs. Le taux de comptage du télescope seul (événement dit simple ( $N_{sim}(E^*)$ )), le taux de comptage du télescope en coïncidence avec la fission (événement dit en coïncidence ( $N_{fis}(E^*)$ )) et un facteur d'efficacité regroupant les effets cinématiques, de distribution angulaire et géométriques du dispositif expérimental ( $eff(E^*)$ ). Avant de présenter l'analyse de ces différentes grandeurs nous allons effectuer l'étalonnage en énergie d'excitation des différentes voies de réaction que nous avons pu étudier.

## 4.2 Etalonnage en énergie d'excitation

Comme nous l'avons déjà présenté, la cinématique permet de déterminer l'énergie d'excitation du noyau de recul à partir de l'énergie cinétique de l'éjectile (p,d,t et  $\alpha$ ).

La calibration en énergie des deux télescopes peut être déterminée à partir d'une source contenant trois noyaux radioactifs émetteurs  $\alpha$  ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ). Néanmoins, compte tenu de l'épaisseur du détecteur  $\Delta E_t$ , cette méthode permet une calibration indépendante des deux voies uniquement à basse énergie ( $E_\alpha < 6$  MeV). Nous avons donc préféré utiliser une autre méthode basée sur l'utilisation de réactions de transfert de référence. Il s'agit des réactions ( $^{208}\text{Pb}(^3\text{He},d)^{209}\text{Bi}^*$ ) et ( $^{208}\text{Pb}(^3\text{He},\alpha)^{207}\text{Pb}^*$ ). Ces deux réactions nous permettent d'alimenter les états fondamentaux et les 5 à 6 premiers niveaux excités des noyaux  $^{209}\text{Bi}$  et  $^{207}\text{Pb}$ . Les différents niveaux d'énergie utilisés pour la calibration ont été reportés dans le tableau (4.1). Les chaleurs de réaction (Q) indiquées sont calculées à partir des tables de masse de Audi et Wapstra [AUD85].

Noyau	Energie d'excitation (MeV)							Q (MeV)
	0.0	0.896	1.608	2.826	3.119	3.638	4.421	
$^{209}\text{Bi}$	0.0	0.896	1.608	2.826	3.119	3.638	4.421	-1.696
$^{207}\text{Pb}$	0.0	0.570	0.898	1.633	2.340	3.475	—	+13.21

TAB. 4.1: Niveaux d'énergie des noyaux utilisés pour la calibration et chaleur des réactions de transfert correspondantes

Une mesure complémentaire a donc été effectuée avec un faisceau d'Helium-3 bombardant une cible de  $^{208}\text{Pb}$  avec une énergie incidente de 24 MeV. Pour limiter les effets

cinématiques, chaque télescope est équipé d'un collimateur de 2 mm de diamètre. Le tableau (4.2) rassemble les angles solides et les efficacités des détecteurs télescopes utilisés pour cette calibration.

Télescope	$\Delta\omega$ (st)	Efficacité (%)
90°	0.00412	0.0328
130°	0.00249	0.0198

TAB. 4.2: Angles solides sous-tendus par les télescopes lors de la calibration et efficacités

La figure (4.1) présente la matrice  $\Delta E_i \times E_r$  du télescope placé à 90° du faisceau. Toutes les voies de réaction ( ${}^3\text{He}, \text{p}, \text{d}, \text{t}, \alpha$ ) sont clairement identifiées. On remarquera la structure discrète associée aux voies deuton et alpha. Ce sont les premiers états excités des noyaux de recul  ${}^{209}\text{Bi}$  et  ${}^{207}\text{Pb}$ . La cinématique va nous permettre de déterminer les énergies cinétiques des deutons et des alphas associées aux différents états d'excitation de ces noyaux. Les pertes d'énergie de ces particules dans les montages télescopes ont été calculées à partir des pertes d'énergie tabulées par Ziegler ([ZIG77a] et [ZIG77b]) pour les différents milieux traversés par ces particules.

Pour les deux télescopes, les zones en amplitude ( $\Delta E_i \times E_r$ ) des niveaux de calibration ( $i$ ) sont isolées par contour graphique. Les projections  $\Delta E_i$  et  $E_r$  (équivalent canaux) sont déterminées avec une incertitude prise égale à  $3\sigma$ . Leurs relations avec l'énergie déposée dans le télescope à 90° sont présentées sur la figure (4.2). Dans la limite des incertitudes provenant du calcul des pertes d'énergies et de la détermination des amplitudes moyennes, la réponse de chaque élément du télescope est bien reproduite par une fonction linéaire de l'amplitude. Cet étalonnage nous a permis de reconstruire le spectre des états excités des noyaux  ${}^{209}\text{Bi}$  et  ${}^{207}\text{Pb}$ . Les deux figures (4.3) présentent la distribution en énergie d'excitation de ces niveaux observés à partir du télescope placé à 90° par rapport au faisceau.

De cet étalonnage découle directement la calibration de la fonction d'identification des particules légères. Comme nous l'avons déjà signalé, nous avons préféré utiliser cette fonction pour identifier la voie de réaction. Un exemple de cette fonction est présenté sous forme d'histogramme sur la figure (4.4). Les zones hachurées correspondent aux domaines de sélection des particules légères détectées.

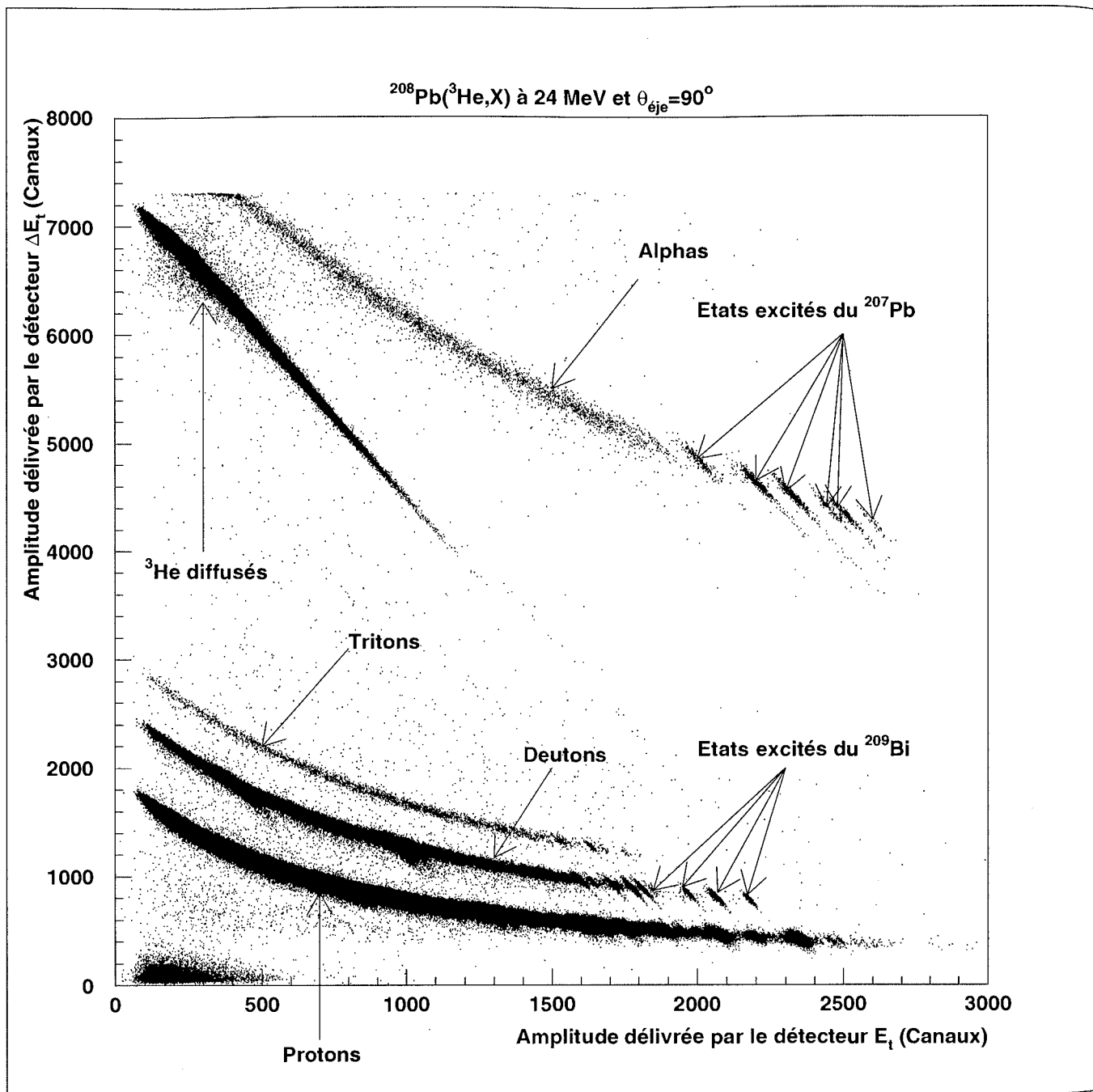


FIG. 4.1: Graphique à deux dimensions correspondant aux amplitudes délivrées par les détecteurs  $E_t$  et  $\Delta E_t$  lors de l'expérience de calibration du télescope à  $90^\circ$

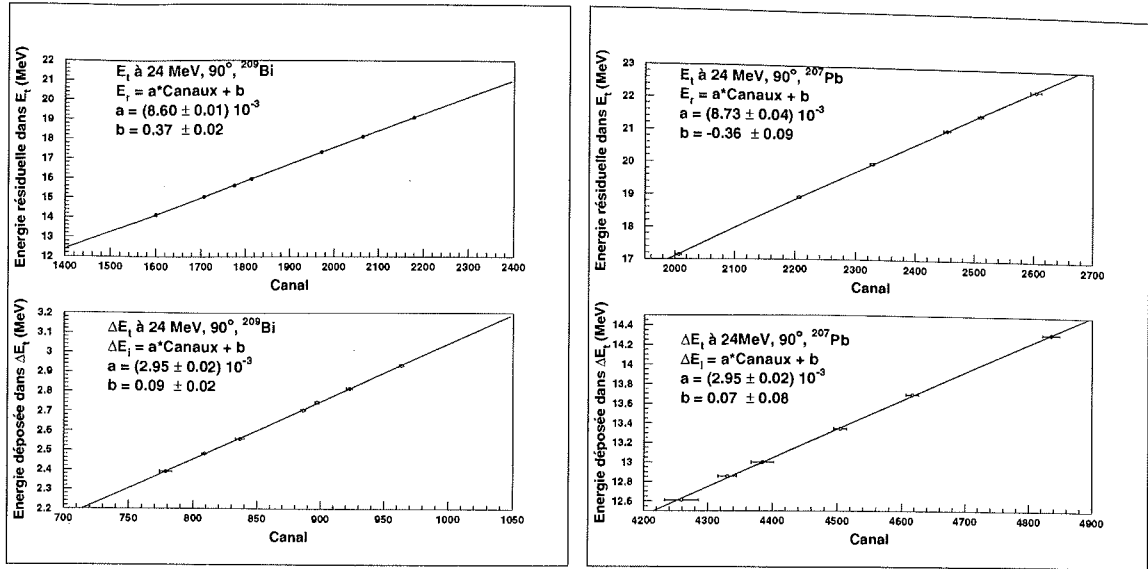


FIG. 4.2: Correspondance entre le calcul de perte d'énergie et de l'amplitude délivrée par les détecteurs jonction au silicium pour les groupes d'éjectiles associés à chaque niveau d'énergie.

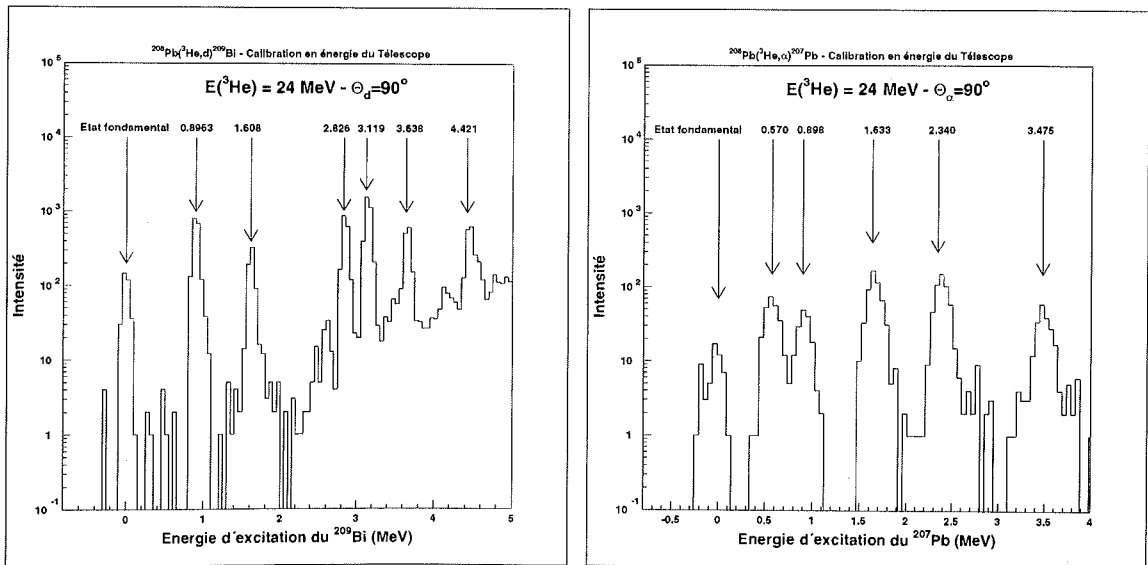


FIG. 4.3: Reconstruction des énergies d'excitation des  $^{209}\text{Bi}$  et  $^{207}\text{Pb}$  avec les calibrations déterminées précédemment.

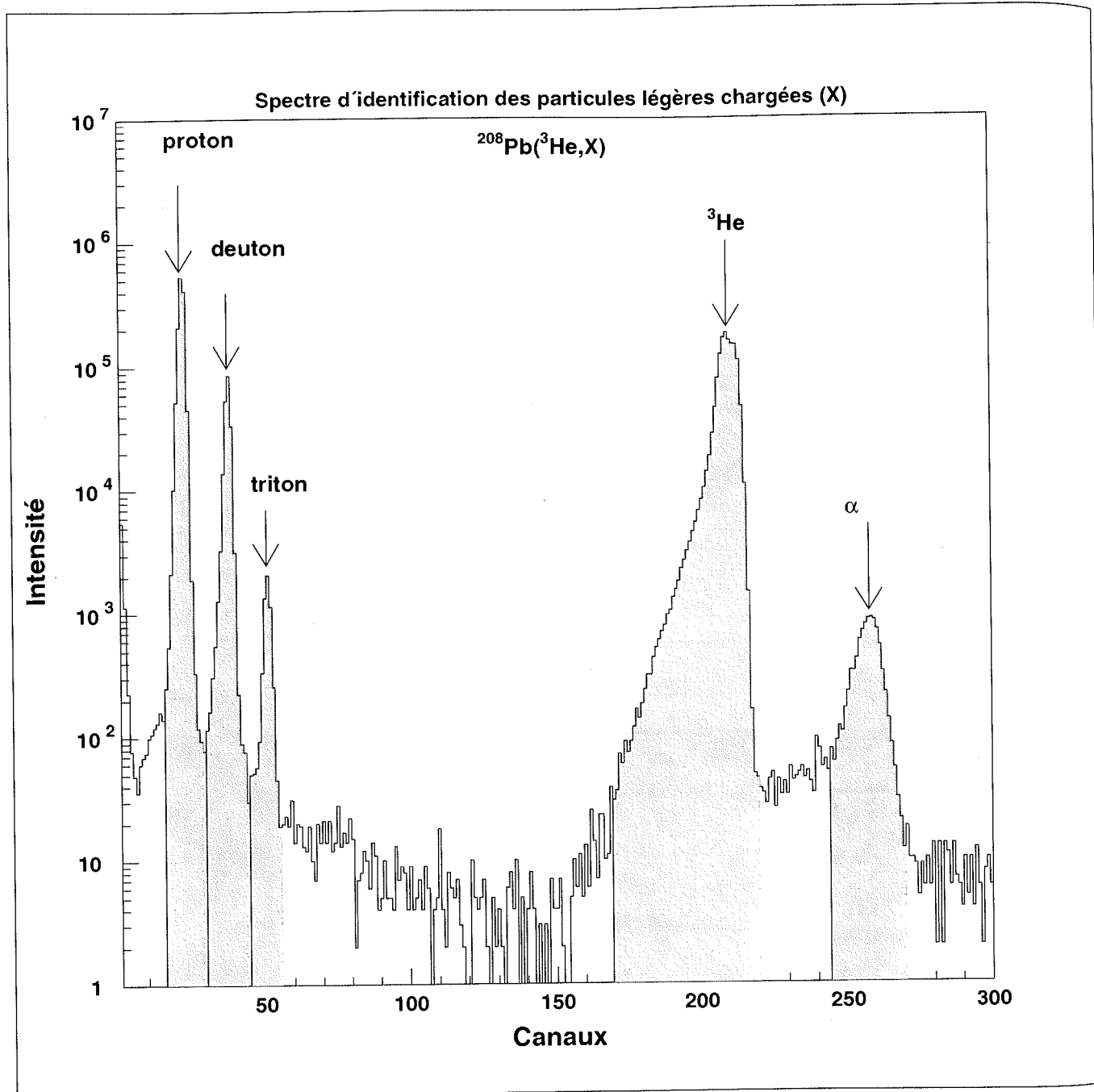


FIG. 4.4: Identification des particules légères chargées résultant de la réaction ( ${}^3\text{He},\text{X}$ ), détection à  $90^\circ$



## 4.3 Détermination des événements simples

### Constitution des fichiers de traitement

Pour alléger les fichiers et réduire le temps de traitement, la contribution des Helium-3 diffusés est éliminée puisqu'elle n'est pas exploitée et qu'elle représente plus de 90% des événements collectés. La stratégie adoptée a été de constituer pour chaque télescope un fichier regroupant les amplitudes  $\Delta E_i$  et  $E_r$  pour identifier la voie de réaction et calculer l'énergie d'excitation du noyau de recul. La taille totale des fichiers ainsi constitués représente environ 1.7 Giga-Octets.

#### 4.3.1 Détermination du nombre d'événements simples dans chaque voie

Pour chaque télescope, la voie de réaction est identifiée par la nature de l'éjectile. L'énergie d'excitation du noyau de recul est déterminée par la cinématique. Un histogramme représentant le nombre d'événements en fonction de l'énergie d'excitation est constitué. La figure (4.5) regroupe les différents histogrammes ainsi obtenus.

Tous ces histogrammes présentent une allure monotone sur laquelle apparaissent des structures larges. Pour les deux télescopes, cet effet de structure apparaît nettement pour les voies de réaction proton et deuton. Ces structures proviennent essentiellement du support de carbone sur lequel repose la cible de thorium, et sont dues aux réactions  $^{12}\text{C}(^3\text{He},\text{p})^{14}\text{N}^*$ ,  $^{13}\text{C}(^3\text{He},\text{p})^{15}\text{N}^*$  et  $^{16}\text{O}(^3\text{He},\text{p})^{18}\text{F}^*$ . La contribution de cette dernière provient vraisemblablement d'une oxydation en surface de la cible de thorium. Nous avons déjà mentionné l'existence de ces réactions parasites pour justifier notre montage géométrique. Leur contribution a été étudiée à l'aide d'une mesure complémentaire en bombardant un support de carbone de  $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Les histogrammes correspondants sont également présentés sur la figure (4.5).

On notera que l'on retrouve, dans les voies proton et deuton, les même structures. Il s'agit là des différents états (fondamental et états excités bien connus) des noyaux de recul  $^{14}\text{N}$ ,  $^{15}\text{N}$  et  $^{18}\text{F}$  dont la majeure partie a déjà été observée avec les mêmes réactions de transfert [FIR96]. Les effets cinématiques et la résolution de notre dispositif ne permettent pas de séparer ces états qui se manifestent ici sous forme de structures non résolues. Pour illustrer notre propos, le spectre des protons observé à  $130^\circ$  a été reproduit à partir de données de la littérature concernant la réaction  $^{12}\text{C}(^3\text{He},\text{p})^{14}\text{N}^*$ . Une quinzaine de niveaux a été prise en compte. Les probabilités d'alimentation des niveaux proviennent de celles mesurées par Mangelson *et al.* [MAN68] à une énergie de faisceau de 20 MeV. Comme le montre la figure (4.7), notre calcul reproduit correctement le spectre des protons de la réaction dans une large plage d'énergie d'excitation.

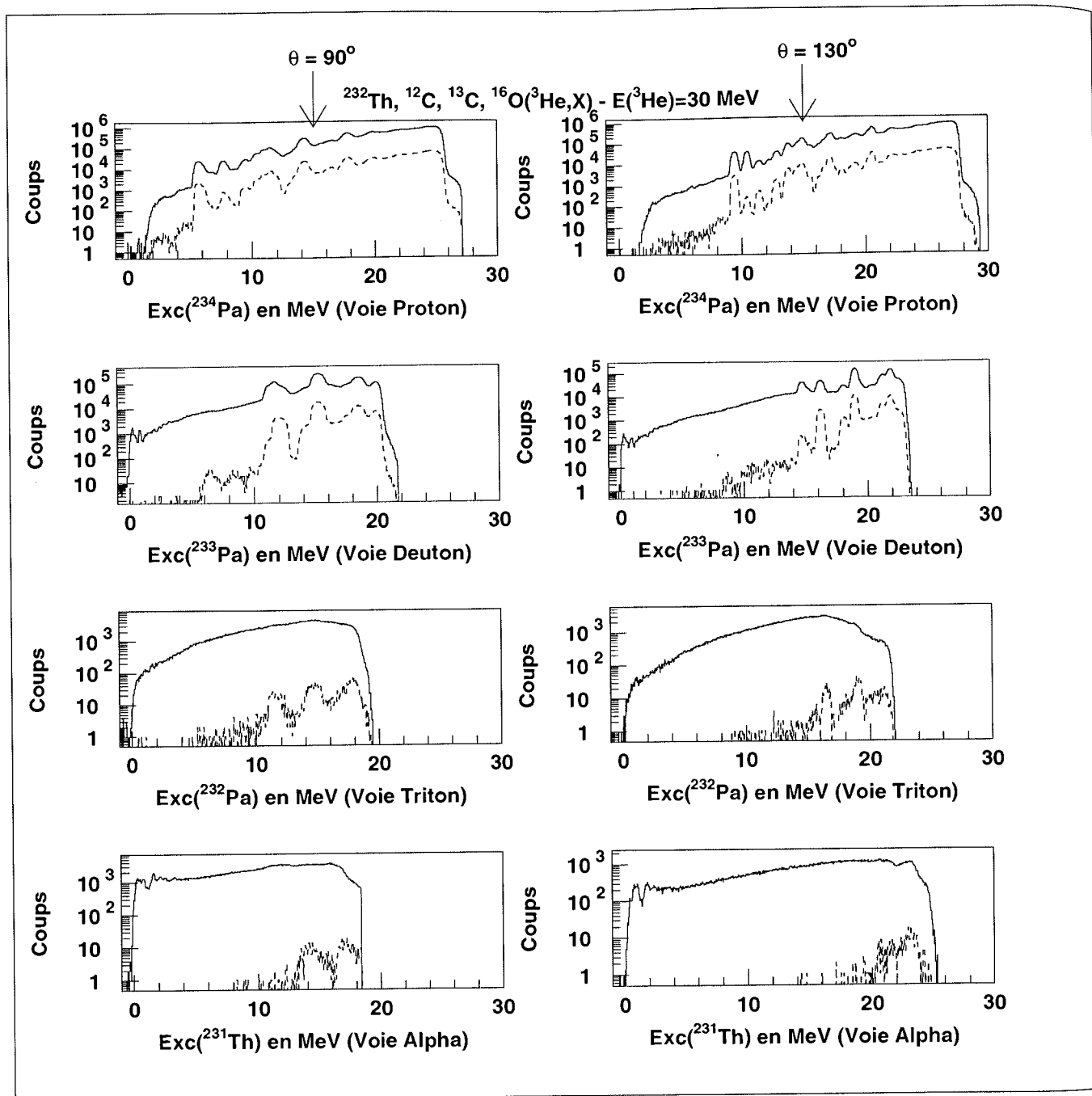


FIG. 4.5: Spectre brut des énergies d'excitation dans les différentes voies de réaction (en trait plein). La contribution du support en carbone (bruit de fond) pour les différentes voies de réactions est tracée en pointillé pour chaque voie. Le bruit de fond est présenté dans l'échelle de l'énergie d'excitation des noyaux correspondants formés lors des réactions de transfert sur la cible de  $^{232}\text{Th}$

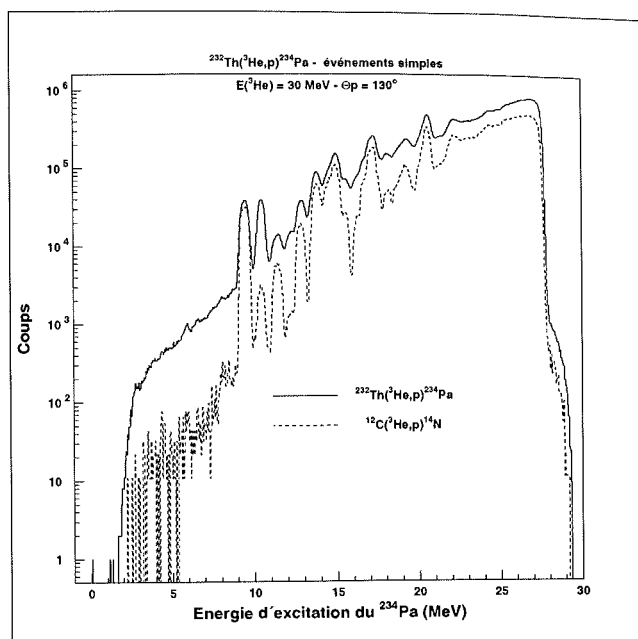


FIG. 4.6: Comparaison du spectre brut en énergie d'excitation du  $^{234}\text{Pa}$  avec la mesure équivalente en bruit de fond après normalisation de celle-ci sur la structure à 9 MeV correspondant à une réaction de transfert sur les états fondamentaux du  $^{18}\text{F}$  et de  $^{14}\text{N}$

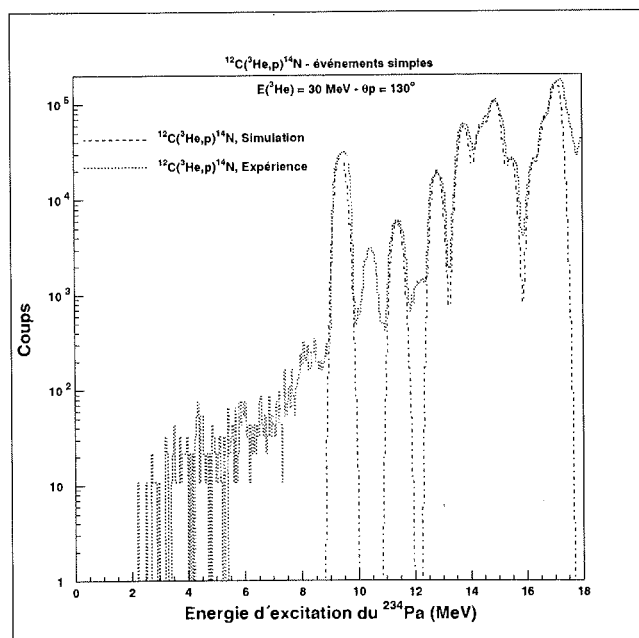


FIG. 4.7: Comparaison, dans l'échelle du Protactinium-234, du spectre proton provenant des réactions  $(^3\text{He},p)$  du support en carbone comparé à la simulation de la réaction  $^{12}\text{C}(^3\text{He},p)^{14}\text{N}$ .

Parmi ces réactions parasites, la voie  $^{12}\text{C}(^3\text{He},\text{p})^{14}\text{N}^*$  est la plus alimentée et la plus pénalisante puisqu'elle accompagne la voie conduisant au  $^{234}\text{Pa}$ . Pour le télescope à  $90^\circ$ , on la retrouve pratiquement sur toute la plage en énergie d'excitation avec la première structure aux environs de 6 MeV (état fondamental de l'Azote-14 et du Fluor-18). Cette même structure se retrouve à 9 MeV pour le montage télescope à  $130^\circ$ . Nous savons déjà qu'il s'agit là d'un effet cinématique que nous retrouvons dans l'analyse des deux télescopes. Comme le montre la figure (4.5), la contribution des réactions parasites dans les voies deuton, triton et alpha est plus concentrée vers les grandes énergies d'excitation et diminue rapidement avec la masse et la charge de l'éjectile.

Toutes ces voies parasites doivent être évaluées puis soustraites des spectres simples associés aux voies  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},(\text{p}, \text{d}, \text{t}, \text{et } \alpha))$ . Deux méthodes ont été utilisées pour cette soustraction. Nous allons maintenant les exposer à partir de la voie proton à  $130^\circ$ .

- Soustraction directe du fond carbone.

Après normalisation sur la première structure à 9 MeV (figure(4.6)), les spectres simples correspondants au bruit de fond sont soustraits des spectres simples correspondant à l'expérience. Le résultat de cette soustraction est présenté sur la figure (4.8) pour le télescope à  $130^\circ$ .

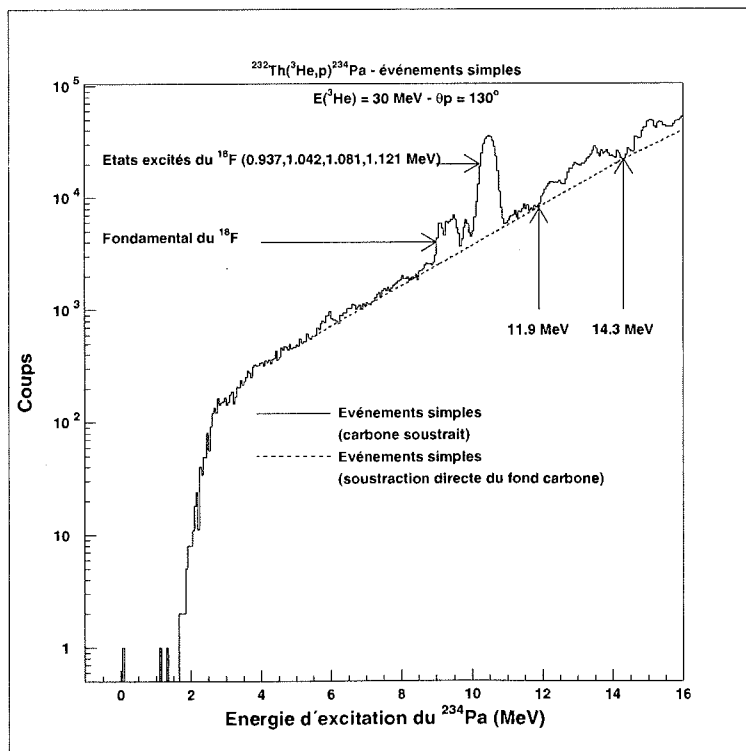


FIG. 4.8: Résultats de la soustraction du carbone sur le spectre du Thorium

On remarque qu'il reste encore un effet de structure dont les positions en énergie sont compatibles avec la réaction  $^{16}\text{O}(^3\text{He},\text{p})^{18}\text{F}^*$ . La contribution de cette voie parasite a été soustraite en localisant les minima de la sous-structure à 11.9 et 14.3 MeV. La base du bruit de fond est alors constituée de segments de droites dont le dernier point de repère se situe à 14.3 MeV.

- Soustraction du bruit de fond carbone par la méthode des moindres carrés.

Cette méthode repose sur l'hypothèse raisonnable que toutes les structures proviennent de réactions de transfert sur des éléments légers (carbone et oxygène). Leur contribution est évaluée de la manière suivante: la partie continue des spectres des voies  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},\text{p})$  et  $^{12}\text{C}(^3\text{He},\text{p})$  est estimée en localisant les minima dans les structures. Ces spectres de fond ( $F$ ) (thorium et carbone) sont ajustés par la fonction suivante (équation 4.14):

$$F(\text{Exc} = x) = \frac{10^{a+bx+cx^2}}{\left(1 + \exp\left(\frac{\alpha(\beta-x)}{\gamma}\right)\right)} \quad (4.14)$$

Dans cette équation, le dénominateur est introduit pour reproduire l'augmentation du taux de comptage à faible énergie d'excitation à l'aide des paramètres ajustables ( $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ ). Le numérateur, avec les coefficients ajustables ( $a$ ,  $b$  et  $c$ ), représente l'augmentation monotone du spectre de fond.

Le spectre carbone est ajouté à ce fond thorium. Le résultat est ensuite comparé au spectre simple mesuré. Cette comparaison est effectuée par itérations successives en ajustant les paramètres ( $a$ ,  $b$  et  $c$ ) définissant le fond thorium. Cet ajustement est effectué par la méthode des moindres carrés (équation 4.15):

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{i=n} \left( \frac{N_i - (\text{fond}(i)(a, b, c) + f^C(i))}{\sqrt{N_i}} \right)^2. \quad (4.15)$$

La figure (4.9) compare les spectres simples corrigés obtenus à partir des deux méthodes que nous venons de décrire. Globalement, elles sont en accord, avec néanmoins des différences à faible énergie d'excitation entre 3 et 5 MeV, où la méthode des moindres carrés conduit à un spectre corrigé de 20 à 30% plus faible qu'avec la méthode directe. Le même phénomène se reproduit au-delà de 12 MeV. En revanche, l'accord est très bon dans la fenêtre d'énergie d'excitation comprise entre 5 et 12 MeV. Cette fenêtre, exprimée en énergie de neutron sur la cible équivalente de  $^{233}\text{Pa}$ , se situe entre 0 et 7 MeV (énergie de liaison du dernier neutron  $Bn=5.2$  MeV). Elle recoupe donc la zone d'énergie des neutrons allant du seuil de fission ( $E_n \sim 0.5$  à 1 MeV) à l'ouverture de la fission de seconde chance ( $E_n \sim 2 Bn$ ).

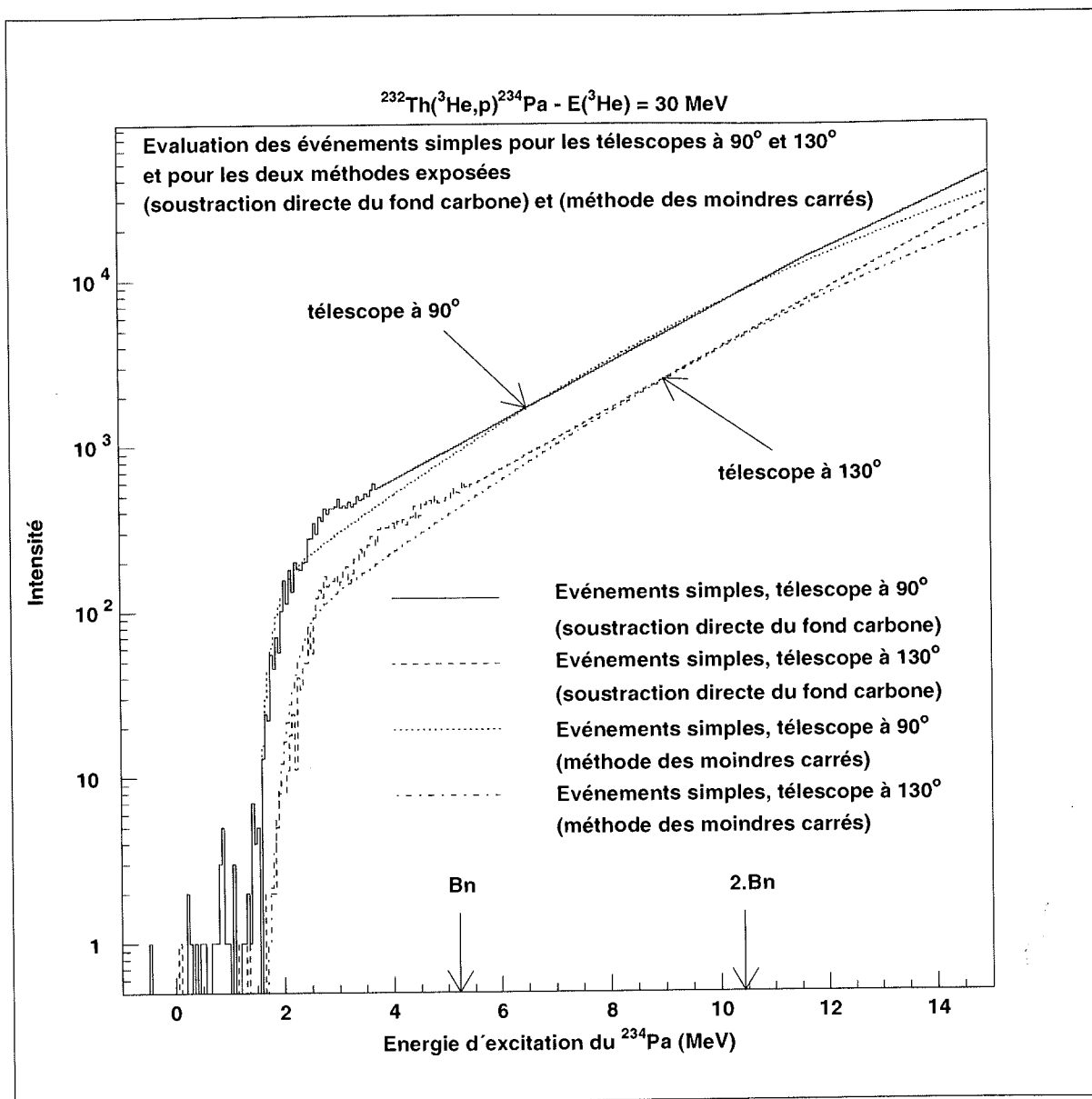


FIG. 4.9: Evaluation du nombre de d'événements simples dans la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}$  avec comparaison des deux télescopes.

## 4.4 Détermination du nombre de fissions par cellule

Les données brutes collectées lors de l'expérience sont triées pour isoler les événements présentant au moins une triple coïncidence E- $\Delta$ E-Cellule. Les fichiers résultants constituent la base de notre analyse.

Chaque événement contient :

- p1- les amplitudes délivrées par les détecteurs  $\Delta E_t$  et  $E_t$ .
- p2- Les numéros des cellules touchées.
- p3- Le nombre de cellules touchées.
- p4- Les amplitudes délivrées par les cellules.
- p5- Les temps d'arrivée des signaux dans la fenêtre de coïncidence.

Les informations des télescopes (p1) permettent de sélectionner les voies de réaction (p, d, t,  $\alpha$ ) et de calculer l'énergie d'excitation des noyaux fissionnants associés.

Les informations sur les cellules (p2 et p4) permettent de contrôler les amplitudes délivrées par les cellules. Un seuil en énergie équivalent à 10 MeV a été utilisé pour rejeter les fragments de fission fortement dégradés en énergie (diffusions multiples dans la cible et son support) et le bruit de fond induit par le faisceau, ceci étant particulièrement vrai pour les trois cellules les plus proches de l'axe du faisceau. Pour une intensité faisceau de 70 nAe, le taux de comptage de l'ensemble des cellules se situait aux environs de 30 000 coups par seconde dont 8 000 pour les trois cellules situées vers l'avant.

La figure (4.10) présente, pour l'ensemble des coïncidences télescopes-cellules, le nombre d'événements fission (p3) en fonction de la multiplicité des événements bruts. Elle regroupe les vraies coïncidences (1 ou 2 fragments détectés comme l'autorise le montage) et les événements fortuits. Les événements de multiplicité supérieure à deux représentent une faible fraction (quelques %) des événements enregistrés.

Soustraction des événements fortuits :

Cette soustraction a été effectuée cellule par cellule à partir de la distribution des temps d'arrivée des fragments de fission dans la fenêtre de coïncidence (largeur 390 ns) déclenchée par un des télescopes (p5). La figure (4.11) présente les distributions de ces temps d'arrivée pour trois cellules situées respectivement au-dessus, dans et au-dessous du plan de réaction. Il s'agit des distributions brutes avant alignement en temps des différentes voies fission. Dans chaque cas, on observe un pic de coïncidence de 49 nano-secondes sur un fond uniforme. On remarquera pour les cellules hors-plan que le pic de coïncidence présente un profil asymétrique inversé. Ces profils reflètent à la fois la distribution des points d'impact des fragments sur la cellule (effet d'angle solide) et le temps de collection du signal électrique associé. Nous avons déjà mentionné cette propriété intéressante puis-

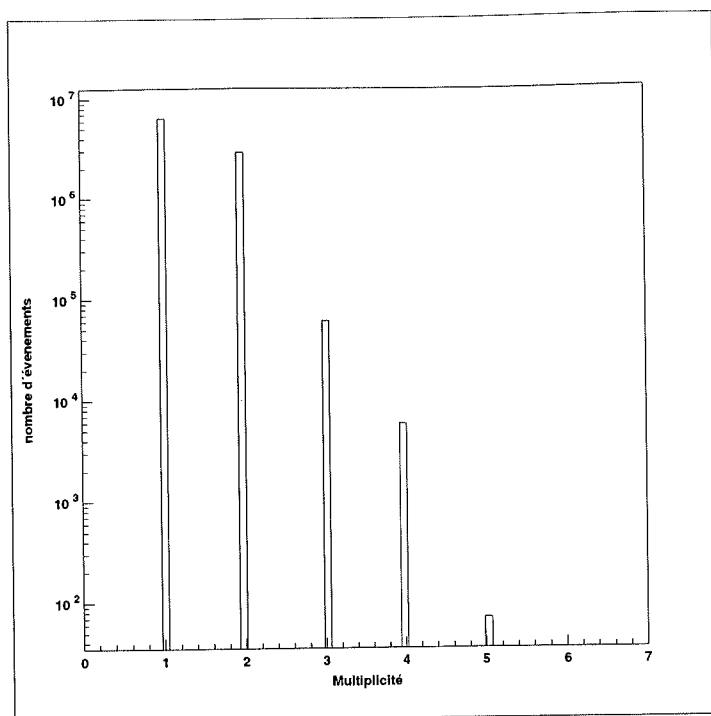


FIG. 4.10: *Multiplicité des événements fission*

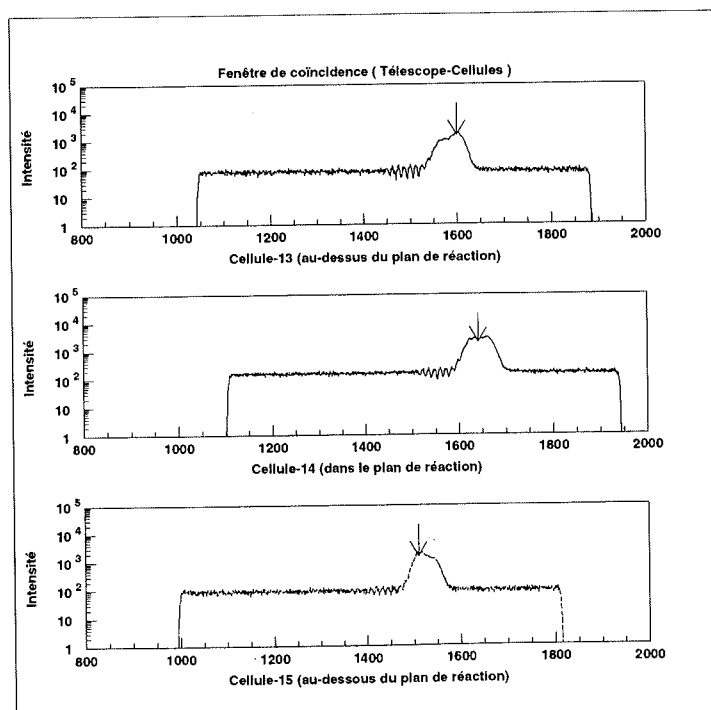


FIG. 4.11: *Temps d'arrivée du signal lors de trois coïncidences télescope-cellules pour des cellules situées au-dessus, dans et au-dessous du plan de réaction*



qu'elle permet une mesure en position des fragments [PET98]. Par manque de moyens, nous ne l'avons pas exploitée dans ces mesures.

