



**HAL**  
open science

# Le processus de fission nucléaire à la lumière des rayons gamma prompts : mesure des rendements de fission thermique de l'U-235 sur le spectromètre FIPPS

Pierre Herran

► **To cite this version:**

Pierre Herran. Le processus de fission nucléaire à la lumière des rayons gamma prompts : mesure des rendements de fission thermique de l'U-235 sur le spectromètre FIPPS. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Paris-Saclay, 2023. Français. NNT : 2023UPASP137 . tel-04504152

**HAL Id: tel-04504152**

**<https://theses.hal.science/tel-04504152>**

Submitted on 14 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.

Le processus de fission nucléaire à la  
lumière des rayons gamma prompts :  
Mesure des rendements de fission  
thermique de l'U-235 sur le  
spectromètre FIPPS

*The nuclear fission process in the light of  
prompt gamma-rays : measurement of thermal  
fission yields of U-235 on the FIPPS  
spectrometer*

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n°576 particules hadrons et énergie et noyau : instrumentation,  
imagerie, cosmos et simulation (PHENIICS)  
Spécialité de doctorat : Physique nucléaire  
Graduate School : Physique. Référent : Faculté des sciences d'Orsay

Thèse préparée dans l'unité de recherche : Département de Physique Nucléaire -  
DRF-IRFU (Université Paris-Saclay, CEA) sous la direction de Thomas MATERNA,  
directeur de recherche.

Thèse soutenue à Paris-Saclay, le 24 octobre 2023, par

**Pierre HERRAN**

**Composition du jury**

Membres du jury avec voix délibérative

**Olivier ROIG**  
Directeur de Recherche, CEA DAM  
**Grégoire KESSEDJIAN**  
Directeur de Recherche, CEA Cadarache  
**Mourad RAMDHANE**  
Professeur, Université Grenoble Alpes  
**Paola MARINI**  
Chargée de Recherche, Université de Bordeaux

Président  
Rapporteur et Examineur  
Rapporteur et Examineur  
Examinatrice

**Titre :** Le processus de fission nucléaire à la lumière des rayons gamma prompts : Mesure des rendements de fission thermique de l'U-235 sur le spectromètre FIPPS

**Mots clés :** Fission nucléaire, spectroscopie gamma, analyse de données

**Résumé :** La fission nucléaire est connue et étudiée depuis plus de 80 ans, néanmoins elle reste un domaine de recherche très actif. La connaissance du processus de fission peut être améliorée par l'étude des cascades de rayons gamma prompts émis par les fragments de fission. Je présente dans cette thèse des résultats obtenus par l'analyse de données de la campagne de mesure 183 sur le spectromètre gamma FIPPS avec une cible active d'U-235.

L'instrument FIPPS (FISSION Product Prompt gamma-rays Spectrometer) est installé à l'extrémité d'un guide de neutrons thermiques du réacteur de recherche de l'Institut Laue-Langevin (Grenoble). Le faisceau de neutrons interagit avec une cible constituée d'une solution d'U-235 diluée dans un liquide scintillant. La cible active permet de discriminer les événements de fission des désintégrations bêta de fragments ou des réactions  $(n, \gamma)$  sur le support de la cible. Elle nous permet également de déterminer avec précision le nombre total de fissions qui se sont produites pendant l'expérience. Le spectromètre consiste en un ensemble de seize détecteurs HPGe qui ont été placés autour de

la cible pour détecter les cascades de rayons gamma prompts et retardés émis par les fragments de fission.

Une partie importante de ma thèse a été d'évaluer la possibilité de mesurer avec précision les rendements isotopiques indépendants de fission thermique de l'U-235 par spectrométrie gamma à partir des rayons gamma prompts. J'ai effectué ce travail dans le cas des rendements des noyaux pairs-pairs bien produits mais aussi dans le cas spécifique du noyau doublement magique de Sn-132, pour lequel une anomalie dans le rendement avait été observée pour la réaction de fission rapide de l'U-238. Les anomalies détectées dans les rendements mesurés dans ce travail sont interprétées à l'aide du code FIFRELIN simulant la désexcitation des fragments de fission.

J'ai également étudié les cascades de désexcitation dans un petit nombre de fragments de fission. Elles sont comparées à celles prédites par le code FIFRELIN avec l'objectif d'améliorer les modèles physiques utilisés dans ce code et notamment la distribution des moments angulaires des fragments au point de scission.

**Title :** The nuclear fission process in the light of prompt gamma-rays : measurement of thermal fission yields of U-235 on the FIPPS spectrometer

**Keywords :** Nuclear fission, gamma Spectroscopy, data analysis

**Abstract :** Nuclear fission has been known and studied for over 80 years, yet it remains a very active field of research. Knowledge of the fission process can be improved by studying the cascades of prompt gamma rays emitted by fission fragments. In this thesis, I present results obtained by analyzing data from the 183 measurement campaign on the FIPPS gamma spectrometer with an active U-235 target.

The FIPPS (FISSION Product Prompt gamma-rays Spectrometer) instrument is installed at the end of a thermal neutron guide in the research reactor at the Institut Laue-Langevin (Grenoble). The neutron beam interacts with a target consisting of a solution of U-235 diluted in a scintillating liquid. The active target enables us to discriminate fission events from fragment beta decays or  $(n,\gamma)$  reactions on the target support. It also allows us to accurately determine the total number of fissions that occurred during the experiment. The spectrometer consists of a set of sixteen HPGe detectors that were placed around the target to detect the cascades of

prompt and delayed gamma rays emitted by the fission fragments.

An important part of my thesis was to evaluate the possibility of accurately measuring the independent isotopic yields of U-235 thermal fission by gamma spectrometry from prompt gamma rays. I carried out this work in the case of the yields of well-produced even-even nuclei, but also in the specific case of the doubly magic nucleus of Sn-132, for which an anomaly in the yield had been observed for the fast fission reaction of U-238. The anomalies detected in the yields measured in this work are interpreted using the FIFRELIN code simulating the de-excitation of fission fragments.

I have also studied the de-excitation cascades in a small number of fission fragments. These are compared with those predicted by the FIFRELIN code, with the aim of improving the physical models used in this code, and in particular the distribution of fragment angular momentum at the splitting point.



# Remerciements

Cette thèse fut tout une aventure qui commença simplement, manqua de se terminer en catastrophe mais finit bien pour tout le monde et tout ça grâce à de nombreuses personnes. J'aimerais avant tout chose remercier le jury, Olivier Roig, Grégoire Kessedjian, Mourad Ramdhane et Paola Marini pour la qualité de leur commentaires et tout le temps qu'ils ont pris sur leur travail pour examiner ma thèse. Merci à eux pour leur grande implication. Je ne peux évidemment que commencer par remercier mon directeur de thèse et encadrant, Thomas Materna, pour son infinie patience envers moi et mes sautes d'humeurs durant la thèse et tout particulièrement pour la rédaction qui fut un véritable parcours du combattant, autant pour lui que pour moi. Je remercie tous les membres du LEARN avec qui j'ai passé trois années très agréables. Tout d'abord, notre chef à tous et grand manitou du LEARN Alain Letourneau, également David Lhuillier et Loïc Thulliez, toujours présents pour bien commencer la journée avec des discussions toutes plus diversifiées les unes que les autres autour d'un café à 8h30. Je continue avec un pilier du labo, Eric Dumonteil, toujours là pour mettre la bonne ambiance mais également ex futur double lauréat du prix Nobel, du moins il le pense. Accroche-toi, un jour tu l'auras! Je poursuis par un grand remerciement à Diane Doré et encore Loïc pour leur aide crucial durant la préparation de ma soutenance. Merci aussi à Nicole d'Hose qui voit les générations de doctorants se succéder et qui est toujours là pour les soutenir. Enfin tous ces scientifiques ne pourrait rien faire sans un personnel administratif et technique au top. C'est pour ça que j'ai une pensée pour Danielle qui a pris une retraite bien méritée depuis et Nicolas pour régler les ennuis informatiques. Merci également à Isabelle toujours présente pour régler les problèmes pratiques et qui sera sûrement soulagée de ne plus me voir débarquer dans son bureau tous les quatre matins avec de nouvelles questions! Maintenant que les permanents ont eu leur pommade, je peux passer aux véritables fourmis du DPhN que sont les non-permanents. Je ne peux que débiter par le plus grand d'entre nous, Borana évidemment, meilleur collègue de bureau imaginable devenu un très bon ami. Merci pour ton soutien autant technique que moral durant ces trois années et pour m'avoir fait découvrir un tout nouveau pays! Je remercie également Andrea Porro, le plus allemand des italiens, son français impeccable et ses qualités humaines qui en ont fait un très bon collègue. Je pense aussi à Benjamin Bally, compatriote du sud-ouest et Andrea Lagni (encore un italien oui) pour leur sympathie, le petit voyage à Catane et surtout la pseudo-raté excursion à l'Etna dont on ne donnera pas plus de détail par soucis de fierté. Je pense aussi à Achment qui a été le digne représentant de la Grèce dans notre labo pendant un an. Ce n'est pas fini, un labo scientifique ne serait rien sans ses stagiaires, comme Mattéo Ballu stagiaire devenu doctorant avec Thomas et pour qui je ne doute pas que la rédaction sera certainement bien plus reposante pour tout le monde que la mienne. Je remercie également un autre stagiaire, Quentin Poirier, pour tout le travail qu'il a fourni et l'aide qu'il m'a apporté durant la deuxième année. Il y en a tant

d'autres mais ces remerciements sont déjà bien trop longs, je me contenterais de citer l'éternel stagiaire pas très ponctuel Corentin et le pousseur de fonte Tristan. Mon amitié à tous les autres stagiaires et doctorants que je n'ai pas cités, ils se reconnaîtront, si par hasard ils lisent un jour ces remerciements. Je tiens également à remercier Michaël Petit, mon maître de stage de M2 à l'IRSN de Cadarache et sans qui tout cela n'aurait jamais pu débiter. Enfin je remercie mes parents pour leur soutien durant ces trois années et j'ai une pensée toute particulière pour mes grands parents.

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Contexte et objectif de l'étude : la fission nucléaire et la désexcitation des fragments de fission</b>	<b>3</b>
1.1 La fission nucléaire . . . . .	3
1.1.1 Histoire d'une découverte . . . . .	3
1.1.2 Le processus de fission . . . . .	4
1.1.3 La modélisation de la fission nucléaire . . . . .	5
1.2 Les rendements de fission . . . . .	10
1.2.1 Définition des rendements . . . . .	10
1.2.2 Domaines d'applications . . . . .	11
1.2.3 Méthodes de mesures . . . . .	11
1.2.4 Mesures existantes sur Lohengrin et sur EXILL des rendements isotopiques indépendants pour la fission thermique de $^{235}\text{U}$ . . . . .	14
1.2.5 Bases de données nucléaires . . . . .	18
1.3 La désexcitation des fragments de fission et le code FIFRELIN . . . . .	21
1.3.1 Répartition d'énergie d'excitation entre les fragments de fission . . . . .	21
1.3.2 Processus de désexcitation des fragments . . . . .	23
1.3.3 Densités de niveaux . . . . .	24
1.3.4 Prédictions de FIFRELIN pour la fission thermique de $^{235}\text{U}$ . . . . .	24
1.4 Objectifs de la thèse . . . . .	28
<b>2 La campagne expérimentale sur le spectromètre FIPPS de l'ILL avec la première cible active d'U-235</b>	<b>31</b>
2.1 L'Institut Laue-Langevin . . . . .	31
2.2 Le spectromètre FIPPS . . . . .	33
2.2.1 Le faisceau de neutrons . . . . .	33
2.2.2 Les détecteurs . . . . .	34
2.2.3 La cible active . . . . .	35
2.2.4 Le système d'acquisition . . . . .	38
2.3 Le déroulement de l'expérience . . . . .	39
2.4 Conclusion . . . . .	40

<b>3</b>	<b>Pré-traitement des données brutes</b>	<b>41</b>
3.1	Mise en coïncidence des données . . . . .	41
3.2	Etalonnage en énergie des détecteurs . . . . .	46
3.3	Alignement en temps des détecteurs . . . . .	49
3.4	Sommation de l'énergie des cristaux d'un même clover . . . . .	52
3.5	Conclusion . . . . .	54
<b>4</b>	<b>Caractérisation du spectromètre FIPPS et de la première cible active d'<math>^{235}\text{U}</math></b>	<b>55</b>
4.1	Estimation du temps mort du système d'acquisition . . . . .	55
4.2	Simulation Geant4 du dispositif . . . . .	58
4.2.1	Motivation . . . . .	58
4.2.2	Développement et amélioration . . . . .	58
4.3	Efficacité de FIPPS . . . . .	61
4.3.1	Estimation utilisant l'activité connue . . . . .	61
4.3.2	Effets de sommation . . . . .	63
4.3.3	Efficacité absolue en utilisant les coïncidences et la simulation . . . . .	64
4.4	Analyse de la réponse de la cible active et estimation du nombre de fissions . . . . .	71
4.5	Vérification du nombre de fissions avec les rayons gamma retardés . . . . .	73
4.6	Conclusion . . . . .	75
<b>5</b>	<b>Mesure des rendements isotopiques des produits de fission par la spectrométrie des rayons gamma prompts</b>	<b>79</b>
5.1	Description de la méthode . . . . .	79
5.1.1	Spectrométrie des gamma prompts . . . . .	79
5.1.2	Spectrométrie des coïncidences gamma-gamma . . . . .	82
5.2	Application aux fragments pair-pair les plus produits . . . . .	90
5.2.1	Rendement du $^{136}\text{Te}$ . . . . .	90
5.2.2	Rendement du $^{134}\text{Te}$ . . . . .	96
5.2.3	Rendement du $^{100}\text{Zr}$ . . . . .	104
5.2.4	Rendement du $^{98}\text{Zr}$ . . . . .	112
5.2.5	Rendement du $^{140}\text{Xe}$ . . . . .	117
5.2.6	Rendement du $^{96}\text{Sr}$ . . . . .	120
5.2.7	Rendement du $^{142}\text{Ba}$ . . . . .	124
5.2.8	Rendement du $^{94}\text{Sr}$ . . . . .	127
5.2.9	Rendement du $^{88}\text{Kr}$ . . . . .	129
5.3	Le cas particulier du $^{132}\text{Sn}$ . . . . .	133
5.4	Résultats et conclusions . . . . .	140
	<b>Conclusions</b>	<b>143</b>
	<b>Perspectives</b>	<b>145</b>

# Table des figures

1.1	Énergie potentielle du noyau composé en fonction de la déformation. . . . .	4
1.2	Schéma récapitulatif des différentes étapes du processus de fission et de désexcitation des fragments [6]. . . . .	5
1.3	Paramétrisation en cinq dimensions utilisée dans les calculs d'énergie potentielle avec un modèle FRDM [12]. . . . .	8
1.4	Surface d'énergie potentielle bidimensionnelle pour le $^{236}\text{U}$ présentant certaines caractéristiques de la surface d'énergie potentielle en 5D. Les croix rouges indiquent l'emplacement de certains points de selle. [13]. . . . .	9
1.5	Représentation schématique du spectromètre Lohengrin. . . . .	15
1.6	Comparaison des rendements indépendants des isotopes de krypton (figure de gauche) et de zirconium (figure de droite) pour la fission thermique de $^{235}\text{U}$ , selon les mesures de Lang à Lohengrin [52] et les évaluations JEFF3.3 et ENDF/B-VIII. . . . .	16
1.7	Vue schématique du spectromètre gamma EXILL . . . . .	17
1.8	Rendements indépendants des isotopes pairs en A et pairs en Z, pour la fission thermique de $^{235}\text{U}$ , obtenus par spectrométrie gamma sur le spectromètre EXILL, comparés aux données de Lohengrin, extrait de [37]. . . . .	18
1.9	Comparaison des rendements indépendants des isotopes de trois noyaux légers (krypton, strontium, zirconium) et trois noyaux lourds (étain, tellure, xénon) pour la fission thermique de $^{235}\text{U}$ selon les évaluations JEFF3.3 et ENDF/B-VIII. On note que dans les cas de l'étain et du tellure, la présence de deux valeurs de rendement pour la même masse s'explique par l'existence d'un état isomérique. . . . .	19
1.10	Incertitudes relatives des rendements isotopiques indépendants pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ selon les deux bases de données JEFF3.3 et ENDF/B-VIII. Seuls les noyaux présents dans les deux bases de données et avec un rendement supérieur à $10^{-5}$ sont tracés. On peut voir que les incertitudes relatives sont dans la majorité des cas supérieures à 10 %. . . . .	20
1.11	Loi du rapport des températures $R_T(A)$ [55] . . . . .	22
1.12	Schéma du modèle utilisé pour illustrer la désexcitation neutron/gamma des fragments de fission [55] . . . . .	23
1.13	Multiplicité des neutrons prompts pré-évaporation en fonction du nombre de masse des fragments pour la fission thermique de $^{235}\text{U}$ [61]; [59]; [60] . . . . .	25
1.14	Multiplicité moyenne des gamma prompts pré-évaporation en fonction du nombre de masse des fragments pour la fission thermique de $^{235}\text{U}$ , pour un seuil en énergie fixé à 100 keV [62]. . . . .	26