La méthode de traitement de ces spectres en temps est illustrée à partir de la figure (4.12). Deux zones ont été définies. La première correspond aux coïncidences fortuites ( $Rw$ ), ces événements sont rejetés de l'analyse. La seconde correspond aux coïncidences vraies ( $Tw$ ) auxquelles se rajoutent une fraction ( $\sim 10\%$ ) de coïncidences fortuites. La soustraction de ces événements fortuits a été effectuée de la manière suivante. Nous avons tout d'abord étudié la structure de ces événements.

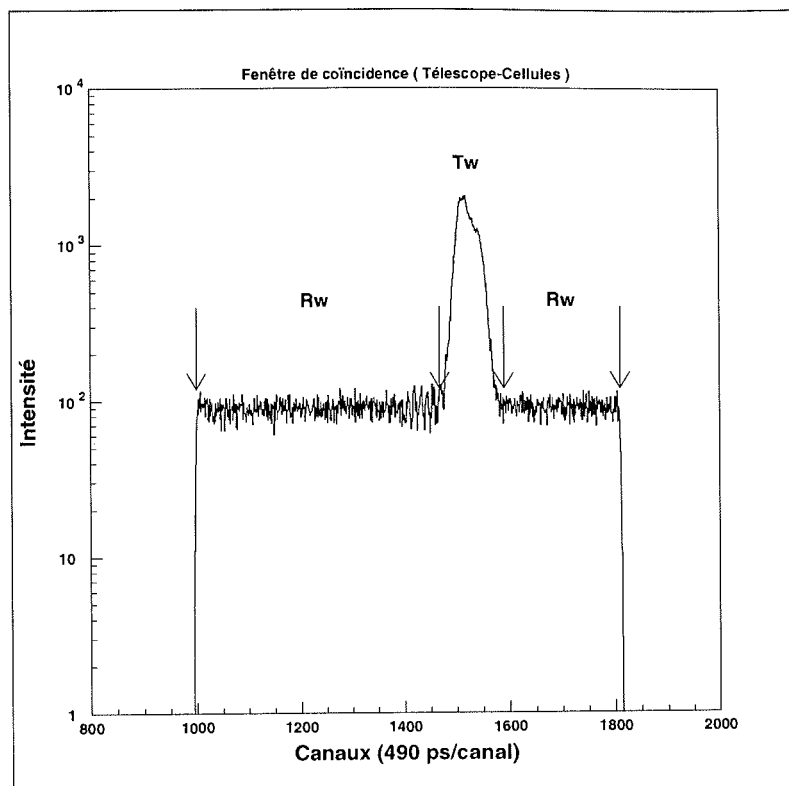


FIG. 4.12: Spectre des temps d'arrivée du signal dans la fenêtre de coïncidence télescope-cellules

Les histogrammes (a) et (b) tracés sur les figures (4.13) présentent les distributions en énergie d'excitation du  $^{234}\text{Pa}$  associées aux fissions détectées respectivement dans  $Tw$  et  $Rw$ . Ces deux distributions sont comparées à celles des événements simples de la même réaction présentée sur la figure (4.13) (histogramme (c)). Ces trois distributions présentent le même effet de structure. En outre, la forme de la distribution dans  $Rw$  est identique à celle des événements simples. Les structures observées sont des événements de fission fortuits associés à la détection des protons issus des réactions parasites sur le Carbone-12 et l'Oxygène-16.

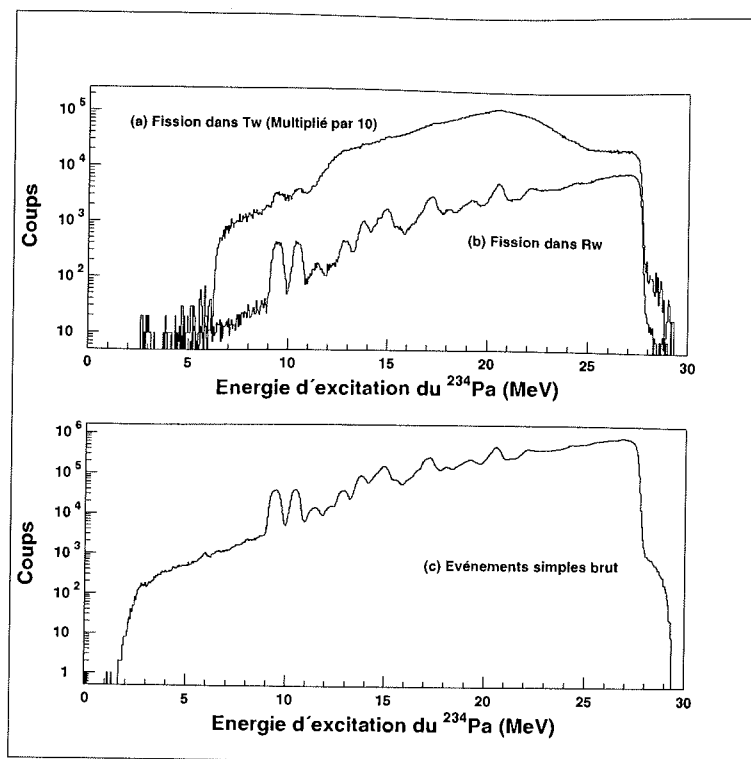


FIG. 4.13: Comparaison des événements simples bruts (c) avec les fissions dans  $Rw$  (b) et  $Tw$  (a)

Cette identité de forme nous a permis, après normalisation, de calculer (équation 4.16) le nombre de coïncidences fortuites ( $Nf^{Rw}(E^*)$ ) à partir des spectres simples. Cette normalisation est effectuée en comparant les taux de comptage ( $R$ ) de la zone  $Rw$  au nombre total d'événements simples ( $S$ ) associés à la même réaction. La figure (4.14) compare les événements simples ( $N_{sim}(E^*)$ ) avec les coïncidences fortuites. On remarquera le très bon accord entre les deux spectres et la diminution des fluctuations statistiques entre 1 et 10 MeV d'énergie d'excitation. En notant ( $Nf^{Rw}(E^*)$ ) le spectre de particules chargées en coïncidence fortuite avec les fragments de fission s'écrira :

$$Nf^{Rw}(E^*) = N_{sim}(E^*) \cdot \frac{R}{S}. \quad (4.16)$$

Le nombre de coïncidences fortuites situées dans la zone des coïncidences vraies ( $Nf^{Tw}(E^*)$ ) est calculé en tenant compte des largeurs des fenêtres correspondant à  $Rw$  et  $Tw$  ( $RW$  et  $TW$ ) :

$$Nf^{Tw}(E^*) = Nf^{Rw}(E^*) \cdot \frac{TW}{RW}. \quad (4.17)$$

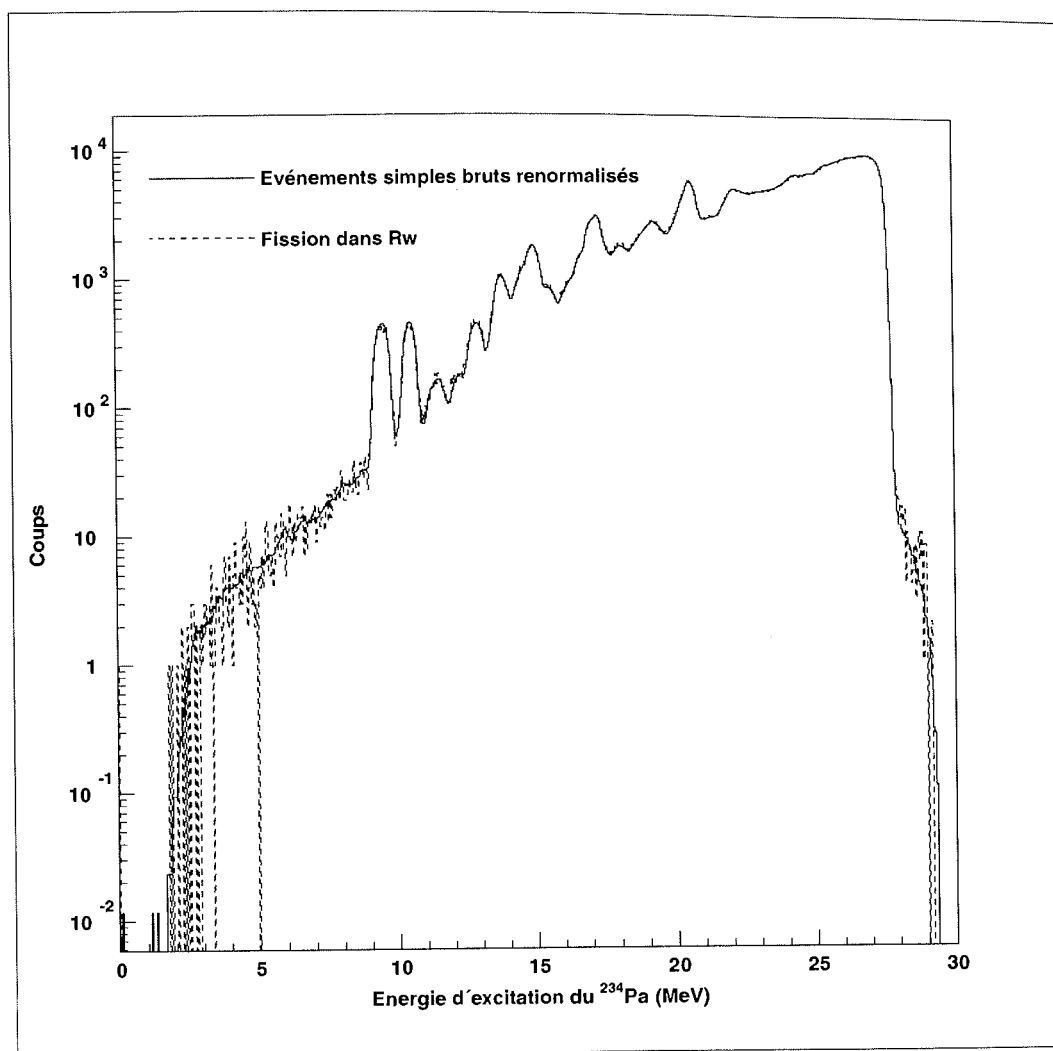


FIG. 4.14: Comparaison des événements simples normalisés sur le nombre de fissions fortuites avec les fissions fortuites de *Rw*.

Le nombre de fissions vraies corrigées ( $Nf^c(E^*)$ ) est obtenu en retranchant aux fissions situées dans la zone *Tw* ( $Nf^b(E^*)$ ) les fissions fortuites ( $Nf^{Tw}(E^*)$ ):

$$Nf^c(E^*) = Nf^b(E^*) - Nf^{Tw}(E^*). \quad (4.18)$$

En remplaçant  $Nf^{Tw}(E^*)$  par les expressions (4.16 et 4.17), le nombre de fissions vraies corrigées des événements fortuits s'écrit :

$$Nf^c(E^*) = Nf^b(E^*) - \left[ \frac{R}{S} \cdot \frac{TW}{RW} \cdot N_{sim}(E^*) \right]. \quad (4.19)$$

Cette opération a été réalisée pour les 15 cellules. La figure (4.15(a)) présente le spectre de proton correspondant au télescope placé à  $130^\circ$  en coïncidences avec des fragments de fission. La comparaison avec la figure (4.15(b)) montre que les événements fortuits provenant du carbone ont été convenablement soustraits. Les fissions corrigées qui sont présentées sont sommées sur les quinze cellules en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant. Les spectres de particules en coïncidence avec les fragments de fission pour les diverses voies de sortie et pour les deux télescopes sont présentés sur la figure (4.16) en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant associé.

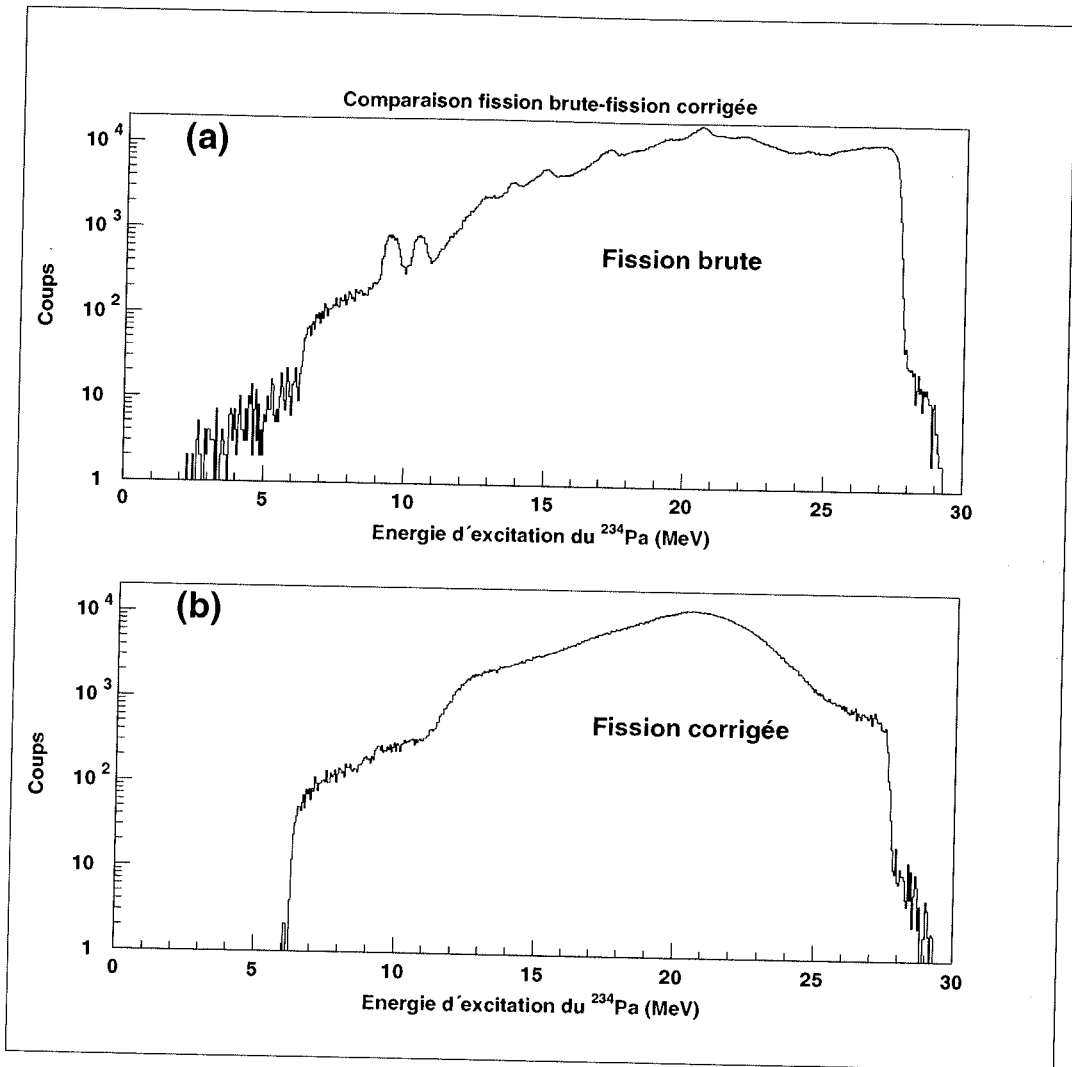


FIG. 4.15: Spectre de protons en coïncidence avec des fragments de fission de la voie  $^{232}\text{Th}(\beta\text{He},p)^{234}\text{Pa}$  pour le télescope placé à  $130^\circ$ . (a) avant correction des événements fortuits et (b) après correction des événements fortuits

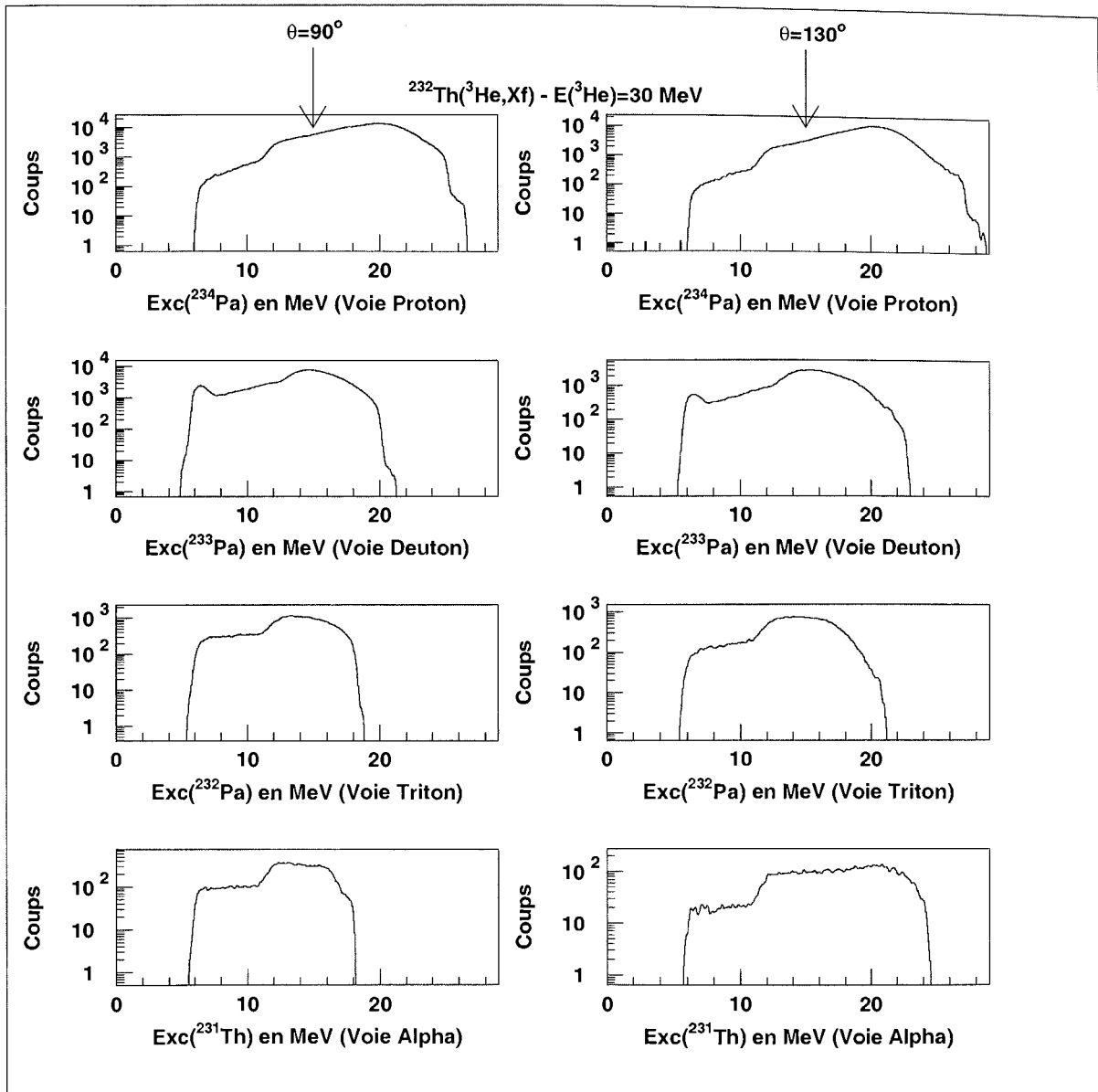


FIG. 4.16: Spectre en énergie d'excitation des fissions pour les différents noyaux observés et pour les deux télescopes après correction des fissions fortuites.

## 4.5 Calcul de l'efficacité de SAPHIR

### 4.5.1 Introduction

Le dispositif expérimental de détection des fragments de fission réalisé présente une grande efficacité mais elle n'est pas totale. A l'inefficacité géométrique (dimension finie des cellules) s'ajoutent les effets cinématiques et de distribution angulaire des fragments de fission émis par le noyau de recul fissionnant. La prise en compte de ces effets a été étudiée par simulation Monte-Carlo dans le but d'évaluer l'efficacité de détection de notre montage.

#### Facteur d'efficacité géométrique

Les cellules que nous avons utilisées ont une surface de  $\sim 800 \text{ mm}^2$  dont une fraction constitue une zone morte pour la détection des fragments. Il s'agit de la grille métallique qui permet la collection des charges libérées par le passage d'un fragment. La structure de cette grille de collection a été analysée à l'aide d'un microscope. Cette analyse nous a permis de déterminer l'implantation de la grille et la zone morte correspondante. Elle représente  $\sim 7.9\%$  de la surface totale de la cellule.

#### Effets cinématiques

Ces effets ont été analysés à partir d'une émission isotrope des fragments dans le référentiel du centre de masse associé au noyau de recul. L'organisation de notre programme de simulation comprend :

- La description géométrique du montage :
  - Position des cellules par rapport au plan de réaction et prise en compte des zones mortes de détection ;
  - Repérage du faisceau sur la cible pour tenir compte d'un léger décalage ( $\sim 2 \text{ mm}$ ) du faisceau par rapport à l'axe géométrique du montage ; et
  - Description des effets cinématiques, la vitesse et l'angle de recul du noyau fissionnant variant avec son énergie d'excitation.

La conversion de la distribution angulaire (isotrope) du référentiel du centre de masse à celui du laboratoire (par rapport au faisceau incident) fait intervenir la masse et la vitesse du noyau de recul mais aussi la masse et l'énergie des fragments de fission. Leur masse et leur énergie sont extraites des distributions en masse déduites de ces mesures.

### 4.5.2 Validation de la partie géométrique du programme de simulation

La partie géométrique de ce programme a été validée à l'aide d'une source mince de  $^{252}\text{Cf}$  placée au centre du montage. Ceci nous a permis de contrôler notre calcul et de déterminer l'efficacité de détection de chacune des 15 cellules composant notre dispositif. Le résultat de cette analyse est présenté sur la figure (4.17). Pour les 5 cellules situées dans le plan de réaction et les 10 cellules hors plan, on observe un excellent accord entre les mesures et la simulation pour ce qui est de la détermination de l'efficacité géométrique de notre montage.

### 4.5.3 Effet de la distribution angulaire

Nous rappelons que ces effets ont été déterminés à partir d'une distribution initiale des fragments de fission de nature isotrope que nous modifierons ensuite.

La simulation est effectuée pour les télescopes et les différentes voies de réaction entre les angles de recul extrêmes du noyau fissionnant. L'angle d'émission des fragments dans le centre de masse est sauvegardé dans un histogramme d'émission  $H_{em}$  (de  $0^\circ$  à  $180^\circ$  par pas de un degré). La détection éventuelle de l'un et/ou l'autre des fragments par une ou deux des quinze cellules remplit quinze histogrammes de détection  $H_{de}^i$  correspondant à chaque cellule (de  $0$  à  $180^\circ$  par pas de un degré). Ils correspondent à l'angle d'émission dans le centre de masse du/des fragment(s) détecté(s). Les rapports entre les histogrammes  $H_{de}^i$  et l'histogramme  $H_{em}$  donnent l'efficacité de détection de chaque cellule en fonction de l'angle d'émission du fragment dans le centre de masse (histogrammes d'efficacité  $H_{ef}^i$ ). Ces histogrammes constituent la base de données nécessaires pour tenir compte d'une distribution angulaire anisotrope. Pour cela, nous avons adopté une distribution angulaire de la forme  $W(\theta_{cm}) \propto (1 + \alpha \cos^2(\theta_{cm}))$ . Cette loi simple a été jugée suffisante pour rendre compte des effets d'anisotropie observés dans ces mesures.

Cette distribution va altérer notre histogramme de référence  $H_{em}$  pour donner un nouvel histogramme  $H_{em-mo}$  modifié tout en conservant constant le nombre total de fragments émis. La multiplication des histogrammes  $H_{ef}^i$  par l'histogramme  $H_{em-mo}$ , puis la somme sur tous les angles d'émission, donnent le nombre de fragments détectés pour chaque cellule. Le calcul de l'efficacité de chaque cellule est réalisé en divisant le nombre de fragments détectés par le nombre de fragments émis. Cet effet de distribution angulaire est bien illustré sur la figure (4.18) pour deux cellules situées aux alentours de  $0^\circ$  et  $90^\circ$  par rapport à l'axe de recul du noyau fissionnant. Sur cette figure, nous avons reporté les rapports d'anisotropie  $W(0^\circ)/W(90^\circ)$  pour une distribution isotrope ( $\alpha=0$ ) et une distribution avec  $\alpha=0.5$ . Pour cette dernière distribution, l'efficacité de la cellule située

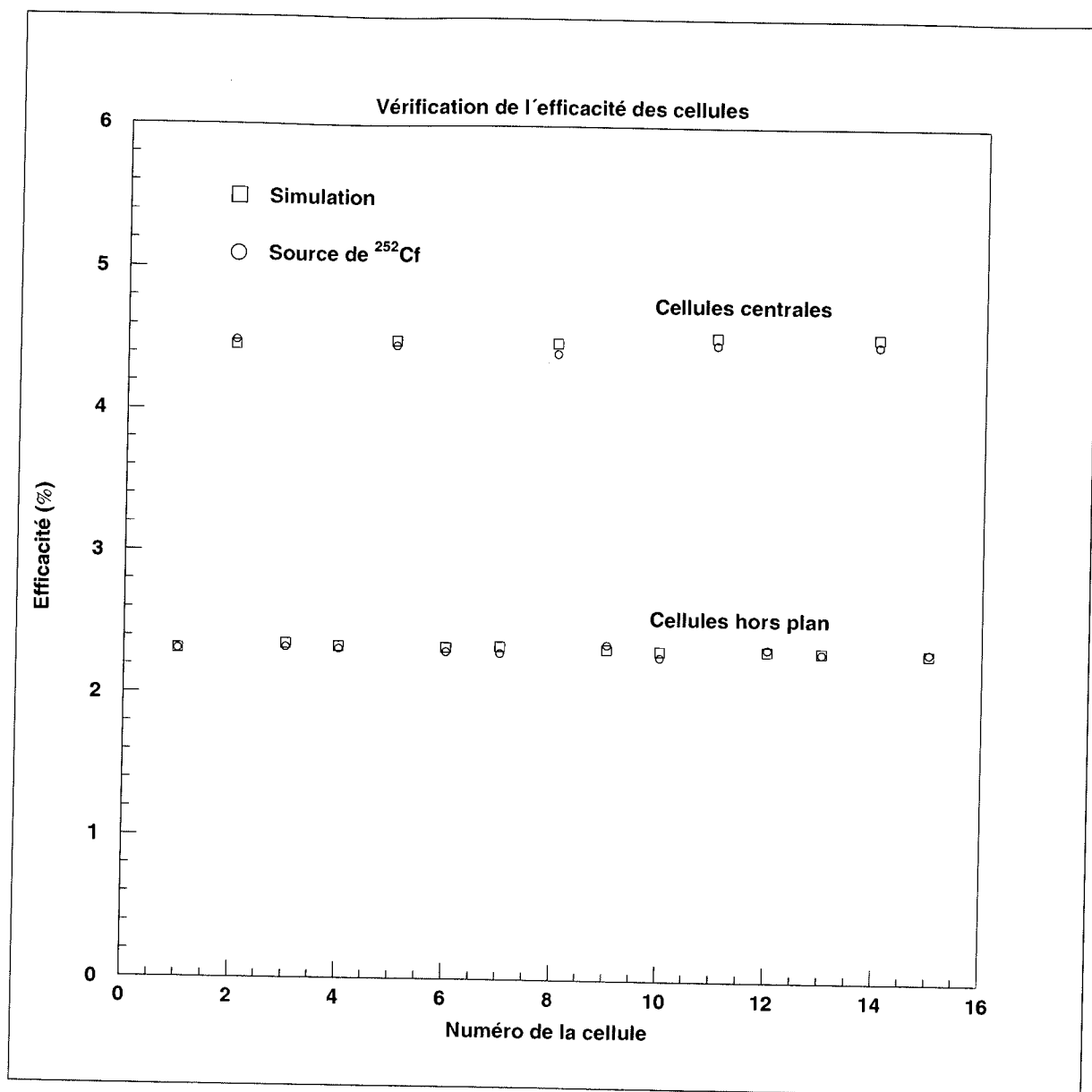


FIG. 4.17: Efficacité des cellules photovoltaïques déterminée par simulation et avec la source de <sup>252</sup>Cf



dans la direction de l'axe de recul  $\theta_{cm} \sim 0^\circ$  a sensiblement augmenté (de 4.96 à 6.16%). Inversement, l'efficacité de la cellule à  $\theta_{cm} \sim 90^\circ$  de l'axe de recul est diminuée de 4.40 à 3.84%. La distribution des fragments modifie donc sensiblement l'efficacité de détection de notre montage.

Après normalisation, le nombre de fragments correspondant est comparé au nombre de fragments mesurés. Pour une énergie d'excitation du noyau de recul et pour une forme de distribution angulaire ( $\alpha$  étant fixé), le nombre de fragments calculé est comparé au nombre de fragments mesuré. Cette comparaison est effectuée par la méthode des moindres carrés pour déterminer la valeur optimale du paramètre  $\alpha$ . Un exemple de cette analyse est présenté sur la figure (4.19) où l'on a reporté la variation d'efficacité (par rapport à une émission isotrope des fragments) de détection des cellules en fonction de leur position moyenne par rapport à l'axe de recul du noyau fissionnant.

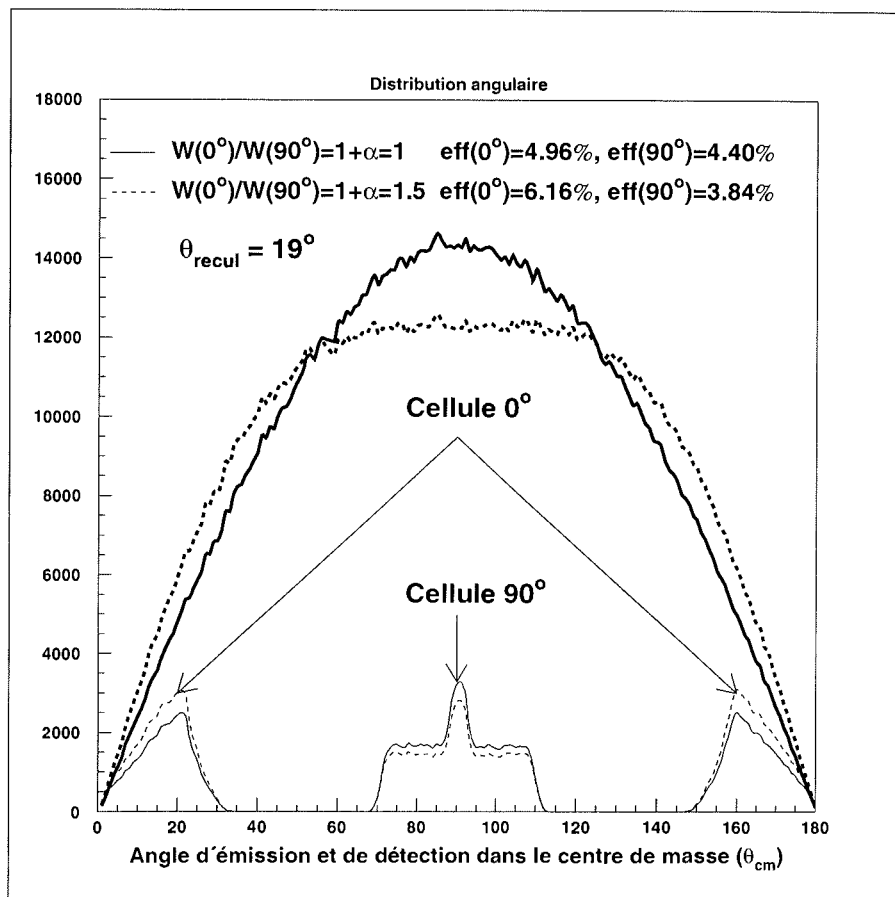


FIG. 4.18: Effet de la distribution angulaire sur l'efficacité de deux cellules situées aux alentours de  $0^\circ$  et  $90^\circ$  par rapport à l'angle de recul du noyau fissionnant (en trait fins) et distribution angulaire totale (en trait épais).

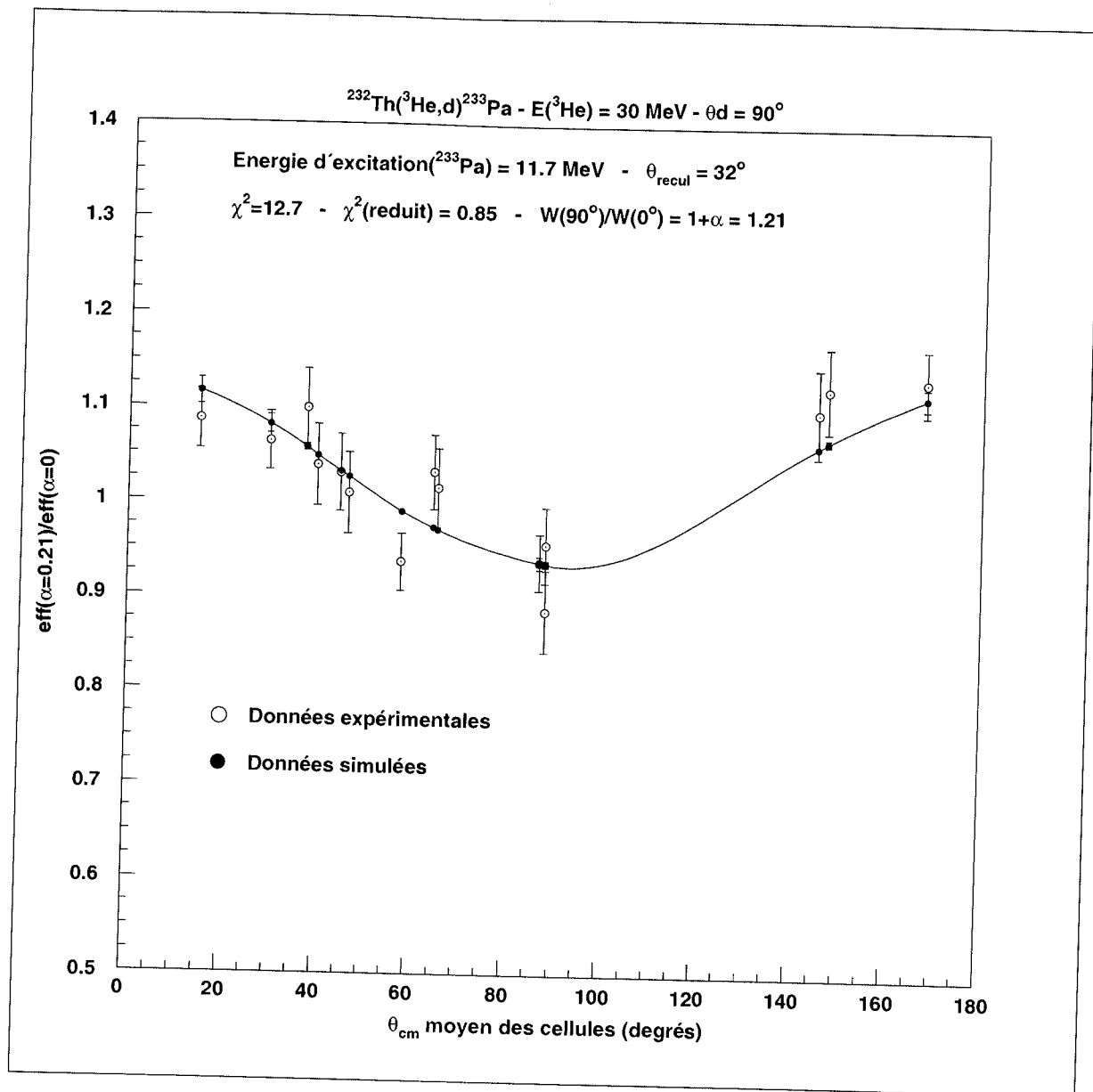


FIG. 4.19: Exemple d'une mesure de distribution angulaire. Rapport des efficacités des cellules avec et sans distribution angulaire en fonction de l'angle d'émission moyen des fragments dans le centre de masse du noyau fissionnant ( $\theta_{cm}$ ).

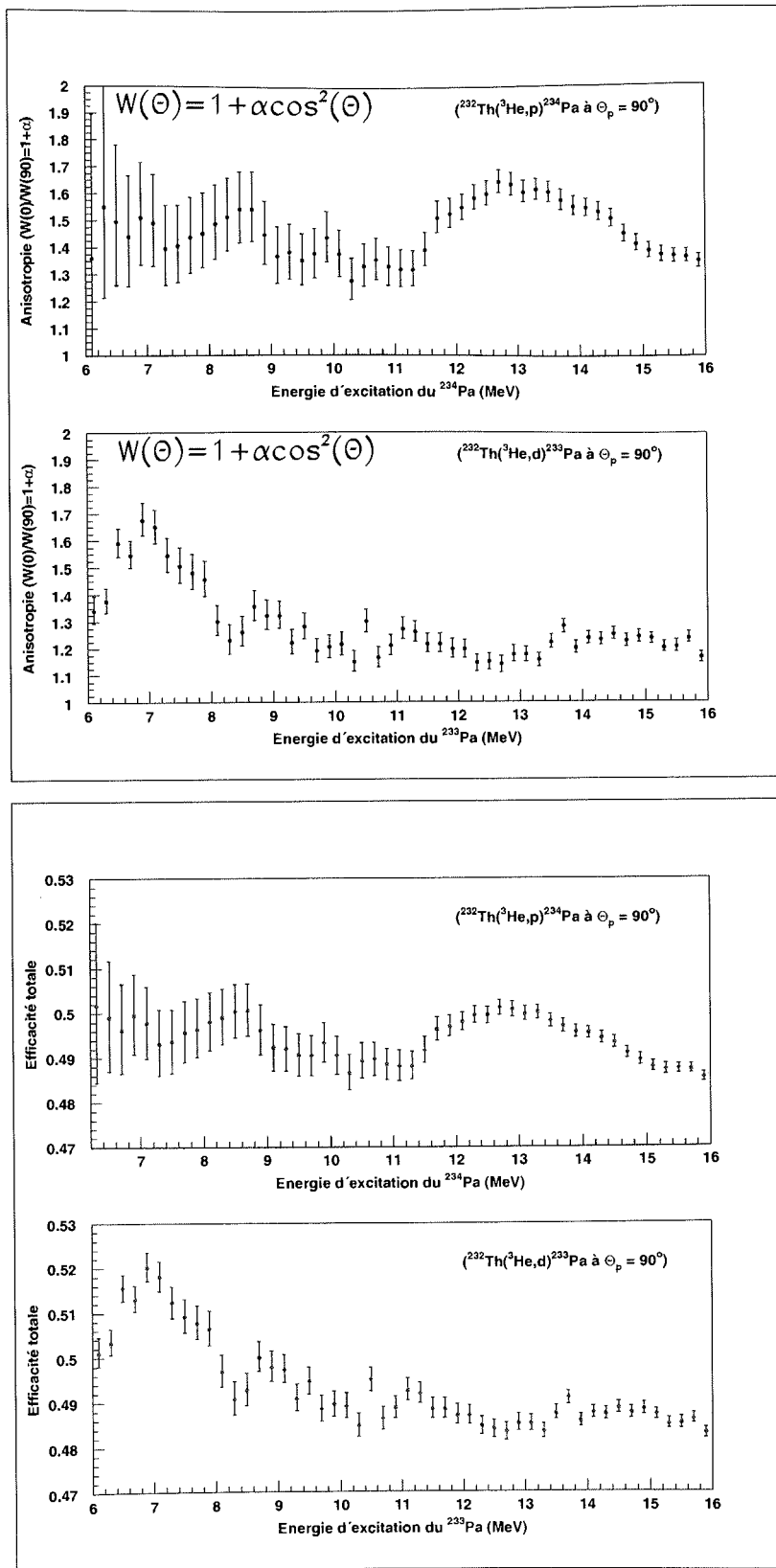


FIG. 4.20: Anisotropies mesurées (haut) et efficacités totales de détection des fragments correspondants (bas) des voies proton et deuteron pour le télescope à  $90^\circ$  en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant. 109

Ce traitement a été effectué pour chaque télescope et chacune des voies de réaction que nous avons étudiées, dans le but de préciser la variation avec l'énergie d'excitation de la distribution angulaire des fragments et en déduire l'efficacité totale de détection d'un ou de deux fragments ( $eff(E^*)$ ). Cette étude a été effectuée pour les quatre noyaux fissionnant ( $^{231}\text{Th}$ ,  $^{232,233,234}\text{Pa}$ ) dans une gamme d'énergie d'excitation de 6 à 20 MeV. Cette gamme d'énergie a été divisée en intervalles réguliers dont la largeur a été ajustée en fonction du nombre d'événements de chaque voie (0.2 MeV pour  $^{233,234}\text{Pa}$  et 0.4 MeV pour  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{231}\text{Th}$ ). Nos résultats pour les noyaux  $^{233}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$  sont présentés dans la partie supérieure de la figure (4.20). Comme le montre la première figure, les distributions angulaires s'écartent notablement d'une émission isotrope dans toute la gamme d'énergie d'excitation considérée. Pour le  $^{233}\text{Pa}$ , l'anisotropie diminue avec l'énergie d'excitation. Pour le  $^{234}\text{Pa}$ , cette anisotropie reste constante entre 6 et 11 MeV puis augmente pour atteindre un maximum au voisinage de 13 MeV. Ce comportement illustre l'ouverture de la fission de seconde chance ( $^{233}\text{Pa}(n,n'f)$ ) qui se situe au voisinage de 11 MeV en énergie d'excitation du noyau  $^{234}\text{Pa}$ : elle correspond à la fission du noyau résiduel  $^{233}\text{Pa}$  après émission d'un neutron par le  $^{234}\text{Pa}$ . Il est donc naturel de retrouver une anisotropie voisine de celle que nous avons mesurée pour le noyau  $^{233}\text{Pa}$  à faible énergie d'excitation ( $\sim 7$  MeV). La partie inférieure de la figure (4.20) regroupe pour ces deux voies les efficacités totales de détection en fonction de l'énergie d'excitation. Ces efficacités comprises entre 0.52 et 0.48 dépendent à la fois de la voie de réaction et de l'énergie d'excitation. Elles sont à comparer à une efficacité de 0.484 dans le cas d'une distribution isotrope.