1.15	Rendement de masse après évaporation neutron de FIFRELIN comparé aux évaluations JEFF3.3 et ENDF/B-VIII. . . . .	26
1.16	Comparaison des rendements indépendants des isotopes de krypton, strontium et zirconium pour la fission thermique de $^{235}\text{U}$ prédits par FIFRELIN et tabulés dans les évaluations JEFF3.3 et ENDF/B-VIII. . . . .	27
1.17	Rendements des isotopes pairs en Z produits dans la fission rapides de $^{238}\text{U}$ , mesurés sur Licorne et comparés aux bibliothèques JEFF3.1.1 et ENDF.B7v1 et au code GEF [66]. . . . .	28
1.18	Evolution des rendements du Sn en fonction de la masse atomique du système de fission pour la chaîne isotopique de l'uranium. La figure est tirée de [69]. Les données avec un triangle vert correspondent aux résultats provenant de LICORNE [63] en 2017. Celles avec un carré rouge au spectromètre GEANIE [67] de l'installation LANSCE WNR [70] et détaillées dans la référence suivante [68]. Celles avec un cercle noir aux mesures isotopiques directes effectuées au GANIL en 2019 et publiées dans [69] . . . . .	29
2.1	Plan de l'Institut Laue-Langevin avec le réacteur à haut flux et les différents instruments. Le spectromètre FIPPS est situé à la fin du guide de neutron thermique H22. L'instrument ExILL était situé à l'emplacement de l'actuel PF1B à la fin d'un guide de neutrons froids [72]. . . . .	32
2.2	Modèle en 3 dimensions de l'instrument FIPPS, avec le faisceau de neutrons entrant. Les huit clovers IFIN sont notés avec une croix rouge, les 8 autres sont les clover FIPPS répartis symétriquement en anneau autour de la cible [74]. . . . .	33
2.3	Représentation schématique du faisceau de neutrons en entrée de l'instrument FIPPS. . . . .	34
2.4	A gauche, une photographie de l'instrument FIPPS montrant l'arrangement des détecteurs FIPPS et IFIN autour de la cible. A droite, une coupe dans la modélisation en 3D du dispositif montrant la cible active au centre entourée de détecteurs [74]. . . . .	35
2.5	Coupe dans la modélisation en 3D du dispositif de la cible active [76]. . . . .	36
2.6	Coupe schématisée de la cible active. Avec le faisceau de neutrons incident (1), la cible active (2), un miroir réfléchissant (3) et le photomultiplicateur (4). . . . .	36
2.7	Allure du spectre du photomultiplicateur avec le nombre de coups en fonction des canaux. On distingue deux grandes zones séparées par les pointillés en rouge : une zone correspondant aux événements de fission à droite et une autre correspondant essentiellement aux désintégrations bêta. . . . .	37
2.8	La PSD en fonction de la charge totale détectée dans la cible active. Chaque région correspond à des événements différents. . . . .	38
2.9	Évolution du taux de fission en fonction du run et donc en fonction du temps durant les 39 jours du cycle 183. . . . .	39
3.1	Spectre des rayons gamma prompts des données FIPPS pour les trois catégories précédentes : en rouge "Fission", en vert "antiTag" et en bleu "antiFission". . . . .	44

3.2	Spectre des rayons gamma prompts des données FIPPS, en noir, comparé avec une simulation FIFRELIN, en rouge. L'axe des ordonnées a été normalisé au nombre total de fission. Les paramètres et modèles de la simulation FIFRELIN utilisée ici sont ceux indiqués dans le tableau 1.1. . . . . .	45
3.3	Matrices des données FIPPS en mode "FIssion" et en "antiFIssion". . . . .	45
3.4	Position du pic correspondant à un gamma issu de la décroissance bêta de l' $^{28}\text{Al}$ en fonction du temps en heure. . . . .	46
3.5	Spectre non calibré d'un cristal de FIPPS avec un binning de 0.25 keV par canal. . . .	47
3.6	Comparaison entre les trois spectres normalisés autour du pic à 1779 keV. En rouge le spectre pour l'ensemble des runs, en bleu pour la somme des cristaux d'un fichier et en vert pour un seul cristal d'un fichier. . . . .	48
3.7	Comparaison à haute énergie entre deux spectres normalisés, celui du spectre pour l'ensemble des runs et celui de la somme des cristaux d'un run en bleu. Le spectre vert est absent car la statistique pour un seul cristal d'un fichier est trop faible à haute énergie pour illustrer correctement quoi que ce soit. . . . .	49
3.8	Schéma de décroissance simplifié du $^{28}\text{Al}$ . . . . .	50
3.9	Spectre en temps d'un cristal d'un clover de FIPPS après alignement. La bosse autour de 60 ns s'explique par l'absence de CFD ( <i>CO</i> nstant <i>F</i> raction <i>D</i> iscriminator) de temps lors de l'acquisition. Ce qui implique que le temps d'arrivée des gamma est enregistré différemment selon l'énergie. . . . .	51
3.10	Spectre des rayons gamma prompts de fission de FIPPS, en rouge pour les données en <i>adddback</i> , en bleu sans <i>adddback</i> . . . . .	52
3.11	Spectre des rayons gamma prompts de fission de FIPPS, en bleu avant la correction du <i>cross-talk</i> , en rouge après. . . . .	54
4.1	Histogramme, en échelle logarithmique, illustrant le nombre de coup en fonction de la différence de temps entre deux événements consécutifs. En rouge, la modélisation avec la fonction 4.1. . . . .	56
4.2	Histogramme, en échelle logarithmique, illustrant le nombre de coup en fonction de la différence de temps entre deux événements consécutifs. . . . .	57
4.3	A gauche, une visualisation des clovers FIPPS du spectromètre, répartis autour de la cible. A droite, une vue zoomée de la chambre de réaction selon un plan perpendiculaire au faisceau. Le cercle rouge est la vue de coupe du tube en carbone, le vert, celle du tube en fluorure de lithium (LiF). . . . .	58
4.4	A gauche une représentation de la structure réelle entourant la cible à active. A droite, une vue zoomée de cette structure telle que modélisée dans Geant4. . . . .	59
4.5	$\chi^2$ pour le clover 1 de FIPPS en fonction de la distance implémentée dans la simulation. . . . .	60
4.6	Spectre en énergie calibré de l' $^{152}\text{Eu}$ pour le spectromètre FIPPS. . . . .	61
4.7	Courbe d'efficacité spectromètre FIPPS réduit à 15 clovers sans <i>adddback</i> - première estimation avec l'activité nominale. . . . .	63
4.8	Activité de la source d' $^{152}\text{Eu}$ calculée à partir de cinq paires différentes de rayons gamma en coïncidences après une première itération. . . . .	67

4.9	Activité de la source d' $^{152}\text{Eu}$ calculée à partir de cinq paires différentes de rayons gamma en coïncidences après une deuxième itération. . . . .	67
4.10	Courbe d'efficacité expérimentale du spectromètre FIPPS (réduit à 15 clovers, sans addback) . . . . .	69
4.11	Rapport entre l'efficacité calculée avec nos données et l'efficacité modélisée. . . . .	69
4.12	En haut, la comparaison entre l'efficacité simulée, en vert, et calculée avec les données, en noir. L'ajustement des données est en rouge. En bas, le rapport entre les points simulés et calculés avec les données. . . . .	70
4.13	Spectre du PMT en échelle logarithmique, ajusté via les équations 4.22, 4.24 et 4.23. . . . .	72
4.14	Vérification du bon fonctionnement du tag fission pour discriminer les événements issus de la fission de tous les autres. Ici en utilisant le $^{100}\text{Zr}$ . . . . .	73
4.15	Vérification du bon fonctionnement du tag fission pour discriminer les événements issus de la fission de tous les autres. Ici en utilisant le $^{142}\text{Ba}$ . . . . .	74
4.16	Matrice centrée sur le pic du $^{129}\text{Te}$ (1031 keV / 814 keV). L'axe Z représente le nombre de coups détectés pour le point d'énergie ( $E_1, E_2$ ) pour un binning de 2 keV. . . . .	76
4.17	A gauche, ajustement de la matrice 4.16 en 2D. A droite, ajustement de la même matrice en 1D. . . . .	76
4.18	Pour dix produits de fission, le nombre de coïncidences prédit par les données nucléaires avec le nombre de coïncidences déterminé avec les données FIPPS. . . . .	77
5.1	Spectre des rayons gamma prompts en coïncidence avec le tag fission mesuré durant toute la durée du cycle 183 du réacteur de l'ILL avec le spectromètre FIPPS. . . . .	80
5.2	Schéma partiel de désexcitation du $^{136}_{52}\text{Te}$ dans la fission spontanée du $^{248}\text{Cm}$ . En rouge les transitions d'une intensité relative par rapport à la transition à l'état fondamental supérieure à 10%, en bleu supérieure à 1%. Le même code couleur sera utilisé par la suite sur toutes les illustrations de schéma de niveaux. Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [95]. . . . .	81
5.3	Spectre des rayons gamma prompts en coïncidence avec le tag fission zoomé entre 580 keV et 640 keV. . . . .	82
5.4	Illustration du spectre des gamma prompts, avant (à gauche) et après (à droite) l'application de la méthode décrite. . . . .	83
5.5	Schéma partiel de désexcitation du $^{98}\text{Zr}$ dans la fission spontanée $^{248}\text{Cm}$ . . . . .	84
5.6	Exemple schématique simplifié d'une cascade de désexcitations gamma. . . . .	85
5.7	Schéma partiel de désexcitation du $^{136}_{52}\text{Te}$ dans la fission spontanée du $^{248}\text{Cm}$ . Le code couleur qui est utilisé sur toutes les illustrations de schéma de niveaux est le suivant : les transitions dont l'intensité relative par rapport à la transition à l'état fondamental est supérieure à 10% sont en rouge, celles dont l'intensité est comprise entre 1% et 10% sont en bleu. Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. Les intensités gamma proviennent dans cette figure de l'article [95]. . . . .	90
5.8	Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à 423.4 keV. . . . .	91

5.9	Spectre des gamma en coïncidence avec les deux transitions d'énergies 1222.9 keV et 620.5 keV du $^{98}\text{Zr}$ . Les pics les plus intenses correspondent aux transitions les plus produites du $^{136}\text{Te}$ , $^{135}\text{Te}$ et $^{134}\text{Te}$ mais également aux transistons du $^{98}\text{Zr}$ plus élevées dans le schéma de niveau. . . . .	92
5.10	La matrice txy est une coupe selon l'axe z dans le cube, autour du pic à 606.6 keV. La matrice tyz est une coupe selon l'axe x dans le cube, autour du pic à 1222.9 keV. La matrice txz est une coupe selon l'axe y dans le cube, autour du pic à 620.5 keV. En dessous sont présentées les projections respectives de chacune des matrices selon, l'axe x pour tx, l'axe y pour ty et l'axe z pour tz. . . . .	93
5.11	Rendement du $^{136}\text{Te}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII comparé au résultat obtenus avec FIPPS. . . . .	96
5.12	Schéma partiel de désexcitation du $^{134}\text{Te}$ dans la fission spontanée du $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [99]. . . . .	97
5.13	Spectre total dans la région 250 keV / 350 keV des transitions gamma en coïncidences avec le tag fission. . . . .	98
5.14	Spectre après mise en coïncidence avec la transition à 1279.01 keV du $^{134}\text{Te}$ . Toujours dans la région 250 keV / 350 keV. . . . .	98
5.15	Spectres permettant de vérifier visuellement les possibles contaminations. . . . .	99
5.16	Spectre des gamma en coïncidence avec les deux transitions d'énergies 212.6 keV et 352.0 keV du $^{100}\text{Zr}$ . Les pics les plus intenses correspondent aux transitions les plus produites du $^{134}\text{Te}$ mais également aux transistons du $^{100}\text{Zr}$ plus élevées dans le schéma de niveaux. . . . .	100
5.17	Coupe dans la matrice pour chercher les possibles contaminations respectivement autour des énergies $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ , $212.6 \pm 3 \text{ keV}$ et $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ . . . . .	101
5.18	Rendement du $^{134}\text{Te}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII comparé au résultat obtenus avec FIPPS (avant et après correction de la production de l'état fondamental. . . . .	104
5.19	Schéma partiel de désexcitation du $^{100}_{40}\text{Zr}$ pour la fission spontanée du $^{252}\text{Cf}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [100]. . . . .	105
5.20	Spectre total dans la région 180 keV / 240 keV. . . . .	105
5.21	Spectre après mise en coïncidence avec la transition à 212.6 keV du qui permet de clairement faire ressortir le pic correspondant à la transition 352 keV du $^{100}\text{Zr}$ . Dans la région 300 keV / 400 keV. . . . .	106
5.22	Matrice autour de la coïncidence (212.6, 352.0) et projections. . . . .	106
5.23	Spectre des gamma en coïncidence avec les deux transitions d'énergies 1279.01 keV et 297.0 keV du $^{134}\text{Te}$ . Les pics les plus intenses correspondant logiquement aux transitions les plus produites du $^{100}\text{Zr}$ mais on peut également observer à 115.2 keV une transition du $^{134}\text{Te}$ . . . . .	107
5.24	Coupes dans la matrice pour chercher les possibles contaminations. . . . .	108
5.25	Coupes dans la matrice pour chercher les possibles contaminations. . . . .	108

5.26	Rendement du $^{100}\text{Zr}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS. . . . .	111
5.27	Schéma partiel de désexcitation du $^{98}_{40}\text{Zr}$ dans la fission spontanée $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. . . . .	112
5.28	Représentation de la matrice et des projections pour le $^{98}\text{Zr}$ . . . . .	113
5.29	La matrice txy est une coupe selon l'axe z dans le cube, autour du pic à 620.5 keV. La matrice tyz est une coupe selon l'axe x dans le cube, autour du pic à 606.6 keV. La matrice txz est une coupe selon l'axe y dans le cube, autour du pic à 423.4 keV. En dessous sont présentées les projections respectives de chacune des matrices selon, l'axe x pour tx, l'axe y pour ty et l'axe z pour tz. . . . .	114
5.30	La matrice txy est une coupe selon l'axe z dans le cube, autour du pic à 1222.9 keV. La matrice tyz est une coupe selon l'axe x dans le cube, autour du pic à 606.6 keV. La matrice txz est une coupe selon l'axe y dans le cube, autour du pic à 423.4 keV. En dessous sont présentées les projections respectives de chacune des matrices selon, l'axe x pour tx, l'axe y pour ty et l'axe z pour tz. . . . .	114
5.31	Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à 1222.9 keV. . . . .	116
5.32	Rendement du $^{98}\text{Zr}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS. . . . .	117
5.33	Schéma partiel de désexcitation du $^{140}_{54}\text{Xe}$ dans la fission spontanée du $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [101]. . . . .	117
5.34	Rendement du $^{140}\text{Xe}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII comparé au résultat obtenu avec FIPPS. . . . .	120
5.35	Schéma partiel de désexcitation du $^{96}_{38}\text{Sr}$ dans la fission spontanée du $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [102]. . . . .	120
5.36	Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à 815.0 keV. . . . .	121
5.37	Schéma partiel de désexcitation du $^{138}_{54}\text{Xe}$ pour la fission spontanée du $^{248}\text{Cm}$ . . . . .	122
5.38	Rendement du $^{96}\text{Sr}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS. . . . .	123
5.39	Schéma partiel de désexcitation du $^{142}_{56}\text{Ba}$ dans la fission spontanée du $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [103]. . . . .	124
5.40	Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à 359.6 keV. . . . .	124
5.41	Schéma partiel de désexcitation du $^{92}_{36}\text{Kr}$ dans la fission spontanée du $^{252}\text{Cf}$ . . . . .	125
5.42	Rendement du $^{142}\text{Ba}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII comparé au résultat obtenus avec FIPPS. . . . .	126

5.43	Schéma partiel de désexcitation du ${}^{94}_{38}\text{Sr}$ dans la fission spontanée du ${}^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [104]. . . . .	127
5.44	Rendement du ${}^{94}\text{Sr}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS. . . . .	129
5.45	Schéma partiel de désexcitation du ${}^{88}_{36}\text{Kr}$ dans la fission spontanée du ${}^{252}\text{Cf}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF ( <i>Evaluated Nuclear Structure Data File</i> ) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [105]. . . . .	129
5.46	Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à 775.3 keV. . . . .	130
5.47	Schéma partiel de désexcitation du ${}^{144}_{56}\text{Ba}$ pour la fission spontanée ${}^{252}\text{Cf}$ . . . . .	131
5.48	Rendement du ${}^{88}\text{Kr}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS. . . . .	132
5.49	Schéma partiel de désexcitation du ${}^{132}\text{Sn}$ dans la fission spontanée du ${}^{248}\text{Cm}$ avec, en rouge, les trois transitions vers l'état fondamental. . . . .	133
5.50	Illustration de l'ajustement des pics de transitions gamma du ${}^{132}\text{Sn}$ . . . . .	134
5.51	Matrice de coïncidence des gamma retardés zoomée dans la gamme en énergie 320-360 keV et 820-860 keV. On note que le pic de la coïncidence qui nous intéresse à (899 keV, 340.5 keV) est loin d'être simple à ajuster car il est très proche d'un pic plus intense et d'une trainée Compton diagonale. . . . .	136
5.52	Schéma de désintégration bêta du ${}^{132}\text{Sn}$ . . . . .	137
5.53	Comparaison du rendement cumulé de ${}^{132}\text{Sn}$ obtenu avec FIPPS et avec les bases de données ENDF/B-VIII et JEFF 3.3. . . . .	137
5.54	Rendement du ${}^{132}\text{Sn}$ fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec FIPPS. . . . .	138
5.55	Variation de la production de ${}^{132}\text{Sn}$ en fonction du paramètre $R_T^{max}$ de FIFRELIN. En noir, la production directement à l'état fondamental, en rouge la production via la cascade de gamma prompts, en bleu émission de neutron puis production à l'état fondamental. . . . .	139
5.56	Rendement de tous les fragments étudiés, fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII puis comparé aux résultats obtenus avec FIPPS avant et après corrections grâce aux simulations FIFRELIN. . . . .	140
5.57	Exemple schématique simplifié d'une cascade de désexcitations gamma. . . . .	145
5.58	Valeur du $\chi^2$ pour les transitions de la bande principale $\gamma$ dans le ${}^{100}\text{Zr}$ pour des simulations FIFRELIN avec différentes valeurs de <i>scaling factor</i> [98]. . . . .	146
5.59	Valeur du $\chi^2$ réduit pour les transitions de la bande principale $\gamma$ de neuf fragments de fissions pour des simulations FIFRELIN avec différentes valeurs de <i>scaling factor</i> . . . . .	148



# Liste des tableaux

1.1	Modèles et paramètres libres implémentés dans les simulations FIFRELIN utilisées dans le cadre de ma thèse (sauf indications contraires). . . . .	24
3.1	Réaction et transitions utilisées pour l'étalonnage en énergie . . . . .	46
3.2	Tableau des valeurs du coefficient correctif alpha pour le clover 1. . . . .	54
4.1	Distances obtenues pour les détecteurs FIPPS et IFIN. . . . .	60
4.2	Raies gamma du $^{152}\text{Eu}$ utilisées pour l'estimation de l'efficacité absolue de FIPPS. . .	62
4.3	Perte par effet de sommations dans le spectromètre FIPPS (réduit à 15 clovers) sans addback pour les dix transitions gamma utilisées de $^{152}\text{Eu}$ . . . . .	64
4.4	Tableau récapitulatif des résultats obtenus avec les deux méthodes. . . . .	75
5.1	Perte par effet de sommation pour les neuf fragments de fissions selon trois simulations FIFRELIN différentes (sans addback). . . . .	88
5.2	Coïncidences produites via FIFRELIN pour le $^{136}\text{Te}$ aux énergies $606.6 \pm 3 \text{ keV}$ et $423.4 \pm 3 \text{ keV}$ . . . . .	91
5.3	Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes $1222.9 \pm 3 \text{ keV}$ , $620.5 \pm 3 \text{ keV}$ et $606.6 \pm 3 \text{ keV}$ . Seuls les productions supérieures à 0.1% ont été prises en compte. . . . .	93
5.4	Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes $1222.5 \pm 3 \text{ keV}$ , $620.3 \pm 3 \text{ keV}$ et $423.4 \pm 3 \text{ keV}$ . Seuls les productions supérieures à 0.1% ont été prises en compte. . . . .	94
5.5	Récapitulatif des résultats obtenus pour le $^{136}\text{Te}$ . . . . .	95
5.6	Coïncidences produites aux énergies $1279.01 \text{ keV} \pm 3 \text{ keV}$ et $297.0 \text{ keV} \pm 3 \text{ keV}$ dans le cadre de l'analyse du $^{134}\text{Te}$ . . . . .	102
5.7	Coïncidences produites pour le $^{134}\text{Te}$ aux énergies $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ , $212.6 \pm 3 \text{ keV}$ et $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte. . . . .	102
5.8	Coïncidences produites pour le $^{134}\text{Te}$ aux énergies $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ , $219.0 \pm 3 \text{ keV}$ et $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ . La ligne en gras correspond au pic situé dans le bruit de fond. . . . .	102
5.9	Récapitulatif des résultats obtenus pour le $^{134}\text{Te}$ . . . . .	103
5.10	Coïncidences produites pour le $^{100}\text{Zr}$ aux énergies $217 - 220 \text{ keV}$ et $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les transitions avec des intensités supérieures à 1% sont montrées, ce qui explique que le total n'est pas exactement égal à 100%. . . . .	109
5.11	Coïncidences produites pour le $^{100}\text{Zr}$ aux énergies $212.6 \pm 3 \text{ keV}$ et $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ . . . . .	110

5.12	Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ , $212.6 \pm 3 \text{ keV}$ et $297.0 \pm 3 \text{ keV}$ . Seuls les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte. . . . .	110
5.13	Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ , $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ et $297.0 \pm 3 \text{ keV}$ . Seuls les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte. . . . .	110
5.14	Récapitulatif des résultats obtenus pour le $^{100}\text{Zr}$ . . . . .	111
5.15	Contaminations pour la double coïncidence $^{98}\text{Zr}$ aux énergies $1222.9 \pm 3 \text{ keV}$ et $620.5 \pm 3 \text{ keV}$ obtenue via une simulation FIFRELIN. . . . .	113
5.16	Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes $1222.9 \pm 3 \text{ keV}$ , $423.4 \pm 3 \text{ keV}$ et $620.5 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte. . . . .	115
5.17	Contaminations pour la double coïncidences $^{98}\text{Zr} / ^{134}\text{Te}$ aux énergies $1222.9 \pm 3 \text{ keV}$ et $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ obtenu via FIFRELIN. . . . .	115
5.18	Contaminations pour la double coïncidences $^{98}\text{Zr} / ^{134}\text{Te}$ aux énergies $620.5 \pm 3 \text{ keV}$ et $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ obtenue via FIFRELIN. . . . .	115
5.19	Récapitulatif des résultats obtenus pour le $^{98}\text{Zr}$ . . . . .	116
5.20	Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes $836.9 \pm 3 \text{ keV}$ , $1309.1 \pm 3 \text{ keV}$ et $457.6 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte. . . . .	118
5.21	Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes $815.0 \pm 3 \text{ keV}$ , $977.8 \pm 3 \text{ keV}$ et $376.7 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte. . . . .	118
5.22	Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes $815.0 \pm 3 \text{ keV}$ , $977.8 \pm 3 \text{ keV}$ et $457.6 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte. . . . .	118
5.23	Récapitulatif des résultats obtenus pour le $^{140}\text{Xe}$ . . . . .	119
5.24	Contaminations pour la double coïncidences aux énergies $815.0 \pm 3 \text{ keV}$ et $977.8 \pm 3 \text{ keV}$ . 121	
5.25	Récapitulatif des résultats obtenus pour le $^{96}\text{Sr}$ . . . . .	123
5.26	Contaminations pour la double coïncidences aux énergies $359.6 \pm 3 \text{ keV}$ et $475.2 \pm 3 \text{ keV}$ . 125	
5.27	Récapitulatif des résultats obtenus pour le $^{142}\text{Ba}$ . . . . .	126
5.28	Récapitulatif des résultats obtenus pour le $^{94}\text{Sr}$ . . . . .	128
5.29	Contaminations pour la double coïncidences aux énergies $775.2 \pm 3 \text{ keV}$ et $868.4 \pm 3 \text{ keV}$ . 130	
5.30	Récapitulatif des résultats obtenus pour le $^{88}\text{Kr}$ . . . . .	132
5.31	Multiplicité neutron moyenne totale attendue et pour deux simulations FIFRELIN. L'une avec $R_T^{max} = 1.25$ , l'autre pour $R_T^{max} = 1.28$ . Les incertitudes sur les valeurs de multiplicité pour les deux simulations sont fournies par le fichier de sortie de FIFRELIN. 140	

# Introduction

Bien que connue et étudiée depuis plus de 80 ans, la fission nucléaire reste un domaine de recherche très actif. L'exploitation d'un parc de réacteurs nucléaires comme celui de la France et le choix d'une dissuasion par l'arme nucléaire s'accompagne nécessairement d'une volonté de connaissance poussée du processus de fission et des grandeurs associées. Divers modèles existent pour décrire le phénomène de fission nucléaire. On peut citer les approches microscopiques, comme le modèle de Bruyères-le-Châtel, les approches mixtes combinant des aspects macroscopiques et microscopiques ou encore les approches semi-empiriques, comme dans les codes GEF et FIFRELIN. Tous ces modèles reposent sur des hypothèses, des interrogations encore non élucidées, telles que l'impact de la déformation des fragments sur le processus de fission ou la distribution de l'énergie d'excitation entre les fragments de fission. Les modèles phénoménologiques requièrent en outre la connaissance d'un certain nombre de données nucléaires, à fournir en entrée des simulations. Or, d'un point de vue expérimental, il est souvent difficile de mesurer avec précision et en même temps, l'ensemble des observables de fission.

Dans le cadre de cette thèse, j'ai essayé de contribuer à une meilleure connaissance du processus de fission, en étudiant les cascades de rayons gamma émis par les fragments de fission et en montrant qu'elles pouvaient nous permettre d'estimer des données nucléaires importantes, les rendements de fission isotopiques indépendants. La mesure des rendements de fission et, plus encore, la réduction de leur incertitude, présentent un intérêt à la fois pour la physique fondamentale et pour la physique des réacteurs. Pour ce faire, le développement et le test de nouvelles méthodes d'analyse sont tout à fait pertinents.

Le premier chapitre posera le contexte de la thèse au sein de l'étude du processus de fission, avec des rappels théoriques puis la notion de rendement de fission, la présentation du code de simulation FIFRELIN et enfin les objectifs de la thèse. Dans le second chapitre, le dispositif expérimental sera présenté avec le spectromètre FIPPS, ses composants, ainsi que la campagne de mesure associée aux données que j'ai analysées par la suite. Le chapitre trois, détaillera la phase essentielle de pré-traitement des données brutes avant l'analyse proprement dite, notamment l'étalonnage en énergie et l'alignement en temps des détecteurs. Dans le quatrième, le spectromètre FIPPS et la cible active d' $^{235}\text{U}$  seront caractérisés pour en sortir deux grandeurs cruciales pour l'analyse, à savoir, l'efficacité absolue du système de détection et le nombre total de fission. Enfin, le cinquième chapitre présentera la méthode d'analyse par spectrométrie gamma que nous avons déployé pour mesurer les rendements isotopiques pour la fission thermique de  $^{235}\text{U}$ . Elle est appliquée à la mesure d'un certain nombre de noyaux bien produits par la fission mais également au cas particulier du  $^{132}\text{Sn}$  où une anomalie avait été observée en fission rapide.



# Chapitre 1

## Contexte et objectif de l'étude : la fission nucléaire et la désexcitation des fragments de fission

Dans ce premier chapitre, je rappellerai tout d'abord les bases de fission nucléaire en détaillant les modèles les plus importants ou les plus utilisés. Ensuite, j'expliquerai la notion de rendements de fission et je passerai en revue les méthodes permettant de les mesurer. Je présenterai ensuite succinctement le code de désexcitation des fragments de fission FIFRELIN. Je terminerai ce chapitre en expliquant les objectifs de mon travail de thèse.

### 1.1 La fission nucléaire

#### 1.1.1 Histoire d'une découverte

La découverte de la fission nucléaire trouve son origine dans les progrès scientifiques réalisés à partir du début du XXe siècle. Les scientifiques comme Ernest Rutherford ou Niels Bohr commençaient à percer les mystères de la structure de l'atome. Au milieu des années 1930, les physiciens allemands Otto Hahn et Fritz Strassmann menaient des expériences sur la transmutation des éléments radioactifs en bombardant différents noyaux atomiques avec des neutrons. En décembre 1938, ils réalisèrent une expérience avec de l'uranium qui produisit des résultats inédits : ils avaient obtenu des éléments (les futurs produits de fission) plus légers que l'uranium initial [1]. A ce moment, cette découverte ne pouvait être expliquée par les théories existantes. C'est Lise Meitner et son neveu Otto Frisch qui ont été les premiers à interpréter l'expérience de Hahn et Strassmann [2]. En utilisant les nouvelles idées de physique nucléaire et les connaissances en mécanique quantique, ils élaborèrent une explication cohérente : l'uranium avait subi une fission, un processus au cours duquel le noyau d'uranium se scindait en deux noyaux plus petits, libérant une quantité importante d'énergie. Cette découverte eut un impact profond sur la physique et l'ingénierie. Elle posa les bases de la compréhension de la fission nucléaire en tant que phénomène fondamental et ouvrit la voie à des applications significatives. Dès les années 1940, la fission nucléaire permit la création de la première bombe atomique. Ensuite, elle a été

appliquée à des fins civiles pour la production d'énergie dans les réacteurs nucléaires. Ainsi, la fission nucléaire, a eu un impact énorme sur la science et la société et est toujours étudiée de nos jours. En 1944, Hahn a reçu le prix Nobel de chimie pour la découverte de la fission nucléaire.

### 1.1.2 Le processus de fission

Le fission nucléaire est un phénomène complexe, un réarrangement collectif d'un système microscopique qui implique des effets de particules individuelles et des effets collectifs. La fission nucléaire peut être spontanée (comme dans le cas du  $^{252}\text{Cf}$ ) ou induite par une interaction avec une particule incidente : proton, neutron thermique ou rapide, ou encore photon virtuel dans le cas d'une excitation coulombienne. Les premières étapes de la fission induite par un neutron sont illustrées sur la figure 1.1.

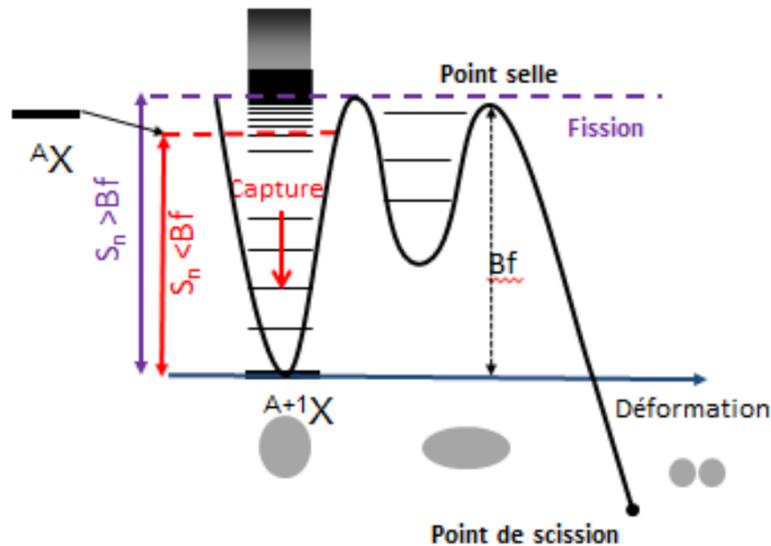


FIGURE 1.1 – Énergie potentielle du noyau composé en fonction de la déformation.

Suite à la capture d'un neutron par un noyau fissile, le noyau composé  $^{A+1}\text{X}^*$  se retrouve dans un état d'énergie excité et dans un équilibre instable dominés par deux interactions : l'interaction coulombienne répulsive des protons et l'interaction nucléaire attractive qui maintient les nucléons ensemble. La compétition entre les interactions en jeu se manifeste par un potentiel variant avec la déformation du noyau. Elle est illustrée à la figure 1.1 où  $B_f$  est la barrière de fission. L'évolution du noyau composé va dépendre de son énergie d'excitation, égale à la somme de l'énergie de liaison ( $S_n$ ) et de l'énergie cinétique ( $E_n$ ) du neutron selon la relation  $S_n + \frac{A}{A+1}E_n$  avec  $S_n$  proche de 5-6 MeV pour les actinides majeurs. Avec une énergie d'excitation proche ou plus importante que la hauteur de la barrière de fission, le noyau finira par atteindre une déformation (un point selle) qui l'amènera à la scission. Lorsque le point selle est atteint la fission devient irréversible et mène à la scission entre deux noyaux distincts dans un laps de temps de  $10^{-19}$  s [3]. Dans le cadre simplifié du modèle de la goutte liquide, d'après les barrières de fissions calculées par [4], la fission induite par neutron thermique n'est possible que pour les noyaux de  $A > 230$ .

Après la scission, les fragments s'éloignent de plus en plus par répulsion coulombienne. Les deux noyaux créés, que l'on appelle les fragments primaires, commencent à se désexciter. Le processus est illustré par la figure 1.2. Les fragments primaires sont riches en neutrons et dans un état excité qui peut atteindre plusieurs dizaines de MeV. Ils vont donc émettre en premier lieu des neutrons prompts en environ  $10^{-17}$  s (par évaporation) jusqu'à ce que leur énergie d'excitation soit inférieure à  $S_n$  (entre 4 et 8 MeV). Le seuil exacte dépend du spin et de la parité ; plus le spin de départ est élevé plus la seuil sera élevée [5]. Par la suite,  $10^{-14}$  s après le début du processus, les fragments se désexciteront par émission de gamma prompts jusqu'à atteindre leur état fondamental. Après cette phase de désexcitation prompte, les fragments vont décroître par désintégration  $\beta^-$  pour former les produits de fission et cela jusqu'à atteindre la stabilité. Lors de la décroissance  $\beta^-$ , des neutrons dits retardés peuvent éventuellement être émis, de l'ordre de  $10^{-2}$  par fission. Ils sont très important pour le pilotage de la réaction en chaîne dans les réacteurs nucléaires.