## 4.6 Les probabilités de fission

Le calcul de la probabilité de fission du noyau  $^{234}\text{Pa}$  formé par la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}^*$  constitue l'objet principal de ce travail. Nous avons déjà défini cette probabilité de fission à partir des différentes données mesurées au cours de ce travail. Elle s'écrit :

$$Pf(E^*) = \frac{1}{eff(E^*)} \cdot \frac{N_{fis}(E^*)}{N_{sim}(E^*)}. \quad (4.20)$$

Les nombres de fissions ( $N_{fis}(E^*)$ ), les événements simples ( $N_{sim}(E^*)$ ) et le facteur d'efficacité ( $eff(E^*)$ ) viennent d'être discutés. La figure (4.21) présente la distribution en énergie d'excitation des quantités ( $N_{fis}(E^*)$ ) et ( $N_{sim}(E^*)$ ) obtenues pour le  $^{234}\text{Pa}$ . La figure (4.22) présente la probabilité de fission de ce noyau. Au-delà de 12 MeV d'énergie d'excitation, deux estimations sont présentées compte tenu des difficultés que nous avons rencontrées pour soustraire à haute énergie d'excitation le bruit de fond provenant du support en carbone de la cible. Au-delà de cette énergie, les différences que nous pouvons observer reflètent donc nos incertitudes quant à la probabilité de fission du  $^{234}\text{Pa}$ . Entre 6 et 12 MeV, les deux méthodes conduisent à la même probabilité de fission. Dans cette gamme d'énergie, le profil de cette probabilité de fission est celui attendu pour un noyau non fissile dont le seuil de fission se situe à plus d'un MeV au delà de l'énergie de liaison d'un neutron dans le noyau  $^{234}\text{Pa}$ . Au-delà de 11 MeV, la probabilité de fission augmente pour atteindre son maximum autour de 12.5 MeV. Cette accroissement correspond à la fission de deuxième chance du noyau  $^{234}\text{Pa}$  : son énergie d'excitation est suffisante pour qu'il émette un neutron avant de fissionner. La fission du noyau résiduel ( $^{233}\text{Pa}$ ) s'ajoute alors à celle du noyau  $^{234}\text{Pa}$ . Nous retrouvons là un phénomène que nous avons déjà mentionné dans l'étude de la distribution angulaire en fonction de l'énergie d'excitation. Comme le montre la mesure, l'ouverture de la fission de seconde chance se produit pour une énergie d'excitation égale à l'énergie de liaison d'un neutron du noyau  $^{234}\text{Pa}$  (5.2 MeV) plus le seuil de fission ( $\sim 5.8$  MeV) du noyau résiduel ( $^{233}\text{Pa}$ ).

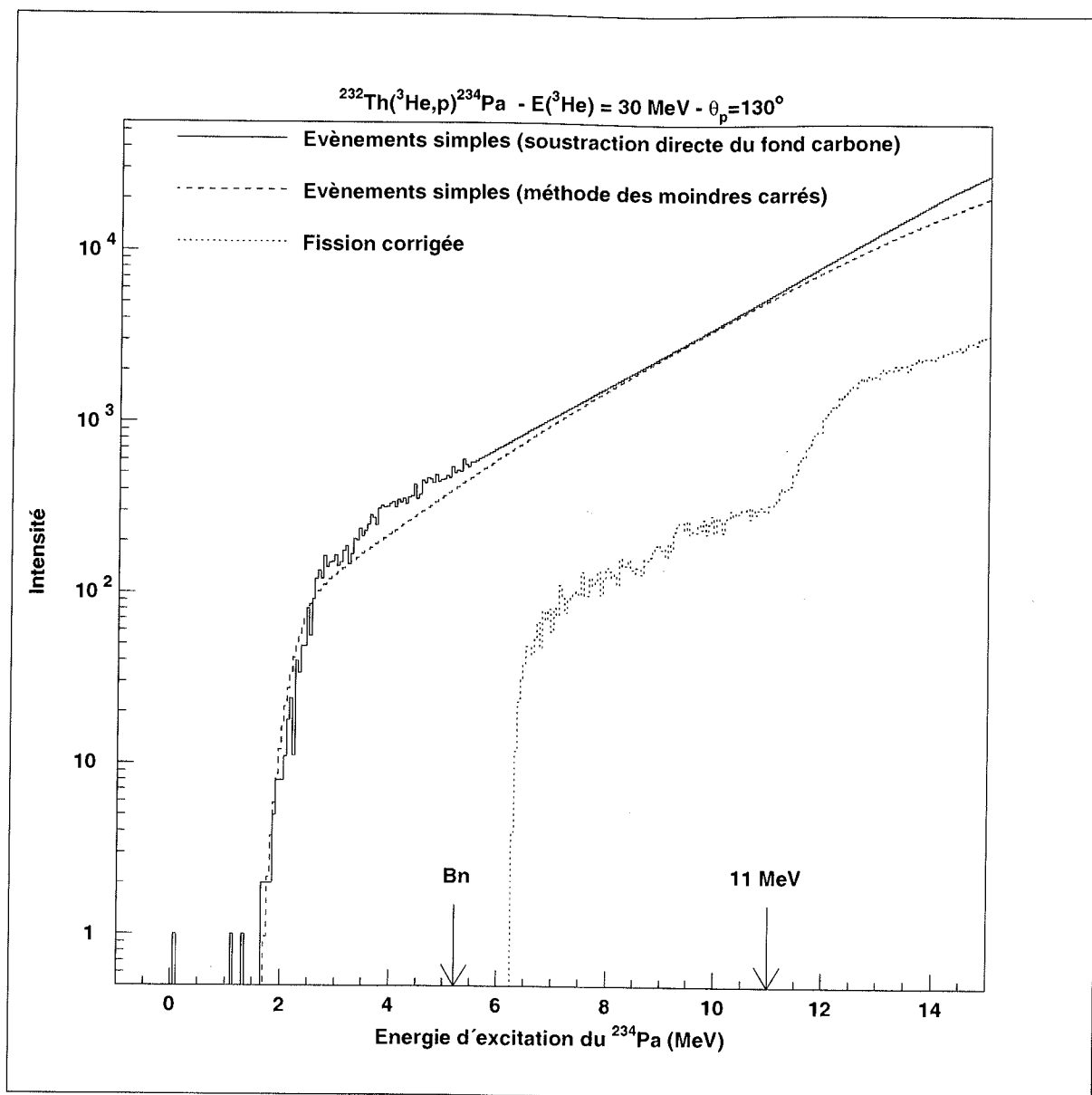


FIG. 4.21: Spectres simples corrigés obtenus à partir des deux méthodes exposées et spectres des fissions corrigés pour la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}$  correspondants aux télescope à  $130^\circ$

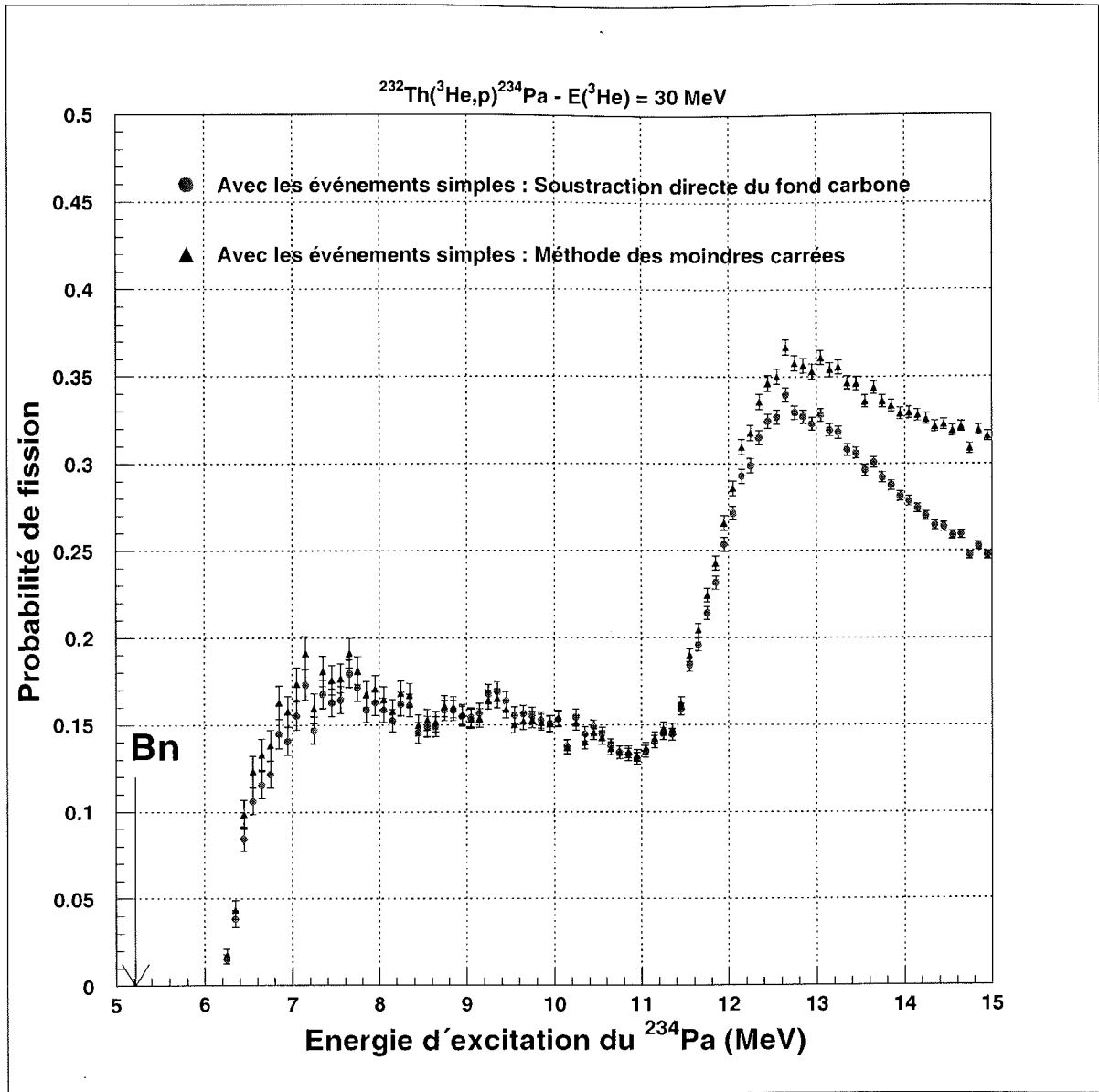


FIG. 4.22: Probabilités de fission du  $^{234}\text{Pa}$  présentées pour les deux méthodes d'évaluation des événements simples.

### 4.6.1 Probabilité de fission des Protactinium 232 et 233

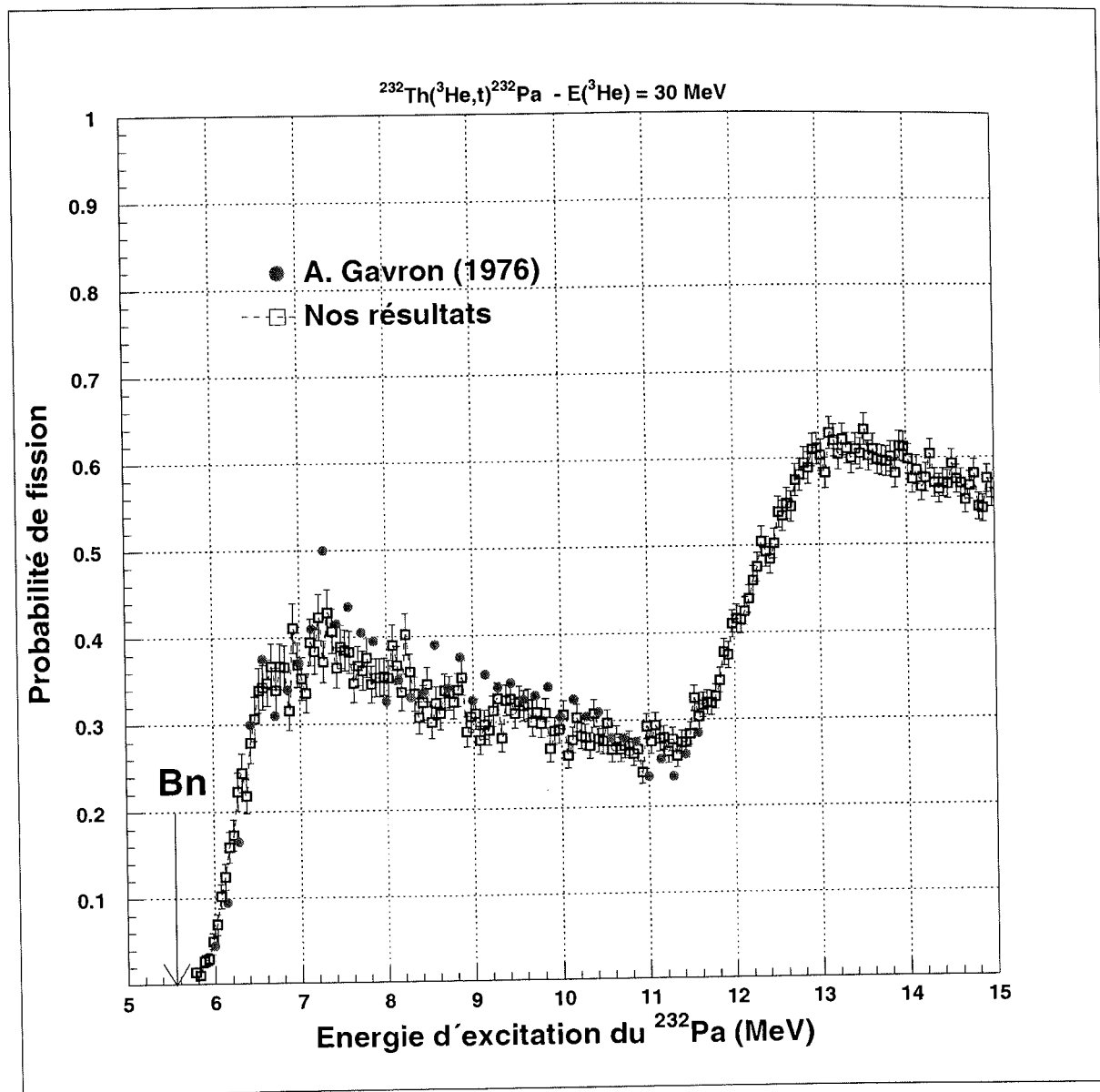
Les probabilités de fission des noyaux  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{233}\text{Pa}$  ont également été déterminées et comparées aux données de la littérature. Cette comparaison a été très utile pour vérifier notre approche expérimentale et notre méthode d'analyse. Les données antérieures à nos mesures ont été obtenues à Los Alamos à partir des réactions de transfert identiques à celles que nous avons utilisées et pour une énergie de faisceau de 24 MeV (énergie maximale alors délivrée par l'accélérateur Tandem de Los Alamos).

Les figures (4.23) et (4.24) présentent les probabilités de fission des noyaux  $^{232}\text{Pa}$  (carrés ouverts) et  $^{233}\text{Pa}$  (cercles pleins) que nous avons mesurées et leur comparaison avec les mesures de Gavron [GAV76]. Les mesures de Back [BAC74] concernant la probabilité de fission du  $^{233}\text{Pa}$  sont également présentées en figure (4.24), elles recouvrent une gamme d'énergie d'excitation plus limitée (5.5 à 8.5 MeV). On remarquera que nos résultats sont en bon accord avec ces mesures et particulièrement avec celles de Gavron pour le  $^{233}\text{Pa}$ . On notera que la probabilité de fission mesurée par Back au voisinage de 6.5 MeV est légèrement supérieure à nos mesures et à celle de Gavron. La différence, bien que faible, s'explique vraisemblablement par la simplicité de son montage (un détecteur pour la fission) et l'hypothèse d'une distribution isotrope pour les fragments. En revanche, les mesures de Gavron ont été réalisées avec deux détecteurs de fission dont le positionnement lui a permis de corriger son efficacité de détection des effets de distribution angulaire.

La figure (4.25) regroupe les probabilités de fission des trois isotopes du Protactinium ( $^{232}\text{Pa}$ ,  $^{233}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$ ) que nous avons mesurées dans ce travail. Pour les deux noyaux non fissiles  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$ , la probabilité de fission augmente inversement à la masse du noyau fissionnant, cette tendance reflétant l'évolution du paramètre de fissilité ( $Z^2/A$ ). En revanche, la probabilité de fission du  $^{233}\text{Pa}$  présente le profil caractéristique d'un noyau fissile avec un maximum très prononcé autour de l'énergie de liaison d'un neutron dans le noyau  $^{233}\text{Pa}$  ( $B_n \sim 6.5$  MeV). Cette structure reflète la compétition entre la fission et l'émission de neutrons qui, dans cette région, domine la désexcitation du noyau composé  $^{233}\text{Pa}$ . L'étude de ce phénomène est évidemment inaccessible par le biais de la fission induite par neutron à partir de la réaction  $^{232}\text{Pa}(n,f)$ , et illustre tout l'intérêt des réactions de transfert dans l'étude de la fission de ce noyau fissile.

Pour conclure, ces mesures nous ont permis de déduire pour la première fois la probabilité de fission du  $^{234}\text{Pa}$ . Pour les noyaux observés, les probabilités de fission ont été mesurées pour la première fois au-delà de la fission dite de seconde chance, cette extension constitue donc un point fort de ce travail.



FIG. 4.23: Probabilité de fission du  $^{232}\text{Pa}$

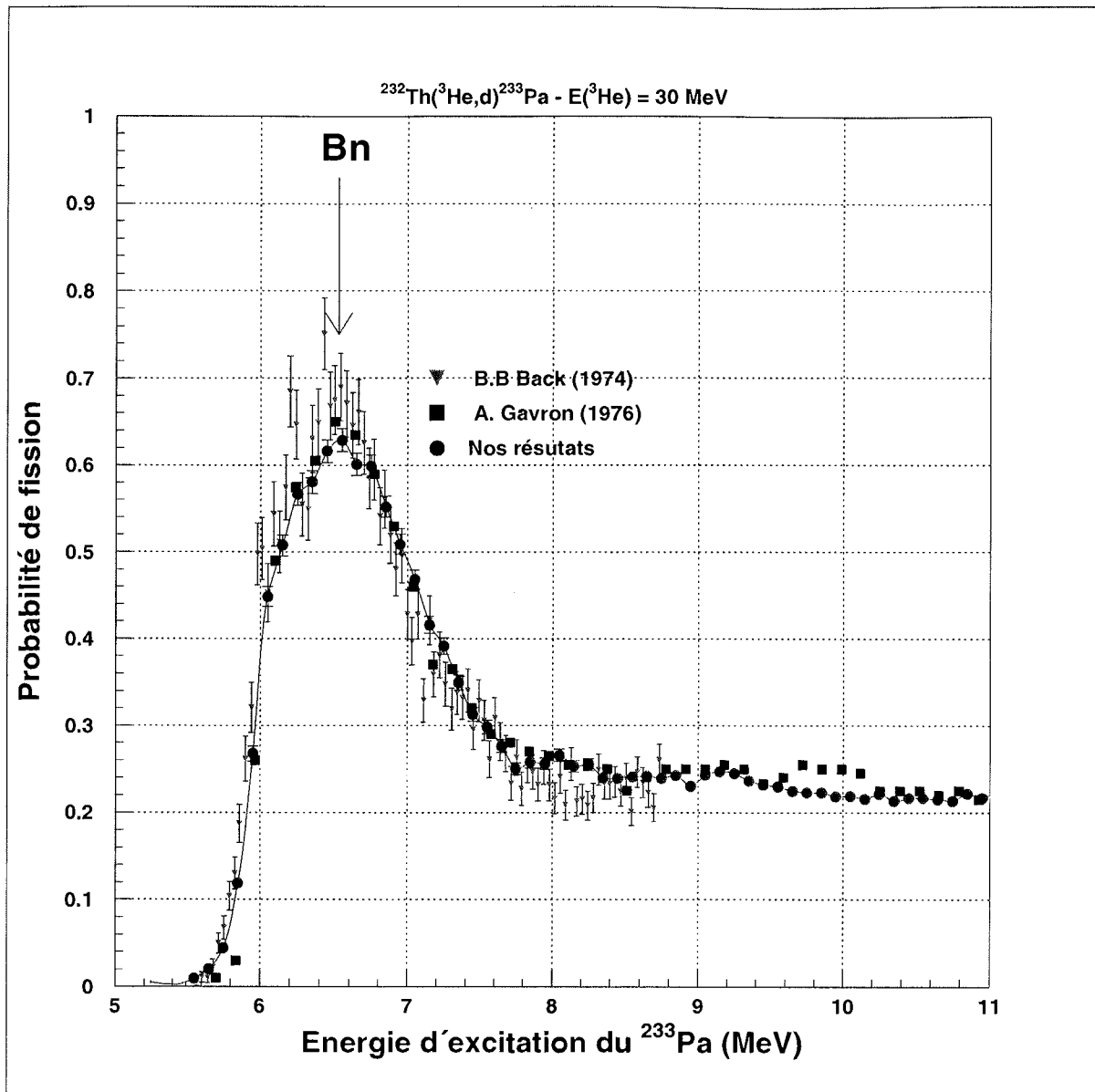


FIG. 4.24: Probabilité de fission du  $^{233}\text{Pa}$

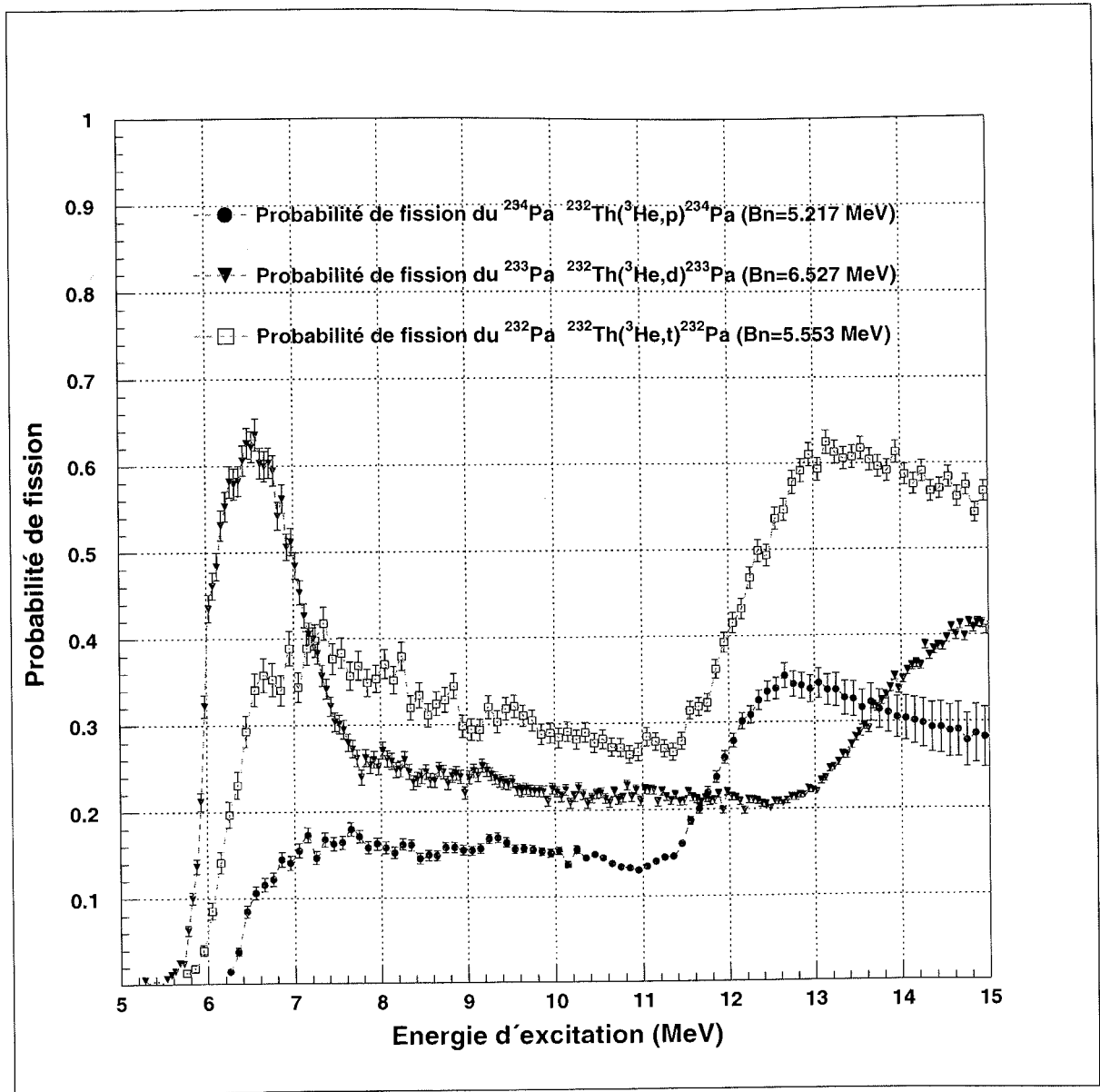


FIG. 4.25: Probabilité de fission des Protactinium 232, 233 et 234

## 4.7 Section efficace de fission

Nous sommes maintenant en mesure de déterminer les sections efficaces de fission des quatre noyaux que nous avons observés ( $^{231}\text{Th}$ ,  $^{232,233,234}\text{Pa}$ ). Nous rappelons que ces sections efficaces de fission sont déterminées à partir du produit (4.21).

$$\sigma_F(E_n) = P_f(E^* = B_n + \frac{A-1}{A}E_n) \cdot \sigma_{NC}(E_n), \quad (4.21)$$

où  $\sigma_{NC}$  est la section efficace de formation du noyau composé  $A$ . Cette quantité est calculée dans le cadre du modèle optique. Depuis le début des années 1960, ce modèle a été utilisé pour décrire de nombreuses réactions nucléaires, en particulier l'interaction d'un neutron avec un noyau dans le domaine d'énergie où ce dernier n'est pas complètement transparent. Le noyau est traité comme un milieu à la fois réfringent et absorbant d'où le nom du modèle optique. Le problème à  $N$  corps (les nucléons du projectile et de la cible) est remplacé par un problème à deux corps : projectile + noyau, où le potentiel central d'interaction est représenté par un potentiel du type : (4.22)

$$V = U + iW. \quad (4.22)$$

La forme du potentiel de Wood-Saxon a été la plus utilisée pour représenter  $U$ . Pour tenir compte de l'absorption, un terme imaginaire ( $W$ ) est ajouté au potentiel ( $U$ ). Dans l'approche phénoménologique, les nombreux paramètres de ce potentiel sont ajustés pour reproduire les sections efficaces de diffusions élastique, inélastique et totales. Jusqu'à présent, cette approche phénoménologique n'a pas permis d'obtenir un jeu unique de paramètres. Ce problème constitue avec les effets de moment angulaire déjà évoqués au paragraphe (3.1.1), le second point faible de notre approche. La figure (4.26) montre la détermination de la section efficace de fission de la réaction  $^{237}\text{Np}(n,f)$  déduite de la réaction de transfert  $^{238}\text{U}(^3\text{He},\text{tf})^{238}\text{Np}^*$ . Cette section efficace a été calculée en utilisant les sections efficaces de formation du noyau composé proposées par différents auteurs. Il s'agit de calculs effectués entre 1960 et 1973. Ils sont comparés à la section efficace de fission de  $^{237}\text{Np}$  recommandée par ENDF/B-IV. On notera que les écarts entre les calculs se situent entre 30 et 50%. Au-dessus de 2 MeV, ce sont les calculs d'Andreev qui reproduisent le mieux les données expérimentales adoptées par ENDF. Les écarts les plus importants apparaissent au-dessous de 2 MeV. Ce problème avait déjà été remarqué par Cramer. Au cours des vingt dernières années, ces calculs ont considérablement progressé par la prise en compte de la structure microscopique de la matière nucléaire. A cet égard, le groupe de physique théorique de Bruyères-Le-Châtel a su développer un potentiel optique microscopique traitant les noyaux sphériques et les noyaux déformés [BAU98], [BAU00] et

[BAU01]. Leurs prédictions ont été comparées avec succès à de très nombreuses données expérimentales et dans une plage d'énergie s'étendant de 1 keV à 200 MeV. Ce groupe de Bruyères-Le-Châtel a réalisé les calculs nécessaires à notre travail.

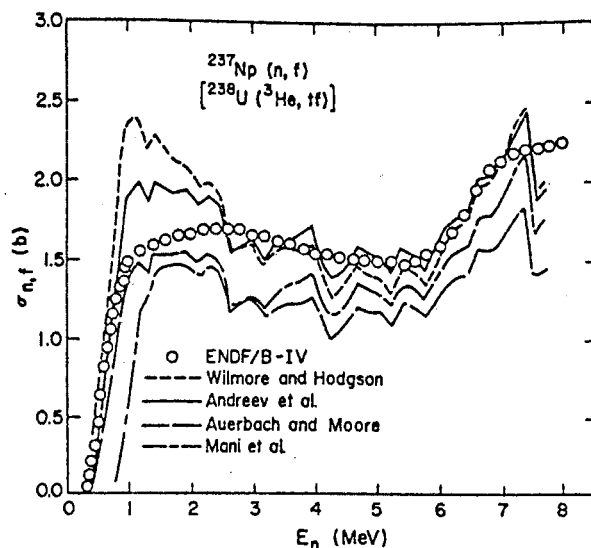


FIG. 4.26: Section efficace de fission du  $^{237}\text{Np}$ . Les cercles correspondent aux valeurs expérimentales recommandées par ENDF/B-IV. La probabilité de fission du noyau  $^{238}\text{Np}$  est obtenue à partir de la réaction  $^{238}\text{U}({}^3\text{He}, \text{tf})^{238}\text{Np}^*$ . Les quatre courbes donnent la prédiction de la section efficace de fission déterminée à partir de la probabilité de fission mesurée et de différents jeux de paramètres du modèle optique. (d'après [WIL75])

La figure (4.27) présente leurs résultats pour la formation des noyaux composés  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$ . Ces sections efficaces sont comparées aux calculs plus anciens (1962) effectués par Perey et Buck [AUE62]. Ces calculs sont extraits d'une étude systématique effectuée au laboratoire de Brookhaven pour des énergies de neutron de 0.1 à 3 MeV. Ils sont le point de départ de la plupart des approches phénoménologiques du modèle optique développées entre 1960 et 1980. La droite en trait plein représente la valeur constante de section efficace (3.1 barn) utilisée par les physiciens de Los Alamos. Il s'agit d'une valeur empirique déduite de la comparaison des probabilités de fission d'une part et des sections efficaces de fission mesurées directement par capture de neutron d'autre part. On remarquera que cette valeur est systématiquement plus élevée que les valeurs que nous utilisons (+11% à 2 MeV et +24% à 10 MeV).

Pour valider notre approche, il nous est apparu **primordial** de comparer notre méthode à des mesures où la section efficace de fission a été mesurée directement. Il s'agit des réactions  $^{230}\text{Th}(n, f)$  et  $^{231}\text{Pa}(n, f)$ . Ces sections efficaces de fission ont été calculées à

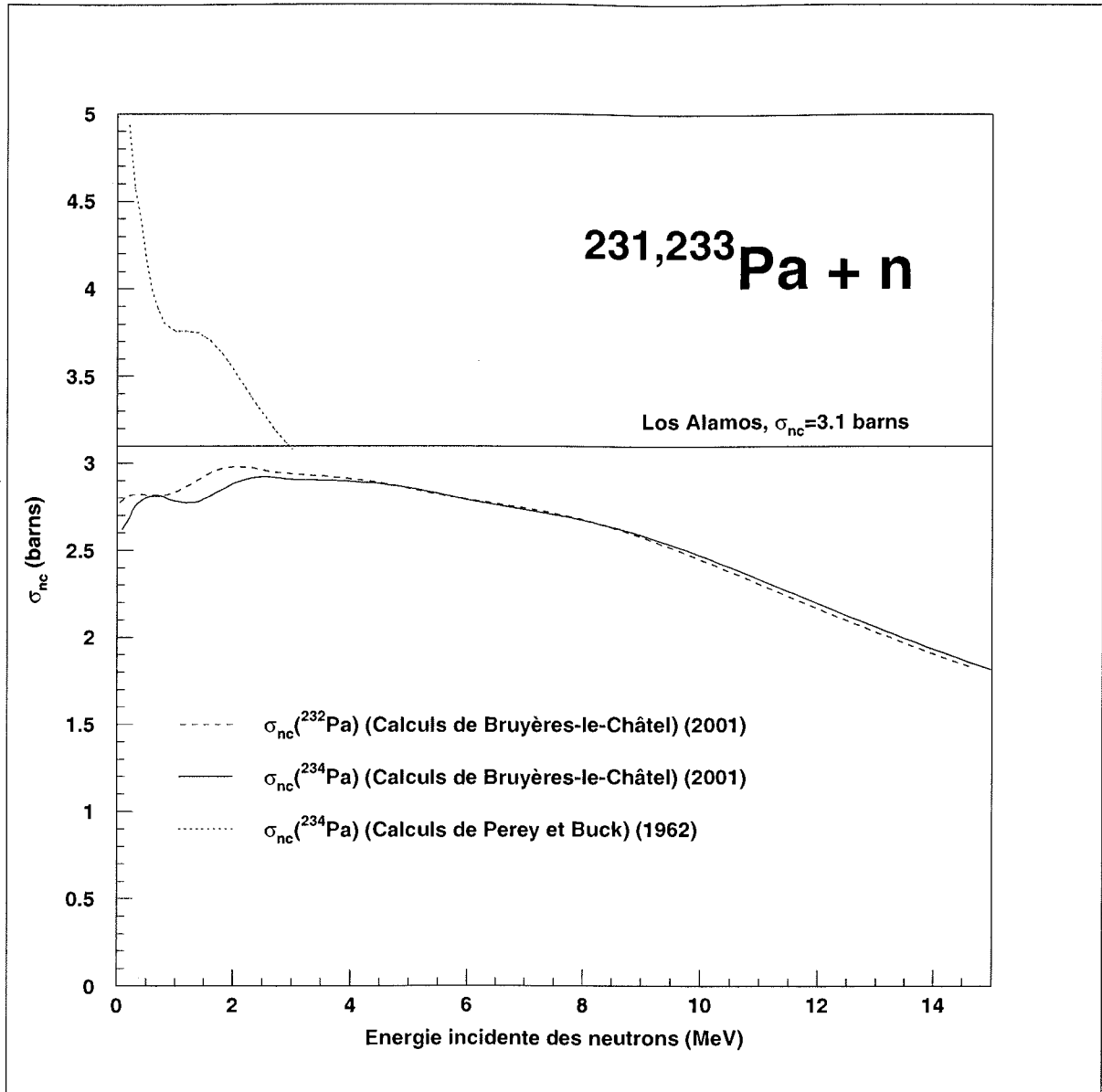


FIG. 4.27: Section efficace de formation des noyaux composés des noyaux  ${}^{232}\text{Pa}$  et  ${}^{234}\text{Pa}$  d'après les calculs de Bruyères-le-Châtel, de Perey et Buck [AUE62] et de Los Alamos.

partir des probabilités de fission des noyaux  $^{231}\text{Th}$  et  $^{232}\text{Pa}$  mesurées respectivement dans les voies ( $^{232}\text{Th}(^3\text{He},\alpha)^{231}\text{Th}^*$ ) et ( $^{232}\text{Th}(^3\text{He},t)^{232}\text{Pa}^*$ ). On dispose pour les deux réactions directes d'une dizaine de mesures dont certaines sont très anciennes puisque la première de la réaction  $^{231}\text{Pa}(n,f)$  date de 1944! La très grande majorité de ces mesures a été réalisée dans une gamme restreinte d'énergie de neutron (0.1 à 3 MeV) et avec des résolutions en énergie variant de 20 à 300 keV. Pour les réactions  $^{230}\text{Th}(n,f)$  et  $^{231}\text{Pa}(n,f)$ , les mesures de référence ont été pendant de nombreuses années celles de Muir et Vesser [MUI71]: les neutrons utilisés proviennent d'une explosion nucléaire souterraine, leur énergie étant déterminée par leur temps de vol sur une distance de 300 mètres. Ces expériences font partie d'un programme effectué aux États-Unis pour mesurer la fission d'Actinides de forte activité dont font partie les noyaux  $^{230}\text{Th}$  et  $^{231}\text{Pa}$  (période  $T_{1/2}$  inférieure à  $10^5$  années).

Les données évaluées de la bibliothèque ENDF sont basées sur ces mesures tandis qu'au-delà de 3 MeV, les données proposées ont été calculées à partir d'un modèle statistique. Les mesures les plus récentes ont été réalisées dans les années 1980 par Plattard *et al.* [PLA81] ( $^{231}\text{Pa}(n,f)$ ) et Meadows [MEA83] ( $^{230}\text{Th}(n,f)$ ). Dans les deux cas, la gamme en énergie des neutrons dépasse largement la dizaine de MeV. Les figures (4.28) et (4.29) présentent nos valeurs de sections efficaces de fission. Elles sont comparées aux données expérimentales citées précédemment. Pour alléger la présentation, nous n'avons retenu outre les évaluations de ENDF et JENDL que les mesures les plus récentes.

En ce qui concerne la réaction  $^{230}\text{Th}(n,f)$ , nos valeurs sont en très bon accord avec les mesures de Meadows. Dans la gamme d'énergie de neutron de 0.5 à 7 MeV, l'allure des sections efficaces de première chance est très bien reproduite par nos résultats. Dans cette gamme d'énergie, les données évaluées par JENDL sont inférieures de 30 % environ à celles de la base de données ENDF avec laquelle nous sommes par ailleurs en très bon accord.

Pour la réaction  $^{231}\text{Pa}(n,f)$ , les données évaluées par ENDF et JENDL présentent des écarts importants dans la gamme d'énergie de neutron comprise entre 0.1 et 10 MeV. Les données extraites de JENDL sont certainement les plus fiables puisqu'elles sont basées sur la mesure récente de Plattard non encore intégrée dans la banque de données ENDF-B/II. Comme le montrent les figures (4.29a et 4.29b), nos résultats présentent globalement un bon accord avec la base de données JENDL. Entre 0.1 et 1 MeV, on notera que la présence de plusieurs résonances étroites a été observée par Plattard. Elles n'apparaissent pas dans nos mesures à cause de notre moins bonne résolution en énergie. Néanmoins, l'allure et la valeur moyenne de la section efficace est bien reproduite dans cette gamme d'énergie. En revanche, au-delà de 2 MeV, nos valeurs de sections efficaces sont de 10 à 15% plus faibles que celle dans l'évaluation de JENDL.