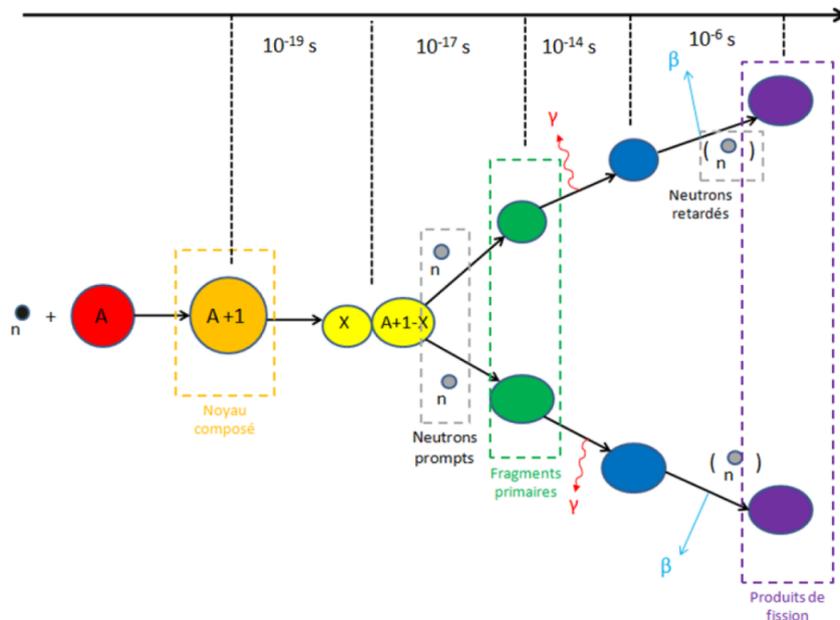


FIGURE 1.2 – Schéma récapitulatif des différentes étapes du processus de fission et de désexcitation des fragments [6].

### 1.1.3 La modélisation de la fission nucléaire

Nous présentons dans cette section quelques-uns des modèles principaux proposés pour décrire le processus de fission, à savoir le modèle historique de la goutte liquide avec ses limites, les modèles mixtes macro-micro et un modèle semi-empirique important car très utilisé, le code GEF. D'autres modèles décrivant le processus de fission de manière entièrement microscopique et dépendant du temps ont été également développés, comme le modèle développé à Bruyères-le-Châtel toujours dans les années 80 [7].

Chacun de ces modèles tente d'expliquer différents aspects de la fission nucléaire, en fonction des échelles d'énergie et des détails de la structure nucléaire que l'on souhaite explorer. Certains modèles se concentrent sur des aspects macroscopiques, tandis que d'autres tiennent compte des propriétés microscopiques et quantiques des noyaux. Ces modèles, même améliorés, ne permettent actuellement pas encore de reproduire l'ensemble des résultats expérimentaux avec précisions ni ne permettent de prendre en compte tous les aspects du processus de fission nucléaire.

## Le modèle de la goutte liquide

Le premier modèle développé proposé par Niels Bohr et John Wheeler dans les années 30 [8] est un modèle simple où le noyau est considéré comme une goutte liquide homogène et chargée uniformément. Ce modèle décrit la déformation du noyau comme une compétition entre des forces de surfaces attractives et des forces coulombiennes répulsives. C'est un modèle adiabatique et qui n'intègre que peu d'ingrédients de la structure nucléaire. Son résultat principal est de donner une expression semi-empirique de l'énergie de liaison du noyau, la formule de Bethe-Weizsäcker [9] :

$$E(A, Z) = aA - bA^{2/3} - c\frac{Z^2}{A^{1/3}} - d\frac{(N - Z)^2}{A} + \delta \quad (1.1)$$

Dans l'expression 1.1,

- $aA$  est un terme de volume proportionnel au nombre de nucléons et représente l'énergie de liaison due aux interactions nucléaires attractives à courte portée.
- $bA^{2/3}$  est un terme de surface.
- $c\frac{Z^2}{A^{1/3}}$  est un terme coulombien représentant la répulsion entre les protons chargés positivement dans le noyau.
- $d\frac{(N-Z)^2}{A}$  est un terme considérant l'asymétrie proton-neutron. Il s'agit d'une perte d'énergie due au surplus de l'un par rapport à l'autre.
- $\delta$  un paramètre dépendant de la parité du noyau avec  $\delta = \frac{12}{\sqrt{A}} \text{ MeV}$  pour les noyaux pairs-pairs,  $-\frac{12}{\sqrt{A}} \text{ MeV}$  pour les noyaux impairs-impairs et nul pour les autres.

Dans ce modèle, la matière nucléaire est supposée incompressible. Seuls les termes de surface et coulombien sont impactés par une déformation du noyau. Pour de petites oscillations, l'énergie potentielle du noyau en fonction de la déformation  $\beta$  peut être donné par :

$$E(\beta) = E(\beta = 0) + E_s(\beta) + E_c(\beta) \quad (1.2)$$

Dans l'expression 1.2,  $E_s(\beta)$  et  $E_c(\beta)$  sont respectivement les termes de surface et coulombien dépendant de la déformation. On peut montrer avec cette expression que l'énergie potentielle du noyau augmente jusqu'à atteindre une déformation critique au point-selle puis diminue jusqu'à la scission irréversible du noyau fissionnant en deux noyaux plus petits. Cette variation de l'énergie potentielle est illustrée sur la figure 1.1 où elle laisse apparaître l'existence de la barrière de fission  $B_f$ . Le modèle fait apparaître un paramètre de fissilité  $\chi$  dépendant de l'énergie coulombienne et de l'énergie de surface :

$$\chi = \frac{E_c}{2E_s} \quad (1.3)$$

Plus la répulsion coulombienne est grande par rapport à l'attraction de surface, plus le paramètre de fissilité sera élevé et donc augmentera la probabilité de fissionner du noyau. Bien que ce modèle soit relativement simple, il a connu un grand succès car les travaux de Bohr et Wheeler reproduisent bien les barrières de fission expérimentales.

Le modèle de la goutte liquide présente néanmoins des limitations car dans certains cas, l'expérience est venue contredire ses prévisions. En voici deux principales :

1. Le modèle prévoit une fission symétrique car l'énergie potentielle est maximum dans ce cas. Or, pour les actinides la fission est quasi systématiquement asymétrique.
2. Une autre incompatibilité est l'existence des isomères de forme. Ces isomères sont des états excités de noyaux atomiques qui ont donc la même composition en terme de neutrons et protons mais ont des déformations différentes [10]. Or, le modèle de la goutte liquide ne prévoit l'existence que de noyaux sphériques.

Le modèle de la goutte liquide présente d'importantes divergences avec l'expérience pour la région des actinides qui peut s'expliquer par le fait qu'il ne pas compte de la structure des noyaux. C'est pourquoi d'autres modèles, mixtes macroscopique-microscopique ou incluant la structure et la dynamique ont été développés par la suite.

## Les modèles mixtes macroscopiques-microscopiques

L'un des premiers modèles développé pour concilier les modèles macroscopiques et microscopiques est la méthode de Strutinsky [11]. Ce modèle se base toujours sur l'hypothèse de la goutte liquide pour calculer la barrière de fission. Cependant, il est modifié pour prendre en compte les effets de la structure en couche des nucléons en considérant la goutte liquide comme incompressible sauf pour les nucléons des couches supérieures. La méthode se présente telle que :

1. La première étape consiste à calculer les niveaux d'énergie des nucléons dans le potentiel moyen créé par tous les autres nucléons. Ces niveaux d'énergie sont généralement obtenus à partir d'un modèle utilisant l'hypothèse de la goutte liquide.
2. La méthode de Strutinsky prend en compte les effets de couches nucléaires. Ces effets sont dus à la quantification des niveaux d'énergie pour les protons et les neutrons à l'intérieur du noyau. Les niveaux d'énergie sont remplis jusqu'à ce que tous les nucléons soient pris en compte, et cet effet de quantification influence l'énergie totale du noyau fissionnant.
3. La contribution de ces effets discrets est souvent appelée correction de Strutinsky. Pour chaque nucléon, on considère l'écart entre son énergie quantifiée et son énergie dans le potentiel moyen continu. En sommant ces écarts sur tous les nucléons, on obtient la correction de Strutinsky.
4. Enfin, on additionne cette correction à l'énergie obtenue à partir du modèle de la goutte liquide. Cette somme donne une estimation plus précise de l'énergie de liaison du noyau fissionnant.

La méthode de Strutinsky a été améliorée à Los Alamos, le modèle résultant est le *Finite Range Droplet Model (FRDM)* [12]. La principale différence est que la surface d'énergie potentielle du noyau

est calculée selon les cinq paramètres définis dans la figure 1.3 : l'élongation, exprimée en termes de moment quadripolaire de la charge  $Q_2$ , le diamètre du col  $d$ , la déformation du fragment droit  $E_{f2}$  et gauche  $E_{f1}$  et enfin l'asymétrie de masse  $\alpha_g$ .

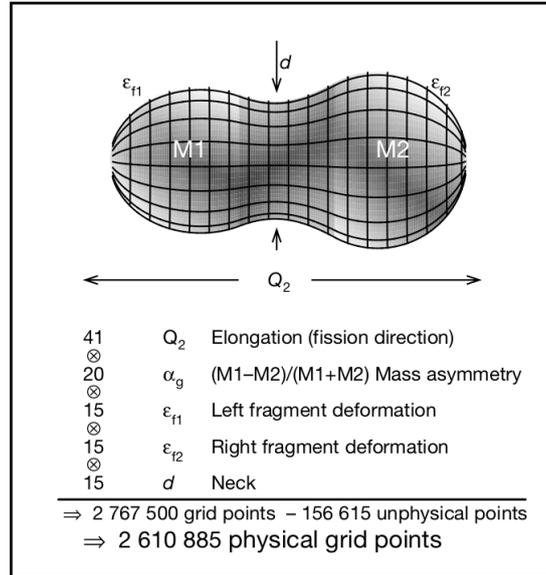


FIGURE 1.3 – Paramétrisation en cinq dimensions utilisée dans les calculs d'énergie potentielle avec un modèle FRDM [12].

Un exemple de calcul d'énergie potentielle avec le modèle précédent est illustré dans la figure 1.4. Elle présente la surface d'énergie potentielle du noyau composé d' $^{236}\text{U}$  en fonction du moment quadripolaire et de l'asymétrie de masse. On observe un état fondamental déformé et une triple barrière de fission séparant des vallées symétriques (au voisinage du noyau de  $^{132}\text{Sn}$ ) ou asymétriques. Le noyau composé initialement déformé atteint un premier point selle pratiquement symétrique puis un second durant lequel l'asymétrie se met en place et finalement un troisième entièrement asymétrique. Ce modèle met en évidence que plusieurs chemins de fission existent et selon celui que le noyau emprunte, sa configuration sera différente au point de scission. C'est ce que l'on appelle les modes de fission. Les deux principaux, tous deux asymétriques, sont le Standard-I et la Standard-II. Le mode Standard-I favorisera la production de noyaux lourds centrés autour de la masse 132 ( $Z=50$  et  $N=82$ ) car correspondant à une double fermeture de couche (toutes les couches nucléaires sont remplies, le noyau est particulièrement stable). Les noyaux légers correspondant seront donc centrés autour de la masse complémentaire de la masse 132. Le mode Standard-II suit la même logique mais les noyaux lourds y sont formés préférentiellement autour de la fermeture de couche déformée à  $N=88$ .

## Les modèles semi-empiriques : le code de fission GEF

GEF ("GEneral description of Fission observables") est un code semi-empirique développé par K-H Schmidt et B. Jurado [14] avec l'objectif de prédire avec précision les observables de la fission, pour une large gamme de systèmes fissionnant et jusqu'à des énergies d'excitation d'environ 100 MeV.

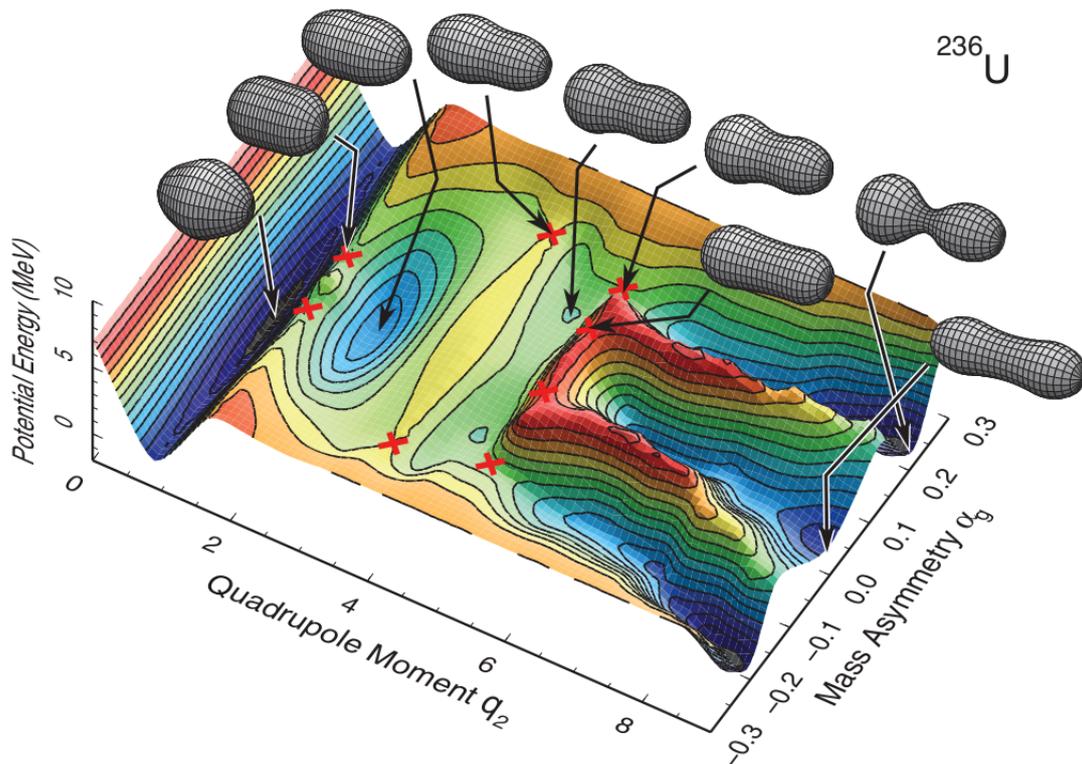


FIGURE 1.4 – Surface d'énergie potentielle bidimensionnelle pour le  $^{236}\text{U}$  présentant certaines caractéristiques de la surface d'énergie potentielle en 5D. Les croix rouges indiquent l'emplacement de certains points de selle. [13].

GEF calcule les barrières et les probabilités de fission puis prédit plusieurs observables de la fission : rendements de fission, rapports isomériques, multiplicités neutron, multiplicités gamma, .... Le modèle GEF repose sur des concepts physiques fondamentaux et un nombre assez réduit de paramètres. Un premier ingrédient majeur de GEF est qu'il se base sur les modes de fission de Brosa [15] dont les principaux sont (ici, par ordre d'importance dans la fission thermique des actinides majeurs) le mode Standard-II formant préférentiellement des noyaux lourds déformés autour  $Z=54-55$ , le mode Standard-I, centré autour de  $Z=52$  et formant des fragments lourds faiblement déformés et le mode symétrique SL produisant des noyaux fortement déformés. Le deuxième concept majeur de GEF est de considérer un modèle de répartition en énergie d'excitation des fragments dépendante de la température du fragment, développée par B. Jurado [16]. L'idée est que l'énergie d'excitation est transférée juste avant la scission, via un échange de nucléons dans le col, au fragment le plus lourd car sa densité de niveau est plus importante, ou dit autrement, car sa température est la plus faible, dans une modélisation de la densité de niveau du noyau en  $\log(\rho(E)) = (E - E_0)/T$ .

## 1.2 Les rendements de fission

Une détermination précise des rendements de fission est cruciale car ils sont importants dans de nombreux domaines. Les rendements de fission des actinides majeurs et mineurs sont importants pour la physique des réacteurs et pour la gestion des déchets. Ils sont déterminants pour le calcul du taux de fission dans un réacteur ainsi que pour la chaleur de décroissance et la puissance résiduelle. Ces applications seront détaillées par la suite. Ils sont également cruciaux pour la compréhension du processus de fission car ils servent, in fine, à valider les différents modèles proposés.

### 1.2.1 Définition des rendements

La fission est un processus complexe qui produit de nombreux noyaux. La plupart de ces fragments sont formés directement lors de la fission ou par la suite par désintégration  $\beta^-$  de précurseurs. La fission est en majorité binaire mais elle peut parfois émettre des particules légères tierces en plus des deux fragments (fission ternaire). On définit différents types de rendements des produits de fissions :

- **Le rendement de fission indépendant** correspond au nombre de nucléides  $(A,Z)$  produit directement par la fission.
- **Le rendement de fission cumulé** est le nombre total de nucléides  $(A,Z)$  produit directement par la fission et par désintégration  $\beta$  des fragments primaires.

Ces deux types peuvent eux-mêmes être divisés en d'autres catégories : **Le rendement en masse ou isobarique**  $Y(A)$  est la fraction par fission des fragments de masse  $A$ . **Le rendement en charge**  $Y(Z)$  est la fraction par fission des fragments de numéro atomique  $Z$ . **Le rendement isotopique** est la fraction par fission des fragments de masse  $A$  et de numéro atomique  $Z$ .

Du fait des fissions ternaires, la somme des rendements en masse est légèrement supérieure à 200%. Dans ce manuscrit, les rendements, quels qu'ils soient, seront toujours donnés en pourcentage par fission. Dans le cadre du chapitre 5 consacré aux mesures des rendements indépendants pour la fission thermique de l' $^{235}\text{U}$ , j'utiliserai, sauf mention explicite, le simple terme de rendement pour qualifier les rendements indépendants.

Certaines questions se posent également lors de la mesure des rendements de fissions. La première concerne les états isomères ou métastables. Dans certains cas, la cascade de désexcitation du fragment peut l'amener à un ou plusieurs états excités présentant une demi-vie très longue allant de la microseconde à l'année. Une désintégration bêta du noyau à partir de cet état isomérique peut être plus rapide que la désexcitation vers l'état fondamental. Dans ce cas de figure, on sépare le rendement indépendant total entre les différents états, isomériques et fondamental. **Le rapport isomérique** est défini comme le rapport des rendements isomérique sur fondamental. La deuxième question est liée au fait que les rendements de fission se réfèrent à un certain nombre de fissions. Il faut donc pouvoir mesurer ce nombre de fissions, sous peine de devoir normaliser les rendements par rapport à une grandeur relative, comme le rendement du fragment le plus produit, le mieux déterminé ou encore la somme des

fragments mesurés.

## 1.2.2 Domaines d'applications

On définit deux domaines principaux d'utilisation des rendements de fission : en physique fondamentale, leur importance réside dans l'intérêt qu'ils présentent pour l'étude du processus de fission, tandis que dans les domaines appliqués, ils sont nécessaires pour calculer l'accumulation et déterminer la présence ou non des produits de fission à différents stades du cycle du combustible nucléaire.

En physique des réacteurs, le **taux de fission** correspond au nombre d'événements de fission par unité de temps qui se produisent dans le combustible nucléaire et donc de la consommation de matière fissile. Le taux de fission est un paramètre essentiel pour la production d'énergie dans un réacteur nucléaire. Les produits de fission peuvent être utilisés comme moniteurs de combustion et leurs rendements de fission sont requis avec une grande précision. Les variations du taux de fission peuvent avoir des répercussions sur la puissance du réacteur, la génération de chaleur et d'autres caractéristiques de fonctionnement [17]. **La chaleur de décroissance** est la chaleur résiduelle après l'arrêt du réacteur. Elle est due aux rayonnements bêta et gamma émis par les produits de fission et les actinides présents dans le combustible nucléaire. C'est la problématique bien connue de la puissance résiduelle. La chaleur de décroissance est obtenue par des calculs qui incluent leurs rendements de fission de tous les produits, d'où l'intérêt de les connaître avec la plus grande précision possible [17]. **La gestion des déchets** nécessite également de connaître la durée de vie et les rendements des produits de fission présents [17].

La mesure des rendements de fission présente un intérêt en physique fondamentale, en premier lieu pour l'étude du processus de fission. Le calcul par simulation des rendement de fission après évaporation neutron nécessite de simuler à la fois le processus de fission et la désexcitation des fragments. La comparaison des rendements de fission mesurés avec ceux calculés par les simulations permet donc d'améliorer la précision des modèles. Un exemple de comparaison entre rendements calculés et mesurés est disponible en référence [18]. La fission nucléaire a également un impact en astrophysique où elle joue un rôle important dans la nucléosynthèse via le processus r [19]. Or, les noyaux dont il est question sont bien trop exotiques pour pouvoir être mesurés expérimentalement d'où l'importance d'améliorer et valider les modèles de fission.

## 1.2.3 Méthodes de mesures

### Méthodes radiochimiques

La détermination des rendements de fissions par des moyens radiochimiques est historiquement la première méthode à avoir été utilisée [20, 21]. Elle consiste en plusieurs étapes. Tout d'abord, le matériau est irradié pour induire la fission nucléaire puis dissous ou traité chimiquement pour extraire les produits de fission. Les produits de fission extraits sont ensuite séparés les uns des autres à l'aide de méthodes chimiques telles que la chromatographie, l'extraction liquide-liquide ou l'électrophorèse. Ces techniques permettent d'isoler les différents isotopes des produits de fission. Une fois que les produits de fission sont séparés, les désexcitations  $\gamma$  sont mesurées. La principale difficulté est que l'irradiation et la

séparation chimique doivent être réalisées rapidement pour éviter de laisser trop le temps aux fragments de fission de décroître par désintégration  $\beta$ . La mesure de noyaux non émetteurs  $\gamma$  n'est évidemment pas possible. Cependant, il s'agit d'une méthode intéressante car très précise et permettant de mesurer aussi les rendements de fragments peu produits. Cette méthode permet d'accéder avec précision aux rendements cumulés, cependant les rendements indépendants seront beaucoup plus difficiles à mesurer. Les détails sur l'utilisation de méthodes radiochimiques pour la mesure des rendements de fission peuvent être trouvés dans l'article de H.O Denschlag et al [22].

## Méthode par activation

Dans cette méthode, la cible fissile est soumise à un flux de neutrons, lorsque les neutrons sont capturés par les noyaux de la cible, des noyaux activés sont formés. La réaction de capture peut conduire à des noyaux dans un état excité qui reviennent à un état fondamental en émettant des particules, généralement des rayons gamma. Des scintillateurs ou des détecteurs à semi-conducteurs, sont utilisés pour mesurer les rayonnements émis pendant la désintégration et la quantité de rayonnements détectée est proportionnelle à la quantité de noyaux activés formés pendant l'irradiation. En combinant la connaissance du flux neutronique, de la section efficace de capture, de la radioactivité mesurée, et de la durée d'irradiation, on peut calculer les rendements de fission [17].

## Méthode par spectrométrie des fragments : méthodes E-v, 2-v et 2-E

Plusieurs méthodes ont été développées pour déterminer les rendements de fission indépendants en détectant les fragments et en mesurant leur énergie et/ou leur vitesse. Dans le spectromètre Cossi Fan Tutte [23], la vitesse d'un fragment est obtenue par une mesure précise du temps de vol entre deux détecteur gazeux et l'énergie est mesurée dans une chambre d'ionisation. La masse (après évaporation neutrons) est déduite à partir de l'expression  $E = mv^2$  après correction des pertes d'énergie dans les détecteurs du temps de vol, La méthode 2-v permet de déduire la masse avant évaporation neutronique des deux fragments à partir de la mesure de leur vitesse. Cette méthode s'appuie sur la conservation de la masse totale ( $A = m_1 + m_2$ ) et de la quantité de mouvement ( $m_1v_1 = m_2v_2$ ) et fait l'hypthèse que la vitesse des fragments ne change pas après l'émission de neutrons, ce qui n'est vrai qu'en moyenne. En combinant les deux méthodes, E-v et 2-V, plusieurs spectromètres encore en développement, FALSTAFF [24], SPIDER [25], VERDI [26] et STEFF [27] ont pour ambition de remesurer les masses avant et après évaporation neutronique des fragments et d'en déduire le nombre de neutrons émis par chaque fragment.

Dans la méthode dite 2-E, l'énergie des deux fragments émis est mesurée en coïncidence avec par exemple une double chambre d'ionisation avec une cathode commune ou encore des détecteurs à barière de surface. Elle permet de déduire la masse avant évaporation des deux fragments en utilisant les mêmes équations de départ que la méthode 2-v (car  $(m_1v_1)^2 = (m_2v_2)^2$  implique  $m_1E_1 = m_2E_2$ ) mais des hypothèses sur le nombre de neutrons émis sont nécessaires pour prendre en compte la perte d'énergie cinétique des fragments lors de l'émission de neutrons (détaillées par exemple dans l'article de [28]).

L'avantage de ces méthodes est de permettre une mesure des rendements de l'ensemble des fragments. La résolution en masse dépend des résolutions en énergie et/ou en temps des détecteurs utilisés

et est souvent proche de 5 à 6 unités de masse (FWHM). L'expérience SOFIA consitue une exception en atteignant des résolutions (FWHM) de 0.6 unité et 0.8 unité pour respectivement les fragments légers et lourds avec le spectromètre Aladin [29] en cinématique inverse et à des énergies relativistes.

## Méthodes par spectrométrie de masse

La détermination des rendements de fission par des méthodes de spectrométrie de masse est aussi une approche couramment utilisée. Elle consiste à tout d'abord à soumettre la cible à un flux de neutrons pour initier la fission puis à ioniser les produits de fission afin de générer des ions. Les ions formés sont ensuite déviés pour ne pas changer leur énergie cinétique et émis vers un spectromètre de masse. Le spectromètre de masse permet de séparer les ions en fonction de leur rapport masse sur charge ( $A/q$ ) en utilisant des champs électriques ou magnétiques. Cette étape permet d'identifier et d'isoler les ions correspondant aux isotopes des produits de fission. La masse est obtenue par la détermination de l'énergie cinétique des fragments grâce à une chambre d'ionisation. Une fois que les ions sont séparés selon leur ( $A/q$ ), ils sont détectés par un détecteur approprié. La quantité de chaque isotope de produit de fission est déterminée en mesurant l'intensité du signal détecté, qui est proportionnelle à la concentration des isotopes présents dans l'échantillon. Cette méthode est très puissante mais complexe à mettre en œuvre car chaque mesure de rendement de masse doit être déterminée pour une énergie cinétique et une charge ionique données. Un historique des mesures de rendements effectuées par spectrométrie de masse est passé en revue dans l'article [30].

Le spectromètre de recul Lohengrin [31] est un instrument de référence et un exemple bien particulier de spectromètre de masse, que je détaillerai, au vu de son importance pour ce travail de thèse, dans la section 1.2.4.

## Méthode par spectrométrie des rayons gamma prompts

La détermination des rendements de fission par des méthodes de spectrométrie gamma a déjà été utilisée dans le passé [32, 33]. Elle consiste à mesurer et analyser les rayonnements gamma émis par les produits de fission. Une cible est tout d'abord irradiée par un flux de neutrons pour enclencher la réaction de fission. Ensuite, les produits de fission émettent des rayonnements gamma, dont les énergies et les intensités des photons détectés sont enregistrées par un ou des détecteurs, formant ainsi un spectre gamma. Les spectres gamma obtenus sont analysés pour identifier les raies gamma spécifiques correspondant aux émissions des produits de fission. Chaque isotope de produit de fission a un spectre gamma caractéristique, avec des raies gamma à des énergies spécifiques. L'identification précise des raies gamma est cruciale pour attribuer les émissions aux isotopes spécifiques. Enfin les intensités des raies gamma identifiées dans le spectre sont mesurées. La quantité de chaque isotope de produit de fission est déterminée moyennant l'efficacité de détection du détecteur et les propriétés de désintégration gamma des isotopes. La spectrométrie gamma est très pratique car elle permet une mesure directe et nécessite beaucoup moins de matériel fissile que les précédentes. Cependant, les spectres gamma sont souvent difficiles à exploiter lorsque les raies gamma sont difficilement dissociables du bruit de fond (à cause de l'intensité gamma trop faible de la transition ou de l'efficacité à l'énergie donné par exemple). La spectrométrie gamma présente donc le désavantage de ne pas pouvoir déterminer les rendements

des fragments les moins produits. C'est cette méthode qui a été utilisée dans le cadre de ma thèse et qui sera détaillée dans le chapitre 5.

## Méthode par piège de Penning

L'utilisation de la technique ISOL (Isotope Separation On-Line) conjuguée à un piège de Penning offre une alternative pour évaluer les rendements de fission. Cette méthode permet de mesurer des rendements de fission isotopiques indépendants pour des systèmes fissionnant tel que  $^{nat}U$ ,  $^{232}Th$  et  $^{238}U$  caractérisés par des niveaux d'excitation variés. C'est la méthode qui est utilisée sur l'installation IGISOL avec le piège de Penning JYFLTRAP [34]. Dans le cas de l'installation IGISOL, un cyclotron génère un flux de protons dirigé vers la chambre de fission, où il est exploité pour l'étude des réactions (p,f) et (n,f). Dans le premier scénario, un faisceau de 25 MeV interagit directement avec des cibles composées par exemple de  $^{232}Th$  ou  $^{nat}U$ , déclenchant ainsi des réactions (p,f). Pour le cas (n,f), un faisceau de 30 MeV est employé pour engendrer des neutrons dans une cible dense de béryllium via la réaction  $Be(p,n)$ . La cible de Be est positionnée à l'intérieur de la chambre de fission. Les neutrons résultants déclenchent alors des réactions (n,f) dans la cible d'uranium naturel, placée en aval de la cible de production de neutrons. L'hélium est utilisé comme gaz tampon afin de décélérer les produits de fission, les orientant ensuite vers un guide d'ions à radiofréquence (RF) où ils sont progressivement accélérés à 30 kV en direction d'un séparateur de masse magnétique. Un aimant dipolaire est ensuite placé pour trier les ions selon les isobares. Après l'aimant, les ions sont déviés vers un refroidisseur et un émetteur de radiofréquences (RFQ). Après une décélération et un refroidissement, de brèves rafales d'ions, sont enfin émises en direction d'une paire de pièges de Penning successifs. Au sein de ces pièges, les ions sont emprisonnés dans un champ magnétique, et leur trajectoire est manipulée par l'application d'un champ RF permettant de sélectionner différents rapports q/m. Les ions choisis franchissent ensuite une ouverture avant d'être extraits vers une plaque multicanaux (MCP) [35, 36]. La particularité de cette approche réside dans le fait qu'elle se base sur le comptage direct des ions, éliminant ainsi toute dépendance à l'égard des schémas de désintégration  $\gamma$ .

### 1.2.4 Mesures existantes sur Lohengrin et sur EXILL des rendements isotopiques indépendants pour la fission thermique de $^{235}U$

Les résultats obtenus dans le cadre de cette thèse ont été comparés aux évaluations des bases de données JEFF et ENDF (que je présente dans la section 1.2.5). Ils ont aussi été comparés aux résultats obtenus avec un instrument de référence pour les rendements de fission en thermique, le spectromètre Lohengrin de L'ILL. Je vais décrire son fonctionnement et présenter certains de ses résultats. D'autre part, notre méthode est proche, sans être identique par à celle utilisée par A. Dey et ses collaborateurs [37] pour extraire les rendements isotopiques de la fission thermique de  $^{235}U$  avec les données prises sur le spectromètre EXILL. Il nous a donc paru important de montrer et de commenter leur résultats.

#### Lohengrin

Lohengrin est l'un des 40 instruments installés auprès du réacteur à haut flux de l'Institut Laue-Langevin de Grenoble. C'est un spectromètre de recul avec une vue directe sur une cible fissile placée

à environ 50 cm du cœur du réacteur, dans un flux de neutrons de l'ordre de  $5,3 \times 10^{14} \text{ n s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ . Le spectromètre est représenté schématiquement à la figure 1.5.

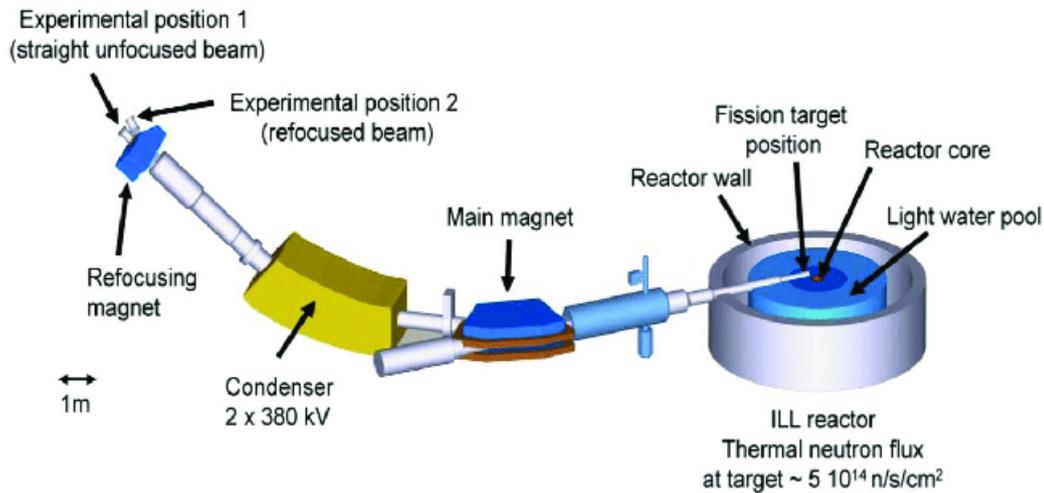


FIGURE 1.5 – Représentation schématique du spectromètre Lohengrin.

La séparation des fragments sur Lohengrin est réalisée par une combinaison d'un champ électrique et d'un champ magnétique qui permet de sélectionner les fragments en fonction de leur masse, charge ionique et énergie cinétique [31]. Les fragments sélectionnés sont ensuite détectés dans une chambre à ionisation avec deux anodes (position expérimentale 1) ou refocalisés par un deuxième aimant [38] vers la position 2 où ils peuvent par exemple être stoppés dans une bande (position 2) entourée de quelques détecteurs HPGe permettant de mesurer les rayons gamma retardés émis par les fragments.

Les fragments sortant de la cible ont une charge ionique comprise entre 16 et 26 (voire 35 dans certains cas) et, la cible étant très mince, leur énergie est proche de leur énergie cinétique à la fission. Les fragments arrivant au premier aimants sont séparés horizontalement en fonction de leur rapport masse sur charge ionique ( $A/q$ ). Dans le condensateur, ils sont déviés verticalement selon le rapport énergie cinétique sur charge ionique ( $E_k/q$ ). La chambre d'ionisation permet de mesurer leur énergie cinétique et de les identifier en charge ionique et donc en masse. La chambre d'ionisation est divisée en deux parties, ce qui permet de mesurer le dépôt d'énergie dans chaque partie (méthode  $\Delta E - E$ ) et d'estimer le nombre atomique  $Z$  du fragment. En pratique, au vu de la résolution de la chambre (au mieux 1%), cette identification de  $Z$  n'est possible que pour les fragments légers avec  $Z < 38$ . L'utilisation d'absorbant solide en amont de la chambre d'ionisation a permis une identification de fragments jusqu'à  $Z=47$  [39]. Pour identifier les fragments plus lourds, des détecteurs HPGe peuvent être utilisés pour mesurer les rayons gamma retardés émis lors de leur désintégration bêta.