Cette première étude empirique montre que notre méthode reproduit d'une manière

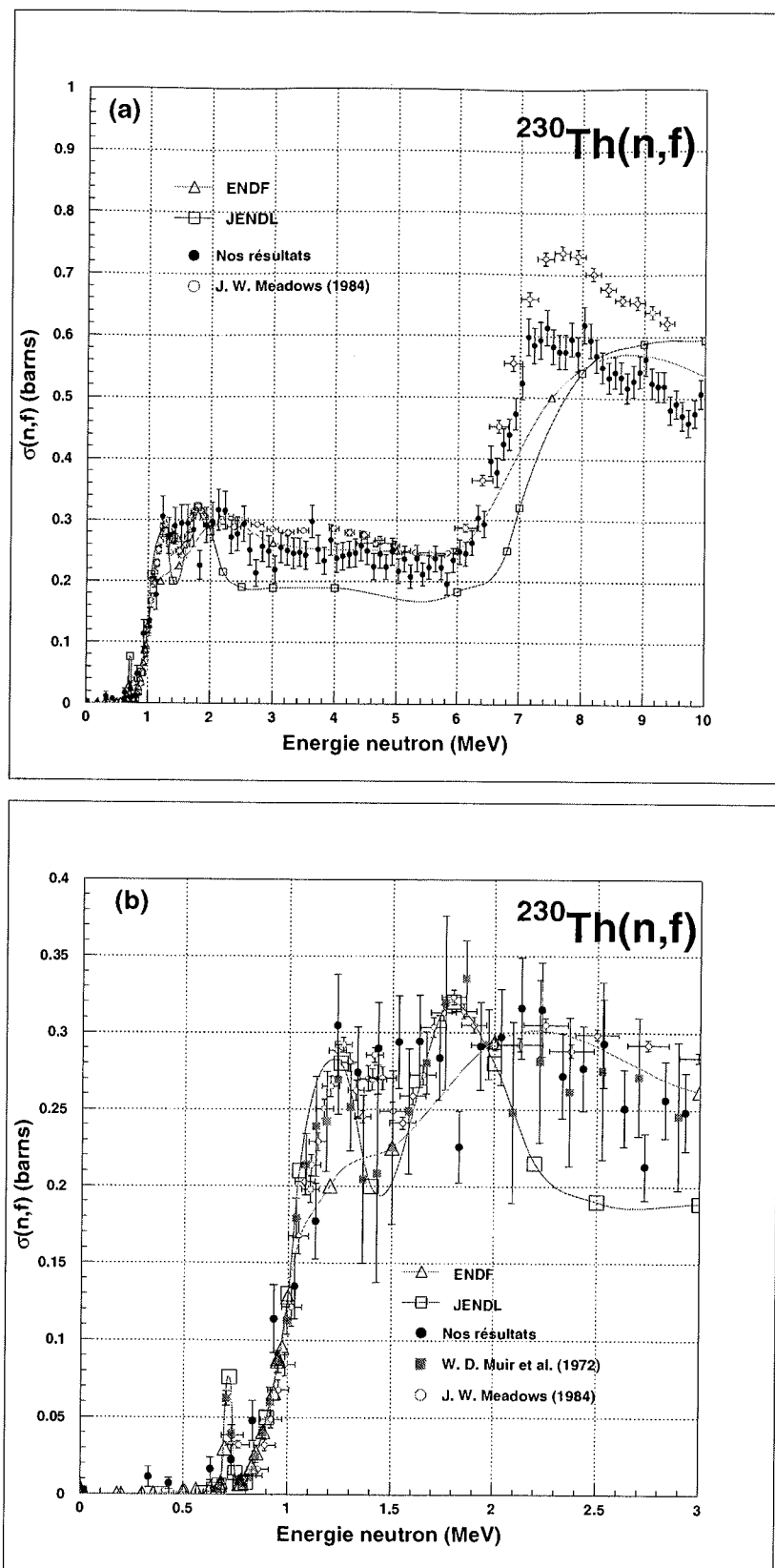


FIG. 4.28: Section efficace de fission du Thorium-230 entre 0 et 10 MeV (a) et 0 et 3 MeV (b)



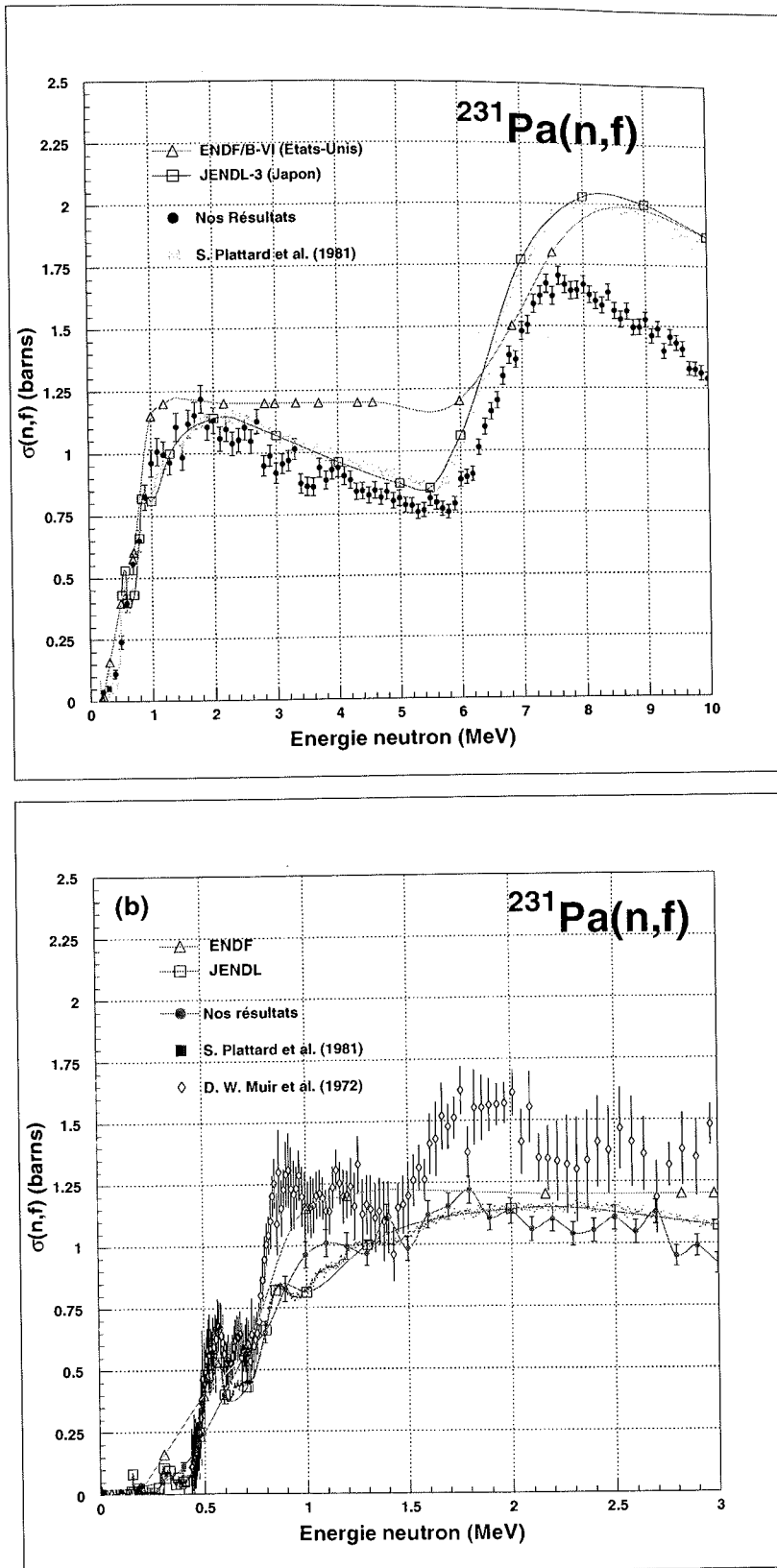


FIG. 4.29: Section efficace de fission du Protactinium-231 entre 0 et 10 MeV (a) et 0 et 3 MeV (b)

très satisfaisante les mesures directes de section efficace de fission des noyaux cibles  $^{230}\text{Th}$  et  $^{231}\text{Pa}$ . Un très bon accord est obtenu en ce qui concerne la détermination des sections efficaces au voisinage du seuil de première chance. cet accord est important puisqu'il montre que les sections efficaces moyennes déterminées par transfert ne dépendent pas ou peu du mécanisme de la réaction utilisée (fission induite par neutron ou par particule légère chargée). S'il existe un effet, il est inférieur aux incertitudes de mesure de la probabilité de fission et du calcul de la section efficace du noyau composé ( $\sigma_{NC}$ ) (10 à 15% au total). Il s'agit donc d'un premier résultat très encourageant qui valide notre approche pour la détermination de la section efficace de fission des isotopes 231 et 233 du Protactinium. Ceci est remarquable puisque la probabilité de fission de ces Actinides légers ne dépasse pas 40%.

La figure (4.30) présente notre détermination de la section efficace de fission de la réaction  $^{233}\text{Pa}(n,f)$  et sa comparaison avec les prédictions calculées des bases de données nucléaires ENDF et JENDL : entre 0 et 6 MeV, l'ordre de grandeur de la section efficace est bien reproduite par JENDL. Néanmoins, le seuil de fission de ce noyau non fissile apparaît à une énergie plus élevée que ne le prévoit cette évaluation. L'évaluation de ENDF est basée principalement sur la section efficace de fission de la réaction  $^{238}\text{U}(n,f)$  après différentes normalisations suivant les gammes d'énergie de neutron. L'évaluation de JENDL provient d'un calcul basé sur les probabilités de fission des  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{233}\text{Pa}$  mesurées par Gavron [GAV76]. Il n'est donc pas surprenant que nos mesures soient plus en accord avec cette dernière évaluation. Entre 6 et 10 MeV, nous assistons à l'ouverture de la fission de seconde chance, les grandes incertitudes entre 7 et 10 MeV reflètent l'écart entre nos deux méthodes pour déterminer les événements simples.

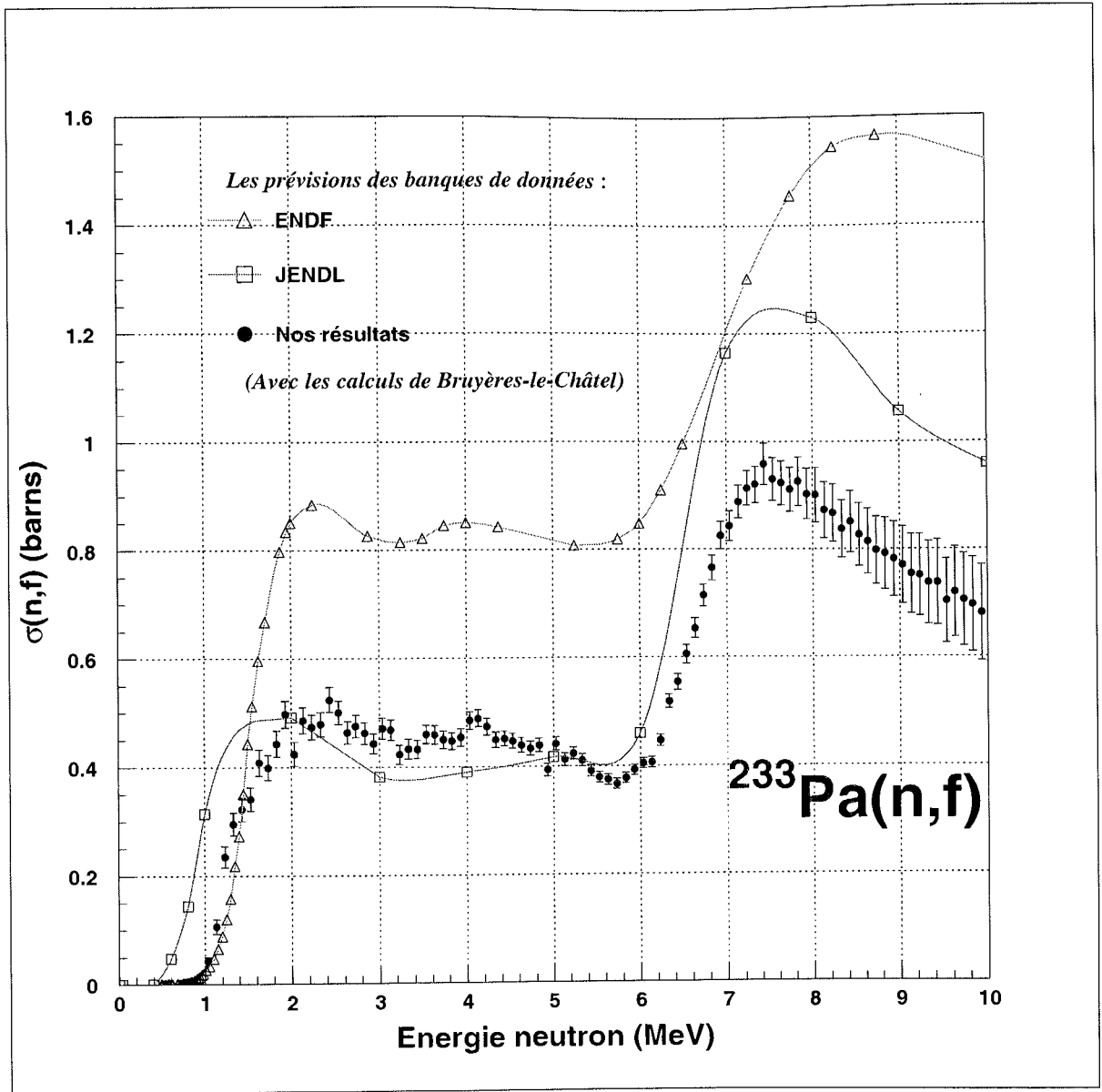


FIG. 4.30: Section efficace de fission du Protactinium-233 entre 0 et 10 MeV

## 4.8 Distribution en masse

L'essentiel de ce travail est basé sur la mesure des probabilités de fission. Néanmoins, la grande efficacité de détection de notre montage et l'arrangement adopté pour la mesure de la distribution angulaire des fragments nous ont permis de détecter simultanément les deux fragments de fission. Cette opportunité nous a donc permis de déterminer les masses et les énergies de ces fragments.

### 4.8.1 Détection en coïncidence des fragments

Dans le système du centre de masse du noyau de recul, les deux fragments de fission sont émis à  $180^\circ$  l'un de l'autre. Cette direction définit l'axe de fission, et c'est la distribution de cet axe de fission autour de l'axe de recul qui définit la distribution angulaire des fragments dans le centre de masse ou dans le laboratoire après la prise en compte des effets cinématiques. Pour les réactions que nous avons utilisées, la vitesse de recul du centre de masse ( $E/A=0.5/234\sim 0.002$  MeV/Nucléon) est très faible devant celle des fragments ( $E/A\sim 1$  MeV/Nucléon). Il est alors raisonnable de penser que les deux fragments conservent encore leur "colinéarité" dans le système du laboratoire. Dans notre montage, les plans de cellules placés respectivement à  $0^\circ$  et  $180^\circ$  de l'axe de recul du noyau fissionnant permettent de détecter simultanément les deux fragments de fission. La géométrie de cette configuration est rappelée sur la figure (4.31).

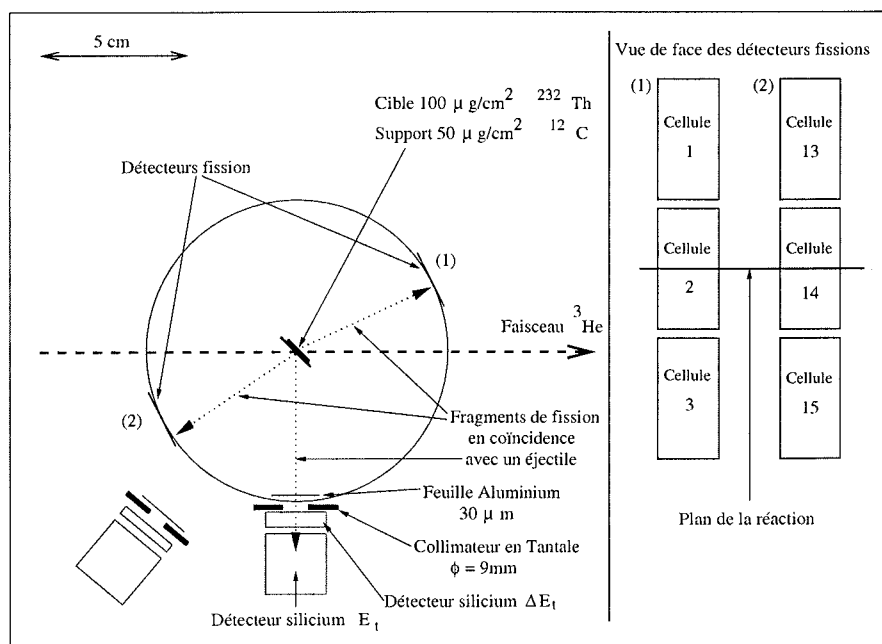


FIG. 4.31: Configuration expérimentale utilisée pour la mesure de distributions en masse des fragments.

## 4.8.2 Constitution des fichiers de traitement

Les fichiers de traitement ont été constitués à partir des données brutes. La sélection des événements est basée sur la triple coïncidence télescope-2cellules avec les conditions sur les trois coïncidences cellules acceptées (cellules 1-15, 2-14 et 3-13). Les temps d'arrivée du signal provenant des cellules ont été sélectionnés pour ne garder que les événements correspondant à une vraie triple coïncidence. Cette double condition sur les temps des cellules ramène le nombre de coïncidences fortuites vers des valeurs négligeables ( $\sim 1\%$ ). Les deux télescopes sont traités séparément. L'ordre des événements dans les fichiers est le même que celui de l'expérience. Les fichiers de données se présentent sous la forme suivante, avec pour chaque événement :

- 1- Numéro d'événement,
- 2- Amplitude du signal du détecteur  $E_t$ ,
- 3- Amplitude du signal du détecteur  $\Delta E_t$ ,
- 4- Numéro de la cellule touchée (plan (1)),
- 5- Amplitude du signal de la cellule (plan (1)),
- 6- Temps d'arrivée du signal de la cellule (plan (1)),
- 7- Numéro de la cellule touchée (plan (2)),
- 8- Amplitude du signal de la cellule (plan (2)),
- 9- Temps d'arrivée du signal de la cellule (plan (2)).

## 4.8.3 Détermination des masses des fragments

La fission est traitée comme une réaction à deux corps. Dans le centre de masse, la conservation de la masse et de l'impulsion s'écrit simplement par les équations (4.23) et (4.24) :

$$M_1 + M_2 = M_{\text{noyau}} \quad (4.23)$$

$$\text{et } M_1 \cdot E_1 = M_2 \cdot E_2 \quad (4.24)$$

La mesure des énergies des fragments  $E_1$  et  $E_2$  permet donc de déterminer, en principe, les masses  $M_1$  et  $M_2$  des fragments. Néanmoins, l'évaporation de neutrons par les fragments empêche d'utiliser directement ces relations de conservation. En effet, cette émission de neutrons intervenant quelques  $10^{-14}$  s après la scission, elle va avoir un triple effet : elle modifie la direction et la vitesse des fragments et elle diminue leur masse. Cette

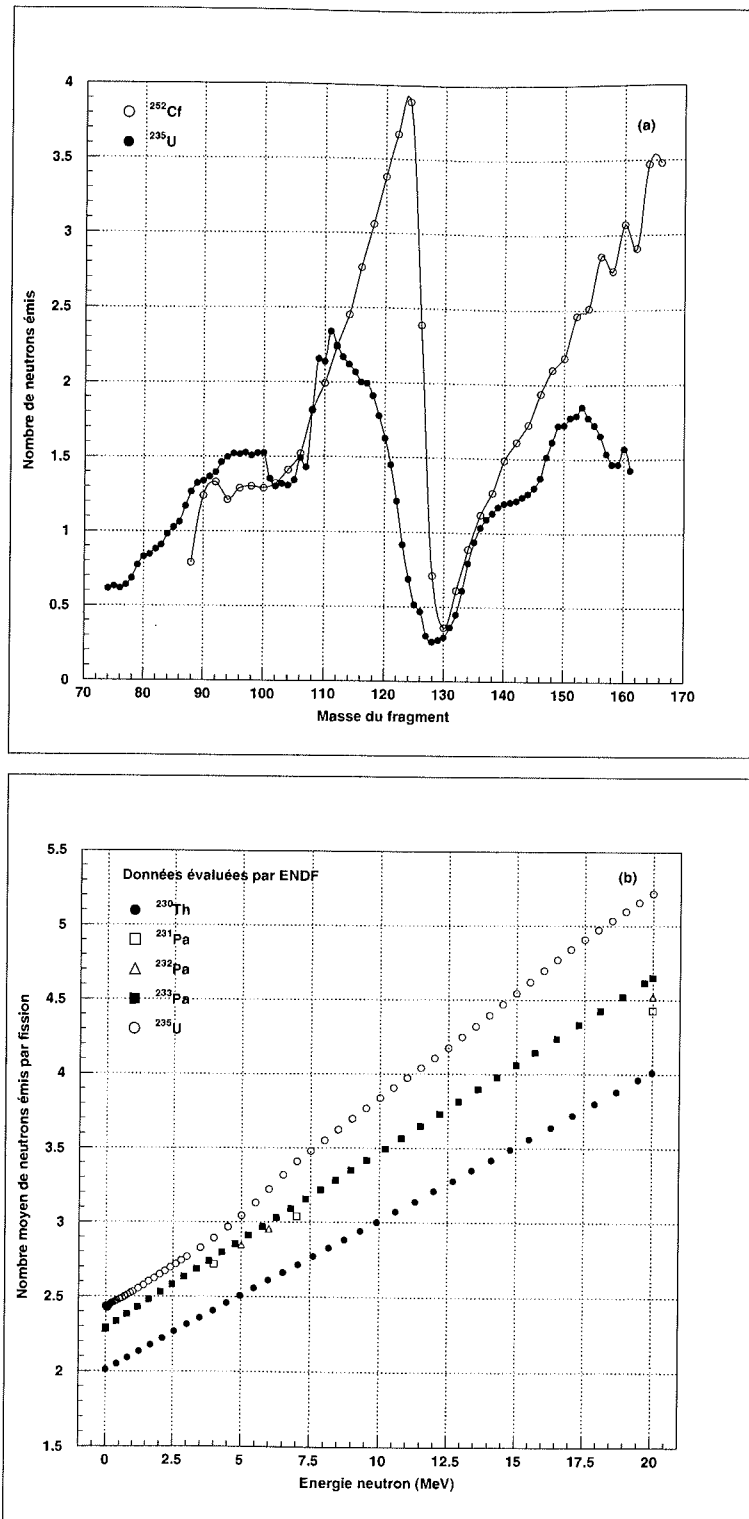


FIG. 4.32: (a) Nombre de neutrons moyen émis en fonction de la masse des fragments issus de la fission des noyaux  $^{235}\text{U}$  [APA65] (fission induite par neutron thermique) et  $^{252}\text{Cf}$  [WAL77] (fission spontanée). (b) Nombre moyen  $\bar{\nu}$  de neutrons émis par fission en fonction de l'énergie du neutron ayant provoqué cette fission [NNDC]

émission de neutrons est un phénomène bien connu de la fission qui a été étudié avec précision pour plusieurs systèmes ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  [APA65] et  $^{252}\text{Cf}$  [WAL77] par exemple). C'est le cas du nombre moyen de neutrons prompts émis par fragment  $\nu(M)$ , que nous avons reproduit sur la figure (4.32). On constate que la variation relative de  $\nu(M)$  est la même pour tous les systèmes fissionnants considérés. Nous avons utilisé cette propriété pour construire la fonction  $\nu(M)$  pour trois isotopes du Protactinium que nous avons observés dans ce travail. Les données de la fission de l'Uranium-235 ont été utilisées comme valeurs de référence.

Pour la variation du nombre moyen de neutrons  $\bar{\nu}(E^*)$  en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant, nous avons utilisé les prévisions de la banque de données ENDF pour le noyau  $^{233}\text{Pa}$  (figure 4.32). Faute de données expérimentales complètes, nous avons supposé que ces prévisions restaient valables pour les trois isotopes du Protactinium ( $^{232}\text{Pa}$ ,  $^{233}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{Pa}$ ).

Avant d'exposer notre méthode de calcul, nous allons présenter les corrections prises en compte.

### Correction des pertes d'énergies dans le support en carbone

Cette correction est calculée à partir de tables de pertes d'énergies [HUB90]. Un tableau de ces pertes d'énergies est constitué en fonction de l'épaisseur de matière traversée, de la masse et de l'énergie du fragment. Ce tableau est lu par le programme de traitement qui va calculer la perte d'énergie correspondante.

### Correction de l'effet d'entraînement du noyau

L'effet d'entraînement du noyau est représenté sur la figure (4.33). Il modifie l'énergie des fragments entre le référentiel du laboratoire dans lequel ceux-ci sont détectés et celui du centre de masse qui donne les informations physiques.

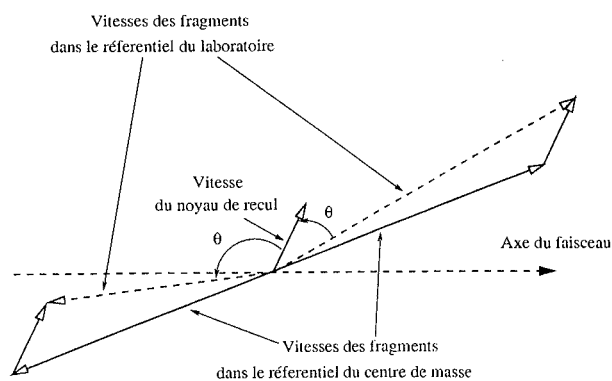


FIG. 4.33: Effet cinématique dû à l'entraînement du noyau

Le passage du référentiel du laboratoire à celui du centre de masse s'effectue à partir de la formule :

$$E_{cm} = E_{lab} \cdot (1 + K_p^2 - 2 \cdot K_p \cdot \cos(\theta)), \quad (4.25)$$

où  $\cos(\theta)$  est l'angle entre la direction du noyau de recul et la direction de détection du fragment de fission dans le référentiel du laboratoire.

La valeur de  $K_p$  est donnée par la formule (4.26) :

$$K_p = \frac{V_{recul}}{V_{fragment}} = \sqrt{\frac{E_{recul}}{m_{recul}} \cdot \frac{m_{fragment}}{E_{fragment}}}. \quad (4.26)$$

Les calculs de la vitesse et de la direction du noyau de recul ont été effectués à partir des informations apportées par l'éjectile (équations 3.8 à 3.15). Pour le calcul de la direction du fragment de fission dans le référentiel du laboratoire, nous avons utilisé notre mesure de la distribution angulaire et notre programme de simulation pour déterminer la direction moyenne des fragments arrivant sur chaque cellule. La correction due à l'effet cinématique est importante et atteint 4 à 8 MeV.

### Réponse en amplitude des cellules

La figure (4.34) présente les spectres en amplitude délivrés par les six cellules en coïncidence au cours de la première (a) et la seconde (b) moitié de l'expérience. On distingue le spectre caractéristique des fragments de fission : deux pics associés respectivement aux fragments lourds et légers d'amplitude moyenne  $P_H$  et  $P_L$ . On notera que ces amplitudes moyennes ont variés au cours de la mesure. Ces variations résultent du bombardement intense des particules  $^3\text{He}$  diffusées et des fragments de fissions reçus par les cellules. Le flux intégré de ces particules s'élève à environ  $10^9$  pour les trois cellules placées à  $0^\circ$  par rapport à l'axe de recul, et à quelques  $10^7$  pour les trois cellules placées à  $180^\circ$  par rapport à l'axe du noyau de recul. Cette irradiation a provoqué une détérioration de la réponse des cellules qui s'est traduite par une dérive dont nous avons pu suivre l'évolution au cours de la mesure, à l'exception de la cellule 2 et de sa complémentaire (cellule 14) que nous avons exclues de cette analyse. La figure (4.35) présente le déplacement dans le temps ( $\Delta t \simeq 2.5$  heures) des amplitudes moyennes des fragments lourds ( $P_H$ ) et légers ( $P_L$ ) délivrées par les couples de cellules 1-15 et 3-13. Ces dérives ont été corrigées événement par événement pour ramener la réponse des cellules au début des mesures ( $P_H(t=0)$  et  $P_L(t=0)$ ). Cette correction est effectuée à partir de la transformation suivante (4.27) :

$$X_{cor} = P_H(t=0) - \frac{P_L(t=0) - P_H(t=0)}{P_L(t) - P_H(t)} (X_{ncor} - P_H(t)) \quad (4.27)$$



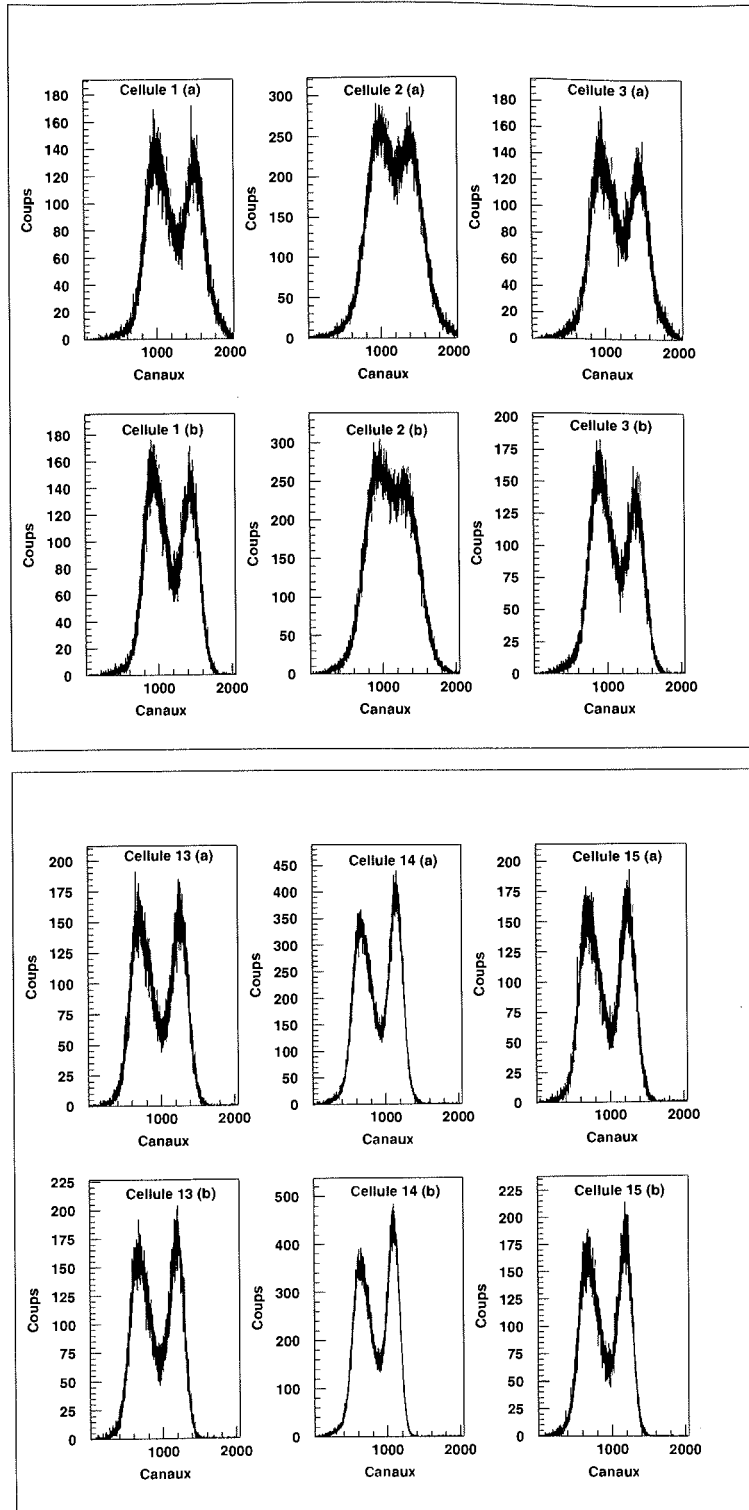


FIG. 4.34: Spectres en amplitudes délivrés par les six cellules en coïncidence durant la première (a) et la seconde (b) moitié de l'expérience.

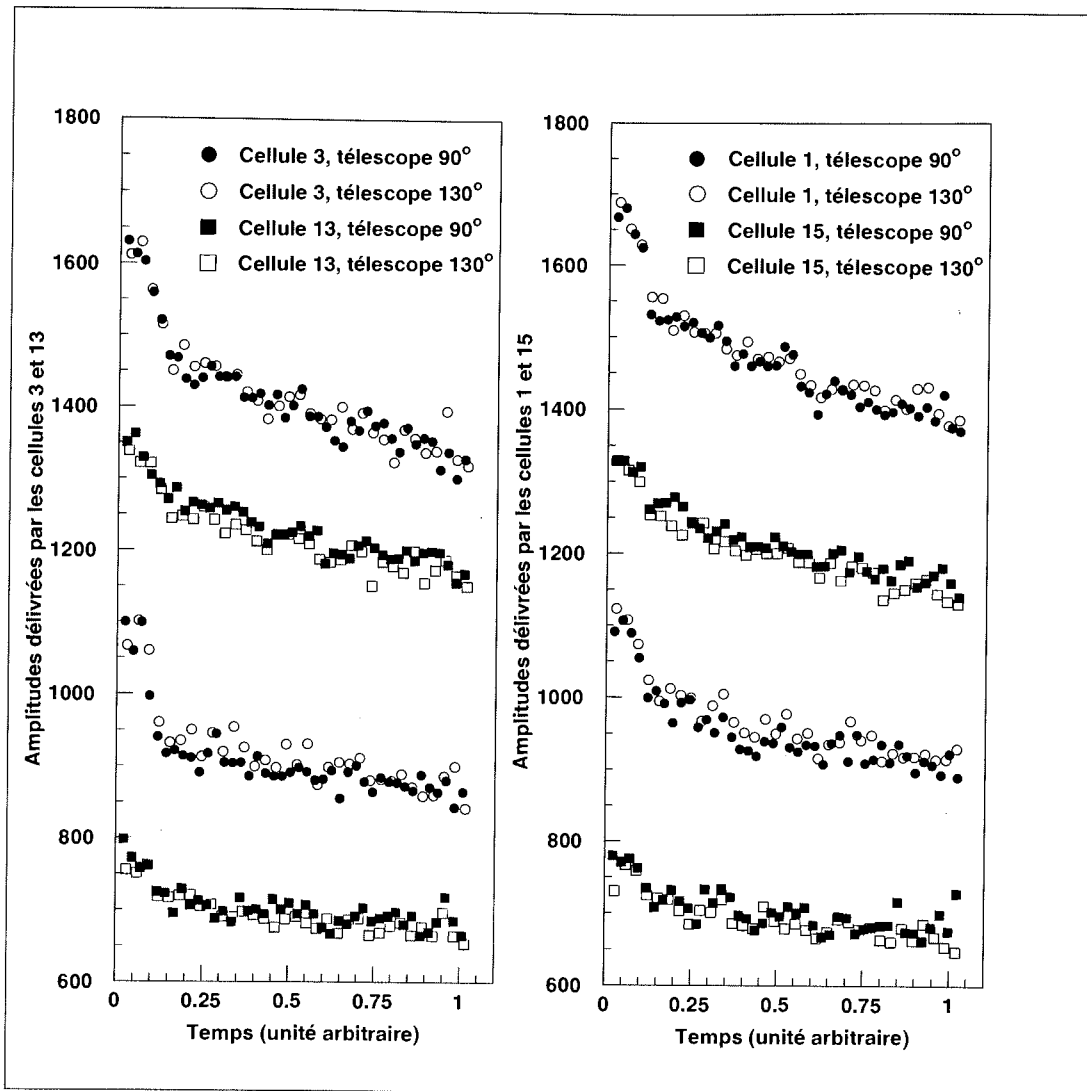


FIG. 4.35: Dérive en amplitude des quatre cellules utilisées pour les mesures de distribution en masse. Les dérives en amplitudes sont présentées pour les fragments lourds et légers.

## Méthode de calcul des masses

Les cellules ont été calibrées en énergie (avant et après l'expérience) à partir d'une source mince de  $^{252}\text{Cf}$  (b). La méthode utilisée pour cette calibration a été présentée au chapitre 3. Nous rappelons que la réponse en amplitude des cellules dépend de la masse et de l'énergie du fragment. Cette calibration est introduite dans le calcul itératif présenté sur l'organigramme (4.36).

Le calcul est amorcé à partir d'une première calibration en énergie indépendante des masses (c). Cette calibration est obtenue à partir des énergies moyennes des fragments du  $^{252}\text{Cf}$ . De ces énergies, on déduit les masses approchées des fragments. Ces masses sont utilisées pour recalculer les énergies des fragments (d) que l'on corrige des pertes d'énergies dans la cible (e). Les énergies dans le centre de masse sont calculées à partir de la relation (4.25) (f). Les masses ( $m1$  et  $m2$ ) avant émission de neutrons sont ensuite déduites à partir de leurs énergies (équations 4.23 et 4.24) (g). Le nombre moyen de neutrons émis par chaque fragment ( $n1$  et  $n2$ ) est lu dans le fichier correspondant. On en déduit les masses après émission de neutrons ( $m1p$  et  $m2p$ ) (h), qui sont comparées (i) aux masses de départ ( $m1p0$  et  $m2p0$ ). Si l'écart est supérieur à 0.1 U.M.A, ces masses (j) sont réintroduites dans (d). En moyenne, 4 à 5 itérations sont suffisantes pour remplir la condition de convergence.

### 4.8.4 Présentation des résultats

Les distributions en masse et en énergie des fragments de fission des noyaux fissionnants  $^{234}\text{Pa}$ ,  $^{233}\text{Pa}$ ,  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{231}\text{Th}$  en fonction de leur énergie d'excitation ont été déterminées. Le tableau (4.3) regroupe pour chaque télescope le nombre d'événements retenus en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant. Les voies les plus alimentées sont celles conduisant aux noyaux  $^{234}\text{Pa}$  et  $^{233}\text{Pa}$ . Pour ces deux noyaux, les distributions en masse des fragments ont pu être établies pour des énergies d'excitation comprises entre 0 et 30 MeV. La forme de ces distributions évolue peu avec la nature du système fissionnant. La figure (4.37, (a) et (b)) présente la distribution en masse (avant émission de neutrons) des noyaux  $^{234}\text{Pa}$  et  $^{233}\text{Pa}$  en fonction de leur énergie d'excitation. C'est la première fois que ces distributions sont déterminées. On remarque que ces distributions sont asymétriques et le restent jusqu'à 30 MeV d'énergie d'excitation avec ( $M_H \sim 138$  et  $M_L \sim 94$ ). La contribution de la fission symétrique augmente quand l'énergie d'excitation croît puisque le rapport des rendements mesurés au sommet de la fission asymétrique et dans la vallée de la fission symétrique (rapport  $P/V$ ) passe de 12 à 3.2 pour des énergies d'excitation allant de 10 MeV à 30 MeV. On retrouve ici un phénomène bien connu de la fission des noyaux de la région Thorium-Uranium.

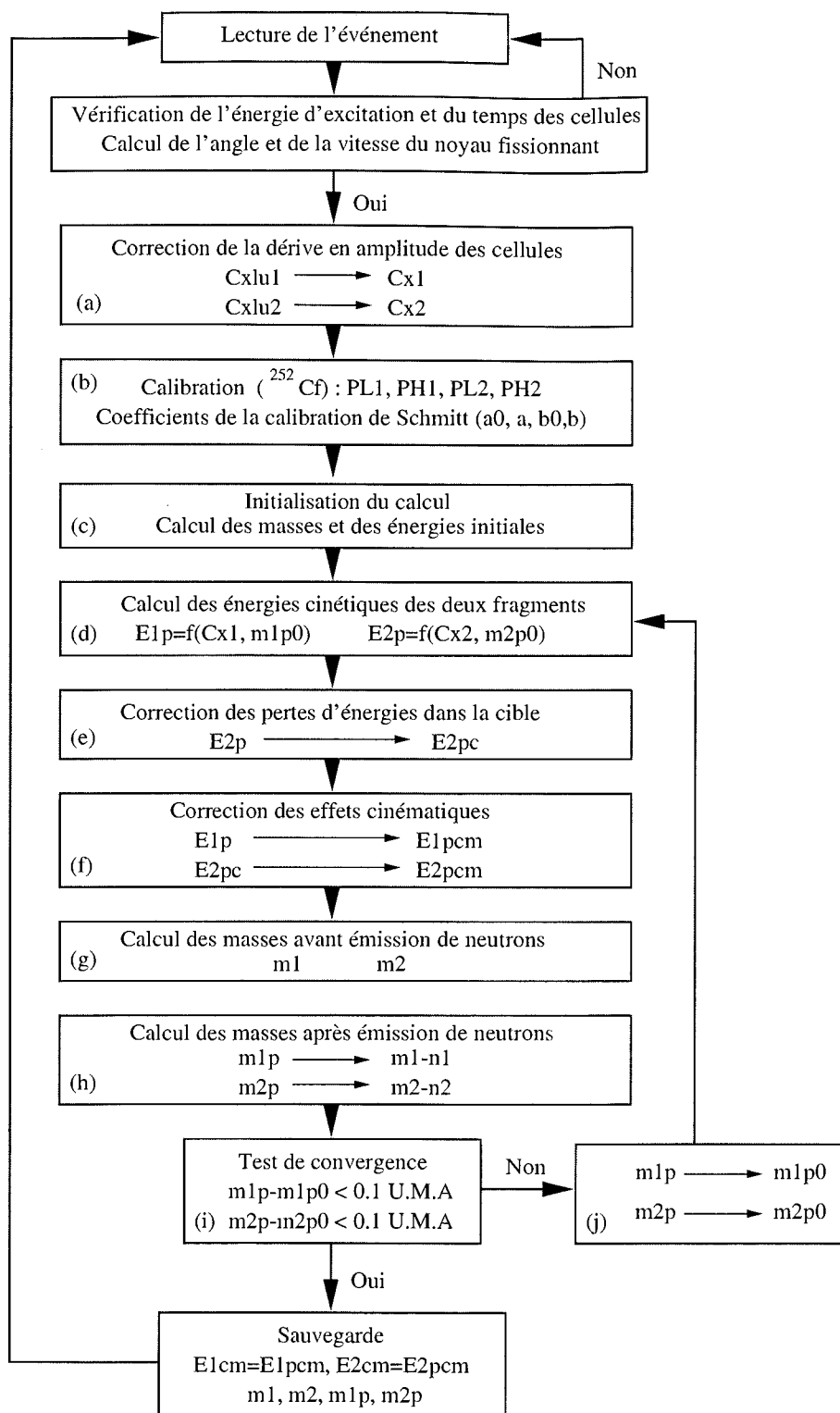


FIG. 4.36: Organigramme du calcul des masses

Nous avons rassemblé dans le tableau (4.4) les valeurs moyennes des distributions en énergie cinétique totale ( $E1 + E2$ ) et en masse de tous les systèmes fissionnants observés dans ce travail. Dans la gamme d'énergie d'excitation où nous avons formé les différents noyaux, leur distribution en masse se fait de manière asymétrique. On remarquera que la masse moyenne du fragment lourd reste constante alors que la masse moyenne du fragment léger augmente avec la masse du noyau fissionnant. Ce comportement est en bon accord avec la systématique de Flynn [FLY72] présentée sur la figure (4.38). En raison de la faible statistique et des caractéristiques de l'expérience, nos résultats présentent des incertitudes beaucoup plus importantes que les autres mesures réalisées par radiochimie.

Coïncidence cellules	télescope	Exc 0-10 MeV	Exc 10-15 MeV	Exc 15-20 MeV	Exc 20-25 MeV	Exc 25-30	noyau
3-13	90°	908	10791	36093	31217	830	<sup>234</sup> Pa
1-15	90°	867	10879	36067	31452	3154	<sup>234</sup> Pa
3-13	130°	466	5738	24511	27548	844	<sup>234</sup> Pa
1-15	130°	376	5948	24773	27870	3151	<sup>234</sup> Pa
3-13	90°	5650	17492	12754	5	0	<sup>233</sup> Pa
1-15	90°	5516	17290	6625	525	0	<sup>233</sup> Pa
3-13	130°	1516	5715	12747	5	0	<sup>233</sup> Pa
1-15	130°	1611	5694	6680	517	0	<sup>233</sup> Pa
3-13	90°	806	2993	1610	0	0	<sup>232</sup> Pa
1-15	90°	794	2784	1733	23	0	<sup>232</sup> Pa
3-13	130°	324	1715	1569	0	0	<sup>232</sup> Pa
1-15	130°	338	1665	1598	40	0	<sup>232</sup> Pa
3-13	90°	224	749	411	0	0	<sup>231</sup> Th
1-15	90°	207	210	390	246	0	<sup>231</sup> Th
3-13	130°	53	799	336	0	0	<sup>231</sup> Th
1-15	130°	49	217	309	302	0	<sup>231</sup> Th

TAB. 4.3: Statistique disponible pour les mesures de distribution en masse.

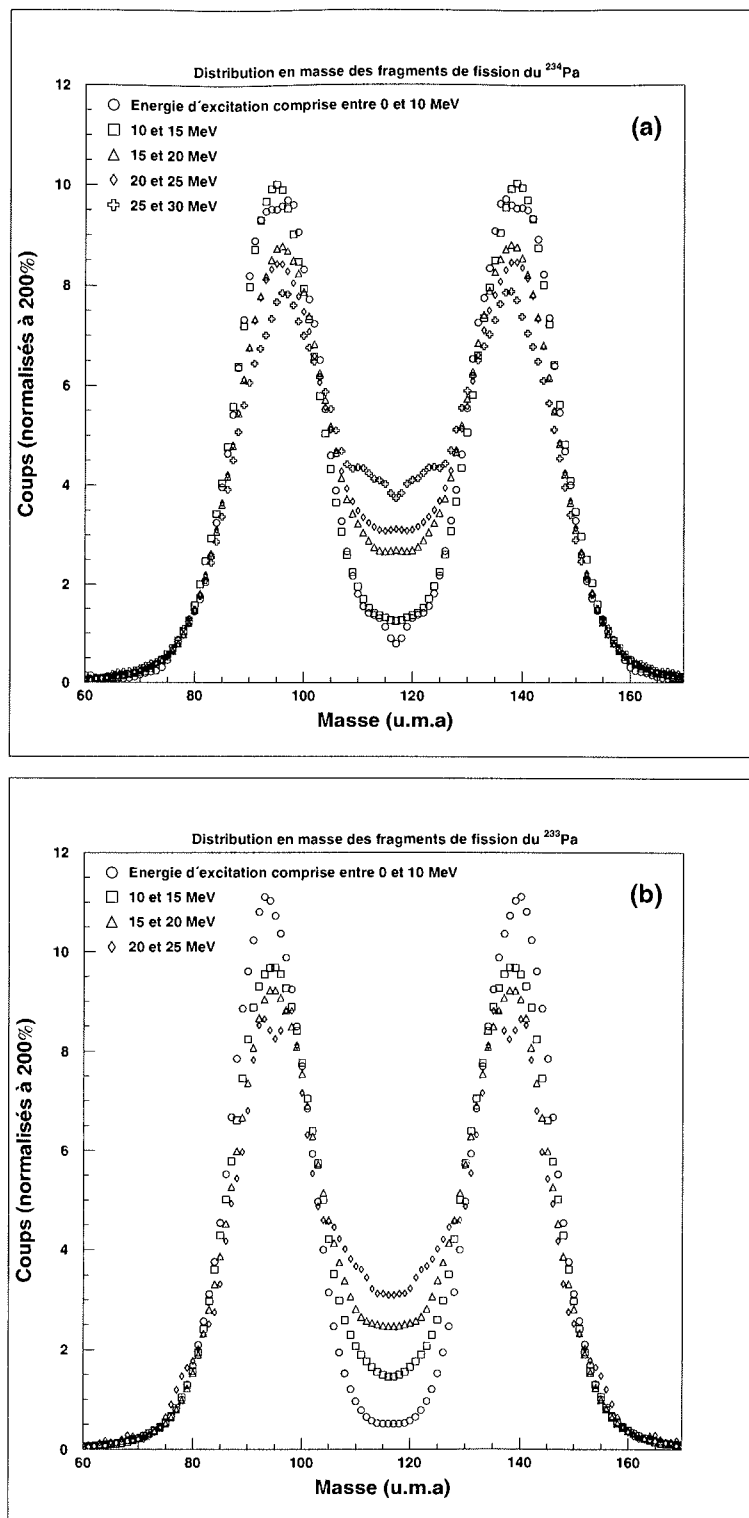


FIG. 4.37: Distributions en masse du  $^{234}\text{Pa}$ (a) et  $^{233}\text{Pa}$ (b) avant émission de neutrons pour différents domaines d'énergie d'excitation.

Noyau	Exc (MeV)	masse <sub>L</sub> (U.M.A)	masse <sub>H</sub> (U.M.A)	P/V	E <sub>L</sub> (MeV)	E <sub>H</sub> (MeV)	Etot (MeV)
<sup>234</sup> Pa	0-10	95.7±3.9	138.3±3.9	9.9±3.6	65.2±4.6	99.0±1.8	165.7±6.8
<sup>234</sup> Pa	10-15	95.4±1.2	138.6±1.2	7.6±0.7	65.1±2.7	99.0±1.1	165.4±1.9
<sup>234</sup> Pa	15-20	97.5±1.6	136.5±1.6	3.2±0.1	65.2±3.6	99.0±0.7	164.2±2.1
<sup>234</sup> Pa	20-25	97.7±2.3	136.3±2.3	2.7±0.1	65.2±3.6	99.0±0.7	164.0±2.1
<sup>234</sup> Pa	25-30	99.1±4.2	134.9±3.7	1.9±0.3	65.2±6.6	99.0±10.	163.8±5.1
<sup>234</sup> Pa	0-30	97.4±1.6	136.6±1.5	3.2±0.1	65.2±0.6	99.0±0.8	164.2±0.1
<sup>233</sup> Pa	0-10	94.0±1.3	139.0±1.3	20.9±4.2	65.0±1.6	99.1±1.5	165.4±2.3
<sup>233</sup> Pa	10-15	95.4±1.4	137.6±1.4	6.4±0.5	65.1±2.2	99.0±0.7	164.4±2.7
<sup>233</sup> Pa	15-20	96.6±2.1	136.4±2.1	3.6±0.2	65.1±3.6	99.0±1.2	163.9±1.6
<sup>233</sup> Pa	20-25	97.5±4.0	135.5±4.0	2.7±1.1	65.3±8.0	98.9±3.2	162.9±3.6
<sup>233</sup> Pa	0-25	95.6±1.6	137.4±1.5	5.5±0.3	65.1±2.2	99.0±0.5	164.3±0.9
<sup>232</sup> Pa	0-10	93.5±3.4	138.5±3.5	22.±11.	65.1±1.9	99.0±1.9	165.4±6.8
<sup>232</sup> Pa	10-15	94.2±1.5	137.8±1.5	7.7±1.4	65.1±2.9	100.0±2.1	164.6±5.6
<sup>232</sup> Pa	15-20	95.7±2.7	136.3±2.7	3.0±0.5	65.0±3.9	99.0±1.4	163.7±2.7
<sup>232</sup> Pa	0-20	94.8±0.6	137.2±0.4	5.5±0.6	65.0±0.5	99.0±1.3	164.3±3.5
<sup>231</sup> Th	0-10	92.6±4.9	138.4±4.9	9.1±3.2	65.0±7.1	99.0±3.3	163.0±12.3
<sup>231</sup> Th	10-15	92.0±3.8	139.0±3.8	9.8±2.0	64.0±3.0	99.0±1.8	162.7±7.4
<sup>231</sup> Th	15-20	94.7±5.4	136.3±4.6	3.1±1.1	65.0±6.3	98.8±2.7	161.4±2.1
<sup>231</sup> Th	0-20	93.3±2.5	137.7±2.4	5.5±1.1	64.1±1.2	99.0±2.3	162.4±2.1

TAB. 4.4: Résultats des distributions en masse des fragments avant émission de neutron.

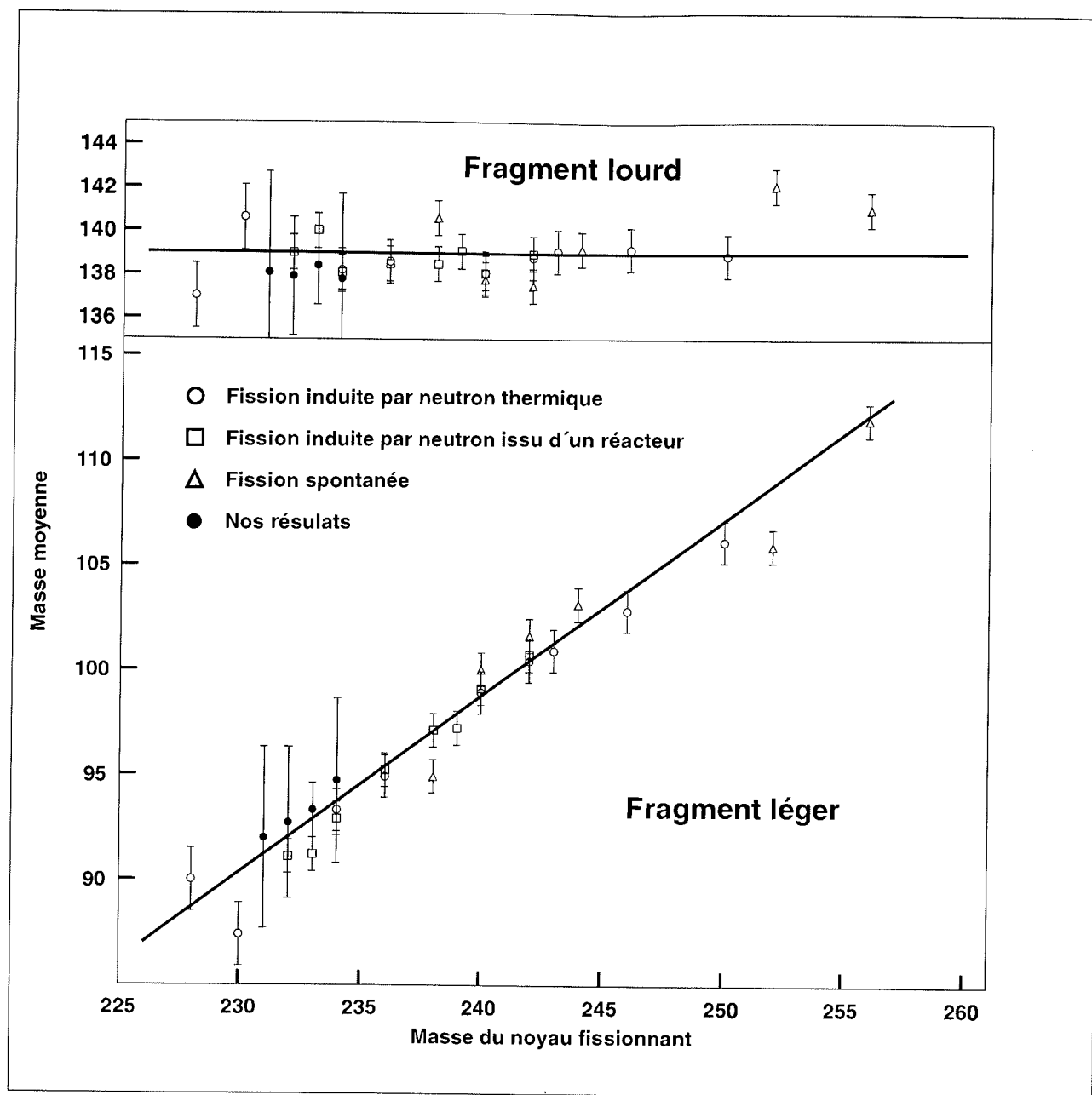


FIG. 4.38: Masse moyenne des fragments légers et lourds après émission de neutrons en fonction de la masse du noyau fissionnant.



# Chapitre 5

## Interprétation des résultats

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Section efficace de formation du noyau composé . . . . .</b>	<b>140</b>
<b>5.2</b>	<b>Déexcitation du noyau composé . . . . .</b>	<b>144</b>
5.2.1	Déexcitation du noyau composé par émission d'un neutron . . . . .	144
5.2.2	Déexcitation du noyau composé par émission gamma . . . . .	145
<b>5.3</b>	<b>Probabilité de fission . . . . .</b>	<b>146</b>
<b>5.4</b>	<b>Les densités de niveaux . . . . .</b>	<b>149</b>
5.4.1	Définition des effets de couches utilisés dans ce travail. . . . .	154
5.4.2	Structure des densités de niveaux en fonction de la déformation du noyau. . . . .	157
<b>5.5</b>	<b>Détermination des barrières de fission . . . . .</b>	<b>158</b>
<b>5.6</b>	<b>Détermination des sections efficaces <math>^{233}\text{Pa}(n,n')</math> et <math>^{233}\text{Pa}(n,\gamma)</math></b>	<b>162</b>

---

Dans ce dernier chapitre, nous présentons l'analyse théorique de la section efficace de fission de première chance du  $^{233}\text{Pa}$  ( $En < 5.5$  MeV). Le but de cette analyse est la détermination des barrières de fission du noyau fissionnant  $^{234}\text{Pa}$  inconnues jusqu'à ce jour. Notre approche se situe dans le cadre de la formation du noyau composé puis de sa fission. Le calcul des différentes voies de déexcitation du noyau composé  $^{234}\text{Pa}$  a été effectué à partir du formalisme de Hauser-Feshbach [HAU52].

Nous supposons que la fission se produit en deux étapes qui comprennent la formation du noyau composé puis sa déexcitation par émission  $\gamma$  (capture) ou par émission d'un neutron (diffusion inélastique) ou encore par fission. La section efficace de fission peut s'écrire alors sous la forme [BAR77]:

$$\sigma_F(E_n) = \sigma_{NC}(E_n) \cdot \sum_{J,\pi} \left[ \alpha(E_n, J, \pi) \cdot \frac{\Gamma_f^{J,\pi}(E_n)}{\Gamma_f^{J,\pi}(E_n) + \Gamma_\gamma^{J,\pi}(E_n) + \Gamma_n^{J,\pi}(E_n)} \right], \quad (5.1)$$

(i) où  $\sigma_{NC}(E_n)$  est la section efficace de formation du noyau composé  $^{234}\text{Pa}$  à l'énergie incidente de neutron  $E_n$ .

(ii)  $\alpha(E_n, J, \pi)$  décrit la distribution des états  $(J, \pi)$  du noyau composé, et

(iii)  $\Gamma_f^{J,\pi}(E_n)$ ,  $\Gamma_\gamma^{J,\pi}(E_n)$ ,  $\Gamma_n^{J,\pi}(E_n)$  représentent les largeurs moyennes de désexcitation associées respectivement aux voies de sortie fission, capture et émission de neutron.

## 5.1 Section efficace de formation du noyau composé

Dans cette partie, nous allons préciser le formalisme utilisé pour calculer la section efficace de formation du noyau composé :  $\sigma_{NC}$ .

Soit A-1 le noyau cible de spin  $\vec{s}_c$  de projection  $m_c$  et de parité  $\pi_c$ .

Le neutron incident présente un spin intrinsèque  $\vec{s}_n=1/2$ , de projection  $m_n$  et de parité  $\pi_n=+1$ . Par rapport à la cible, ce neutron présente un moment orbital  $\vec{\ell}$  dont la projection sur l'axe du faisceau (axe de quantification) est  $m_\ell = 0$ .

Le moment angulaire total transféré par le neutron est  $\vec{j} = \vec{\ell} + \vec{s}_n$  avec  $m_j = m_n$ . La probabilité de trouver le neutron dans l'état  $|jm_j\rangle$  en couplant les états  $(\ell; m_\ell)$  et  $(s_n; m_n)$  est donnée par le carré du coefficient de Clebsch-Gordan  $\langle \ell 0 s_n m_n | jm_j \rangle^2$ . Pour des neutrons dans l'état  $|jm_j\rangle$ , la section efficace de formation du noyau composé s'écrit :

$$\sigma_{NC}(s_n m_n \pi_n j) = \pi \lambda^2 \sum_{\ell} T_{\ell}^j(E_n) (2\ell + 1) \langle \ell 0 s_n m_n | jm_j \rangle^2. \quad (5.2)$$

Les  $T_{\ell}^j$  sont les coefficients de transmission pour des neutrons d'énergie  $E_n$  et de longueur d'onde réduite  $\lambda$ . La probabilité de former le noyau composé dans l'état de moment angulaire  $|JM\rangle$  par couplage des états  $|jm_n\rangle$  (neutron) et  $|s_c m_c\rangle$  (cible) est donnée par :  $\langle jm_n s_c m_c | JM \rangle^2$ , avec  $M = m_n + m_c$  et  $|j - s_c| < J < |j + s_c|$ .

Les neutrons incidents et la cible ne sont pas polarisés. Les deux sous-états magnétiques du neutron ( $m_n = \pm 1/2$ ) sont donc également probables ainsi que les différents sous-états magnétiques  $m_c$  du noyau cible ; on peut donc effectuer une moyenne sur ces différentes possibilités [SIC76] :

$$\sigma_{NC}(JM\pi) = \frac{\pi \lambda^2}{(2s_n + 1)(2s_c + 1)} \cdot \sum_{\ell} \left[ (2\ell + 1) \cdot \delta(\pi_n, \pi_c, (-1)^{\ell}, \pi) \right].$$

$$\left. \sum_j T_\ell^j \sum_{m_n} \langle \ell m_\ell s_n m_n | j m_n \rangle^2 \sum_{m_c} \langle j m_n s_c m_c | J M \rangle^2 \right]. \quad (5.3)$$

Les sommations sur  $j$  et  $m_n$  sont effectuées en tenant compte des valeurs particulières des coefficients Clebsch-Gordan. La section efficace de formation du noyau composé est alors donnée par l'expression :

$$\begin{aligned} & \langle \sigma_{NC}(E^*, J, M, \pi) \rangle = \\ & \frac{\pi \lambda^2}{2(2s_c + 1)} \left( T_o^{\frac{1}{2}}(En) \cdot \delta(\pi_c, \pi) \cdot \delta\left(|s_c - \frac{1}{2}| \leq J \leq |s_c + \frac{1}{2}|\right) \right. \\ & + \sum_{\ell=0} \delta(\pi_c, (-1)^\ell, \pi) \cdot \left( (\ell + 1) \cdot T_\ell^{\ell + \frac{1}{2}}(En) \cdot \sum_{m_n m_c} \langle (\ell + \frac{1}{2}) m_n s_c m_c | J M \rangle^2 \right. \\ & \left. \left. + \ell \cdot T_\ell^{\ell - \frac{1}{2}}(En) \cdot \sum_{m_n m_c} \langle (\ell - \frac{1}{2}) m_n s_c m_c | J M \rangle^2 \right) \right) \quad (5.4) \end{aligned}$$

Les fonctions  $\delta$  qui apparaissent dans ces expressions assurent la conservation du spin et de la parité. Les coefficients de transmission  $T_\ell^{j=\ell \pm 1/2}(En)$  que nous avons utilisés sont ceux calculés par le groupe de physique théorique de Bruyères-le-Châtel. Ces coefficients sont présentés sur les figures (5.1) pour le noyau composé  $^{234}\text{Pa}$ .

La section efficace totale de formation du noyau composé est donnée par la relation :

$$\langle \sigma_{NC}(En) \rangle = \sum_{J, \pi} \sum_{M=-J}^{+J} \langle \sigma_{NC}(En, J, M, \pi) \rangle \quad (5.5)$$

Sa variation en fonction du spin  $J$  et de parité  $\pi$  avec l'énergie des neutrons incidents est présentée sur la figure (5.2) où sont tracées les contributions des différentes valeurs du moment angulaire total  $J$  en fonction de l'énergie du neutron incident ( $En$ ).

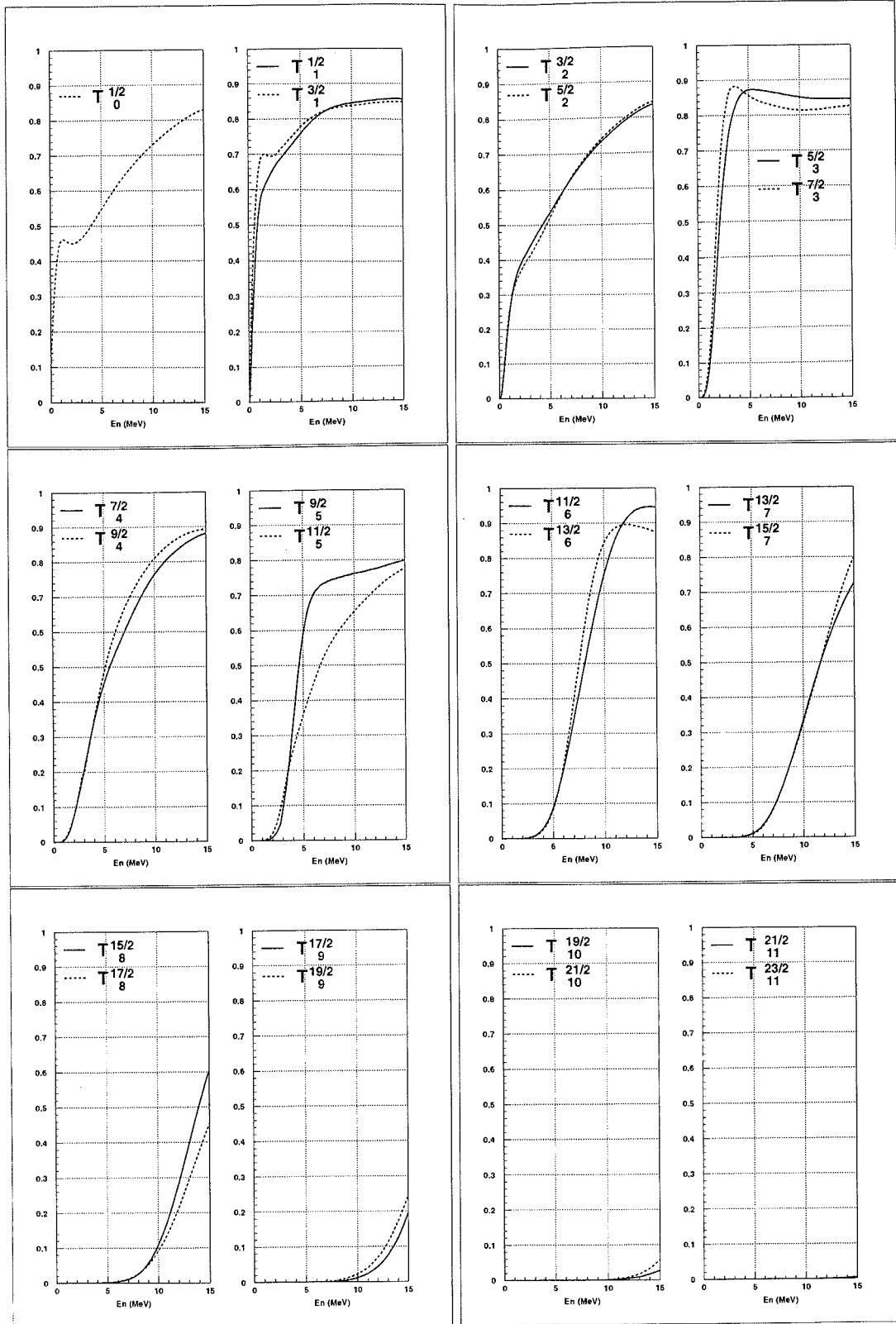


FIG. 5.1: Coefficients de transmission  $T_l^j(En)$  du noyau composé Protactinium-234 d'après les calculs de Bruyères-le-Châtel

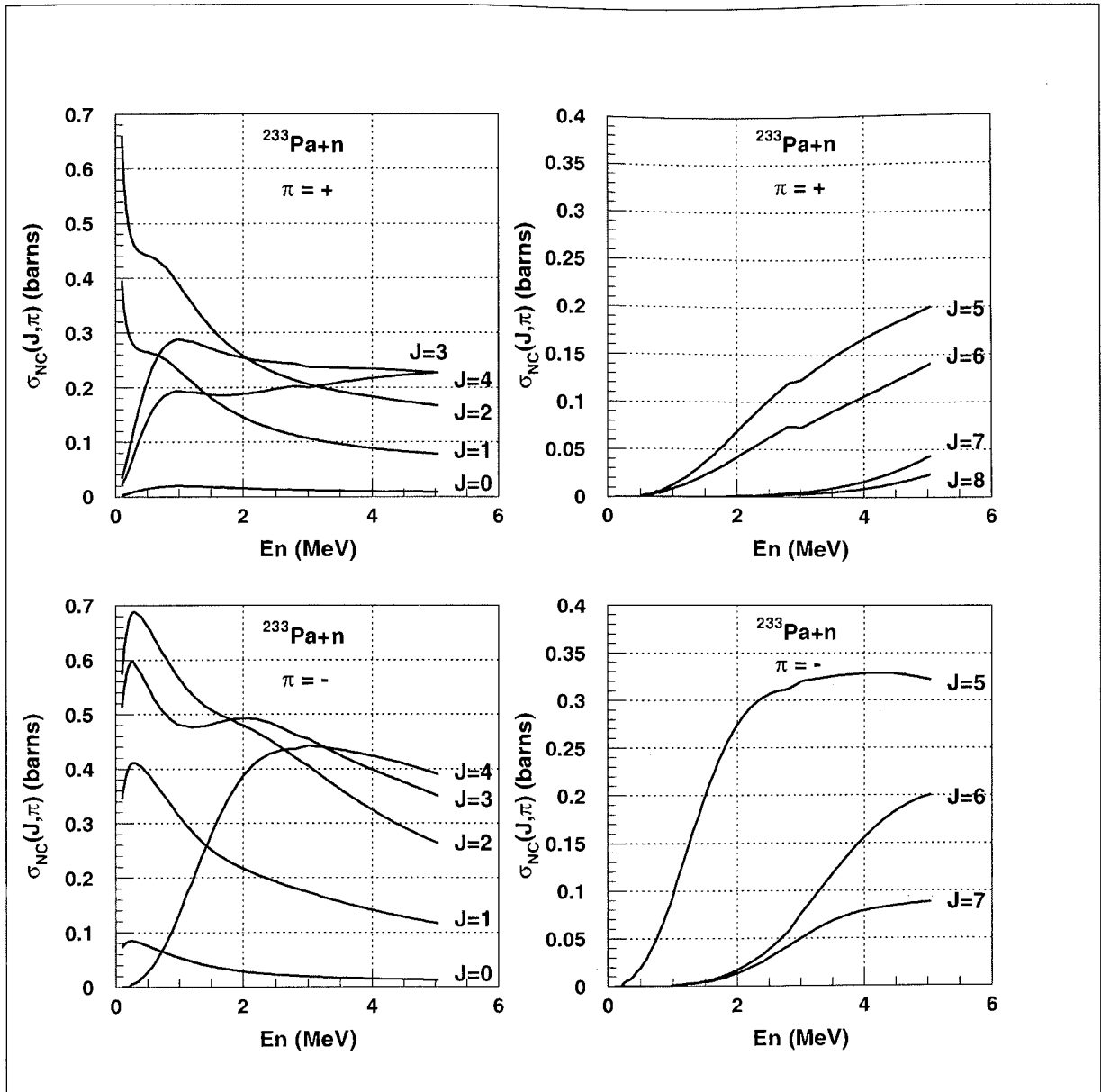


FIG. 5.2: Contribution des différentes valeurs du moment angulaire total  $J$  dans la section efficace de formation du noyau composé du Protactinium-234 pour des énergies de neutrons incidents comprises entre 0 et 5 MeV. Le moment angulaire et la parité de l'état fondamental du  $^{233}\text{Pa}$  est  $3/2^-$

## 5.2 Désexcitation du noyau composé

Dans cette partie, nous supposons que les seuls modes de désexcitation du noyau composé sont l'émission d'un neutron, l'émission  $\gamma$  (capture radiative) et la fission comme cela a été présenté sur la figure (3.3).

### 5.2.1 Désexcitation du noyau composé par émission d'un neutron

Nous supposons que l'émission d'un neutron ne modifie pas l'état de déformation du noyau composé. Nous supposons également, conformément au schéma présenté sur la figure (3.3), que l'émission d'un neutron se fait, depuis le premier puits de potentiel du noyau composé A vers celui du noyau cible A-1.

Dans ce cas, la largeur partielle  $\langle \Gamma_n^{J,\pi}(E^*) \rangle$  pour la désexcitation du noyau composé dans l'état  $(J, \pi, E^*)$ , par émission d'un neutron, s'exprime par la relation :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_n^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D_I^{J,\pi}(E^*) \rangle} = \sum_i T_{i;n}^{J,\pi}(E^* - E'_i), \quad (5.6)$$

où  $\langle D_I^{J,\pi}(E^*) \rangle$  est l'espacement moyen des niveaux dans le premier puits du noyau composé à énergie d'excitation  $(E^*)$ . Le coefficient de transmission  $T_{i;n}^{J,\pi}(E^* - E'_i)$  correspond à la transition laissant le noyau résiduel (A-1) dans l'un des états  $(J', \pi', E'_i)$ . En sommant sur les états accessibles du noyau résiduel on obtient :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_n^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D_I^{J,\pi}(E^*) \rangle} = \sum_{E' J' \pi'} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{\ell=|j-1/2|}^{j+1/2} T_\ell^j(E^* - E'_i) \cdot \delta(\pi, \pi', (-1)^\ell), \quad (5.7)$$

où  $T_\ell^j(E^* - E'_i)$  est le coefficient de transmission d'un neutron d'énergie  $(E^* - E'_i)$  émis avec le moment angulaire orbital  $\ell$  et emportant le moment angulaire  $j$ . La fonction  $\delta(\pi, \pi', (-1)^\ell)$  assure la conservation de la parité.

Pour une énergie d'excitation supérieure à plusieurs centaines de keV, les niveaux discrets du noyau résiduel sont suffisamment nombreux pour les remplacer par une densité continue  $\rho(J', \pi', E')$ . Le calcul du nombre de voies effectives comprendra une intégration sur les niveaux continus plus une sommation sur les niveaux discrets de basse énergie du noyau résiduel ( $E_d < 800$  keV).

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_n^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D_I^{J,\pi}(E^*) \rangle} =$$

$$\begin{aligned}
 & \int_{E_d}^{E^* - B_n} \sum_{J=|J-J_f|}^{J+J_f} \sum_{\ell=|j-1/2|}^{j+1/2} \delta(\pi, \pi_f, (-1)^\ell) \rho(E_f, J_f, \pi_f) T_\ell^j(E_n) dE_f \\
 & + \sum_{E' J' \pi'} \sum_{j=|J-J'|}^{J+J'} \sum_{\ell=|j-1/2|}^{j+1/2} T_\ell^j(E_n) \cdot \delta(\pi, \pi_f, (-1)^\ell).
 \end{aligned} \tag{5.8}$$

### 5.2.2 Désexcitation du noyau composé par émission gamma

Nous considérons également que l'émission d'un rayonnement gamma ne modifie pas la déformation du noyau composé et que la transition s'effectue entre deux états du premier puits du noyau composé A.

La largeur partielle  $\langle \Gamma_\gamma^{J,\pi}(E^*) \rangle$  associée à la désexcitation du noyau composé par émission  $\gamma$  est obtenue par sommation des différentes transitions possibles :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_\gamma^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D_I^{J,\pi}(E^*) \rangle} = \sum_i T_{i;\gamma}^{J,\pi}(E^*). \tag{5.9}$$

En 1952, Blatt et Weisskopf [BLA52] ont établi la théorie de l'émission  $\gamma$  à partir du modèle à particules indépendantes. Elle correspond à la transition d'un état de particule à un autre de plus faible énergie. L'intensité de la transition  $\gamma$  dépend de sa multipolarité ( $\ell=1, 2, \dots$ ). Dans ce modèle, les transitions dipolaires électriques  $E_1(\ell=1)$  sont favorisées par rapport aux autres transitions ( $M_1, E_2, M_2, \dots$ ) ( $I_M(\ell)/I_E(\ell) \sim 6 \cdot 10^{-3}$  et  $I_{E2}/I_{E1} \sim 1.5 \cdot 10^{-3}$ , où  $I_i$  est l'intensité de la transition  $i$ ).

Aux énergies d'excitation considérées ( $E^* > 5$  MeV), les états de particules n'existent que sous forme de composants sur un grand nombre d'états du noyau composé, ceci permet d'utiliser l'approche statistique de Weisskopf: la largeur moyenne d'émission de rayonnements  $\gamma$  dipolaires électriques  $\langle \Gamma_{E1}^{J,\pi}(E^*, J, \pi) \rangle$  d'un niveau composé ( $E^*, J, \pi$ ) vers un état final ( $E', J', -\pi$ ) peut s'écrire:

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_{\gamma;E1}^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D_I^{J,\pi}(E^*) \rangle} \simeq 2\pi \cdot A^{2/3} \cdot E_\gamma^3 \tag{5.10}$$

où  $A$  est le nombre de masse du noyau composé et  $E_\gamma = E^* - E'$  l'énergie de la transition.

Pour un noyau composé dont l'énergie d'excitation atteint plusieurs MeV, la largeur de désexcitation gamma est la somme des largeurs partielles correspondant aux différents états finaux possibles :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_\gamma^{J,\pi}(E^*) \rangle}{\langle D_I^{J,\pi}(E^*) \rangle} = C \sum_{J_f=J-1}^{J+1} \int_0^{E^*} \rho(E', -\pi, J_f) (E^* - E')^3 \cdot dE'. \tag{5.11}$$

La constante de normalisation  $C$  est ajustée de façon à reproduire la largeur moyenne d'émission gamma mesurée dans le domaine des neutrons de résonance ( $\langle \Gamma_\gamma \rangle \simeq 40$  meV) [HUS81].

Comme pour la désexcitation par émission de neutron, la sommation sur les niveaux du noyau résiduel est remplacée par une intégrale sur les densités de niveaux continues. Nous avons négligé les transitions vers les états discrets de basse énergie dont la contribution est très faible.

### 5.3 Probabilité de fission

Notre objectif ici est de décrire l'allure moyenne de la section efficace de fission. Nous négligeons donc tout effet résonnant associé à la pénétrabilité de la double barrière de fission (aux effets de résolution près, nous n'observons pas de résonances dans nos mesures). Nous rappelons les hypothèses suivantes adoptées pour décrire le passage de la double barrière de fission.

- La fission se produit en deux étapes successives et indépendantes : traversée de la première barrière (A) suivie de la traversée de la seconde barrière (B).

- On néglige l'émission  $\gamma$  et l'émission de neutrons dans et à partir du puits intermédiaire séparant les deux barrières.

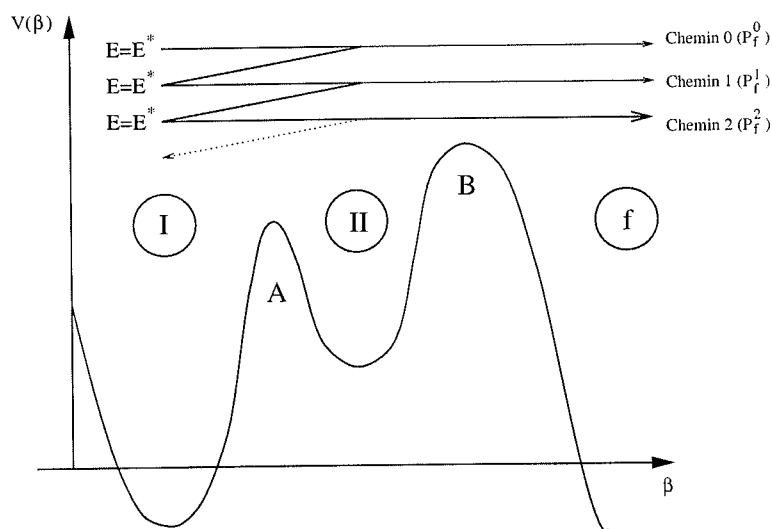


FIG. 5.3: Représentation schématique des oscillations de déformation du noyau

On considère, à l'instant  $t=0$  un état du premier puits (déformation de l'état fondamental). La probabilité de fission de cet état  $P_f^0$  (chemin 0 sur la figure (5.3)) est décrite par :



$$P_f^0 = \left[ \frac{\overrightarrow{\Gamma}_A}{\overrightarrow{\Gamma}_A + \Gamma_n + \Gamma_\gamma} \right] \cdot \left[ \frac{\overrightarrow{\Gamma}_B}{\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B} \right] = P_{I,II} \cdot P_{II,f}, \quad (5.12)$$

où  $\overrightarrow{\Gamma}_A$  et  $\overrightarrow{\Gamma}_B$  sont les largeurs partielles associées à la traversée des barrières (A) et (B) respectivement du premier au second puits et du second puits à la fission.  $\overleftarrow{\Gamma}_A$  est la largeur partielle associée à la traversée de la barrière (A) du second au premier puits.  $\Gamma_n$  et  $\Gamma_\gamma$  sont les largeurs partielles associées respectivement à l'émission d'un neutron et d'un  $\gamma$  depuis le premier puits.

Le premier et le second terme du second membre de l'équation (5.12) correspondent respectivement à la probabilité du passage du premier au second puits ( $P_{I,II}$ ) et du second puits à la vallée de fission ( $P_{II,f}$ ), c'est-à-dire la probabilité de traversée des barrières (A) et (B). Le noyau dans le second puits peut revenir dans le premier puits, la probabilité de cet événement ( $P_{II,I}$ ) peut s'écrire :

$$P_{II,I} = \frac{\overleftarrow{\Gamma}_A}{\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B} \quad (5.13)$$

Après le retour dans le premier puits, il peut franchir la barrière (A) et fissionner (chemin 1), la probabilité de fission  $P_f$  s'écrit alors :

$$P_f = P_f^0 + \left[ P_{I,II} \cdot P_{II,I} \right] \cdot \left[ P_{I,II} \cdot P_{II,f} \right] = P_f^0 + P_f^1 \quad (5.14)$$

Après  $n$  retours, il vient :

$$P_f = P_{I,II} \cdot P_{II,f} \left[ 1 + \left( P_{I,II} \cdot P_{II,I} \right)^1 + \dots + \left( P_{I,II} \cdot P_{II,I} \right)^n \right] \quad (5.15)$$

en posant :

$$x = P_{I,II} \cdot P_{II,I} < 1 \quad (5.16)$$

On voit apparaître la série :

$$1 + x + x^2 + \dots + x^n = \frac{1}{1-x} \quad (5.17)$$

donc :

$$P_f = \frac{\overrightarrow{\Gamma}_A}{\overrightarrow{\Gamma}_A + \Gamma_n + \Gamma_\gamma} \cdot \frac{\overrightarrow{\Gamma}_B}{\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B} \cdot \left( 1 - \frac{\overrightarrow{\Gamma}_A \cdot \overleftarrow{\Gamma}_A}{(\overrightarrow{\Gamma}_A + \Gamma_n + \Gamma_\gamma)(\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B)} \right)^{-1}, \quad (5.18)$$

$$P_f = \frac{\overrightarrow{\Gamma}_A \overrightarrow{\Gamma}_B}{(\overrightarrow{\Gamma}_A + \Gamma_n + \Gamma_\gamma)(\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B)} \cdot \left( \frac{(\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B)(\Gamma_n + \Gamma_\gamma) + \overrightarrow{\Gamma}_A \overrightarrow{\Gamma}_B}{(\overrightarrow{\Gamma}_A + \Gamma_n + \Gamma_\gamma)(\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B)} \right)^{-1} \quad (5.19)$$

$$= \frac{\overrightarrow{\Gamma}_A \overrightarrow{\Gamma}_B}{(\Gamma_n + \Gamma_\gamma)(\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B) + \overrightarrow{\Gamma}_A \overrightarrow{\Gamma}_B}, \quad (5.20)$$

$$P_f = \frac{\overrightarrow{\Gamma}_A \overrightarrow{\Gamma}_B / (\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B)}{\Gamma_n + \Gamma_\gamma + \frac{\overrightarrow{\Gamma}_A \overrightarrow{\Gamma}_B}{(\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B)}}, \quad (5.21)$$

En définissant la largeur partielle de fission ( $\Gamma_f$ ) comme (5.22), on obtient l'expression simple de la probabilité de fission (5.23) :

$$\Gamma_f = \frac{\overrightarrow{\Gamma}_A \overrightarrow{\Gamma}_B}{(\overleftarrow{\Gamma}_A + \overrightarrow{\Gamma}_B)}, \quad (5.22)$$

$$P_f = \frac{\Gamma_f}{\Gamma_n + \Gamma_\gamma + \Gamma_f}. \quad (5.23)$$

Les largeurs partielles ( $\overrightarrow{\Gamma}_A$ ,  $\overleftarrow{\Gamma}_A$  et  $\overrightarrow{\Gamma}_B$ ) associées à la traversée des barrières  $A$  et  $B$  sont calculées à partir de l'expression proposée par Bohr et Wheeler [BOH39].

$$\Gamma_i^{J,\pi} = \frac{1}{2\pi\rho_{G.S}(E^*, J, \pi)} \int_{-\infty}^{E^* - Bf_i} P_i(\varepsilon) \rho_i^{J,\pi}(E^* - (Bf_i + \varepsilon)) d\varepsilon, \quad (5.24)$$

où  $\rho_{G.S}(E^*, J, \pi)$  et  $\rho_i^{J,\pi}(E^* - Bf - \varepsilon)$  sont les densités de niveaux ( $J, \pi$ ) respectivement à l'énergie d'excitation  $E^*$  dans le premier puits du noyau composé  $A$  et à l'énergie  $E^* - Bf_i - \varepsilon$  au sommet de la barrière  $i$ . Chaque barrière  $i$  est associée à une parabole inversée dont la pénétrabilité  $P_i(\varepsilon)$  est calculée à partir de l'expression de Hill et Wheeler [HIL53] :

$$P_i(\varepsilon) = \left( 1 + \exp\left[ -\varepsilon \frac{2\pi}{\hbar\omega_i} \right] \right)^{-1}. \quad (5.25)$$

$Bf_i$  est la hauteur de la barrière de fission  $i$ , elle correspond à une énergie de déformation du noyau composé que l'on doit soustraire à l'énergie d'excitation initiale  $E^*$ .

L'énergie d'excitation disponible s'écrit alors  $E^* - Bf_i$ , elle se partage entre les degrés de liberté intrinsèques et collectifs (énergie cinétique  $\varepsilon$  dans la voie fission). Au sommet de la barrière de fission, l'énergie d'excitation intrinsèque s'écrit :

$$E^* - Bf_i - \varepsilon \quad (5.26)$$

$$\text{avec } -\infty < \varepsilon < E^* - Bf_i \quad (5.27)$$

Les valeurs négatives de  $\varepsilon$  correspondent à la traversée de la barrière de fission par effet tunnel.

## 5.4 Les densités de niveaux

Toutes les voies de désexcitation que nous avons présentées font intervenir les densités de niveaux du noyau fissionnant (A) et du noyau résiduel après émission d'un neutron (A-1). Ces densités de niveaux doivent être calculées pour des formes du noyau correspondant à leur état fondamental (noyaux A et A-1) et pour les déformations associées au passage de la première et de la seconde barrière du noyau A.