Le spectromètre Lohengrin et la technique d'identification de  $Z$  avec la chambre à ionisation avec deux anodes a permis la mesure des rendements isotopiques indépendants dans la région des masses légères pour un grand nombre d'actinides majeurs et mineurs, fissionables avec des neutrons thermiques, par exemple :  $^{233}\text{U}$  [40],  $^{235}\text{U}$  [41, 42, 43],  $^{237}\text{Np}$  [44],  $^{239}\text{Pu}$  [45]. Des mesures plus récentes des rendements isotopiques de fragments lourds avec une identification des fragments par la spectrométrie de leurs rayons gamma retardés ont été menées pour la fission thermique du  $^{239}\text{Pu}$ , de  $^{242}\text{Am}$ , de  $^{233}\text{U}$  et

du  $^{241}\text{Pu}$  [46, 47, 48, 49]. Plusieurs campagnes de remesures des rendements isobariques de l'ensemble des fragments (légers, lourds, dans la symétrie) ont été également menées encore plus récemment pour des cibles d' $^{233}\text{U}$  et de  $^{239,241}\text{Pu}$ . [50, 49]. En dehors de la mesure du rendement isomériques de l' $^{132}\text{Sn}$  [51], la méthode par spectrométrie des rayons gamma retardés n'a pas été utilisée pour étudier les rendements isotopiques pour la fission thermique de l' $^{235}\text{U}$ .

Je présente à la figure 1.6 avec un peu plus en détail, les résultats obtenus pour les rendements isotopiques indépendants de deux noyaux légers provenant de [52].

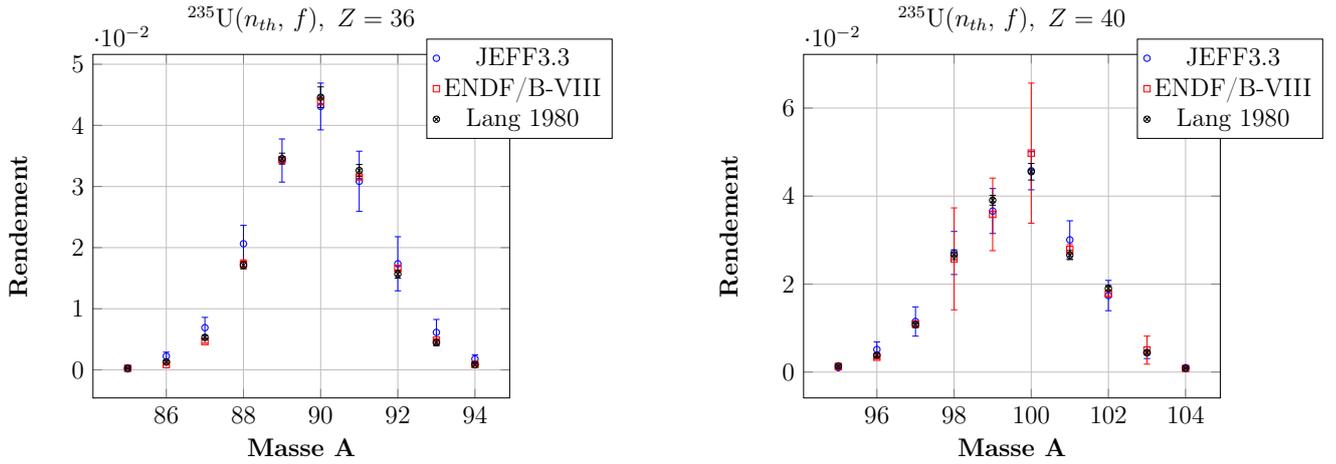


FIGURE 1.6 – Comparaison des rendements indépendants des isotopes de krypton (figure de gauche) et de zirconium (figure de droite) pour la fission thermique de  $^{235}\text{U}$ , selon les mesures de Lang à Lohengrin [52] et les évaluations JEFF3.3 et ENDF/B-VIII.

On remarque que les valeurs de rendement obtenues sur Lohengrin sont données avec de faibles incertitudes. Il est donc probable que plusieurs des rendements indépendants tabulés dans les évaluations JEFF 3.3 et ENDF/B-VIII soient dominés par les données Lohengrin. Le principal problème des mesures sur Lohengrin est le manque de résultats pour les noyaux lourds. C'est là que les données par spectrométrie des rayons gamma prompts, comme celles mesurées sur FIPPS, pourraient se montrer complémentaires; elles pourraient permettre de vérifier les rendements indépendants des fragments lourds dans les bases de données.

## EXILL

L'instrument EXILL [53] (pour EXOGAM at ILL) est un spectromètre de rayon gamma temporairement installé à l'ILL, à la fin du guide de neutrons froids PF1B et composé de 8 clovers EXOGAM, 6 détecteurs GASP et 2 clovers de Lohengrin, placés autour d'une cible fissile, voir la figure 1.7. La chambre de réaction est constituée d'un tube en aluminium de 50 mm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur contenant la cible. Trois cibles fissiles ont été successivement mesurées, deux cibles d' $^{235}\text{U}$  enrichi à 99.7% et une cible de  $^{241}\text{Pu}$  enrichi à 78%. L'efficacité du spectromètre EXILL était d'environ 6.2% pour des rayons gamma à 1 MeV.

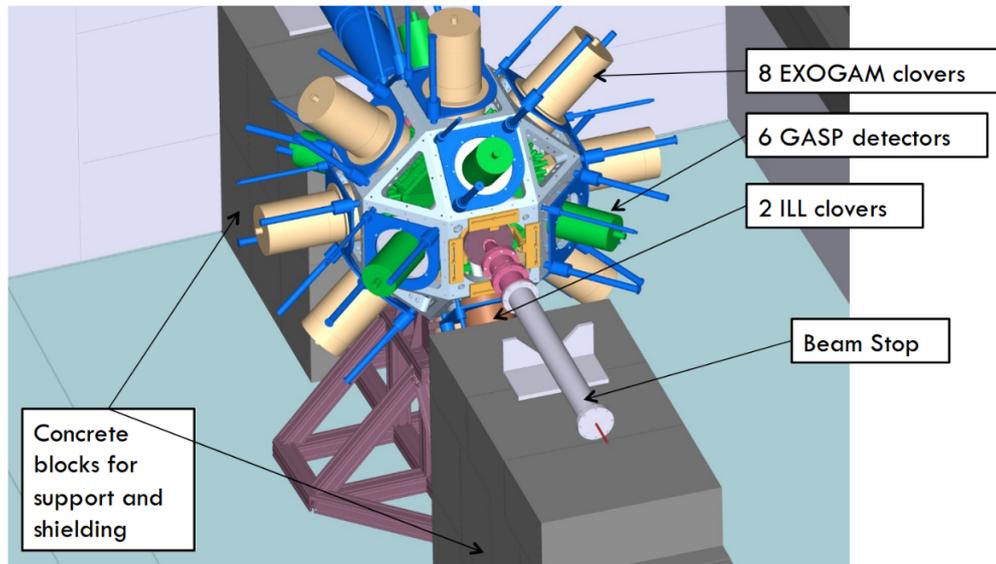


FIGURE 1.7 – Vue schématique du spectromètre gamma EXILL

Ce qui nous intéresse particulièrement ici, ce sont les résultats obtenus grâce à une campagne de mesures de 22 jours sur une des cibles d' $^{235}\text{U}$ . En effet, ces mesures ont été utilisées pour retrouver les rendements isotopiques indépendants. L'article [37] détaille leur méthode par spectrométrie des rayons gamma prompts via l'utilisation de coïncidence triple ( $\gamma\gamma\gamma$ ). Elle consiste à mesurer des transitions gamma d'un fragment donné en coïncidence avec celles des fragments complémentaires possibles et d'en faire la somme. La figure 1.8, reprise de l'article [37], montre que l'allure des rendements est globalement correcte en échelle logarithmique mais leur faible exactitude - les valeurs sont visiblement très éloignées des rendements obtenus sur Lohengrin, que l'on peut considérer comme plus fiables - rend ces résultats très peu utiles comme données nucléaires. Un défaut de cette méthode doit être qu'en pratique, les transitions de tous les fragments complémentaires ne sont pas visibles et donc que les rendements obtenus peuvent être sous-estimés.

La principale difficulté provient des données elles-mêmes. Contrairement aux données obtenues avec une cible active sur FIPPS et que j'ai analysées dans le cadre de ma thèse, il n'est pas possible dans l'analyse des données d'EXILL de sélectionner spécifiquement les événements provenant de la fission. Ce qui implique que les spectres des rayons gamma obtenus sur EXILL mélangent des rayons gamma prompts provenant directement de la fission et des rayons gamma retardés issus de la désintégration bêta des produits de fission. Ce mélange rend l'extraction des rendements par la spectrométrie des rayons gamma beaucoup plus ardue et aléatoire. On verra au chapitre 5 que la méthode que nous proposons pour extraire les rendements à partir des rayons gamma prompts est différente de la méthode utilisée par A. Dey et ses collaborateurs et permet d'obtenir des rendements beaucoup plus proches des données évaluées.

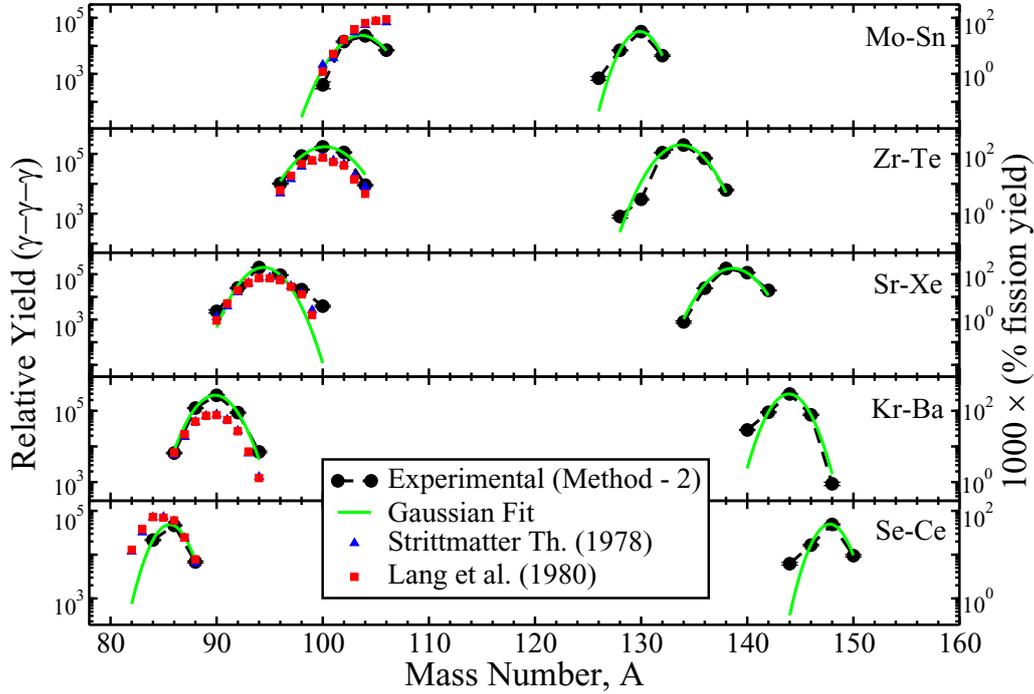


FIGURE 1.8 – Rendements indépendants des isotopes pairs en A et pairs en Z, pour la fission thermique de l' $^{235}\text{U}$ , obtenus par spectrométrie gamma sur le spectromètre EXILL, comparés aux données de Lohengrin, extrait de [37].

### 1.2.5 Bases de données nucléaires

Les bases de données nucléaires sont des ensembles d'évaluations utilisés en physique nucléaire. Elles contiennent des informations sur les sections efficaces des réactions nucléaires, les données des produits de fission, les données d'activation, les données de désintégration radioactive et bien évidemment les rendements (indépendants, cumulés, isotopiques, massiques, etc.). Ces bases de données nucléaires sont constamment mises à jour pour inclure de nouvelles données expérimentales et améliorer les modèles d'évaluation. Il est donc important de consulter les versions les plus récentes de ces bases de données pour des analyses précises et actualisées. En l'occurrence, dans le cadre de ma thèse nous avons utilisé nos résultats et comparé aux informations fournies dans deux bases de données : ENDF/B-VIII et JEFF 3.3.

#### JEFF-3.3

La base de données JEFF (*Joint Evaluated Fission and Fusion File*) est développée et maintenue par l'Agence pour l'énergie nucléaire (NEA) de l'OCDE. JEFF 3.3 est la plus récente des versions de la base de données JEFF, et elle est largement utilisée dans le domaine de l'énergie nucléaire. Ce qui nous intéresse ici ce sont les informations relatives aux rendements isotopiques indépendants de l' $^{235}\text{U}$  en neutrons thermiques.

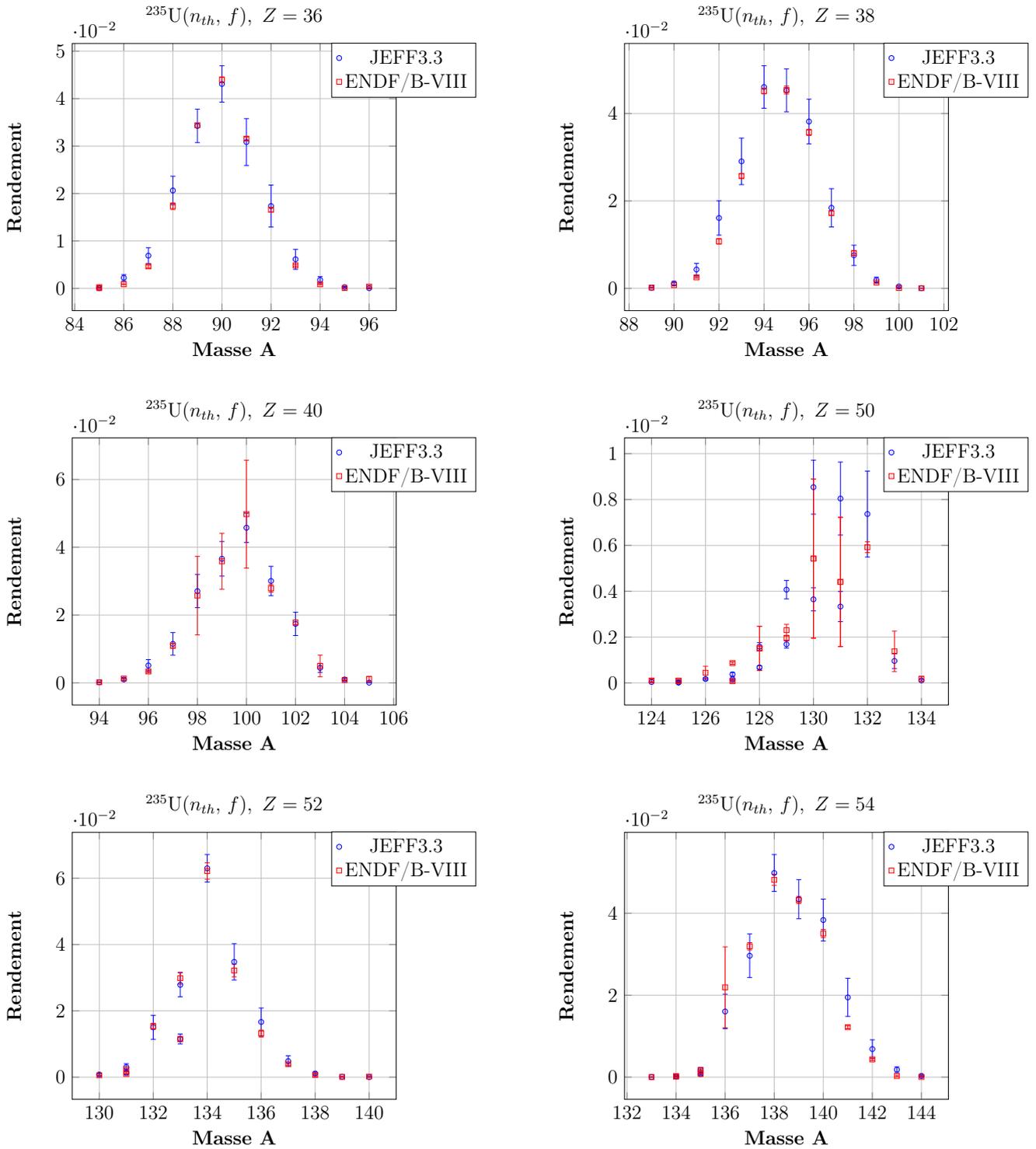


FIGURE 1.9 – Comparaison des rendements indépendants des isotopes de trois noyaux légers (krypton, strontium, zirconium) et trois noyaux lourds (étain, tellure, xénon) pour la fission thermique de  $^{235}\text{U}$  selon les évaluations JEFF3.3 et ENDF/B-VIII. On note que dans les cas de l'étain et du tellure, la présence de deux valeurs de rendement pour la même masse s'explique par l'existence d'un état isomérique.

## ENDF/B-VIII

La base de données ENDF-B/VIII (Evaluated Nuclear Data File) est développée et maintenue par le National Nuclear Data Center (NNDC) des États-Unis. Elle est basée sur les recommandations du comité ENDF (Evaluated Nuclear Data File) de l'Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA) et contient des données évaluées pour une large gamme de noyaux nucléaires. ENDF-B/VIII est la dernière version de la série ENDF-B, qui a connu plusieurs mises à jour depuis les années soixante.