Notre calcul repose sur l'expression suivante :

$$\rho(E^*, J, \pi) = \frac{1}{2} R(E^*, J) \rho_{int}(E^*) \quad (5.28)$$

Le facteur 1/2 rend compte de l'équipartition des niveaux en fonction de leur parité ( $\pi = +/-$ ).  $\rho_{int}(E^*)$  désigne la densité des états intrinsèques excités.  $R(E^*, J)$  rend compte de l'accroissement des densités de niveaux intrinsèques dû aux effets collectifs.

Pour un gaz de fermions (neutron et proton) à symétrie sphérique et dont les niveaux excités sont régulièrement espacés (modèle du gaz de Fermi), la densité totale des niveaux peut s'écrire :

$$\rho(E^*) = \frac{\sqrt{\pi} \exp(2\sqrt{a(E^* - \chi\Delta)})}{12 a^{1/4} (E^* - \chi\Delta)^{5/4}} \quad (5.29)$$

où  $a$  désigne le paramètre de densité de niveaux.

$E^* - \chi\Delta$  désigne l'énergie d'excitation effective après correction des effets d'appariement ( $\chi\Delta$ ). A partir de la systématique, nous avons utilisé dans ce travail  $\Delta N = \Delta P = \Delta = 12/\sqrt{A}$ . Selon la parité en N et Z du noyau, l'énergie d'excitation effective peut s'écrire :

$$E^* - 2\Delta \text{ pour un noyau pair-pair } (\chi=2)$$

$E^* - \Delta$  pour un noyau impair ( $\chi=1$ )

$E^*$  pour un noyau impair-impair ( $\chi=0$ )

La densité de niveaux excités  $\rho(E^*, J, \pi)$  pour une énergie d'excitation  $E^*$ , un spin  $J$  et une parité  $\pi$  peut s'écrire sous la forme :

$$\rho(E^*, J, \pi) = \frac{1}{2} \rho(E^*) \frac{2J+1}{\sqrt{8\pi\sigma^3}} \exp\left[-\frac{(J+1/2)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (5.30)$$

Cette relation suppose que la distribution de spin est de forme gaussienne caractérisée par la variance  $\sigma$  (paramètre de spin "cut off"). Ce paramètre de spin "cut off" suit avec l'énergie d'excitation une loi du type :

$$\sigma^2 = \frac{\mathfrak{S}}{\hbar^2} \sqrt{\frac{E^* - \chi\Delta}{a}} \quad (5.31)$$

où  $\mathfrak{S}$  est le moment d'inertie rigide d'un noyau sphérique de masse  $A$  et de rayon  $R = 1.2A^{1/3}$  fermis soit :

$$\mathfrak{S} = \frac{2}{5} A.R^2 = 9.6510^{-3} A^{5/3} \left(\frac{MeV}{\hbar c^2}\right) \quad (5.32)$$

Dans le cadre de ce modèle simple, la seule variable est le paramètre de densité de niveaux  $a$ . Les densités de niveaux absolues sont obtenues à partir de l'espacement moyen ( $\overline{D}_o$ ) des résonances neutroniques observées par capture de neutrons pour des énergies d'excitation légèrement supérieures à l'énergie de liaison ( $Bn$ ) du neutron capturé.

Dans le domaine des Actinides, l'intervalle en énergie où sont observées ces résonances est au maximum de 1 keV. Les neutrons incidents ont essentiellement le moment angulaire orbital  $\ell=0$ .

Pour un noyau cible de spin  $J_c (\neq 0)$  et de parité  $\pi_c$ , les résonances (ou les niveaux) appartiennent à deux familles de moment angulaire et de même parité ( $\pi_c$ ). Leur espacement moyen ( $\overline{D}_o$ ) est défini par :

$$\overline{D}_o = \frac{1}{\rho(E^*, J_c + 1/2, \pi_c) + \rho(E^*, J_c - 1/2, \pi_c)} \quad (5.33)$$

Pour un noyau cible pair pair ( $J_c = 0$ ), elle s'écrit :

$$\overline{D}_o = \frac{1}{\rho(E^* = Bn, 1/2, \pi_c)} \quad (5.34)$$

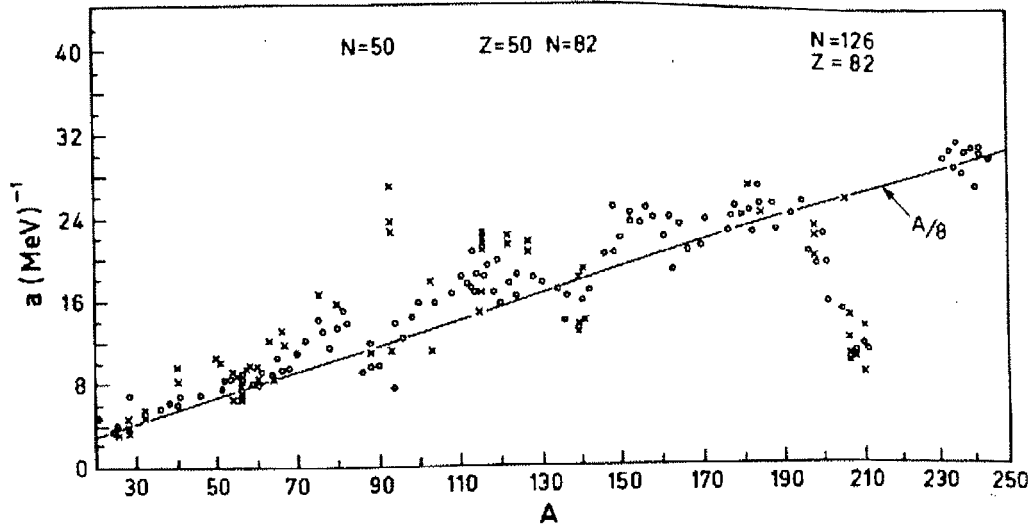


FIG. 5.4: Le paramètre  $a$  apparaissant dans la formule de densité de niveaux du gaz de Fermi a été déterminé par comparaison avec les espacements moyens observés dans les résonances de neutrons lents (valeurs indiquées par  $o$ ) et des spectres d'évaporation (valeurs indiquées par  $\times$ ). La figure est basée sur l'analyse de Erba et al. [ERB61].

La figure (5.4) montre l'évolution du paramètre de densité de niveaux  $a$  en fonction du nombre de masse  $A$  des noyaux pour des énergies d'excitation  $E^*$  voisines de l'énergie de liaison ( $Bn$ ) d'un neutron ( $E^* \simeq Bn$ ). On constate une évolution linéaire de  $a$  en fonction de  $A$ , avec néanmoins une diminution brutale au voisinage des noyaux comportant une ou deux couche magique en protons et/ou en neutrons. Le comportement moyen du paramètre  $a$  est bien représenté par l'expression linéaire  $a = A/8$  incompatible avec la forme  $a = A/13.5$  prévu par le modèle de Fermi. Ceci montre que le paramètre de densité de niveaux  $a$  est plus élevé que ne le prévoit ce modèle.

De nombreuses études expérimentales et théoriques suggèrent que ce phénomène peut être attribué aux effets collectifs qui viennent ajouter des niveaux excités.

Ces effets collectifs sont introduits dans nos calculs de la manière suivante. Compte tenu des déformations mises en jeu, nous n'avons tenu compte que des effets collectifs associés à la rotation du noyau fissionnant autour d'un axe perpendiculaire à son axe de symétrie (axe de fission).

Chaque état intrinsèque ( $i$ ) est la tête d'une bande de rotation caractérisée par la projection  $K$  du spin  $J$  sur l'axe de symétrie.

C'est ainsi que pour un noyau pair-pair à symétrie axiale on obtient une bande de rotation caractérisée par :

$$J = K; K + 1, \dots \text{ si } K \neq 0$$

$$J = 0, 2, 4, \dots \text{ si } K = 0$$

Par rapport à la tête de bande, l'énergie de ces niveaux de rotation est définie par :

$$E_R^{*(JK)} = \frac{\hbar^2}{2\mathfrak{S}_\perp} (J(J+1) - K^2) \quad (5.35)$$

où  $\mathfrak{S}_\perp$  est le moment d'inertie perpendiculaire par rapport à l'axe de déformation du noyau. A une énergie d'excitation  $E^*$ , la densité des niveaux de spin  $J$  peut alors s'écrire :

$$\rho(E^*, J) = \frac{1}{2} \sum_{K=-J}^{+J} \rho_R(E^*, K, J) \quad (5.36)$$

avec :

$$\rho_R(E^*, J, K) = \rho_i \left[ E^* - E_R^{*(JK)} \right] \quad (5.37)$$

où  $\rho_i$  est la densité de niveaux intrinsèque :

Compte tenu des faibles moments angulaires mis en jeu dans nos mesures ( $J < 10\hbar$ ), les énergies de rotation sont faibles devant l'énergie d'excitation du noyau, c'est-à-dire :  $E_R^* \ll E^*$ .

Dans ces conditions, la densité de niveaux  $\rho(E^*, J)$  peut alors s'écrire sous la forme proposée par Bjørnholm, Bohr et Mottelson [BOH98] :

$$\rho(E^*, J, \pi) \approx \frac{1}{2} \frac{\rho_i(E^*)}{\sqrt{8\pi} \sigma_\parallel(E^*)} \sum_{K=-J}^{+J} \exp \left[ -\frac{K^2}{2\sigma_\parallel^2(E^*)} - \frac{J(J+1) - K^2}{2\sigma_\perp^2(E^*)} \right] \quad (5.38)$$

Dans cette expression,  $\sigma_\parallel^2$  et  $\sigma_\perp^2$  représentent les paramètres de spin "cut off" pour la distribution des projections des spins sur les axes parallèle et perpendiculaire à l'axe de symétrie du noyau fissionnant. Ces quantités sont reliées aux moments d'inertie  $\mathfrak{S}_\parallel$  et  $\mathfrak{S}_\perp$  par les relations suivantes :

$$\sigma_\parallel^2(E^*) = \frac{\mathfrak{S}_\parallel}{\hbar^2} \sqrt{\frac{E^* - \chi\Delta}{a}} \quad \text{et} \quad \sigma_\perp^2(E^*) = \frac{\mathfrak{S}_\perp}{\hbar^2} \sqrt{\frac{E^* - \chi\Delta}{a}} \quad (5.39)$$

où  $a$  représente le paramètre de densité des niveaux à l'énergie d'excitation  $E^*$ .

Si l'on suppose que  $K^2$  est négligeable devant le terme  $(1/(2\sigma_\parallel^2(E^*)) - 1/(2\sigma_\perp^2(E^*)))$ , nous obtenons l'expression suivante :

$$\rho(E^*, J, \pi) \sim \frac{1}{2} \frac{\rho_i(E^*)}{\sqrt{8\pi}} \frac{2J+1}{\sigma_\parallel(E^*)} \exp \left[ -\frac{J(J+1)}{2\sigma_\perp^2(E^*)} \right] \quad (5.40)$$

Alors que pour un noyau déformé, la densité des niveaux sans tenir compte de la rotation conduirait à :

$$\rho(E^*, J, \pi) \sim \frac{1}{2} \frac{\rho_i(E^*)}{\sqrt{8\pi}} \frac{2J+1}{\sigma_{\perp}^3(E^*)} \exp\left[-\frac{J(J+1)}{2\sigma_{\perp}^2(E^*)}\right] \quad (5.41)$$

La prise en compte des effets collectifs se traduit ici par une augmentation  $\sigma_{\perp}^3(E^*)/\sigma_{\parallel}(E^*)$  de la densité des niveaux intrinsèque.

Pour une énergie d'excitation correspondant à l'énergie de liaison d'un neutron,  $\sigma_{\perp}(E^*)$  et  $\sigma_{\parallel}(E^*)$  sont proches de  $5-6\hbar$ , le facteur d'accroissement des densités de niveaux intrinsèque est donc de 30 environ.

Il nous reste maintenant à définir la densité de niveaux intrinsèque  $\rho_i$ . Nous avons pour cela utilisé une expression analytique de ces densités qui dérive de l'approche phénoménologique proposée par Ignatyuk *et al.* et reprise ensuite par de nombreux auteurs ([IGN75b], [IGN79], [ILJ92], [IGN93], [JUN98]). Cette approche repose sur une modélisation du comportement du paramètre de densité de niveaux  $a$  en fonction des effets de couches ( $\Delta S$ ) et de l'énergie d'excitation. Cette modélisation est représentée par :

$$a(E^*, N, Z) = \tilde{a}(N, Z) \left(1 + \frac{\Delta S}{E^*} f(E^*)\right) \quad (5.42)$$

où  $\Delta S$  est la correction de couche dans l'état fondamental du noyau  $A = N + Z$ ,  $f(E^*)$  est un facteur d'amortissement qui tient compte de la disparition des effets de couches avec l'énergie d'excitation.

Lorsque ces effets de couches ont disparu, le paramètre de densité de niveaux tend vers la valeur asymptotique :

$$\tilde{a}(N, Z) = \alpha A + \beta A^{2/3} \quad (5.43)$$

Dans cette expression, le premier terme est proportionnel à la masse  $A$  du noyau, le second tient compte des effets de surface ( $A^{2/3}$ ). Les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  sont des paramètres ajustés sur les espacements moyens des résonances.

A partir de la densité des niveaux excités intrinsèque du modèle du gaz de Fermi (5.29) on peut écrire :

$$\rho_i(E^*) = \frac{\sqrt{\pi}}{12} \frac{\exp(2\sqrt{a.U})}{a^{1/4}.U^{5/4}} \quad (5.44)$$

$$\text{avec } a = \tilde{a} \left(1 + \frac{\Delta S}{U} f(U)\right) \quad (5.45)$$

où  $U$  désigne l'énergie d'excitation effective du noyau excité après correction des effets d'appariement :  $U = E^* - \chi\Delta$ . Indépendamment du facteur d'amortissement  $f(U)$  on notera une augmentation du paramètre de densité de niveaux ( $a > \tilde{a}$ ) pour une correction de couche positive (effet d'anticouche) et une diminution ( $a < \tilde{a}$ ) pour une correction de couche négative. Pour le paramètre de densité de niveaux asymptotique  $\tilde{a}$  et le facteur d'amortissement  $f(U)$ , nous avons adopté les expressions proposées par Ignatyuk ([IGN75a], [SCH82]) :

$$\tilde{a} = 0.073A + 0.095A^{2/3} \quad (5.46)$$

$$f(U) = 1 - \exp(-\gamma U) \quad (5.47)$$

$$\text{où } \frac{1}{\gamma} = 0.4 \frac{A^{4/3}}{\tilde{a}} \quad (5.48)$$

### 5.4.1 Définition des effets de couches utilisés dans ce travail.

Les densités de niveaux doivent être calculées à différentes déformations du noyau fissionnant : dans son état fondamental (G.S) et au sommet des deux barrières de fission ( $A$ ) et ( $B$ ).

Dans le cadre du modèle macroscopique-microscopique, la correction de couche à la déformation ( $i$ ) est définie par :

$$\Delta S(i) = V_{def}(i) - V_{dm}(i) \quad (5.49)$$

où  $V_{def}(i)$  désigne l'énergie totale de déformation du noyau à la déformation ( $i$ ).  $V_{dm}(i)$  représente la contribution macroscopique (goutte liquide) à l'énergie totale du noyau.

Les hauteurs  $E_A$  et  $E_B$  des barrières ( $A$ ) et ( $B$ ) sont comptées à partir de l'état fondamental (G.S) du noyau fissionnant. Cet état fondamental est déformé : son énergie, mesurée par rapport à l'état fondamental sphérique de la goutte liquide, représente la contribution ( $E_{micro}$ ) des effets de couches à la masse totale du noyau déformé dans son état fondamental. Les hauteurs des barrières sont définies à partir des relations suivantes dont les différents paramètres sont définis sur la figure (5.5) :

$$E_A = V_{dm}(\beta_A) - E_{micro} + \Delta S_A \quad (5.50)$$

$$E_B = V_{dm}(\beta_B) - E_{micro} + \Delta S_B \quad (5.51)$$

Dans notre analyse, les effets de couches  $\Delta S_A$  et  $\Delta S_B$  interviennent dans les densités de niveaux  $\rho_A$  et  $\rho_B$  au sommet des barrières ( $A$ ) et ( $B$ ). Nous savons que ces effets



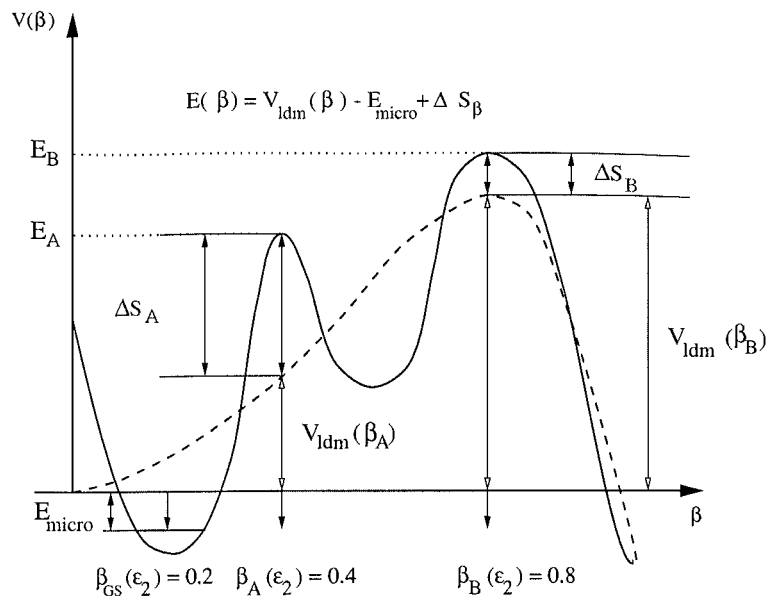


FIG. 5.5: Représentation schématique des différents paramètres permettant de définir la hauteur des barrières de fission.

de couches sont à l'origine de la double barrière de fission, leurs valeurs absolues sont comprises entre 1 et 2 MeV. Pour illustrer notre propos, nous avons reporté sur les figures (5.6) les corrections de couches en fonction du numéro atomique  $Z$  du noyau fissionnant dont le nombre de neutrons est fixé à  $N=144$ , donc très proche du  $^{234}\text{Pa}(N=143)$ . Cette figure est extraite de la systématique de Bjørnholm et Lynn [BJO80]. Deux estimations (expérimentale et théorique) sont présentées.

Pour les noyaux dont les barrières de fission ont été mesurées, les effets de couches ( $\Delta S_A = E_A^{Shell}$ ) et ( $\Delta S_B = E_B^{Shell}$ ) sont obtenus par soustraction de la goutte liquide à la déformation correspondante. La composante goutte liquide ( $V_{ldm}(i)$ ) est calculée pour deux formulations de la goutte liquide : celle dite de Lysekil (*liquid drop*) (1967) et celle plus récente dite "*droplet model*" (1977). Ces deux approches prévoient des corrections de couches  $\Delta S_A$  et  $\Delta S_B$  positives [BJO80].

Pour la version la plus récente de la goutte liquide (*droplet model*), les valeurs moyennes des effets de couches  $\Delta S_A^o$  et  $\Delta S_B^o$  se situent au voisinage de 2 MeV et 1 MeV, respectivement, pour  $Z=91$ .

Les estimations théoriques sont basées sur un calcul du type Strutinsky en utilisant différents puits de potentiel (Woods-Saxon ou puits carré convolué par un potentiel de Yukawa). L'influence de la rupture de symétrie axiale ( $\gamma$ -*Asym*) ou de l'asymétrie de masse (*pear-Asym*) apparaît clairement sur les figures présentées. Pour les Actinides légers dont le  $^{234}\text{Pa}$  fait partie, il est admis que le noyau conserve sa symétrie axiale ( $\gamma$  *Sym*) à la première barrière et présente une asymétrie de masse (*pear-Asym*) à la seconde barrière.

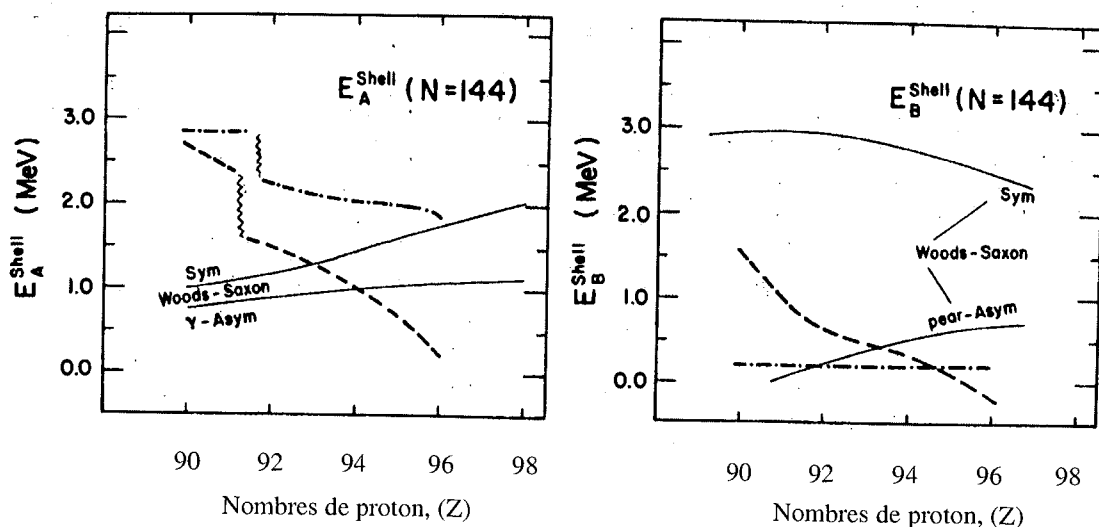


FIG. 5.6: Comparaison expérimentale (lignes en pointillés) et théorique (lignes en continues) des corrections de couches au sommet des deux barrières en fonction du nombre de protons.

Les effets de couches calculés ( $\Delta S_A = 1$  MeV) et ( $\Delta S_B = 0$  MeV) sont toujours positifs mais plus faibles (1 MeV) que ceux extraits de l'expérience.

En ce qui concerne les effets de couches dans l'état fondamental,  $\Delta S_{GS}$ , les estimations expérimentales et les prévisions théoriques prévoient des corrections de couches négatives dont les valeurs absolues sont comprises entre 0.5 et 2.5 MeV à  $Z=91$ . En raison de cette dispersion, il nous a paru plus raisonnable d'assimiler  $\Delta S_{GS}$  à la différence de masse du noyau  $^{234}\text{Pa}$  par rapport à la goutte liquide sphérique. Cette valeur que nous avons appelée plus haut  $E_{\text{micro}}$  a été extraite de la dernière table de masse de Möller et Nix [MOL95] basée sur la formule goutte liquide dite "droplet model".

Les moments d'inertie  $\mathfrak{I}_\perp$  et  $\mathfrak{I}_\parallel$  ont été calculés pour les déformations correspondant à l'état fondamental des noyaux  $A$  et  $A-1$ , et pour les deux barrières  $E_A$  et  $E_B$ . Nous avons utilisé les calculs de Howard et Möller déjà présentés sur la figure (2.12). Ces calculs prévoient des déformations proches de  $\beta_{GS}(\varepsilon_2) \simeq 0.2$  dans le fondamental,  $\beta_A(\varepsilon_2) \simeq 0.4$  pour la première barrière et de  $\beta_B(\varepsilon_2) \simeq 0.8$  pour la seconde barrière. Ces déformations correspondent à l'élongation quadripolaire  $\varepsilon_2$  du noyau dans la voie fission. Il s'agit pour les barrières (A) et (B) de déformation moyenne sur lesquelles s'accordent la plupart des calculs théoriques. Il n'existe évidemment pas de mesure directe de ces déformations au sommet des barrières. Les déformations (quadripolaires) de l'état fondamental des Actinides (dont celles des Protactinium) ont été mesurées : elles sont proches de la valeur  $\beta_{G,S}$

$\sim 0.2$  adoptée dans ce travail. Dans la région des Uranium et des Plutonium où le moment quadrupolaire électrique des isomères de fission a été mesuré, la déformation du second puits correspond à  $\varepsilon_2 \sim 0.6$  [MET80]. Dans la région du Thorium et du Protactinium, le sommet de l'énergie potentielle goutte liquide coïncide avec la deuxième barrière de fission. Cette coïncidence et l'effet de couche associé à l'asymétrie de masse sont à l'origine des bandes de rotation hyperdéformées mises en évidence dans la section efficace de fission des noyaux  $^{230,232}\text{Th}$  et  $^{231}\text{Pa}$ . Les moments d'inertie déduits des analyses plaident en faveur d'une déformation quadrupolaire de la seconde barrière ( $B$ ) voisine de  $\beta_B(\varepsilon_2) \simeq 0.80-0.85$ .

### 5.4.2 Structure des densités de niveaux en fonction de la déformation du noyau.

Pour le  $^{234}\text{Pa}$ , les densités de niveaux  $\rho(E, J, \pi)$  ont été calculées pour l'état fondamental et au sommet des deux barrières à partir des effets de couche correspondant à ces déformations. La première barrière est celle d'un noyau à symétrie axiale; à la seconde barrière, le noyau fissionnant conserve sa symétrie axiale mais perd sa symétrie par réflexion autour d'un axe perpendiculaire à l'axe de symétrie (asymétrie de masse). La densité des niveaux est multipliée par deux pour tenir compte de la dégénérescence en parité de chaque niveau.

Pour le  $^{233}\text{Pa}$  produit par émission de neutron à partir du  $^{234}\text{Pa}$ , notre formulation des densités de niveaux se prête mal à la description des premiers états excités de ce noyau dont le nombre et la nature sont liés à la structure nucléaire du  $^{233}\text{Pa}$ . Un simple raisonnement statistique n'est donc certainement pas approprié. Pour ce noyau nous avons considéré deux contributions :

- Pour  $E^* < 800$  keV, on ajoute les niveaux discrets connus extraits de la compilation récente de Firestone [FIR96].
- Pour  $E^* > 800$  keV, nous avons utilisé les densités des niveaux continues prédites par notre calcul.

Faute de données expérimentales il est exclu de tester notre formule de densité de niveaux au sommet des barrières. La comparaison a donc été effectuée pour la déformation correspondant à l'état fondamental et pour une énergie d'excitation du noyau correspondant à l'énergie de liaison ( $Bn$ ) du neutron capturé. Notre échantillon comprend 23 Actinides ( $Z=90-96$ ) dont les espacements moyens des résonances ( $\ell=0$ ) ont été mesurés. Les incertitudes sur les densités de niveaux mesurées sont rarement indiquées. L'étude systématique de Iljinov [ILJ92] indique des erreurs comprises entre 4.3% et 47.2% pour notre échantillon. La figure (5.7) présente le rapport des densités de niveaux mesurées et calculées à partir du formalisme que nous venons de présenter. On remarquera que la

comparaison est satisfaisante puisque nous retrouvons, en moyenne et à un facteur deux près les densités de niveaux expérimentales. On soulignera que nous n'avons pas cherché à optimiser l'expression de  $\tilde{a}$  proposée par Ignatyuk, qui est ajustée sur une gamme de noyaux plus importante que la nôtre.

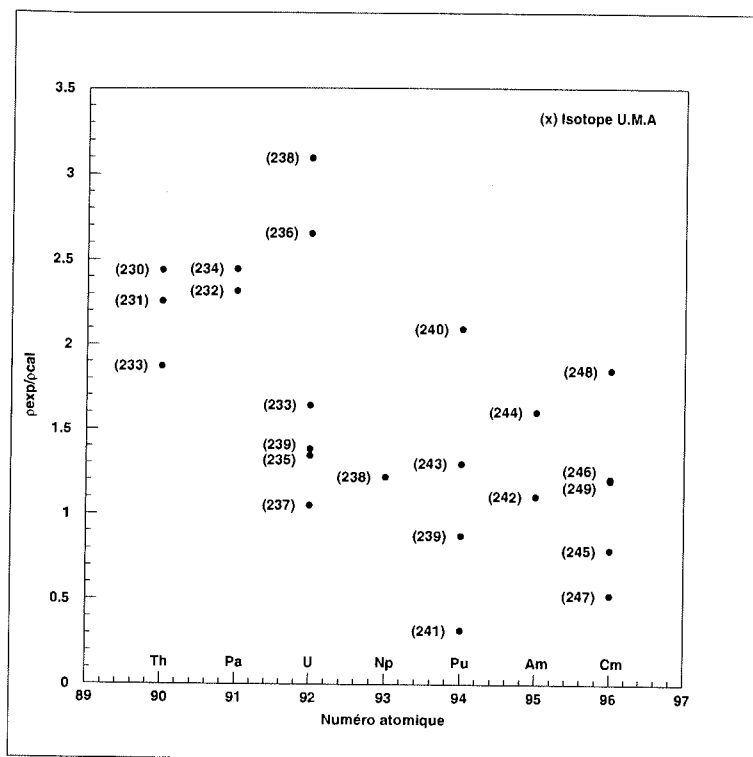


FIG. 5.7: Rapports des densités de niveaux expérimentales et calculées ( $E^* \simeq Bn$ ) pour différents Actinides

## 5.5 Détermination des barrières de fission

La détermination des barrières de fission a été effectuée simultanément pour interpréter les sections efficaces de fission des noyaux  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$ . L'analyse de la réaction  $^{231}\text{Pa}(n,f)$  a déjà été faite par différents auteurs et à partir de densités de niveaux du type Gilbert-Cameron (gaz de Fermi) pour Muir et Vesser [MUI71] ou microscopiques pour Back [BAC74] et Sicre [SIC76]. Le but de ces analyses antérieures était de déterminer la hauteur des barrières du noyau  $^{232}\text{Pa}$ . La comparaison de leurs résultats aux nôtres nous a permis de valider notre approche.

Les effets de couches interviennent dans le calcul des densités de niveaux au sommet des des barrières. Nous avons procédé de la manière suivante. Pour un couple de correction de

couche  $\Delta S_A$  et  $\Delta S_B$ , les densités de niveaux correspondantes sont déterminées. On calcule alors la section efficace de fission ( $\sigma_{cal}$ ) qui est comparée aux valeurs expérimentales ( $\sigma_{exp}$ ) et à leur incertitude ( $\sigma_{exp}^{inc}$ ). Cette comparaison est réalisée par un calcul des moindres carrés.

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{i=N} \left( \frac{\sigma_{exp} - \sigma_{cal}}{\sigma_{exp}^{inc}} \right)^2 \quad (5.52)$$

La recherche de la valeur minimale de cette expression est effectuée en faisant varier les quatre paramètres définissant la double barrière de fission ( $E_A, \hbar\omega_A, E_B, \hbar\omega_B$ ). Le pas d'analyse dans cet espace à quatre dimensions est de 0.1 MeV pour les barrières et leur courbure. Ce calcul est réalisé en faisant varier les effets de couches  $\Delta S_A$  et  $\Delta S_B$ . Cette recherche systématique a été effectuée à partir des valeurs initiales proposées par Bjørnholm et Lynn ( $\Delta S_A^0$  et  $\Delta S_B^0$ ).

Cette exploration nous a permis de constater que pour les deux noyaux fissionnants étudiés ( $^{232}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$ ), la section efficace de fission calculée dépend étroitement des densités de niveaux du noyau résiduel (A-1) et du noyau fissionnant (A) à la seconde barrière.

La figure (5.8) présente pour ces deux noyaux l'évolution de la valeur réduite du  $\chi^2$  ( $\chi_r^2$ ) en fonction de l'effet de couche  $\Delta S_B$  au niveau de la seconde barrière.

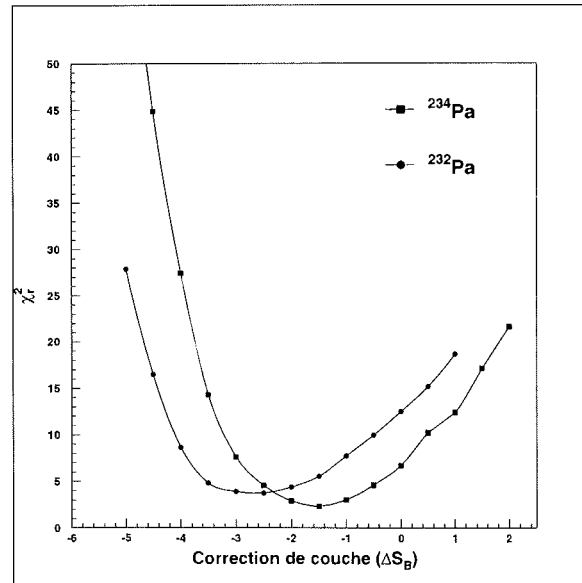


FIG. 5.8: Evolution de  $\chi_r^2$  en fonction de l'effet de couche à la seconde barrière ( $\Delta S_B$ ) pour les deux noyaux étudiés, l'effet de couche à la première barrière ( $\Delta S_A$ ) est fixé à 2 MeV

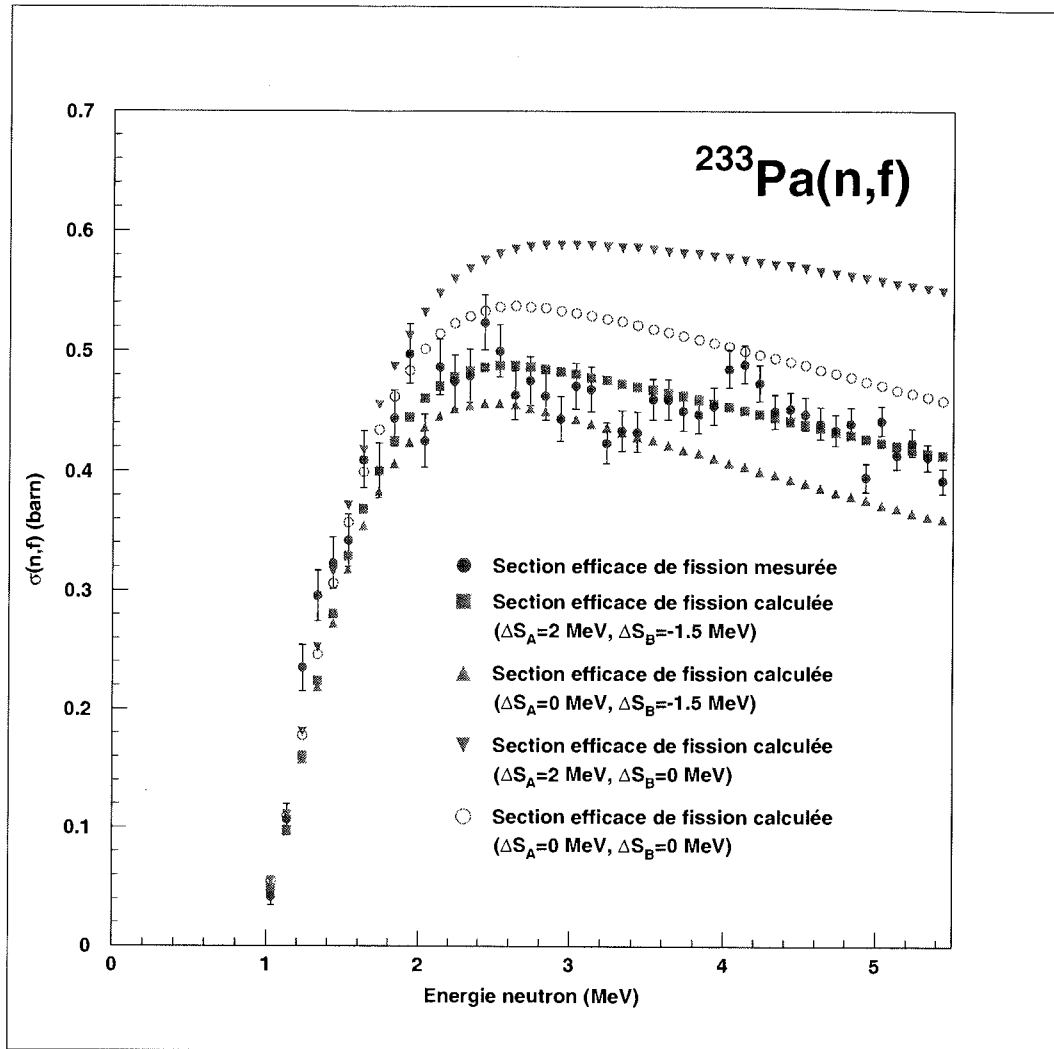


FIG. 5.9: Section efficace de fission expérimentale de  $^{233}\text{Pa}$  comparée aux sections efficaces de fission calculées pour le jeu de barrières présenté ci-dessous et différentes valeurs de correction de couche pour les deux barrières.

Dans les deux cas,  $\chi_r^2$  présente un minimum prononcé. A partir de la loi de propagation des erreurs, l'incertitude sur ces valeurs a été déterminée en considérant les valeurs limites associées à  $(\chi_r^2+1)$ . Cette analyse conduit aux valeurs suivantes pour les effets de couches au sommet de la seconde barrière.

$$^{232}\text{Pa} \quad -3.5 < \Delta S_B < -1.5 \text{ MeV} \quad (5.53)$$

$$^{234}\text{Pa} \quad -2.5 < \Delta S_B < -0.5 \text{ MeV} \quad (5.54)$$

Contrairement aux estimations empiriques de Bjørnholm et Lynn, ces effets de couches sont négatifs. En valeur absolue, ils semblent plus importants pour le  $^{232}\text{Pa}$ .

La figure (5.9) présente la section efficace de fission calculée pour le  $^{234}\text{Pa}$  ( $\Delta S_A=2.0$  MeV et  $\Delta S_B=-1.5$  MeV) et les calculs de cette même section efficace sans tenir compte des effets de couches (0,0) ou en éliminant leur contribution au sommet de l'une des barrières. Comme le montre cette figure, la section efficace de fission dépend du signe et de la valeur absolue de l'effet de couche à la seconde barrière. Le meilleur accord avec les résultats expérimentaux est obtenu pour une correction de couche négative ( $\Delta S_B < 0$ ).

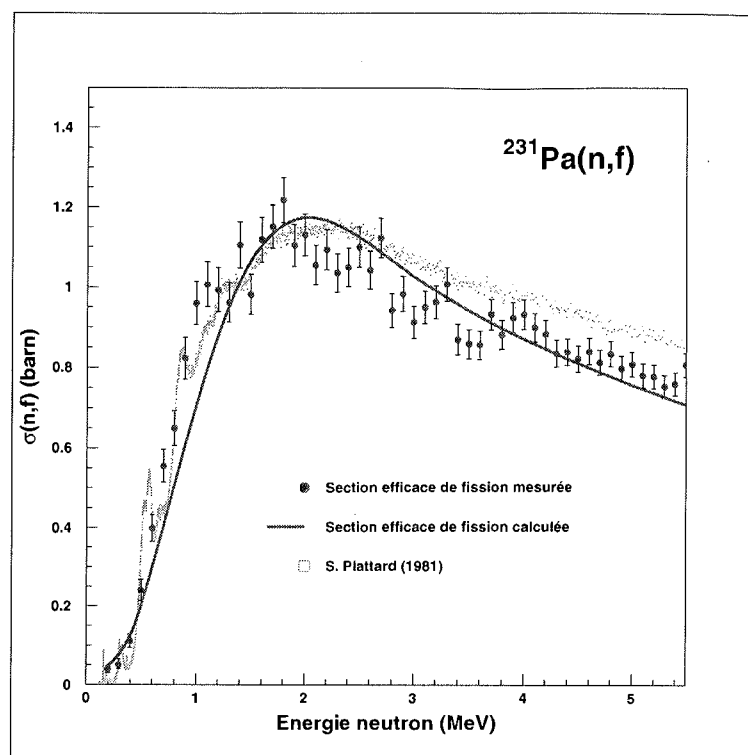
L'objet de ce travail n'est pas une caractérisation complète des barrières de fission des noyaux étudiés ; la simplicité de notre modèle et les caractéristiques de l'expérience ne le permettent pas. Néanmoins, nous avons déjà souligné la complexité de la seconde barrière dans la région Thorium-Protactinium. Des résultats expérimentaux suggèrent fortement la présence d'un troisième puits au sommet de la seconde barrière de trois noyaux de cette région ( $^{232}\text{Pa}$ ,  $^{231}\text{Th}$  et  $^{233}\text{Th}$ ). La rupture de la symétrie par réflexion (asymétrie de masse) et un effet de couche négatif dans ce degré de liberté seraient responsables de la présence de ce troisième puits.

Les hauteurs des barrières et leur courbure que nous avons déterminées sont reportées dans le tableau (5.1) accompagnées des valeurs obtenues dans de précédentes études.

Noyau	référence	$E_A$	$\hbar\omega_A$	$E_B$	$\hbar\omega_B$
$^{232}\text{Pa}$	ce travail	$5.9\pm 0.2$	$1.2\pm 0.3$	$6.1\pm 0.1$	$0.6\pm 0.1$
$^{232}\text{Pa}$	[SIC76]	$5.95\pm 0.3$	$0.9\pm 0.1$	$6.15\pm 0.1$	$0.4\pm 0.1$
$^{232}\text{Pa}$	[BAC74]	$5.75\pm 0.3$	0.6	$6.10\pm 0.3$	0.45
$^{232}\text{Pa}$	[MUI71]	$6.3\pm 0.3$	0.65	6.25	0.45
$^{234}\text{Pa}$	ce travail	$5.8\pm 0.2$	$1.3\pm 0.3$	$6.3\pm 0.1$	$0.5\pm 0.1$

TAB. 5.1: Barrières de fission des noyaux  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$

Pour le  $^{232}\text{Pa}$  qui constitue le noyau de référence pour notre analyse, nos résultats sont globalement en bon accord avec les résultats antérieurs. On remarquera, comme c'est en général le cas, que notre étude donne une meilleure détermination de la barrière dominante (la seconde pour les deux noyaux étudiés) pour reproduire les résultats expérimentaux. La première barrière du  $^{234}\text{Pa}$  est très proche de celle du  $^{232}\text{Pa}$ . Toutefois, la seconde barrière que nous définissons avec une meilleure précision est plus haute que celle du  $^{232}\text{Pa}$ . La même procédure a été utilisée pour l'analyse de la section efficace de fission du  $^{231}\text{Pa}$ . Nos résultats pour ce noyau sont présentés sur la figure (5.10) accompagnés de la mesure de Plattard.