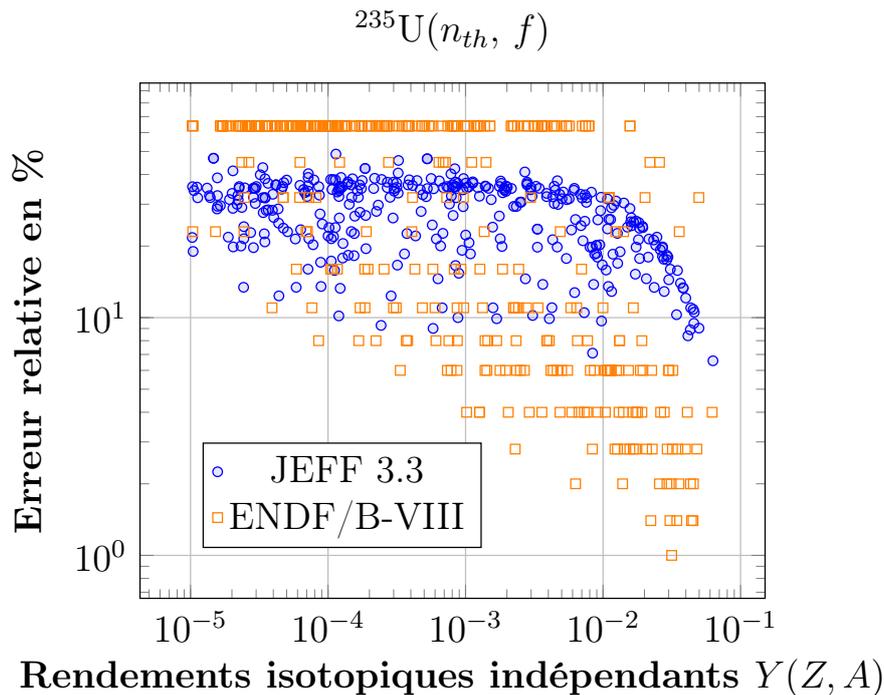


FIGURE 1.10 – Incertitudes relatives des rendements isotopiques indépendants pour la réaction  $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$  selon les deux bases de données JEFF3.3 et ENDF/B-VIII. Seuls les noyaux présents dans les deux bases de données et avec un rendement supérieur à  $10^{-5}$  sont tracés. On peut voir que les incertitudes relatives sont dans la majorité des cas supérieures à 10 %.

Des résultats des évaluations JEFF 3.3 et ENDF/B-VIII sont présentés dans la figure 1.9. Il s'agit des rendements isotopiques indépendants fournis par ces bases de données pour six éléments correspondant à des fragments que nous avons étudiés par la suite : krypton, strontium, zirconium, étain, tellure, xénon. On note que les deux bases de données sont en accord dans les barres d'erreurs pour la plupart des noyaux mais pas pour tous. Certains comme dans le xénon et l'étain présentent des différences non négligeables entre les deux évaluations. De plus les barres d'erreurs sont parfois très importantes surtout pour ENDF. C'est ce que la figure 1.10 illustre. A l'heure actuelle, les rendements de fission isotopiques  $Y(A, Z)$  pour la fission thermique de  $^{235}\text{U}$  présentent très souvent une incertitude relative importante supérieure à 10%. De nouvelles mesures plus précises sont donc toujours nécessaires.

## 1.3 La désexcitation des fragments de fission et le code FIFRELIN

FIFRELIN (FIssion FRagment Evaporation Leading to an Investigation of Nuclear data) est un code Monte-Carlo développé au laboratoire DEN/DER/SPRC/LEPH du CEA Cadarache [54]. Son objectif est de simuler le processus de fission et la désexcitation des fragments de fission pour les fissions induites par les neutrons et les fissions spontanées. Ce code permet de simuler diverses caractéristiques, par exemple : les spectres et les multiplicités des neutrons prompts et des rayons  $\gamma$ , les rendements post-neutrons, l'énergie libérée et les cascades de rayons  $\gamma$  dans les fragments de fission.

Dans cette thèse, nous avons comparés nos résultats obtenus expérimentalement avec des simulations FIFRELIN. De plus, nous avons également utilisé FIFRELIN pour estimer des corrections à apporter à nos données. Pour ces deux raisons nous avons besoin de décrire le code FIFRELIN et surtout les modèles implémentés qui décrivent le processus de fission et de désexcitation des noyaux.

La simulation de la fission et de la désexcitation nécessite d'implémenter un certain nombre de modèles. Je vais décrire ici les modèles qui sont utilisés dans les simulations FIFRELIN dans le cadre de cette thèse. A savoir, les modèles utilisés pour :

- La répartition d'énergie d'excitation entre les fragments de fission et leur distribution en spin.
- Le processus de désexcitation.
- Les densités de niveaux.

### 1.3.1 Répartition d'énergie d'excitation entre les fragments de fission

La quantité et la répartition de l'énergie d'excitation disponible entre les deux fragments conditionnent leur désexcitation. Dans FIFRELIN [54, 55], un modèle effectif, dépendant du rapport des températures des noyaux, pilote la répartition de l'énergie d'excitation.

Un bilan d'énergie du processus de fission permet d'obtenir l'énergie d'excitation totale (TXE) des deux fragments en fonction de la quantité d'énergie relâchée durant le processus de fission ( $Q$ , calculée dans FIFRELIN à partir des masses tabulées dans *Atomic Mass Evaluation AME2003* [56]), de l'énergie cinétique des fragments, de l'énergie du neutron incident ( $E_n$ ) et de l'énergie de liaison du neutron  $B_n$ . TKE est l'énergie cinétique totale des deux fragments. On a :

$$TXE = Q - TKE + E_n + B_n \quad (1.4)$$

Dans FIFRELIN, l'énergie d'excitation des deux fragments, lourd (H) et léger (L), est séparée entre énergie d'excitation intrinsèque ( $E_L^*$  et  $E_H^*$ ) et énergie rotationnelle ( $E_L^{rot}$  et  $E_H^{rot}$ ). On a donc :

$$E_L^* + E_H^* = TXE - E_L^{rot} - E_H^{rot} \quad (1.5)$$

L'énergie rotationnelle  $E^{rot}$  s'exprime, en considérant une goutte de liquide en rotation où  $J$  représente le moment angulaire total et  $I$  le moment d'inertie du noyau, comme :

$$E^{rot} = \frac{\hbar^2 J(J+1)}{2I} \quad (1.6)$$

Si on considère le noyau comme un gaz de Fermi, son énergie d'excitation intrinsèque peut s'écrire, avec une température  $T$  et le paramètre de densité de niveaux  $a$  :

$$E^* = aT^2 \quad (1.7)$$

FIFRELIN propose un modèle assez simple, basé sur un loi effective du rapport des températures ( $R_T = T_L/T_H$ ), dépendante à priori du système fissionnant et ajustée grâce aux données. Elle est illustrée à la figure 1.11. Cette loi comporte trois points d'ancrage reliés linéairement. Pour le premier, lorsque la fission est symétrique, le ratio est égal à un car les deux fragments identiques ont la même température. Ensuite, plus la température du fragment lourd diminue plus le ratio augmente jusqu'à atteindre un maximum correspondant au noyau sphérique et doublement magique de  ${}^{132}_{50}\text{Sn}$ . L'énergie d'excitation y est minimale. Enfin, la température du fragment léger diminue jusqu'à devenir inférieure à celle du fragment lourd en entraînant un ratio  $R_T(A)$  inférieur à un. En ce point c'est le fragment léger qui est quasi sphérique.

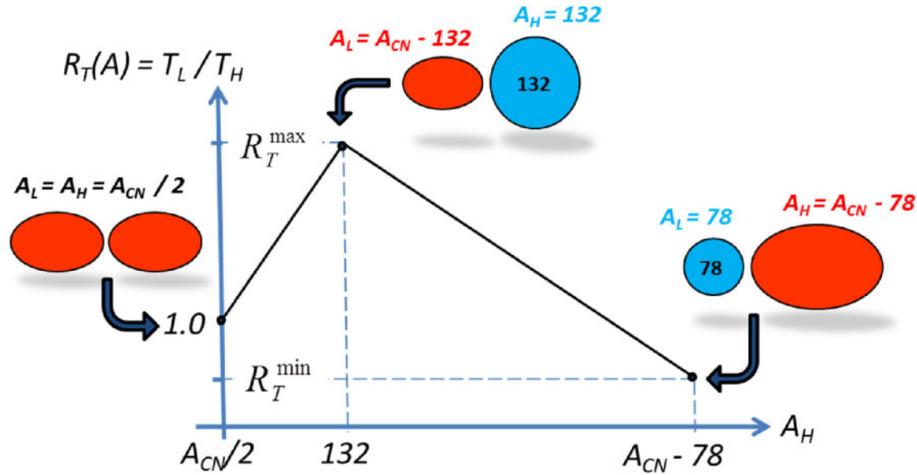


FIGURE 1.11 – Loi du rapport des températures  $R_T(A)$  [55]

Une procédure itérative permet finalement de déterminer l'énergie d'excitation à partir des équations :

$$\begin{cases} E_L^* = \frac{TXE - E^{rot}}{1 + \frac{a_H}{a_L R_T^2}} \\ E_H^* = \frac{TXE - E^{rot}}{1 + \frac{a_L R_T^2}{a_H}} \end{cases} \quad (1.8)$$

Ce modèle nécessite donc deux paramètres  $R_T^{min}$  et  $R_T^{max}$  qui sont deux paramètres libres à définir dans le fichier d'entrée d'une simulation FIFRELIN.

### 1.3.2 Processus de désexcitation des fragments

Dans FIFRELIN, le schéma des niveaux simulé est divisé en trois régions énergétiques comme représenté dans la figure 1.12. À basse énergie, le schéma de niveaux est expérimental et provient de la base de données RIPL-3. FIFRELIN récupère les données suivantes [55] : énergie du niveau, spin et parité, intensités des rayons gamma, demi-vies des niveaux et coefficients de conversion électroniques (ICC). Entre l'état fondamental et un seuil en énergie  $E_{cut-off}^{RIPL-3}$ , tous les niveaux proviennent de RIPL-3. Entre  $E_{cut-off}^{RIPL-3}$  et une énergie limite supérieure  $E_{bin}$ , les niveaux expérimentaux connus sont complétés avec des niveaux simulés. Ces derniers sont déterminés selon le modèle de densité de niveaux présenté dans le sous-section suivant 1.3.3. Au dessus de  $E_{bin}$ , il n'y a plus de niveaux discrets mais un continuum. L'émission gamma est traitée par le biais de largeurs de rayonnement partielles et d'intensités expérimentales à faible énergie, tandis que l'émission de neutrons est prise en compte par le biais de coefficients de transmission de neutrons tabulés. La compétition neutron / gamma est explicitement prise en compte dès le début de la cascade. Cela permet de simuler l'émission de rayons gamma avant la fin de la cascade de neutrons.

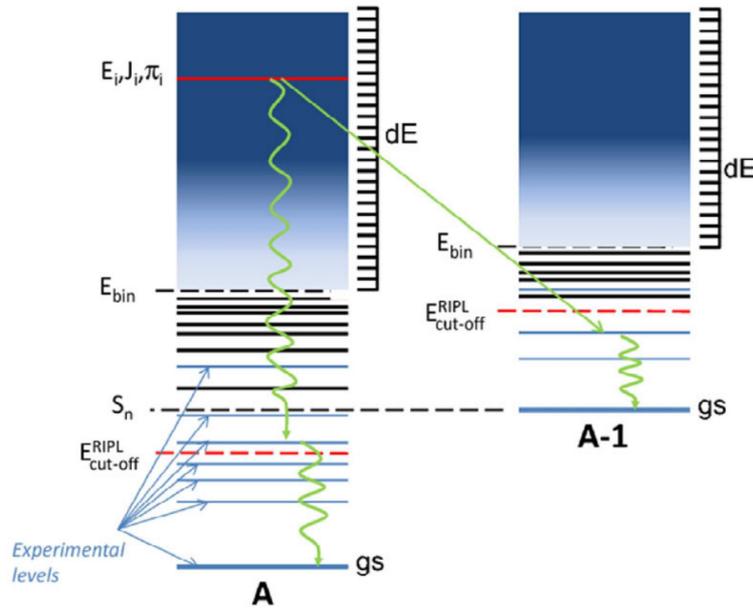


FIGURE 1.12 – Schéma du modèle utilisé pour illustrer la désexcitation neutron/gamma des fragments de fission [55]

La région d'entrée en terme de spin et énergie d'excitation des fragments primaires est elle-même pilotée selon un modèle BSFG (*Back-Shifted Fermi Gas*). Ce modèle nécessite de définir deux paramètres de *scaling factor*, un pour les fragments légers, l'autre pour les lourds, qui sont deux autres paramètres libres des simulations FIFRELIN.

### 1.3.3 Densités de niveaux

Plusieurs modèles de densité de niveaux sont implémentés dans FIFRELIN. Je présente ici celui utilisé dans le cadre de ma thèse. Il s'agit du *Composite Gilbert-Cameron Model (CGCM)* proposé dans RIPL-3, tous les détails sont en [57]. Il s'agit basiquement d'une combinaison d'un modèle de température constante avec un modèle de gaz de Fermi.

$$\rho_{CGCM}(E) = \begin{cases} \rho_{CTM}(E) \text{ pour } E \leq E_M \\ \rho_F(E) \text{ pour } E \geq E_M \end{cases} . \quad (1.9)$$

Dans l'équation 1.9, le paramètre le plus important est le *matching energy*  $E_M$ . Elle est déterminée en imposant la continuité de la fonction de densité de niveau et de sa dérivée première. Une autre condition est basée sur le schéma de niveau évalué à partir de la base de données RIPL-3. Dans la gamme d'énergie restreinte où le schéma des niveaux est entièrement connu, les niveaux prédits par le modèle à température constante doivent être cohérents avec les niveaux discrets expérimentaux de la base de données RIPL-3. Ensuite, grâce à la combinaison de ces conditions,  $E_M$  peut être obtenu de manière itérative. Dans FIFRELIN, la méthode précise pour le calculer est expliquée dans la référence suivante [58].

### 1.3.4 Prédictions de FIFRELIN pour la fission thermique de $^{235}\text{U}$

Les résultats des simulations FIFRELIN seront largement utilisés dans le cadre de ma thèse, notamment pour estimer les corrections à apporter lors de l'analyse des données de FIPPS. Il nous a donc paru pertinent de présenter quelques résultats de FIFRELIN pour la fission thermique de  $^{235}\text{U}$  afin montrer son pouvoir prédictif sur des données bien mesurées ou déjà évaluées : les multiplicités neutrons et gamma en fonction de la masse des fragments, les rendements en masse (après évaporation neutron) et quelques rendements isotopiques indépendants.

Les résultats présentés proviennent d'une simulation de 10 millions de fissions utilisant les modèles et les paramètres libres résumés dans le tableau 1.1. Ces paramètres sont ceux qui seront utilisés pour toutes les simulations FIFRELIN effectuées dans le chapitre 5, sauf indications locales contraires.

Modèle	Modèle utilisé
Désexcitation des fragments	BSFG
Densité de niveaux	CGCM
Fonction force gamma	EGLO
Paramètre libre	Valeur utilisée
$R_T^{min}$	0.90
$R_T^{max}$	1.25
Scaling factor frag. léger	1.7
Scaling factor frag. lourd	1.7

TABLE 1.1 – Modèles et paramètres libres implémentés dans les simulations FIFRELIN utilisées dans le cadre de ma thèse (sauf indications contraires).

La distribution de la multiplicité neutrons moyenne en fonction de la masse du fragment, prédite par FIFRELIN, est présentée à la figure 1.13. Elle est comparée aux résultats expérimentaux de Maslin [59], Nishio [60] et Vorobyev [61]. On remarque dans un premier temps que FIFRELIN reproduit correctement la courbe en dents de scie typique de la multiplicité neutron pour la fission avec un maximum pour la masse  $A = 118$  et un minimum pour  $A = 132$ . Ces deux extrema sont néanmoins légèrement décalés par rapport aux données, le minimum semble plutôt varier entre 126 et 130. Le modèle de répartition de l'énergie d'excitation implémenté dans FIFRELIN semble donc reproduire globalement bien les données. On note dans un second temps que FIFRELIN reproduit également assez bien les multiplicités pour chaque masse sans être cependant compatible avec toutes les données. Dans cette figure et la suivante, je n'ai pas appliqué de convolution sur les masses permettant de simuler la résolution en masse expérimentale sur les résultats de FIFRELIN.