 FIG. 5.10: Section efficace de fission mesurée et calculée du  $^{231}\text{Pa}$ 

## 5.6 Détermination des sections efficaces $^{233}\text{Pa}(n,n')$ et $^{233}\text{Pa}(n,\gamma)$

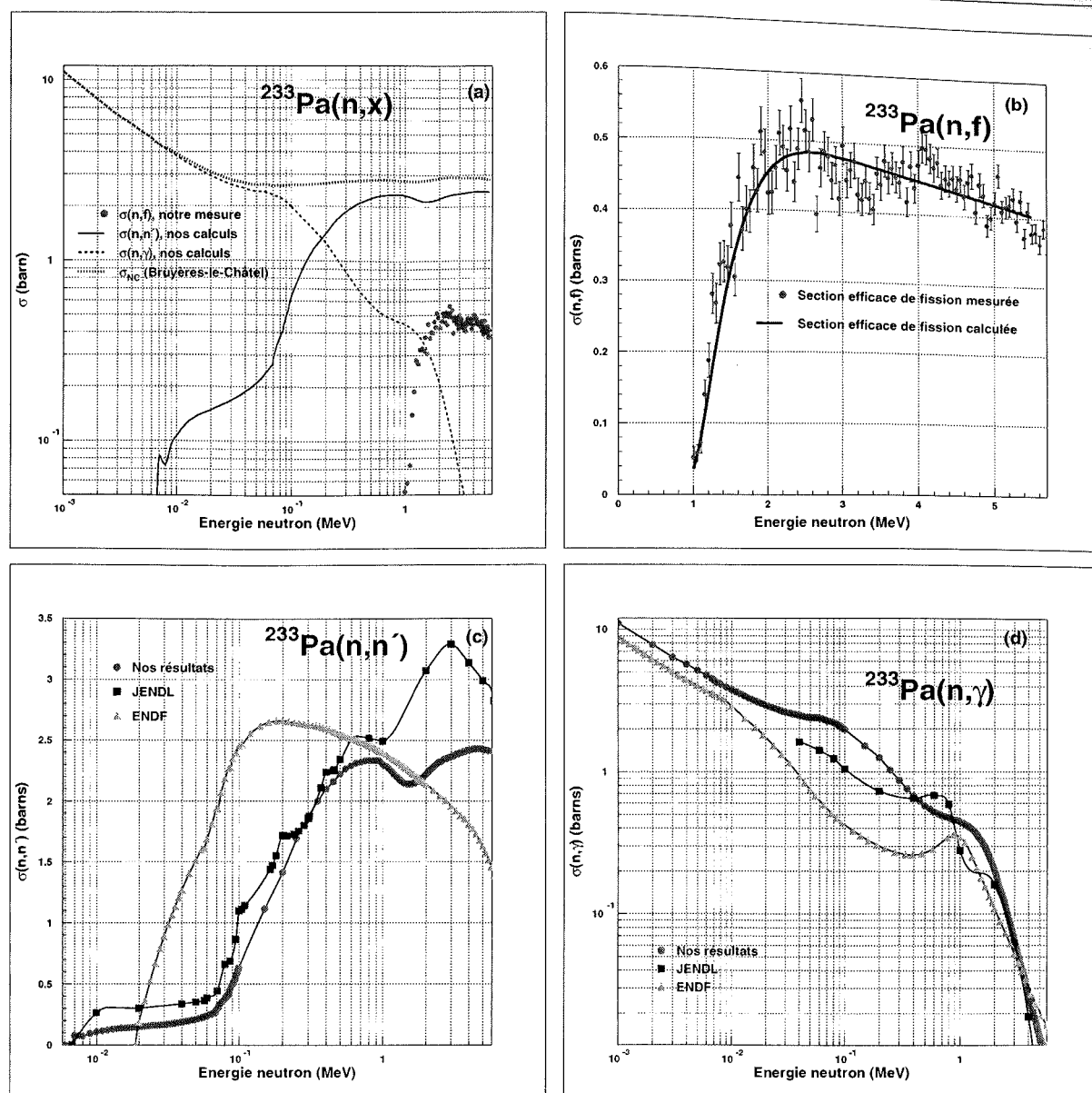
Le modèle statistique que nous venons d'utiliser pour la fission nous a également permis de déterminer les sections efficaces de capture radiative et de diffusion inélastique dont la somme avec la fission constitue la section efficace totale de réaction d'un neutron avec le noyau  $^{233}\text{Pa}$ . Nous rappelons que notre étude est effectuée dans le cadre du noyau composé. La section efficace de diffusion inélastique calculée tient compte de la partie évaporation, la composante interaction directe (modèle optique en voies couplées) n'est pas considérée dans ce travail.

Les sections efficaces, en moyenne, s'expriment de la manière suivante :

$$\sigma_{(n,\gamma)}(En) = \sigma_{NC}(En) \cdot \sum_{J,\pi} (\alpha(En, J, \pi)) \cdot \frac{\langle \Gamma_{\gamma}^{J,\pi} \rangle}{\langle \Gamma_f^{J,\pi} \rangle + \langle \Gamma_{\gamma}^{J,\pi} \rangle + \langle \Gamma_n^{J,\pi} \rangle} \quad (5.55)$$

$$\sigma_{(n,n')}(En) = \sigma_{NC}(En) \cdot \sum_{J,\pi} (\alpha(En, J, \pi)) \cdot \frac{\langle \Gamma_n^{J,\pi} \rangle}{\langle \Gamma_f^{J,\pi} \rangle + \langle \Gamma_{\gamma}^{J,\pi} \rangle + \langle \Gamma_n^{J,\pi} \rangle} \quad (5.56)$$




 FIG. 5.11: Sections efficaces calculées ou mesurées du  $^{233}\text{Pa}$ .

La figure (5.11a) présente l'ensemble des sections efficaces (fission, diffusion inélastique et capture) que nous avons pu calculer. Entre 0.2 MeV et 5 MeV, la diffusion inélastique reste prépondérante devant les autres voies de désexcitation ( $\sigma_{(n,n')} \simeq 2$  barns). La capture radiative l'emporte à faible énergie de neutron ( $E_n < 200$  keV). On retrouve donc un comportement analogue à tous ceux des noyaux non fissiles  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{238}\text{U}$ . Les figures (5.11c) et (5.11d) présentent une comparaison des section efficaces de capture et de diffusion inélastique avec les prévisions des bibliothèques JENDL et ENDF. Il s'agit, rappelons-le, de données extrapolées et/ou calculées. Pour ENDF dont l'évaluation est la plus ancienne, il s'agit de données extrapolées à partir de celles des Actinides les plus

proches ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{234}\text{U}$ ). L'évaluation proposée par JENDL est la plus récente et la plus complète. Les sections efficaces  $(n,n')$ ,  $(n,\gamma)$  et  $(n,f)$  ont été calculées à partir d'un modèle statistique analogue à celui que nous avons utilisé. Les données d'entrées sont différentes des nôtres. Les densités de niveaux sont du type Gilbert et Cameron tandis qu'un potentiel optique phénoménologique a été utilisé pour calculer la section efficace de formation du noyau composé ( $\sigma_{NC}$ ).

La figure (5.12) présente les sections efficaces de diffusions inélastiques  $(n,n')$  relatives à certains des 38 niveaux excités du  $^{233}\text{Pa}$  pris en compte dans ce travail. La nature et la densité de ces niveaux discrets expliquent l'augmentation brutale de la section efficace totale de diffusion inélastique entre 0.1 et 1 MeV.

En ce qui concerne la section efficace de diffusion inélastique, nous sommes globalement en assez bon accord avec JENDL pour des énergies de neutrons inférieures au MeV, c'est-à-dire pour cette partie de la section efficace où domine la diffusion inélastique sur les niveaux discrets du noyau résiduel ( $^{233}\text{Pa}$ ).

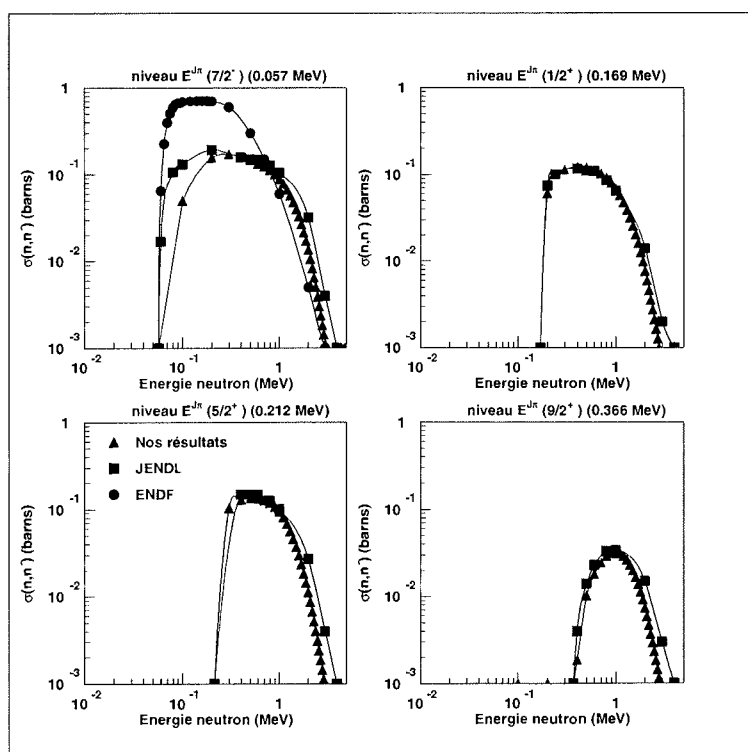


FIG. 5.12: Sections efficaces de diffusions inélastiques  $(\sigma(n,n'))$  du  $^{233}\text{Pa}$  sur 4 niveaux avec les évaluations de ENDF et de JENDL lorsqu'elles existent

Le désaccord le plus important se situe au voisinage et au-delà de 1 MeV où la section efficace  $(n,n')$  dépasse les 3 barns, alors que la nôtre est inférieure à 2.5 barns.

Au voisinage de 1 MeV, l'influence de la fission sur les sections efficaces  $(n,n')$  et  $(n,\gamma)$  apparaît clairement. La compétition des trois voies de réaction est à l'origine de la quasi-résonance large que nous observons dans la réaction  $(n,\gamma)$ . Sa position et son amplitude sont contrôlées par l'ouverture de la voie fission. Autour de 1 MeV, le même effet est observé dans la section efficace de diffusion inélastique. Nos calculs comme ceux de JENDL présentent un palier entre 0.5 MeV et 1 MeV. L'ouverture de la voie fission ( $E_n \simeq 1$  MeV) se traduit par une diminution locale de la section efficace de diffusion inélastique. Ce phénomène n'apparaît pas clairement dans les calculs de JENDL.

La mesure de la section efficace de fission apporte donc ici une contrainte supplémentaire au modèle statistique lorsque les mesures font défaut.



# Conclusion

Le but principal de ce travail consistait à mesurer la section efficace de la réaction  $^{233}\text{Pa}(n,f)$  entre 0 et 15 MeV d'énergie de neutron. Il constitue une contribution à la campagne de mesure internationale sur les principaux noyaux de la filière du thorium dont fait partie le  $^{233}\text{Pa}$ . Lorsque nous avons commencé cette étude, il n'existait pas de mesure de cette section efficace de fission dont la précision demandée par les évaluateurs est de 15%. Or, le  $^{233}\text{Pa}$  est un noyau clé dans la filière du thorium car il contrôle la production du principal noyau fissile ( $^{233}\text{U}$ ). Une simulation réaliste de cette filière nécessite des données nucléaires fiables qui sont, pour le  $^{233}\text{Pa}$ , insuffisantes. En raison de la forte activité du  $^{233}\text{Pa}$ , ce noyau est un véritable défi pour les expérimentateurs. Pour réaliser notre mesure, nous avons repris la proposition de Cramer et Britt qui consiste, pour "simuler" une section efficace de fission induite par neutron d'un noyau  $(A-1,Z)$ , à mesurer la probabilité de fission du noyau composé  $(A,Z)$  puis à la multiplier par la section efficace de formation de ce noyau composé. Pour mesurer la probabilité de fission du noyau  $^{234}\text{Pa}$ , nous avons utilisé la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He},p)^{234}\text{Pa}$ , ce qui nous a également permis de mesurer les probabilités de fission des noyaux  $^{231}\text{Th}$  et  $^{232,233}\text{Pa}$ . Le nombre de détecteurs fission (15) et leur dimension ont permis de corriger leur efficacité de détection en fonction de l'anisotropie de chaque réaction de transfert observée. La comparaison de nos mesures avec celles réalisées par Back (1974) et Gavron (1976) a validé notre approche expérimentale et notre analyse. Le calcul de la section efficace de formation du noyau composé des noyaux  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$  a été réalisé par le groupe de physique théorique du C.E.A Bruyère-Le-Châtel.

La comparaison de nos mesures des sections efficaces des réactions  $^{230}\text{Th}(n,f)$  et  $^{231}\text{Pa}(n,f)$  avec celles mesurées en fission induite par neutron valide notre approche. Malgré des mécanismes de réactions différents il apparaît que les deux processus sont en moyenne équivalents, aux incertitudes de la mesure ( $\sim 5\%$ ) et aux calculs de la section efficace de formation du noyau composé ( $\sim 10\%$ ) près. La section efficace de fission du  $^{233}\text{Pa}$  présente un seuil à  $\sim 1$  MeV pour une valeur, au niveau du plateau de la fission de première chance, de 0.450 barn. Notre mesure a été réalisée jusqu'à 10 MeV d'énergie neutron soit au-delà de la fission de seconde chance dont le seuil ( $\sim 6$  MeV) est compatible avec le seuil de fission du noyau résiduel  $^{233}\text{Pa}$ . Les résultats positifs que nous avons obtenus permettent

d'envisager la mesure d'Actinides de très forte activité. C'est le cas des Actinides mineurs et en particulier des isotopes du Curium pour lesquels une réactualisation des sections efficaces de fission est demandée. Comme le montre le tableau ci-dessous, certains de ces isotopes du Curium présentent de courtes durées de vie (163 jours pour le  $^{242}\text{Cm}$ ).

	Noyaux cible		Période	$\sigma(n,f)$ ( $E_n=0.025$ eV)	Réaction de transfert
cible demandée	$^{241}\text{Am}$	Non fissile	432 ans	3.1 b	
	$^{243}\text{Am}$	Non fissile	7370 ans	0.074 b	
$\sigma(n,f)$ mesurée	$^{241}\text{Am}$	Non fissile	432 ans	3.1 b	$^{243}\text{Am}(^3\text{He},\alpha)^{242}\text{Am}$
	$^{240}\text{Cm}$	Non fissile	27 jours		$^{241}\text{Am}(^3\text{He},t)^{241}\text{Cm}$
	$^{241}\text{Cm}$	Fissile	32.8 jours		$^{241}\text{Am}(^3\text{He},d)^{242}\text{Cm}$
	$^{242}\text{Cm}$	Non fissile	163 jours	5 b	$^{241}\text{Am}(^3\text{He},p)^{243}\text{Cm}$
	$^{243}\text{Cm}$	Fissile	29 ans	620 b	et : $^{243}\text{Am}(^3\text{He},t)^{243}\text{Cm}$
	$^{244}\text{Cm}$	Non fissile	18.1 ans	1.1 b	$^{243}\text{Am}(^3\text{He},d)^{244}\text{Cm}$ $^{243}\text{Am}(^3\text{He},p)^{245}\text{Cm}$

La fabrication de cible isotopiquement pure soulève actuellement de nombreux problèmes. La méthode que nous avons exploitée permettrait de contourner ce problème à partir d'une faible quantité de matière pour la cible (30-50  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ). Nous proposons les réactions suivantes ( $^{241}\text{Am}(^3\text{He},x)^{241,242,243}\text{Cm}, ^{240}\text{Am}$ ) et ( $^{243}\text{Am}(^3\text{He},x)^{243,244,245}\text{Cm}$ ) qui permettraient de déterminer la section efficace de fission induite par neutron sur les cinq isotopes du Curium (240,241,242,243,244).

Par ailleurs, le dispositif expérimental employé nous a également permis de déterminer les distributions en masse des noyaux  $^{231}\text{Th}$  et  $^{232,233,234}\text{Pa}$ . Pour des énergies d'excitation inférieures à 10 MeV, l'évolution des masses moyenne est en bon accord avec la systématique de Flynn. Celle-ci prévoit que la masse moyenne des fragments lourds reste constante alors que celle des fragments légers augmente avec la masse du noyau fissionnant.

L'interprétation des sections efficaces de fission des noyaux  $^{231}\text{Pa}$  et  $^{233}\text{Pa}$  a été réalisée avec un modèle statistique du type Hauser-Feshbach permettant de reproduire la compétition entre la capture, l'émission d'un neutron et la fission. Les densités de niveaux dans les premiers puits des noyaux A et A-1 ainsi qu'aux sommets des deux barrières de fission du noyau A ont été calculées à partir de l'approche phénoménologique proposée par Ignatyuk. Les paramètres variables de notre modèle sont la hauteur et l'épaisseur des deux barrières de fission et les effets de couches à leur sommet.

Nous avons déduit les caractéristiques des barrières de fission des noyaux  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$ . Pour le  $^{232}\text{Pa}$ , nous avons constaté un bon accord avec les mesures précédentes.

---

Pour le  $^{234}\text{Pa}$  dont les barrières de fission étaient inconnues, notre mesure prévoit une seconde barrière de 6.3 MeV avec une incertitude de 0.1 MeV.

Les corrections de couches calculées au sommet de la première barrière ( $\Delta S_A \simeq 2$  MeV) sont conformes aux valeurs empiriques proposées par Bjørnholm et Lynn. En revanche, nos résultats plaident en faveur d'une correction de couche négative au sommet de la seconde barrière. La simplicité de notre modèle et la complexité de la seconde barrière ne nous permettent cependant pas de conclure définitivement.

A partir de la compétition entre les trois voies de sortie : capture, diffusion inélastique et fission, nous avons calculé les sections efficaces associées à ces trois phénomènes entre 1 keV et 5 MeV. Au-delà de 1 MeV, notre mesure de la section efficace de fission nous a permis de mieux contraindre le modèle statistique. Au-dessous de 1 MeV, nos sections efficaces calculées pour la diffusion inélastique et la capture sont globalement en bon accord avec les prévisions de JENDL. Il est clair qu'une mesure de la section efficace de capture entre 0 et 1 MeV est absolument indispensable pour valider ces prédictions.





# Annexe A

## Rapports $\Gamma_n/\Gamma_f$

Les rapports  $\Gamma_n/\Gamma_f$  représentent la compétition entre l'émission d'un neutron ( $\Gamma_n$ ) par le noyau composé et la fission ( $\Gamma_f$ ). A partir de la relation donnant la probabilité de fission (A.1) il est possible d'écrire simplement le rapport ( $\Gamma_n/\Gamma_f$ ) comme (A.2) :

$$P_f = \frac{\langle \Gamma_f \rangle}{\langle \Gamma_f \rangle + \langle \Gamma_n \rangle + \langle \Gamma_\gamma \rangle} \quad (\text{A.1})$$

$$\frac{\langle \Gamma_n \rangle}{\langle \Gamma_f \rangle} = \frac{1}{P_f} - 1 - \frac{\langle \Gamma_\gamma \rangle}{\langle \Gamma_f \rangle} \quad (\text{A.2})$$

Pour des énergies d'excitation comprises entre 8 et 10 MeV, la fission et la diffusion inélastique deviennent généralement prépondérantes devant la capture du neutron ( $\Gamma_\gamma \ll \Gamma_n$  ou  $\Gamma_f$ ). Le tableau (A.1) présente nos résultats pour les quatre noyaux que nous avons étudiés.

Noyau	E*	Pf(%)	$\Gamma_n/\Gamma_f$
$^{231}\text{Th}$	8 MeV	8.25	10.95
$^{231}\text{Th}$	10 MeV	8.12	11.28
$^{232}\text{Pa}$	8 MeV	36.2	1.762
$^{232}\text{Pa}$	10 MeV	29.0	2.450
$^{233}\text{Pa}$	8 MeV	25.6	2.790
$^{233}\text{Pa}$	10 MeV	22.0	3.520
$^{234}\text{Pa}$	8 MeV	16.2	5.211
$^{234}\text{Pa}$	10 MeV	15.1	5.630

TAB. A.1: Rapport  $\Gamma_n/\Gamma_f$  calculé pour les noyaux  $^{231}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Pa}$ ,  $^{233}\text{Pa}$  et  $^{234}\text{Pa}$

La figure (A.1) présente la systématique de Vandenbosch et Huizenga [VAN73] sur laquelle nous avons présenté nos résultats et ceux de Gavron [GAV76] pour les noyaux

$^{230}\text{Pa}$  et  $^{231}\text{Pa}$  (sans présenter leurs résultats pour les  $^{232}\text{Pa}$  et  $^{233}\text{Pa}$  qui sont identiques aux nôtres). On remarquera le bon alignement sur une droite en échelle logarithmique des trois isotopes du Protactinium mesurés (232, 233 et 234). Ceci reflète l'évolution régulièrement décroissante de la probabilité de fission mesurée au niveau du plateau de la fission de première chance quand la masse du noyau augmente.

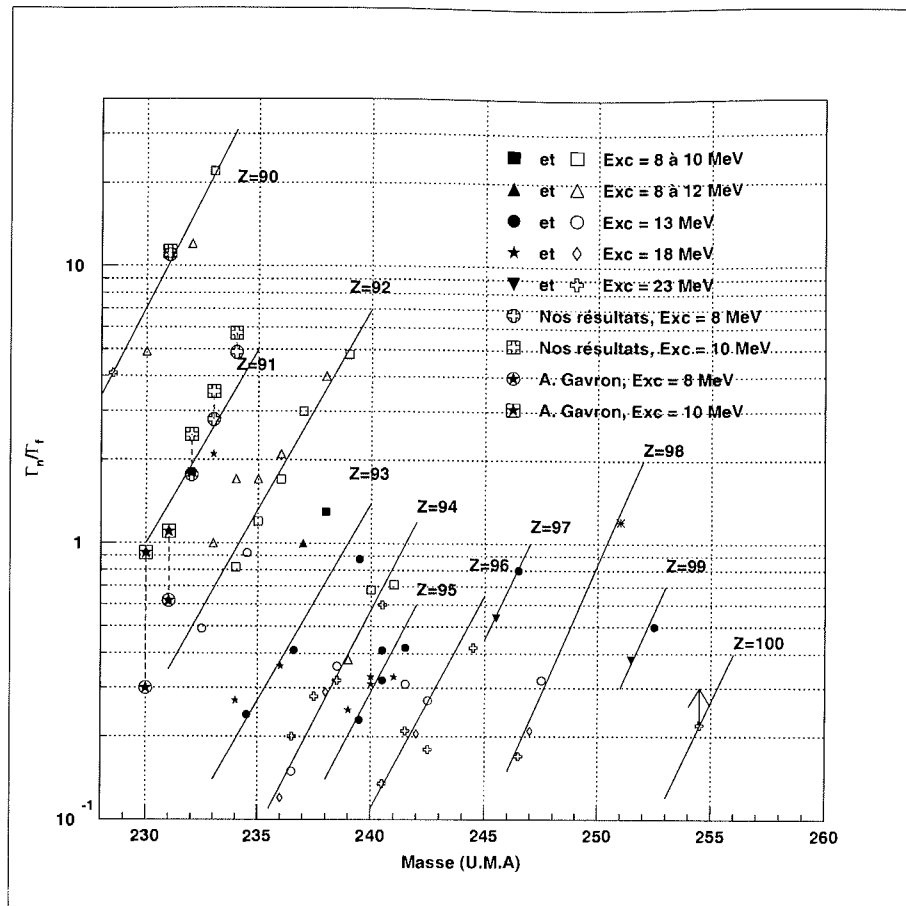


FIG. A.1: Rapport entre l'émission de neutrons ( $\Gamma_n$ ) et la fission ( $\Gamma_f$ ) représenté en fonction du nombre de masse. Les symboles ouvert et fermé représentent respectivement les noyaux pair et impair en protons. ( $\Delta$ ) Données obtenues par réaction induite par photon (photoneutron et photofission) correspondant à des énergies d'excitation de 8 à 12 MeV.  $\square$  Données provenant de sections efficaces de fission induite par neutron de 3 MeV correspondant à des énergies d'excitation de 8 à 10 MeV. Les autres symboles correspondent à des valeurs moyennes de  $\Gamma_n/\Gamma_f$  obtenues pour des énergies d'excitation moyennes de 13, 18 et 23 MeV (d'après [VAN58])

## Annexe B

### Probabilités de fission mesurées

E*	<sup>231</sup> Th	<sup>232</sup> Pa	<sup>233</sup> Pa	<sup>234</sup> Pa	$\sigma_{NC}(\text{}^{232}\text{Pa})$	$\sigma_{NC}(\text{}^{234}\text{Pa})$
(MeV)	Pf(%)				(barns)	(barns)
5.25	—	—	0.54 ± 0.12	—	—	—
5.35	—	—	0.30 ± 0.08	—	2.650	2.644
5.45	0.41 ± 0.24	—	0.29 ± 0.06	—	2.724	2.707
5.55	0.26 ± 0.13	—	0.97 ± 0.16	—	2.763	2.760
5.65	0.01 ± 0.01	—	2.04 ± 0.22	—	2.790	2.789
5.75	0.60 ± 0.26	1.42 ± 0.32	4.45 ± 0.33	—	2.810	2.805
5.85	0.80 ± 0.35	1.90 ± 0.43	11.9 ± 0.6	—	2.818	2.812
5.95	1.71 ± 0.46	3.99 ± 0.61	26.8 ± 0.9	—	2.820	2.811
6.05	4.1 ± 0.8	8.56 ± 0.98	44.8 ± 1.2	—	2.817	2.801
6.15	4.9 ± 0.8	14.1 ± 1.2	50.8 ± 1.2	—	2.816	2.789
6.25	6.4 ± 0.9	19.7 ± 1.5	56.7 ± 1.3	1.52 ± 0.27	2.819	2.782
6.35	11.0 ± 1.2	23.1 ± 1.6	58.1 ± 1.3	3.84 ± 0.48	2.819	2.776
6.45	9.9 ± 1.1	29.3 ± 1.8	61.6 ± 1.3	8.47 ± 0.70	2.826	2.775
6.55	10.4 ± 1.1	34.1 ± 1.9	62.9 ± 1.3	10.6 ± 0.8	2.836	2.777
6.65	10.5 ± 1.1	35.7 ± 2.0	60.1 ± 1.3	11.6 ± 0.8	2.850	2.786
6.75	10.4 ± 1.1	35.3 ± 1.9	59.9 ± 1.3	12.2 ± 0.8	2.868	2.802
6.85	10.0 ± 1.0	34.0 ± 1.7	55.2 ± 1.2	14.5 ± 0.8	2.887	2.819
6.95	7.9 ± 0.8	38.9 ± 2.0	50.9 ± 1.1	14.1 ± 0.8	2.907	2.837
7.05	10.1 ± 1.0	34.4 ± 1.7	46.9 ± 1.1	15.5 ± 0.8	2.926	2.855
7.15	10.3 ± 1.1	38.9 ± 1.9	41.6 ± 1.0	17.3 ± 0.9	2.944	2.873
7.25	10.9 ± 1.1	39.7 ± 1.9	39.2 ± 1.0	14.7 ± 0.8	2.958	2.889
7.35	10.8 ± 1.0	41.7 ± 1.9	35.0 ± 0.9	16.8 ± 0.8	2.969	2.901
7.45	9.3 ± 1.0	37.6 ± 1.8	31.3 ± 0.8	16.3 ± 0.8	2.976	2.910

Annexe B. Probabilités de fission mesurées

E*	<sup>231</sup> Th	<sup>232</sup> Pa	<sup>233</sup> Pa	<sup>234</sup> Pa	$\sigma_{NC}(^{232}\text{Pa})$	$\sigma_{NC}(^{234}\text{Pa})$
7.55	9.5 ± 0.9	38.3 ± 1.8	29.8 ± 0.8	16.4 ± 0.8	2.979	2.916
7.65	10.0 ± 1.0	35.7 ± 1.6	27.6 ± 0.7	18.0 ± 0.8	2.980	2.920
7.75	8.6 ± 0.9	36.9 ± 1.7	25.0 ± 0.7	17.1 ± 0.8	2.979	2.921
7.85	7.3 ± 0.7	34.9 ± 1.6	25.8 ± 0.7	15.9 ± 0.7	2.975	2.920
7.95	8.8 ± 0.9	35.3 ± 1.6	25.6 ± 0.7	16.3 ± 0.7	2.969	2.918
8.05	8.5 ± 0.9	37.0 ± 1.6	26.6 ± 0.7	15.9 ± 0.7	2.962	2.914
8.15	7.5 ± 0.8	35.2 ± 1.6	25.3 ± 0.7	15.2 ± 0.6	2.955	2.909
8.25	8.8 ± 0.8	37.9 ± 1.6	25.5 ± 0.7	16.2 ± 0.6	2.950	2.907
8.35	8.6 ± 0.8	32.0 ± 1.4	24.0 ± 0.6	16.1 ± 0.6	2.947	2.906
8.45	8.4 ± 0.9	33.4 ± 1.5	23.9 ± 0.6	14.5 ± 0.6	2.944	2.906
8.55	8.5 ± 0.8	31.1 ± 1.4	24.1 ± 0.6	14.9 ± 0.6	2.940	2.905
8.65	8.4 ± 0.8	32.3 ± 1.4	24.2 ± 0.6	14.9 ± 0.6	2.936	2.904
8.75	10.2 ± 0.9	32.9 ± 1.4	23.9 ± 0.6	15.8 ± 0.6	2.934	2.903
8.85	8.7 ± 0.8	34.5 ± 1.4	24.2 ± 0.6	15.8 ± 0.6	2.931	2.902
8.95	8.0 ± 0.7	29.8 ± 1.3	23.0 ± 0.6	15.5 ± 0.6	2.929	2.901
9.05	9.2 ± 0.9	29.4 ± 1.2	24.3 ± 0.6	15.4 ± 0.5	2.927	2.899
9.15	8.2 ± 0.8	29.4 ± 1.2	24.7 ± 0.6	15.7 ± 0.5	2.925	2.897
9.25	8.3 ± 0.8	32.0 ± 1.3	24.5 ± 0.6	16.8 ± 0.6	2.922	2.895
9.35	8.4 ± 0.7	30.3 ± 1.2	23.6 ± 0.5	16.9 ± 0.5	2.919	2.893
9.45	8.5 ± 0.8	31.8 ± 1.3	23.2 ± 0.5	16.4 ± 0.5	2.916	2.891
9.55	8.9 ± 0.8	32.1 ± 1.3	22.9 ± 0.5	15.5 ± 0.5	2.912	2.889
9.65	8.6 ± 0.8	31.0 ± 1.2	22.4 ± 0.5	15.6 ± 0.5	2.907	2.886
9.75	7.8 ± 0.7	30.4 ± 1.2	22.3 ± 0.5	15.5 ± 0.5	2.904	2.882
9.85	8.5 ± 0.8	28.8 ± 1.2	22.3 ± 0.5	15.3 ± 0.5	2.899	2.877
9.95	7.8 ± 0.7	29.0 ± 1.1	21.8 ± 0.5	15.1 ± 0.5	2.894	2.873
10.05	8.7 ± 0.8	28.4 ± 1.1	21.9 ± 0.4	15.3 ± 0.4	2.888	2.869

$E^*$	$^{231}\text{Th}$	$^{232}\text{Pa}$	$^{233}\text{Pa}$	$^{234}\text{Pa}$	$\sigma_{NC}(^{232}\text{Pa})$	$\sigma_{NC}(^{234}\text{Pa})$
10.15	$7.6 \pm 0.7$	$29.1 \pm 1.1$	$21.6 \pm 0.4$	$13.8 \pm 0.4$	2.882	2.863
10.25	$8.3 \pm 0.7$	$28.2 \pm 1.1$	$22.1 \pm 0.4$	$15.5 \pm 0.4$	2.876	2.857
10.35	$7.3 \pm 0.7$	$29.0 \pm 1.1$	$21.3 \pm 0.4$	$14.5 \pm 0.4$	2.870	2.851
10.45	$8.4 \pm 0.7$	$27.8 \pm 1.1$	$21.7 \pm 0.4$	$14.9 \pm 0.4$	2.863	2.845
10.55	$7.5 \pm 0.7$	$28.2 \pm 1.1$	$21.7 \pm 0.4$	$14.5 \pm 0.4$	2.856	2.838
10.65	$7.9 \pm 0.7$	$27.3 \pm 1.0$	$21.5 \pm 0.4$	$13.8 \pm 0.4$	2.849	2.831
10.75	$8.4 \pm 0.7$	$27.2 \pm 1.0$	$21.3 \pm 0.4$	$13.4 \pm 0.4$	2.843	2.825
10.85	$7.9 \pm 0.7$	$26.4 \pm 1.0$	$22.2 \pm 0.4$	$13.3 \pm 0.3$	2.836	2.818
10.95	$7.0 \pm 0.7$	$26.7 \pm 1.0$	$21.7 \pm 0.4$	$13.0 \pm 0.3$	2.830	2.811
11.05	$8.4 \pm 0.7$	$28.4 \pm 1.1$	$22.4 \pm 0.4$	$13.5 \pm 0.3$	2.824	2.804
11.15	$8.9 \pm 0.7$	$27.9 \pm 1.0$	$21.6 \pm 0.4$	$14.0 \pm 0.3$	2.817	2.797
11.25	$8.8 \pm 0.7$	$27.0 \pm 1.0$	$21.8 \pm 0.4$	$14.5 \pm 0.3$	2.811	2.790
11.35	$9.5 \pm 0.7$	$26.6 \pm 1.0$	$21.4 \pm 0.4$	$14.6 \pm 0.4$	2.805	2.784
11.45	$10.9 \pm 0.8$	$27.9 \pm 1.1$	$21.0 \pm 0.4$	$16.1 \pm 0.4$	2.800	2.778
11.55	$10.6 \pm 0.8$	$31.4 \pm 1.0$	$21.7 \pm 0.4$	$18.7 \pm 0.5$	2.794	2.772
11.65	$14.3 \pm 0.9$	$31.8 \pm 1.0$	$21.0 \pm 0.3$	$20.0 \pm 0.6$	2.789	2.767
11.75	$13.7 \pm 0.9$	$32.3 \pm 1.0$	$21.1 \pm 0.3$	$21.9 \pm 0.6$	2.784	2.761
11.85	$15.4 \pm 0.9$	$36.2 \pm 1.1$	$21.4 \pm 0.3$	$23.7 \pm 0.7$	2.780	2.755
11.95	$16.0 \pm 0.9$	$39.2 \pm 1.1$	$21.0 \pm 0.3$	$26.0 \pm 0.7$	2.775	2.750
12.05	$17.3 \pm 0.9$	$41.5 \pm 1.2$	$21.4 \pm 0.3$	$27.9 \pm 0.8$	2.770	2.745
12.15	$19.1 \pm 1.0$	$43.2 \pm 1.2$	$20.4 \pm 0.3$	$30.1 \pm 0.9$	2.765	2.740
12.25	$21.9 \pm 1.1$	$46.7 \pm 1.2$	$21.1 \pm 0.3$	$30.8 \pm 1.0$	2.760	2.734
12.35	$21.5 \pm 1.1$	$49.9 \pm 1.2$	$20.8 \pm 0.3$	$32.5 \pm 1.1$	2.755	2.729
12.45	$21.8 \pm 1.1$	$49.3 \pm 1.2$	$20.3 \pm 0.3$	$33.6 \pm 1.2$	2.750	2.723
12.55	$22.6 \pm 1.1$	$53.6 \pm 1.3$	$20.9 \pm 0.3$	$33.9 \pm 1.2$	2.745	2.718

Annexe B. Probabilités de fission mesurées

E*	<sup>231</sup> Th	<sup>232</sup> Pa	<sup>233</sup> Pa	<sup>234</sup> Pa	$\sigma_{NC}(^{232}\text{Pa})$	$\sigma_{NC}(^{234}\text{Pa})$
12.65	21.6 ± 1.0	54.6 ± 1.3	20.8 ± 0.3	35.3 ± 1.4	2.740	2.712
12.75	21.3 ± 1.0	57.8 ± 1.3	21.4 ± 0.3	34.4 ± 1.5	2.734	2.706
12.85	21.3 ± 1.0	59.1 ± 1.3	21.6 ± 0.3	34.2 ± 1.5	2.728	2.700
12.95	22.2 ± 1.0	61.0 ± 1.4	22.2 ± 0.3	33.8 ± 1.5	2.722	2.693
13.05	21.3 ± 1.0	59.3 ± 1.3	22.6 ± 0.3	34.5 ± 1.7	2.715	2.687
13.15	23.2 ± 1.1	62.4 ± 1.4	24.1 ± 0.3	33.7 ± 1.8	2.708	2.680
13.25	22.3 ± 1.1	61.3 ± 1.3	25.1 ± 0.3	33.7 ± 1.9	2.701	2.673
13.35	21.4 ± 1.0	60.5 ± 1.3	26.2 ± 0.3	32.7 ± 2.0	2.694	2.666
13.45	20.8 ± 1.0	60.7 ± 1.3	27.8 ± 0.3	32.6 ± 2.0	2.686	2.658
13.55	20.2 ± 0.9	61.7 ± 1.3	29.2 ± 0.3	31.6 ± 2.0	2.678	2.649
13.65	20.6 ± 1.0	60.4 ± 1.3	30.5 ± 0.3	32.2 ± 2.2	2.670	2.641
13.75	20.4 ± 1.0	59.6 ± 1.3	32.0 ± 0.3	31.4 ± 2.2	2.661	2.632
13.85	19.8 ± 0.9	59.1 ± 1.3	33.5 ± 0.3	31.1 ± 2.3	2.652	2.624
13.95	20.3 ± 1.0	61.3 ± 1.3	34.5 ± 0.4	30.5 ± 2.4	2.643	2.615
14.05	20.9 ± 1.0	58.7 ± 1.2	35.4 ± 0.4	30.4 ± 2.6	2.633	2.605
14.15	21.8 ± 1.0	57.5 ± 1.2	36.6 ± 0.4	30.1 ± 2.7	2.622	2.595
14.25	20.4 ± 1.0	59.0 ± 1.2	37.7 ± 0.4	29.8 ± 2.8	2.612	2.584
14.35	20.3 ± 1.0	56.7 ± 1.2	38.0 ± 0.4	29.3 ± 2.9	2.601	2.574
14.45	20.4 ± 1.0	57.0 ± 1.2	38.7 ± 0.4	29.3 ± 3.0	2.589	2.563
14.55	19.0 ± 0.9	58.4 ± 1.2	40.2 ± 0.4	28.9 ± 3.0	2.578	2.552
14.65	19.4 ± 0.9	56.1 ± 1.2	40.6 ± 0.4	29.0 ± 3.1	2.566	2.541
14.75	18.8 ± 0.9	57.4 ± 1.2	40.6 ± 0.4	27.8 ± 3.1	2.554	2.529
14.85	18.4 ± 0.9	54.2 ± 1.1	41.1 ± 0.4	28.6 ± 3.4	2.541	2.517
14.95	19.1 ± 0.9	56.7 ± 1.2	40.9 ± 0.4	28.2 ± 3.4	2.529	2.505
15.05	20.5 ± 0.9	56.0 ± 1.2	40.4 ± 0.4	28.0 ± 3.5	2.516	2.493

# Annexe C

## Sections efficaces calculées

$^{234}\text{Pa}$					$^{232}\text{Pa}$				
En	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,n')$	$\sigma(n,\gamma)$	En	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,n')$	$\sigma(n,\gamma)$
(MeV)	Mesuré	Calculé			(MeV)	Mesuré	Calculé		
0.001	—	—	—	11.07	—	—	—	—	—
0.010	—	—	0.107	3.798	—	—	—	—	—
0.030	—	—	0.168	2.631	—	—	—	—	—
0.070	—	—	0.293	2.283	—	—	—	—	—
0.100	—	—	0.632	1.985	—	—	—	—	—
0.150	—	—	1.115	1.522	—	—	—	—	—
0.200	—	—	1.412	1.259	—	—	—	—	—
0.250	—	—	1.689	1.030	0.220	0.040	0.039	1.242	1.429
0.300	—	—	1.872	0.870	0.270	0.029	0.050	1.473	1.214
0.350	—	—	1.999	0.757	0.320	0.075	0.065	1.635	1.052
0.400	—	—	2.098	0.679	0.370	0.083	0.084	1.763	0.917
0.450	—	—	2.162	0.627	0.420	0.140	0.109	1.857	0.817
0.500	—	—	2.222	0.578	0.470	0.194	0.142	1.911	0.744
0.550	—	—	2.265	0.548	0.520	0.287	0.183	1.936	0.687
0.600	—	—	2.289	0.521	0.570	0.351	0.233	1.939	0.642
0.650	—	—	2.310	0.505	0.620	0.448	0.288	1.925	0.605
0.700	—	—	2.320	0.493	0.670	0.487	0.347	1.899	0.573
0.750	—	—	2.331	0.483	0.720	0.629	0.407	1.869	0.546
0.800	—	—	2.335	0.474	0.770	0.689	0.468	1.836	0.523
0.850	—	—	2.334	0.465	0.820	0.614	0.524	1.795	0.500
0.900	—	—	2.335	0.459	0.870	0.786	0.580	1.756	0.481
0.950	—	—	2.333	0.454	0.920	0.863	0.633	1.716	0.463

Annexe C. Sections efficaces calculées

$^{234}\text{Pa}$					$^{232}\text{Pa}$				
En	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,n')$	$\sigma(n,\gamma)$	En	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,n')$	$\sigma(n,\gamma)$
(MeV)	Mesuré	Calculé			(MeV)	Mesuré	Calculé		
1.000	0.052	0.036	2.305	0.445	0.970	0.956	0.686	1.682	0.447
1.050	0.058	0.054	2.290	0.438	1.020	0.967	0.737	1.650	0.432
1.100	0.073	0.079	2.269	0.430	1.070	0.981	0.784	1.617	0.417
1.150	0.140	0.109	2.247	0.420	1.120	1.034	0.829	1.588	0.402
1.200	0.188	0.141	2.222	0.410	1.170	0.957	0.870	1.561	0.388
1.250	0.281	0.174	2.201	0.399	1.220	1.035	0.909	1.539	0.373
1.300	0.268	0.206	2.181	0.388	1.270	1.035	0.946	1.522	0.359
1.350	0.322	0.237	2.165	0.376	1.320	0.895	0.980	1.508	0.345
1.400	0.326	0.265	2.151	0.363	1.370	1.166	1.011	1.497	0.331
1.450	0.319	0.292	2.144	0.350	1.420	1.049	1.038	1.489	0.317
1.500	0.377	0.316	2.141	0.337	1.470	1.007	1.064	1.487	0.304
1.550	0.305	0.338	2.141	0.324	1.520	0.963	1.086	1.486	0.291
1.600	0.445	0.357	2.143	0.310	1.570	1.133	1.105	1.489	0.277
1.650	0.372	0.375	2.147	0.296	1.620	1.106	1.121	1.494	0.264
1.700	0.401	0.391	2.155	0.282	1.670	1.224	1.136	1.502	0.252
1.750	0.398	0.405	2.163	0.269	1.720	1.079	1.149	1.512	0.240
1.800	0.460	0.417	2.172	0.255	1.770	1.248	1.159	1.523	0.228
1.850	0.427	0.428	2.184	0.242	1.820	1.190	1.167	1.535	0.217
1.900	0.512	0.438	2.196	0.230	1.870	1.069	1.174	1.549	0.206
1.950	0.483	0.447	2.209	0.218	1.920	1.143	1.179	1.563	0.196
2.000	0.424	0.454	2.221	0.206	1.970	1.135	1.182	1.579	0.186
2.050	0.425	0.461	2.234	0.194	2.020	1.131	1.184	1.595	0.177
2.100	0.461	0.466	2.246	0.183	2.070	1.027	1.183	1.610	0.168
2.150	0.511	0.470	2.257	0.173	2.120	1.088	1.181	1.626	0.159
2.200	0.491	0.474	2.269	0.163	2.170	1.074	1.177	1.643	0.151
2.250	0.458	0.477	2.280	0.154	2.220	1.118	1.173	1.659	0.143
2.300	0.518	0.479	2.290	0.145	2.270	1.028	1.167	1.674	0.135
2.350	0.441	0.481	2.299	0.137	2.320	1.050	1.161	1.689	0.128
2.400	0.489	0.482	2.308	0.129	2.370	1.051	1.154	1.703	0.122
2.450	0.559	0.483	2.315	0.122	2.420	1.055	1.147	1.718	0.116
2.500	0.516	0.484	2.322	0.115	2.470	1.048	1.138	1.731	0.110
2.550	0.486	0.484	2.328	0.109	2.520	1.161	1.130	1.745	0.104
2.600	0.532	0.484	2.334	0.103	2.570	1.093	1.121	1.758	0.099
2.650	0.396	0.484	2.339	0.097	2.620	0.999	1.112	1.771	0.094
2.700	0.463	0.484	2.344	0.092	2.670	1.196	1.102	1.782	0.089



$^{234}\text{Pa}$					$^{232}\text{Pa}$				
En	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,n')$	$\sigma(n,\gamma)$	En	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,n')$	$\sigma(n,\gamma)$
(MeV)	Mesuré	Calculé			(MeV)	Mesuré	Calculé		
2.750	0.487	0.483	2.348	0.087	2.720	1.066	1.092	1.793	0.085
2.800	0.479	0.482	2.352	0.082	2.770	0.989	1.082	1.804	0.081
2.850	0.445	0.481	2.355	0.078	2.820	0.907	1.072	1.815	0.077
2.900	0.468	0.479	2.358	0.074	2.870	0.957	1.062	1.825	0.073
2.950	0.419	0.478	2.362	0.070	2.920	1.018	1.052	1.835	0.070
3.000	0.496	0.477	2.364	0.066	2.970	0.886	1.042	1.844	0.067
3.050	0.446	0.476	2.367	0.063	3.020	0.951	1.033	1.854	0.063
3.100	0.461	0.475	2.372	0.060	3.070	0.916	1.024	1.864	0.061
3.150	0.475	0.473	2.376	0.057	3.120	0.993	1.015	1.875	0.058
3.200	0.426	0.472	2.380	0.055	3.170	0.984	1.006	1.885	0.056
3.250	0.419	0.471	2.383	0.052	3.220	0.952	0.998	1.895	0.053
3.300	0.446	0.469	2.386	0.050	3.270	0.993	0.989	1.904	0.051
3.350	0.421	0.468	2.389	0.047	3.320	1.034	0.980	1.912	0.049
3.400	0.406	0.466	2.392	0.045	3.370	0.850	0.971	1.921	0.047
3.450	0.458	0.465	2.395	0.043	3.420	0.901	0.963	1.929	0.045
3.500	0.442	0.464	2.397	0.041	3.470	0.909	0.955	1.937	0.043
3.550	0.477	0.462	2.400	0.040	3.520	0.819	0.947	1.946	0.041
3.600	0.452	0.461	2.404	0.038	3.570	0.871	0.939	1.954	0.040
3.650	0.466	0.459	2.406	0.036	3.620	0.851	0.932	1.962	0.038
3.700	0.454	0.458	2.408	0.035	3.670	0.916	0.924	1.970	0.037
3.750	0.446	0.456	2.410	0.034	3.720	0.958	0.917	1.977	0.035
3.800	0.476	0.455	2.413	0.032	3.770	0.824	0.910	1.985	0.034
3.850	0.418	0.453	2.414	0.031	3.820	0.951	0.903	1.992	0.033
3.900	0.470	0.452	2.416	0.030	3.870	0.955	0.896	1.999	0.032
3.950	0.439	0.450	2.419	0.029	3.920	0.905	0.889	2.006	0.031
4.000	0.472	0.449	2.420	0.028	3.970	0.944	0.882	2.012	0.030
4.050	0.498	0.447	2.422	0.027	4.020	0.931	0.875	2.019	0.029
4.100	0.496	0.446	2.423	0.026	4.070	0.935	0.868	2.025	0.028
4.150	0.483	0.444	2.424	0.025	4.120	0.874	0.862	2.031	0.027
4.200	0.469	0.443	2.425	0.024	4.170	0.906	0.856	2.037	0.026
4.250	0.477	0.441	2.427	0.023	4.220	0.869	0.849	2.043	0.025
4.300	0.444	0.440	2.428	0.022	4.270	0.901	0.843	2.048	0.024
4.350	0.454	0.438	2.429	0.021	4.320	0.781	0.836	2.053	0.023
4.400	0.447	0.437	2.429	0.021	4.370	0.840	0.830	2.058	0.023
4.450	0.455	0.435	2.429	0.020	4.420	0.845	0.824	2.063	0.022

Annexe C. Sections efficaces calculées

$^{234}\text{Pa}$					$^{232}\text{Pa}$				
En	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,n')$	$\sigma(n,\gamma)$	En	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,f)$	$\sigma(n,n')$	$\sigma(n,\gamma)$
(MeV)	Mesuré	Calculé			(MeV)	Mesuré	Calculé		
4.500	0.440	0.434	2.429	0.019	4.470	0.893	0.818	2.067	0.021
4.550	0.454	0.432	2.429	0.019	4.520	0.757	0.812	2.072	0.021
4.600	0.429	0.431	2.430	0.018	4.570	0.808	0.806	2.076	0.020
4.650	0.450	0.429	2.430	0.018	4.620	0.881	0.801	2.081	0.019
4.700	0.460	0.428	2.430	0.017	4.670	0.819	0.795	2.084	0.019
4.750	0.407	0.426	2.430	0.016	4.720	0.813	0.789	2.088	0.018
4.800	0.447	0.425	2.431	0.016	4.770	0.785	0.783	2.091	0.018
4.850	0.432	0.423	2.430	0.015	4.820	0.891	0.778	2.095	0.017
4.900	0.388	0.421	2.429	0.015	4.870	0.805	0.772	2.098	0.017
4.950	0.399	0.420	2.428	0.015	4.920	0.797	0.767	2.101	0.016
5.000	0.421	0.418	2.427	0.014	4.970	0.855	0.761	2.104	0.016
5.050	0.461	0.417	2.426	0.014	5.020	0.766	0.756	2.106	0.015
5.100	0.409	0.415	2.425	0.013	5.070	0.803	0.751	2.109	0.015
5.150	0.415	0.414	2.424	0.013	5.120	0.764	0.746	2.111	0.014
5.200	0.418	0.412	2.423	0.013	5.170	0.776	0.740	2.114	0.014
5.250	0.428	0.411	2.422	0.012	5.220	0.783	0.735	2.116	0.014
5.300	0.395	0.409	2.420	0.012	5.270	0.748	0.730	2.118	0.013
5.350	0.426	0.408	2.418	0.012	5.320	0.761	0.725	2.120	0.013
5.400	0.372	0.406	2.417	0.011	5.370	0.684	0.720	2.121	0.013
5.450	0.410	0.405	2.415	0.011	5.420	0.834	0.716	2.123	0.012
5.500	0.378	0.403	2.413	0.011	5.470	0.783	0.711	2.124	0.012

# Bibliographie

- [APA65] V. F. Apalin, Yu. N. Gritsyuk, I. E. Kutikov, Lebedev, V. I. Lebedev et L. A. Mikaelyan, *Proc. I.A.E.A Symp. Phys. Chem. Fission, Salzburg* **1** (1965) 586.
- [AUD85] G. Audi et A.H. Wapstra, *Nucl. Phys.* **A432** (1985) 1.
- [AUE62] E. H. Auerbach et F. G. J. Perey, *Rapport BNL 765 (T-286)* (1962)
- [BAC74] B. B. Back, H. C. Britt, O. Hensen et B. Leroux, *Phys. Rev.* **C10** (1974) 1948.
- [BAC74b] B. B. Back, O. Hensen, H. C. Britt, et J. D. Garret, *Phys. Rev.* **C9** (1974) 1924.
- [BAR57] J. Bardeen, L. N. Cooper et J. R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **C9** (1974) 1924.
- [BAR77] G. Barreau, *Thèse d'état Bordeaux* (1977)
- [BAR00] G. Barreau, *Ann. Phys. Fr.* **25** (2000) N°2.
- [BAU98] E. Bauge, J. P. Delaroche et M. Girod, *Phys. Rev.* **Vol. C58 Num. 2** (1998) 1118.
- [BAU00] E. Bauge, J. P. Delaroche, M. Girod, G. Haouat, J. Lachkar, Y. Patin, J. Sigaud et J. Chardine, *Phys. Rev.* **C61** (2000) 034306.
- [BAU01] E. Bauge, J. P. Delaroche et M. Girod, *Phys. Rev.* **C63** (2001) 024607.
- [BEH76] J. W. Behrens, "Measurement of the Neutron-Induced Fission Cross Section of  $^{243}\text{Am}$  Relative to  $^{235}\text{U}$  from 0.1 MeV to 30 MeV", UCID-17504, Lawrence Livermore Laboratory (1976)
- [BER84] J. F. Berger, M. Girod et D. Gogny, *Nucl. Phys.* **A248** (1984) 23c-36c.
- [BJO80] S. Bjørnholm et J. E. Lynn, *Reviews of Modern Physics* (1980)

- [BJO69] S. Bjørnholm et V. M. Strutinsky, *Nucl. Phys.* **A136** (1969) 1.
- [BLA52] J. M. Blatt et V. F. Weisskopf, *Theoretical Nuclear Physics, John Wiley and Sons, New-York* (1952)
- [BLO82] J. Blons, *Thèse Orsay* (1982)
- [BLO84] J. Blons, C. Mazur, D. Paya, M. Ribrag et H. Weigmann, *Nucl. Phys* **A414** (1984) 1.
- [BLO88] J. Blons, B. Fabbro, C. Mazur, D. Paya et M. Ribrag, *Nucl. Phys* **A477** (1988) 231.
- [BLO89] J. Blons, *Nucl. Phys* **A502** (1989) 121c.
- [BOH39] N. Bohr et J. A. Wheeler, *Phys. Rev.* **56** (1939) 426.
- [BOH98] A. Bohr et B. R. Mottelson, *Nuclear Structure, World Scientific Publishing Co. Pte, Ltd.* (1998)
- [BOW92] C. D. Bowman et al, Nuclear energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source. *Nucl. Instr. and. Meth.* **A320** (1992) 336.
- [BRI79] H. C. Britt, *Invited review paper for presentation at the 1979 IAEA Symposium on Physics and Chemistry of Fission, Jülich, West Germany* (May 14-18, 1979)
- [BRI79b] H. C. Britt et J. B. Wilhelmy, *Nucl. Sci. and Eng.* **Vol. 72** (1979) 222.
- [CRA70] J. D. Cramer et H. C. Britt, *Nucl. Sci. and Eng.* **41** (1970) 177.
- [CRA70b] J. D. Cramer et H. C. Britt, *Phys. Rev.* **C2** (1970) 2350.
- [DEC80] J. Dechargé et D. Gogny, *Phys. Rev.* **C21** (1980) 1568.
- [ERB61] E. Erba, U. Facchini et E. Saetta-Menichelle, *Nuovo Cimento* **22** (1961) 1237.
- [FIR96] R. B. Firestone, *Table of Isotope Vol II* (1996) 2568 et 2595.
- [FLO73] H. Flocard, P. Quentin, A. K. Kerman et D. Vautherin, *Nucl. Phys.* **A203** (1973) 433.
- [FLY72] K. F. Flynn, E. P. Horwitz, C. A. A. Bloomquist, R. F. Bornes, R. K. Sjoblom, P. R. Fields et L. E. Glendenin, *Phys. Rev.* **C5** (1972) 1725.

- 
- [GAV76] A. Gavron, H. C. Britt, J. Weber et B. Wilhelmy, *Phys. Rev.* **C13** (1976) 2374.
- [GOU69] F. S. Goulding et B. G. Harvey, *National Academy of Sciences, Washington, DC* (1969) 757.
- [GUN67] H. R. von Gunten, R. F. Buchanan, A. Wytttenbach et K. Behringer, *Nucl. Sci. and Eng.* **Vol. 27** (1967) 85.
- [HAB77] D. Habs, V. Metag, H. J. Specht et G. Ulfert, *Phys. Rev. Lett.* **38** (1977) 387.
- [HAU52] U. Hauser et H. Feshbach, *Phys. Rev.* **87** (1952) 366.
- [HIL53] D.L. Hill et J.A. Wheeler, *Phys. Rev.* **89** (1953) 1102.
- [HOW80] W. M. Howard et P. Möller, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **Vol. 25, N° 3** (1980) 219.
- [HSI81] C. M. Hsieh, P. C. Murley et R. R. O'Brien, *IEEE Trans. Electron Device Letter* **EDL-2** (1981) 103.
- [HUB90] F. Hubert, R. Bimbot et H. Gauvin, *At. Data Nucl. Data Tab* **46** (1990) 1.
- [HUS81] A. Z. Hussein, J.A. Harvey, N.W. Hill et J. R. Patterson, *Nucl. Sci. and Eng.* **78** (1981) 370.
- [IGN75a] A. V. Ignatyuk, G. N. Smirenkin et A. S. Tishin, *Yad. Fiz.* **21** (1975) 485. *Sov. J. Nucl. Phys.* **21** (1975) 255.
- [IGN75b] A. V. Ignatyuk, M. G. Itkis, V. N. Okolovich, G. N. Smirekin et A. S. Tishin, *Yad. Fiz.* **21** (1975) 1185. *Sov. J. Nucl. Phys.* **21** (1975) 612.
- [IGN79] A. V. Ignatyuk, K. K. Isekov et G. N. Smirenkin, *Yad. Fiz.* **29** (1979) 875. *Sov. J. Nucl. Phys.* **29** (1979) 450.
- [IGN93] A. V. Ignatyuk, J. L. Weil, S. Raman et S. Kahane, *Phys. Rev.* **C47** (1993) 1504.
- [ILJ92] A. S. Iljinov et M. V. Mebel *Nucl. Phys.* **A543** (1992) 517.
- [JUN98] A. R. Junghans, M. de Jong, H. G. Clerc, A. V. Ignatyuk, G. A. Kudyaev et K. H. Schmidt, *Nucl. Phys.* **A 629** (1998) 635.
- [KAR98] KARLSRUHER-NUKLIDKARTE, 6<sup>eme</sup> édition 1995, réimpression révisée 1998 (1998)

- [KAR01] D. Karamanis, M. Petit, S. Andriamonje, G. Barreau, M. Bercion, A. Billebaud, B. Blank, S. Czajkowski, R. Del Moral, J. Giovinazzo, V. Lacoste, C. Marchand, L. Perrot, M. Pravikoff et J. C. Thomas, *Nucl. Sci. and Eng.* **139** (2001) 282.
- [KEY73] G. A. Keyworth, J. R. Lemley, C. E. Olsen, F. T. Seibel, J. W. T. Dabbs et N. W. Hill, *Proc. "Phys. and Chem. of fission 1973" I.A.E.A. vienne 1974 Vol I* (1973) 85.
- [KNO79] G. F. Knoll, *Radiation detection and mesurement JOHN WILEY & SONS* (1979) 380.
- [KRA98] A. Krasznahorkay, M. Hunyadi, M. N. Harakeh, M. Csatlós, T. Faestermann, A. Gollwitzer, G. Graw, J. Gulyás, D. Habs, R. Hertenberger, H. J. Maier, Z. Máté, D. Rudolph, P. Thirolf, J. Timár et B. D. Valnion, *Phys. Rev. Lett.* **Vol. 80, Num. 10** (1998) 2073.
- [KUZ97] B. D. Kuz'minov et V. N. Manokin, *Nuclear Constants, Issue No. 3-4 98-10986 (76)* (1997) 41.
- [LAR73] S. E. Larsson et G. Leander, *Proc. "Phys. and Chem. of fission 1973" I.A.E.A Vienne Vol. I* (1974) 177.
- [MAN68] N. F. Mangelson, B. G. Harvey et N. K. Glendenning, *Nucl. Phys.* **A117** (1968) 161.
- [MAN68] N. F. Mangelson, B. G. Harvey et N. K. Glendenning, *Nucl. Phys.* **A119** (1968) 79.
- [MEA83] J. W. Meadows, *ANL/NDM-83* (1983)
- [MET80] V. Metag, *Phys. Rep* **65** (1980) 1.
- [MOL72] P. Möller, *Nucl. Phys.* **A192** (1972) 529.
- [MOL74] P. Möller et J. R. Nix, *Nucl. Phys.* **A229** (1974) 269.
- [MOL95] P. Möller et J. R. Nix, *Atomic Data and Nuclear Data Tables Vol. 59, N° 2* (1995) 185.
- [MUI71] D. W. Muir et L. R. Vesser, *LA-4648-MS* Los Alamos Scientific Laboratory (1971)
- [MYE66] W. D. Myers et W. J. Swiatecki, *Nucl. Phys.* **81** (1966) 1.

- 
- [NNDC] NNDC Online Data Service, *telnet.nndc.bnl.gov*
- [PAU71] H. C. Pauli et T. Ledergerber, *Nucl. Phys.* **A175** (1971) 545.
- [PET98] M. Petit et G. Barreau, "Application des cellules photovoltaïques à la détection des fragments de la fission nucléaire" rapport de D.E.A (1998)
- [PLA81] S. Plattard, G. F. Auchampaugh, N. W. Hill, G. de Saussure, J. A. Harvey et R. B. Perez, *Phys. Rev. Lett.* **46** (1981) 633.
- [POL62] S. M. Polikanov, V. A. Druin, V. A. Karnaukhov, V. L. Mikheev, A. A. Pleve, N. K. Skobelev, V. G. Subbotin, G. M. Ter-Akojan et V. A. Fomichev, *Sov. Phys JETP* **15** (1962) 1016.
- [POR56] C. E. Porter et R. G. Thomas, *Phys. Rev.* **104** (1956) 483.
- [SCH82] K. H. Schmidt, H. Delagrange, J. P. Dufour, N. Cârjan et A. Fleury, *Z. Phys.* **A 308** (1982) 215.
- [SCH66] H. W. Schmitt et F. Pleasonton, *Nucl. Instrum. Methods* **40** (1966) 204.
- [SIC76] A. Sicre, *Thèse d'état Bordeaux* (1976)
- [SIE79] G. Siegert, *Nucl. Sci. and Meth.* **164** (1979) 437.
- [SPE69] H. J. Specht, J. S. Fraser, J. C. D. Milton et W. G. Davies, *Proc. "Phys. and Chem. of fission" I.A.E.A Vienne* (1969) 363.
- [SPE72] H. J. Specht, J. Weber, E. Konecny et D. Heuemann, *Phys. Lett.* **43B** (1972) 41.
- [STO58] R. H. Stockes, J. A. Northrop et K. Boyer, *Proc. Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy P/2472, Genève* (1958)
- [STR67] V. Strutinsky, *Nucl. Phys.* **A95** (1967) 420.
- [VAN58] R. Vandenbosch et J. R. Huizenga, *J. R. Proc. Int. Conf. Peaceful uses at. Energy, 2nd, 15* (1958) 284 United Nations, Geneva.
- [VAN73] R. Vandenbosch et J. R. Huizenga, *Nuclear fission ACADEMIC PRESS New-York and London* (1973) 216.
- [WAL77] R. L. Walsh et J. W. Boldeman, *Nucl. Phys.* **A276** (1977) 189.
- [WEI35] C. F. Weizsäcker, *Z. Phys.* **96** (1935) 431.

- [WIL75] J. B. Wilhelmy, H. C. Britt, A. Gavron, E. Konecny et J. Weber, *University of California, Los Alamos Scientific Laboratory Los Alamos, N. M. 87544* 1975.
- [YIM89] J. Yimeng, *Utilisation de cellules photovoltaïques comme détecteurs de fragments de fission et étude d'un préamplificateur adapté à ces cellules*, Thèse de l'Université de Grenoble, 1989.
- [ZIG77a] J. F. Ziegler, *HELIUM Stopping Powers and Ranges in All Elements Vol. 4* (1977)
- [ZIG77b] H. H. Anderson et J. F. Ziegler, *HYDROGEN Stopping Powers and Ranges in All Elements Vol. 3* (1977)



# Table des figures

1.1	Sections efficaces de fission et/ou de capture de noyaux présents dans la filière de l'uranium, évaluation par différentes bases de données. . . . .	10
1.2	Chaîne des noyaux formés par la filière uranium . . . . .	12
1.3	Schéma d'un système hybride (d'après [BOW92]) . . . . .	16
1.4	Chaîne des noyaux formés par la filière thorium . . . . .	18
1.5	Filiation radioactive issue de la désintégration $\alpha$ du $^{232}\text{Th}$ . . . . .	19
1.6	Schéma simplifié de la filière du thorium . . . . .	21
1.7	Schéma simplifié de la filière de l'uranium . . . . .	21
1.8	Sections efficaces de fission et/ou de capture de noyaux présents dans la filière du thorium ; évaluées dans différentes bases de données et résultats expérimentaux obtenus dans notre laboratoire pour la réaction $^{232}\text{Th}(n,\gamma)^{233}\text{Th}$ . . . . .	22
1.9	Principales données demandées dans la filière du thorium, avec les incertitudes maximales tolérées [KUZ97] . . . . .	24
2.1	Représentation schématique de l'évolution de l'énergie potentielle en fonction de la déformation dans un processus de fission. . . . .	27
2.2	Sections efficaces de fission pour un noyau fissile (a) et des noyaux non fissiles (b) . . . . .	30
2.3	Variation de l'énergie potentielle de déformation du noyau suivant la trajectoire d'énergie la plus faible. . . . .	38
2.4	Cartes de la correction de couche totale comprenant la correction d'appariement. Les niveaux de particules indépendantes sont calculés au moyen d'un potentiel de Woods-Saxon (d'après [BJO69]). . . . .	39
2.5	Allure schématique des barrières de fission déterminées par la méthode de Strutinsky comparées aux barrières correspondantes calculées dans le cadre du modèle de la goutte liquide. ( $B_n$ est l'énergie de liaison du dernier neutron pour le noyau considéré) [BAR00] . . . . .	40
2.6	Hierarchie des états du noyau fissionnant en fonction de sa déformation et conséquences expérimentales. . . . .	41

2.7	Section efficace de fission multipliée par $\sqrt{\text{Energie}(eV)}$ du Neptunium-237 induite par neutron entre 20 et 55 eV. . . . .	43
2.8	Illustration schématique du phénomène de résonances de vibration sous le seuil fission . . . . .	44
2.9	Représentation de la barrière de fission à deux maxima au moyen de paraboles jointives. . . . .	46
2.10	Systématique des barrières de fission ( $E_A$ , $E_B$ ) extraite de données expérimentales [BRI79]. . . . .	49
2.11	Comparaison des barrières de fission expérimentales avec différents calculs théoriques. Ligne en gras [MOL72], petite ligne continue [PAU71], ligne discontinue [MOL74] . . . . .	50
2.12	Barrières de fission de quatre noyaux ( $^{232}\text{Th}$ , $^{232}\text{Pa}$ , $^{234}\text{Pa}$ , $^{240}\text{Pu}$ ) calculées par Howard et Möller [HOW80]. ( $\square$ est rajouté arbitrairement) . . . . .	51
3.1	Principe schématique des réactions de transfert. . . . .	54
3.2	Exemple de l'intérêt d'une réaction de transfert . . . . .	55
3.3	Représentation schématique des différents modes de formation et de désexcitation du noyau composé . . . . .	56
3.4	Distribution des moments angulaires orbitaux $\ell$ transférés en réaction induite par neutrons (à gauche) et par réaction de transfert (d,p), (t,p) et ( $^3\text{He}$ ,d) pour des éjectiles détectés à $90^\circ$ du faisceau incident (à droite). . . . .	58
3.5	Rapports des $\Gamma_n/\Gamma_f$ déduits de mesures de probabilités de fission à 8 et 11 MeV d'énergie d'excitation. Les droites représentent la systématique de Vandenbosch et Huizenga [VAN73]. Les points à gauche indiquent les incertitudes sur $\Gamma_n/\Gamma_f$ provenant des 10% d'incertitude sur les probabilités de fission (d'après [GAV76]). . . . .	59
3.6	Sections efficaces de fission calculées à partir de réactions de transfert comparées à des mesures équivalentes induites par neutron et aux différentes évaluations de ENDF/B-IV (d'après [BRI79b]) . . . . .	60
3.7	Les données cinématiques d'une réaction de transfert . . . . .	63
3.8	Schéma du montage télescope . . . . .	66
3.9	Aspect de la face avant de la cellule monocristalline $800 \text{ mm}^2$ . . . . .	68
3.10	Coupe transversale de la cellule . . . . .	68
3.11	Spectres en amplitude des fragments de fission du $^{252}\text{Cf}$ délivrés par la cellule monocristalline (b) et par un détecteur à semiconducteur (a). Réponse amplitude des cellules en fonction de la masse du fragment détecté (c). . . . .	71

3.12	Mesures de position réalisées avec un masque percé de deux fentes rectangulaires, ensemble des fragments (lourds et légers)(a), pour les fragments légers (b) et pour les fragments lourds (c). Diagramme de corrélation des temps d'arrivées des signaux (d), les fragments légers (L1 et L2) ont en moyenne un temps d'arrivée du signal plus court que les fragments lourds (H1 et H2) . . . . .	72
3.13	Variation de l'énergie des protons en fonction de son angle de détection pour la réaction $^{232}\text{Th}(^3\text{He,p})^{234}\text{Pa}^*$ et les premiers états excités du noyau $^{14}\text{N}$ formé dans la réaction parasite $^{12}\text{C}(^3\text{He,p})^{14}\text{N}^*$ . . . . .	75
3.14	Distribution angulaire des éjectiles arrivant sur la face avant des télescopes pour les collimateurs de 9 mm (expérience (a)) et de 2 mm (calibration (b)).	76
3.15	Energies des éjectiles associées au niveau fondamental de l'Azote-14 (a) et du Protactinium-234 (b) tracées sur une même gamme d'énergie cinétique ( $\Delta E_c=2$ MeV). . . . .	76
3.16	Schéma du dispositif expérimental . . . . .	78
3.17	Photo du dispositif expérimental installé sur la ligne d'expérience du Tandem d'Orsay . . . . .	79
3.18	Principe schématique du dispositif électronique . . . . .	81
4.1	Graphique à deux dimensions correspondant aux amplitudes délivrées par les détecteurs $E_t$ et $\Delta E_t$ lors de l'expérience de calibration du télescope à $90^\circ$	88
4.2	Correspondance entre le calcul de perte d'énergie et de l'amplitude délivrée par les détecteurs jonction au silicium pour les groupes d'éjectiles associés à chaque niveau d'énergie. . . . .	89
4.3	Reconstruction des énergies d'excitation des $^{209}\text{Bi}$ et $^{207}\text{Pb}$ avec les calibrations déterminées précédemment. . . . .	89
4.4	Identification des particules légères chargées résultant de la réaction $(^3\text{He,X})$ , détection à $90^\circ$ . . . . .	90
4.5	Spectre brut des énergies d'excitation dans les différentes voies de réaction (en trait plein). La contribution du support en carbone (bruit de fond) pour les différentes voies de réactions est tracée en pointillé pour chaque voie. Le bruit de fond est présenté dans l'échelle de l'énergie d'excitation des noyaux correspondants formés lors des réactions de transfert sur la cible de $^{232}\text{Th}$ . . . . .	92
4.6	Comparaison du spectre brut en énergie d'excitation du $^{234}\text{P}$ avec la mesure équivalente en bruit de fond après normalisation de celle-ci sur la structure à 9 MeV correspondant à une réaction de transfert sur les états fondamentaux du $^{18}\text{F}$ et de l' $^{14}\text{N}$ . . . . .	93

4.7	Comparaison, dans l'échelle du Protactinium-234, du spectre proton provenant des réactions ( $^3\text{He,p}$ ) du support en carbone comparé à la simulation de la réaction $^{12}\text{C}(^3\text{He,p})^{14}\text{N}$ . . . . .	93
4.8	Résultats de la soustraction du carbone sur le spectre du Thorium . . . . .	94
4.9	Evaluation du nombre de d'événements simples dans la réaction $^{232}\text{Th}(^3\text{He,p})^{234}\text{Pa}$ avec comparaison des deux télescopes. . . . .	96
4.10	Multiplicité des événements fission . . . . .	98
4.11	Temps d'arrivée du signal lors de trois coïncidences télescope-cellules pour des cellules situées au-dessus, dans et au-dessous du plan de réaction . . .	98
4.12	Spectre des temps d'arrivée du signal dans la fenêtre de coïncidence télescope-cellules . . . . .	99
4.13	Comparaison des événements simples bruts (c) avec les fissions dans Rw (b) et Tw (a) . . . . .	100
4.14	Comparaison des événements simples normalisés sur le nombre de fissions fortuites avec les fissions fortuites de Rw. . . . .	101
4.15	Spectre de protons en coïncidence avec des fragments de fission de la voie $^{232}\text{Th}(^3\text{He,p})^{234}\text{Pa}$ pour le télescope placé à $130^\circ$ . (a) avant correction des événements fortuits et (b) après correction des événements fortuits . . . . .	102
4.16	Spectre en énergie d'excitation des fissions pour les différents noyaux observés et pour les deux télescopes après correction des fissions fortuites. . .	103
4.17	Efficacité des cellules photovoltaïques déterminée par simulation et avec la source de $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	106
4.18	Effet de la distribution angulaire sur l'efficacité de deux cellules situées aux alentours de $0^\circ$ et $90^\circ$ par rapport à l'angle de recul du noyau fissionnant (en trait fins) et distribution angulaire totale (en trait épais). . . . .	107
4.19	Exemple d'une mesure de distribution angulaire. Rapport des efficacités des cellules avec et sans distribution angulaire en fonction de l'angle d'émission moyen des fragments dans le centre de masse du noyau fissionnant ( $\theta_{cm}$ ). .	108
4.20	Anisotropies mesurées (haut) et efficacités totales de détection des fragments correspondants (bas) des voies proton et deuton pour le télescope à $90^\circ$ en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant . . . . .	109
4.21	Spectres simples corrigés obtenus à partir des deux méthodes exposées et spectres des fissions corrigés pour la réaction $^{232}\text{Th}(^3\text{He,p})^{234}\text{Pa}$ correspondants aux télescope à $130^\circ$ . . . . .	112
4.22	Probabilités de fission du $^{234}\text{Pa}$ présentées pour les deux méthodes d'évaluation des événements simples. . . . .	113
4.23	Probabilité de fission du $^{232}\text{Pa}$ . . . . .	115
4.24	Probabilité de fission du $^{233}\text{Pa}$ . . . . .	116

4.25	Probabilité de fission des Protactinium 232, 233 et 234 . . . . .	117
4.26	Section efficace de fission du $^{237}\text{Np}$ . Les cercles correspondent aux valeurs expérimentales recommandées par ENDF/B-IV. La probabilité de fission du noyau $^{238}\text{Np}$ est obtenue à partir de la réaction $^{238}\text{U}(^3\text{He,tf})^{238}\text{Np}^*$ . Les quatre courbes donnent la prédiction de la section efficace de fission déterminée à partir de la probabilité de fission mesurée et de différents jeux de paramètres du modèle optique. (d'après [WIL75]) . . . . .	119
4.27	Section efficace de formation des noyaux composés des noyaux $^{232}\text{Pa}$ et $^{234}\text{Pa}$ d'après les calculs de Bruyères-le-Châtel, de Perey et Buck [AUE62] et de Los Alamos. . . . .	120
4.28	Section efficace de fission du Thorium-230 entre 0 et 10 MeV (a) et 0 et 3 MeV (b) . . . . .	122
4.29	Section efficace de fission du Protactinium-231 entre 0 et 10 MeV (a) et 0 et 3 MeV (b) . . . . .	123
4.30	Section efficace de fission du Protactinium-233 entre 0 et 10 MeV . . . . .	125
4.31	Configuration expérimentale utilisée pour la mesure de distributions en masse des fragments. . . . .	126
4.32	(a) Nombre de neutrons moyen émis en fonction de la masse des fragments issus de la fission des noyaux $^{235}\text{U}$ [APA65] (fission induite par neutron thermique) et $^{252}\text{Cf}$ [WAL77] (fission spontanée). (b) Nombre moyen $\bar{\nu}$ de neutrons émis par fission en fonction de l'énergie du neutron ayant provoqué cette fission [NNDC] . . . . .	128
4.33	Effet cinématique dû à l'entraînement du noyau . . . . .	129
4.34	Spectres en amplitudes délivrés par les six cellules en coïncidence durant la première (a) et la seconde (b) moitié de l'expérience. . . . .	131
4.35	Dérive en amplitude des quatre cellules utilisées pour les mesures de distribution en masse. Les dérives en amplitudes sont présentées pour les fragments lourds et légers . . . . .	132
4.36	Organigramme du calcul des masses . . . . .	134
4.37	Distributions en masse du $^{234}\text{Pa}$ (a) et $^{233}\text{Pa}$ (b) avant émission de neutrons pour différents domaines d'énergie d'excitation. . . . .	136
4.38	Masse moyenne des fragments légers et lourds après émission de neutrons en fonction de la masse du noyau fissionnant. . . . .	138
5.1	Coefficients de transmission $T_{\ell}^j(E_n)$ du noyau composé Protactinium-234 d'après les calculs de Bruyères-le-Châtel . . . . .	142

5.2	Contribution des différentes valeurs du moment angulaire total $J$ dans la section efficace de formation du noyau composé du Protactinium-234 pour des énergies de neutrons incidents comprises entre 0 et 5 MeV. Le moment angulaire et la parité de l'état fondamental du $^{233}\text{Pa}$ est $3/2^-$ . . . . .	143
5.3	Représentation schématique des oscillations de déformation du noyau . . . . .	146
5.4	Le paramètre $a$ apparaissant dans la formule de densité de niveaux du gaz de Fermi a été déterminé par comparaison avec les espacements moyens observés dans les résonances de neutrons lents et des spectres d'évaporation. . . . .	151
5.5	Représentation schématique des différents paramètres permettant de définir la hauteur des barrières de fission. . . . .	155
5.6	Comparaison expérimentale (lignes en pointillés) et théorique (lignes en continues) des corrections de couches au sommet des deux barrières en fonction du nombre de protons. . . . .	156
5.7	Rapports des densités de niveaux expérimentales et calculées ( $E^* \simeq Bn$ ) pour différents Actinides . . . . .	158
5.8	Evolution de $\chi_r^2$ en fonction de l'effet de couche à la seconde barrière ( $\Delta S_B$ ) pour les deux noyaux étudiés, l'effet de couche à la première barrière ( $\Delta S_A$ ) est fixé à 2 MeV . . . . .	159
5.9	Section efficace de fission expérimentale du $^{233}\text{Pa}$ comparée aux sections efficaces de fission calculées pour le jeu de barrières présenté ci-dessous et différentes valeurs de correction de couche pour les deux barrières. . . . .	160
5.10	Section efficace de fission mesurée et calculée du $^{231}\text{Pa}$ . . . . .	162
5.11	Sections efficaces calculées ou mesurées du $^{233}\text{Pa}$ . . . . .	163
5.12	Sections efficaces de diffusions inélastiques ( $\sigma(n,n')$ ) du $^{233}\text{Pa}$ sur 4 niveaux avec les évaluations de ENDF et de JENDL lorsqu'elles existent . . . . .	164
A.1	Rapport entre l'émission de neutrons ( $\Gamma_n$ ) et la fission ( $\Gamma_f$ ) représenté en fonction du nombre de masse. Les symboles ouvert et fermé représentent respectivement les noyaux pair et impair en protons. ( $\Delta$ ) Données obtenues par réaction induite par photon (photoneutron et photofission) correspondant à des énergies d'excitation de 8 à 12 MeV. $\square$ Données provenant de sections efficaces de fission induite par neutron de 3 MeV correspondant à des énergies d'excitation de 8 à 10 MeV. Les autres symboles correspondent à des valeurs moyennes de $\Gamma_n/\Gamma_f$ obtenues pour des énergies d'excitation moyennes de 13, 18 et 23 MeV (d'après [VAN58]) . . . . .	172

# Liste des tableaux

1.1	Possibilités de transmutation des principaux produits de fission. Spectre rapide: énergie = 0.2 MeV, $\phi = 10^{15}$ n/cm <sup>2</sup> /s, Spectre thermique: énergie = 1 eV, $\phi = 10^{14}$ n/cm <sup>2</sup> /s. $T_{1/2}$ est la demi-vie par transmutation, obtenue par $T_{1/2} = \ln(2)/\sigma\phi$ (en années) . . . . .	11
1.2	Inventaire du combustible (MOX) d'une centrale PWR de 900 MWel au chargement et au déchargement (après un refroidissement de 4 ans). . . . .	14
1.3	Inventaire du combustible (UOX) d'une centrale PWR de 900 MWel au chargement et au déchargement (après un refroidissement de 3 ans). . . . .	15
2.1	Paramètre de fissilité $\chi$ pour plusieurs Actinides. . . . .	28
2.2	Effet de structure (pair-impair) sur différents noyaux et conséquence sur la fission. (*) d'après [KAR98]. (**) d'après la systématique. . . . .	28
3.1	Réactions possibles pour former le noyau fissionnant <sup>234</sup> Pa . . . . .	61
3.2	Réactions de transferts possibles à partir du couple cible-projectile ( <sup>232</sup> Th- <sup>3</sup> He). * calcul réalisé avec $r=r_0 A^{1/3}$ où $r_0=1.2$ fermi . . . . .	62
3.3	Seuil de détection des détecteurs télescopes. $E_c$ est l'énergie cinétique de la particule incidente . . . . .	67
3.4	Coefficients de la relation (3.20) pour les calibrations des cellules photovoltaïques monocristallines et des barrières de surface. . . . .	70
3.5	Angles solides sous-tendus par les télescopes et efficacités . . . . .	74
3.6	Variation de l'angle moyen de recul du noyau fissionnant en fonction de son énergie d'excitation . . . . .	77
4.1	Niveaux d'énergie des noyaux utilisés pour la calibration et chaleur des réactions de transfert correspondantes . . . . .	86
4.2	Angles solides sous-tendus par les télescopes lors de la calibration et efficacités . . . . .	87
4.3	Statistique disponible pour les mesures de distribution en masse. . . . .	135
4.4	Résultats des distributions en masse des fragments avant émission de neutron. . . . .	137

5.1	Barrières de fission des noyaux $^{232}\text{Pa}$ et $^{234}\text{Pa}$ . . . . .	161
A.1	Rapport $\Gamma_n/\Gamma_f$ calculé pour les noyaux $^{231}\text{Th}$ , $^{232}\text{Pa}$ , $^{233}\text{Pa}$ et $^{234}\text{Pa}$ . . . . .	171



## Résumé :

Le  $^{233}\text{Pa}$  joue un rôle clé dans le cycle du Thorium. Les mesures de ces sections efficaces neutronique de capture et de fission sont pratiquement inexistantes. En raison de sa courte demi-vie, le  $^{233}\text{Pa}$  est un véritable défi. Pour contourner ce problème, la fission induite par neutrons rapides (0.5-10 MeV) du  $^{233}\text{Pa}$  a été déterminée à partir de la probabilité de fission du  $^{234}\text{Pa}$  en utilisant la réaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He,p})^{234}\text{Pa}$ . La section efficace de fission du  $^{233}\text{Pa}$  est obtenue en multipliant cette probabilité par la section efficace calculée de formation du noyau composé. La méthode a été validée par la comparaison avec la fission induite par neutrons de noyaux voisins ( $^{230}\text{Th}$  et  $^{231}\text{Pa}$ ). La réaction  $^{233}\text{Pa}(n,f)$  a été analysée en utilisant un modèle statistique décrivant les voies de désexcitation. Pour la première fois, les paramètres de la double barrière de fission du  $^{234}\text{Pa}$  ont été obtenus, une estimation des sections efficaces neutroniques de capture et diffusion inélastique est proposée.

**Mots-Clés :** réaction de transfert, probabilité de fission, thorium, protactinium, sections efficaces, neutron, barrières de fission,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{231,232,233}\text{Pa}$

---

## Abstract:

The  $^{233}\text{Pa}$  nucleus plays a key role in the Thorium based cycle. Experimental neutron capture and fission cross section are poorly known. Owing to its short half-life, the  $^{233}\text{Pa}$  is a challenge for the experimentalists. To overcome this problem, fast neutrons (0.5-10 MeV) induced fission of  $^{233}\text{Pa}$  has been determined from the fission probability of  $^{234}\text{Pa}$  using the reaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He,p})^{234}\text{Pa}$ . The  $^{233}\text{Pa}(n,f)$  cross section has been obtained by multiplying this fission probability by calculated compound nuclear neutron cross section. The method has been validated by comparison with existing neutron induced fission of neighbouring nuclei ( $^{230}\text{Th}$  and  $^{231}\text{Pa}$ ). The  $^{233}\text{Pa}(n,f)$  reaction has been analysed using a statistical modelling of the reaction and decay channels as well. For the first time the heights and curvatures of the double humped fission barrier of  $^{234}\text{Pa}$  have been obtained, estimates of the neutron capture and neutron inelastic cross sections are proposed.

**Keywords:** transfer reaction, fission probability, thorium, protactinium, cross sections, neutron, fission barriers,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{231,232,233}\text{Pa}$