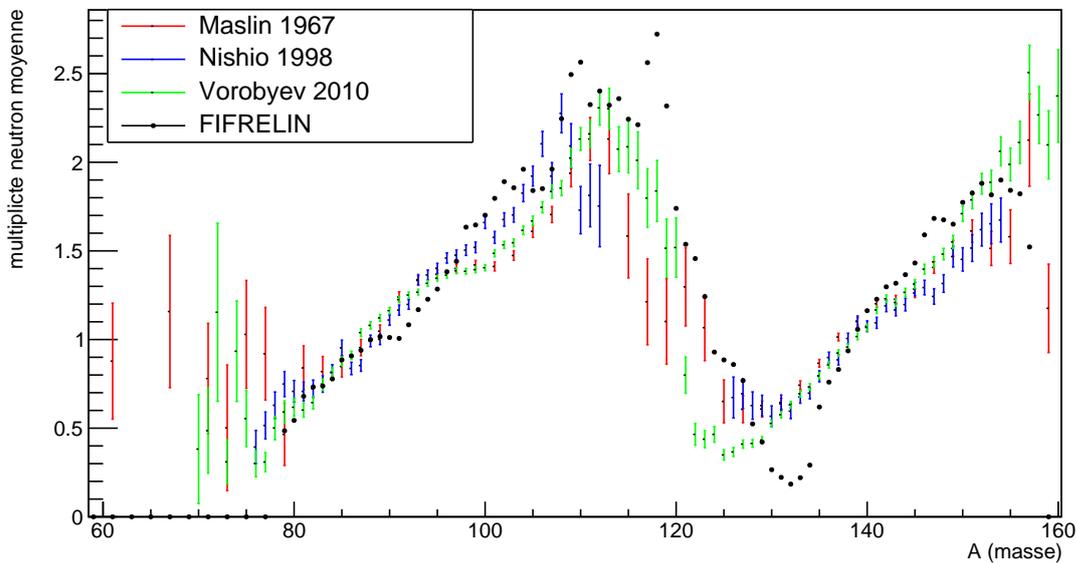


FIGURE 1.13 – Multiplicité des neutrons prompts pré-évaporation en fonction du nombre de masse des fragments pour la fission thermique de  $^{235}\text{U}$  [61]; [59]; [60]

La distribution de la multiplicité moyenne des gamma prompts en fonction de la masse, prédite FIFRELIN, est comparée aux données de Pleasonton [62] à la figure 1.14. L'allure générale donnée par FIFRELIN est similaire à celle des résultats expérimentaux mais on note qu'en général FIFRELIN surestime la multiplicité gamma. En ce qui concerne les rendements en masse, qui sont présentés à la figure 1.15, FIFRELIN les reproduit globalement correctement. On note cependant que pour les masses légères ( $80 < A < 90$ ), FIFRELIN est systématiquement légèrement en dessous aux rendements des évaluations JEFF3.3 ou ENDF/B-VIII. On voit également que cette simulation de FIFRELIN prédit des rendements plus importants que les bases de données autour des masses 95 et 140.

Si on trace les rendements indépendants pour trois isotopes différents, le krypton, le strontium et le zirconium, ce qui est illustré à la figure 1.16. On remarque que la forme générale de FIFRELIN est

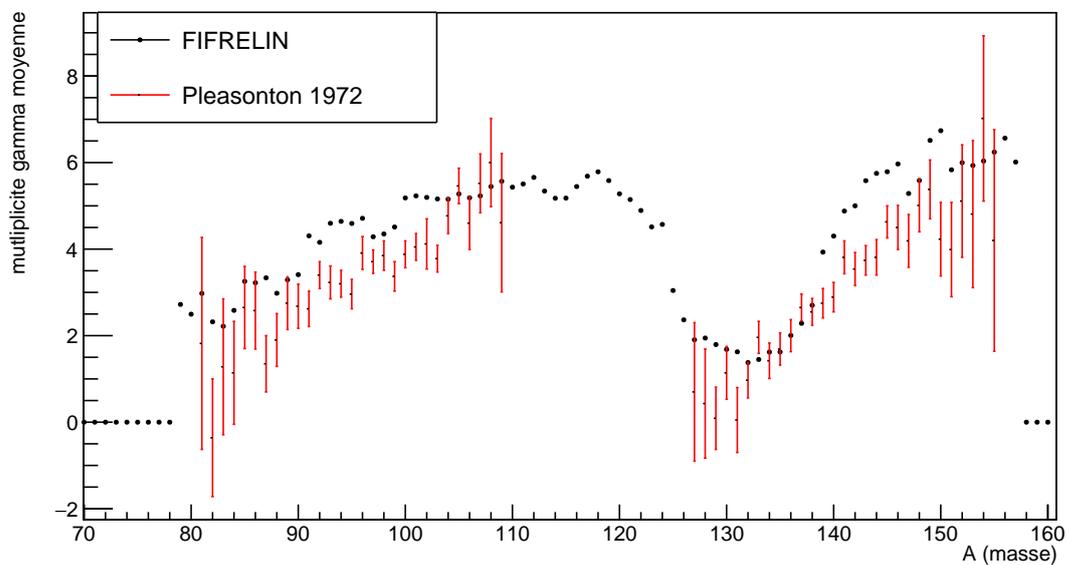


FIGURE 1.14 – Multiplicité moyenne des gamma prompts pré-évaporation en fonction du nombre de masse des fragments pour la fission thermique de l' $^{235}\text{U}$ , pour un seuil en énergie fixé à 100 keV [62].

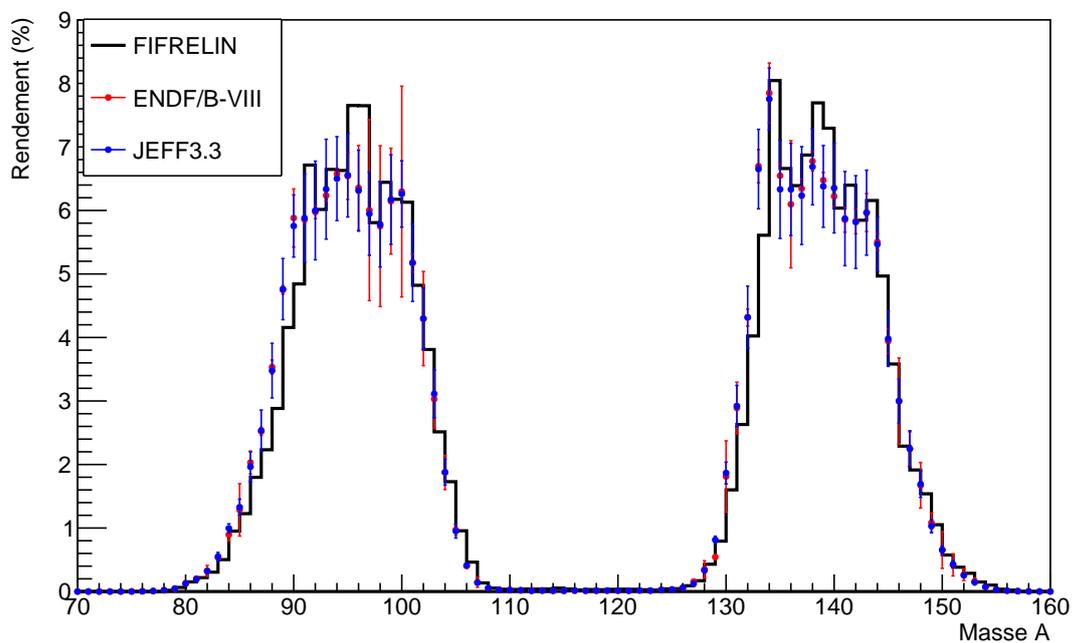


FIGURE 1.15 – Rendement de masse après évaporation neutron de FIFRELIN comparé aux évaluations JEFF3.3 et ENDF/B-VIII.

satisfaisante par rapports aux bases de données. Cependant, dans le cas de certaines masses précises, il y a des différences non négligeables. Pour le krypton par exemple, les rendements prédits par FIFRELIN pour les masses 88 à 91 sont largement supérieurs ou inférieurs à ceux des bases de données. C'est également le cas du  $^{95}\text{Sr}$  et pour le zirconium pour la masse  $^{101}\text{Zr}$ . Ces différences nous indiquent que, même si FIFRELIN reproduit globalement bien les rendements, des incohérences peuvent exister pour des noyaux précis.

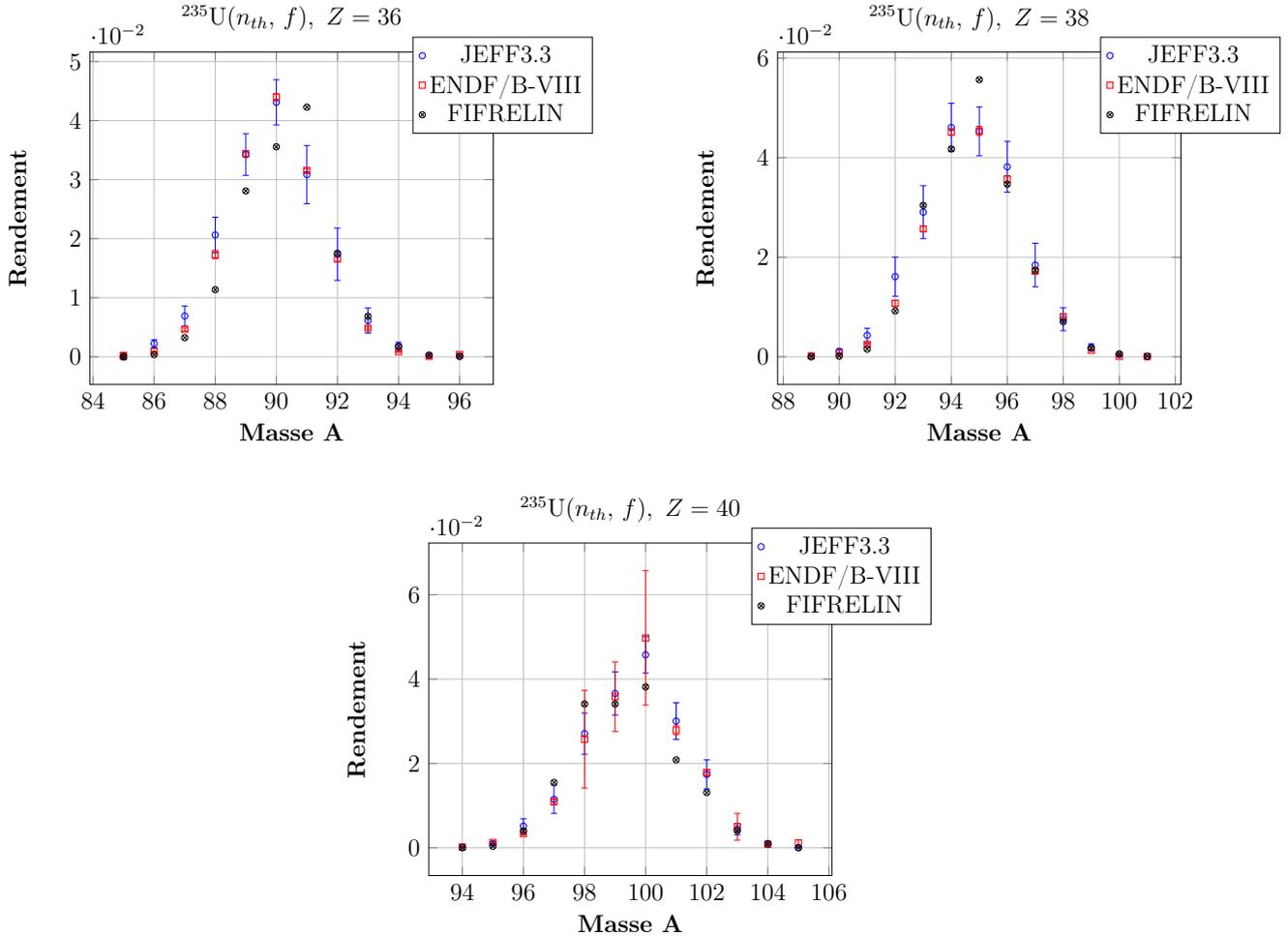


FIGURE 1.16 – Comparaison des rendements indépendants des isotopes de krypton, strontium et zirconium pour la fission thermique de l' $^{235}\text{U}$  prédits par FIFRELIN et tabulés dans les évaluations JEFF3.3 et ENDF/B-VIII.

## 1.4 Objectifs de la thèse

A ce stade, il est désormais possible de présenter l'objectif. L'objectif est donc d'évaluer la méthode de spectrométrie gamma pour mesurer les rendements isotopiques indépendants pour la réaction  $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$  avec les données mesurées sur le spectromètre FIPPS. Il s'agit d'un instrument faisant interagir un flux de neutron avec une cible active  $^{235}\text{U}$ . FIPPS sera présenté en détail dans le chapitre 2 et caractérisé dans le chapitre 4. Les données issues de cet instrument et la méthode de spectrométrie gamma présentent plusieurs avantages a priori. Tout d'abord, la possibilité d'accéder aux rendements isotopiques des fragments lourds ( $Z > 42$ ) ce qui est compliqué à mettre en œuvre avec Lohengrin. Ensuite, la présence de la cible active qui permet d'effectuer une normalisation absolue. Enfin, la confirmation ou l'infirmité d'anomalies dans les rendements déjà mesurés. Je vais détailler maintenant cette dernière possibilité avec un exemple concret.

En 2017, des mesures de rendements isotopiques indépendants ont été réalisées avec une technique de spectrométrie gamma dans le cadre de la fission rapide du  $^{238}\text{U}$  à l'IPN (Institut de physique nucléaire) d'Orsay [63] avec le spectromètre MINIBALL [64] et la source LICORNE [65]. Les résultats sont présentés dans la figure 1.17. Il s'agit des rendements de charge mesurés pour les isotopes pairs- $Z$  produits dans la réaction à neutrons rapides de  $^{238}\text{U}$ , comparés aux bibliothèques JEFF3.1.1 et ENDF.B7v1 et au code GEF. On note que les rendements pour la plupart des charges  $Z$  sont cohérents avec les bases de données et la simulation. A l'exception de la charge  $Z=50$ , comprenant le noyau de  $^{132}\text{Sn}$ , et de son complémentaire  $Z=42$  où des différences de 500% à 600% sont observées.

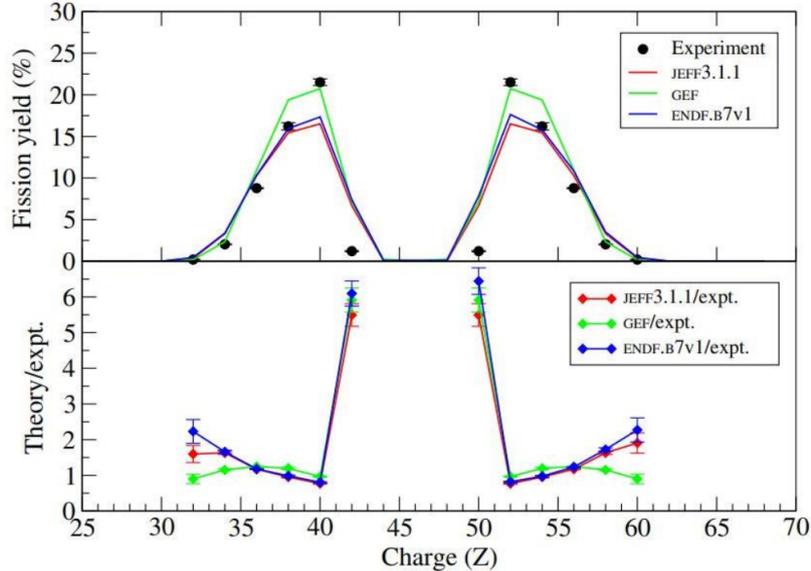


FIGURE 1.17 – Rendements des isotopes pairs en  $Z$  produits dans la fission rapides de l' $^{238}\text{U}$ , mesurés sur Licorne et comparés aux bibliothèques JEFF3.1.1 et ENDF.B7v1 et au code GEF [66].

A la suite de la publication de ces résultats, des mesures ont été effectuées dans d'autres laboratoires [67, 68, 69] sur les rendements de l'étain. Les résultats sont résumés dans la figure 1.18, tirée de [69], où les différentes mesures de rendements sont comparées entre elles et à une simulation GEF. On

s'intéresse au rendement de l' $^{132}\text{Sn}$  pour la fission du noyau composé d' $^{239}\text{U}$ . On remarque que les mesures effectuées par spectrométrie gamma, celles sur LICORNE (triangle vert) et celles sur GEANIE (carré rouge), présentent toutes les deux un résultat largement inférieur à la prédiction de GEF alors que la mesure isotopique directe au GANIL (cercle noir) est plus cohérente. Il y a donc une anomalie dans ce type de mesure qui reste à comprendre. Dans le cadre de cette thèse, nous allons vérifier si le rendement isotopique indépendant du  $^{132}\text{Sn}$  pour la réaction  $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$  présente également une anomalie et tenter d'apporter une explication satisfaisante.

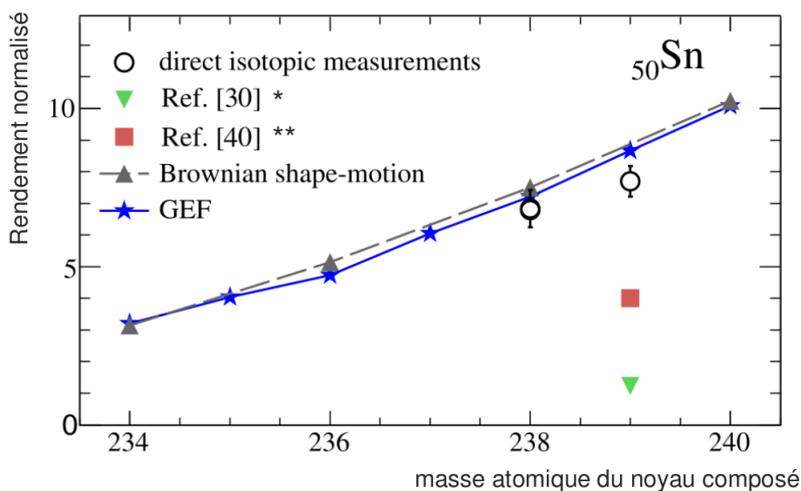


FIGURE 1.18 – Evolution des rendements du Sn en fonction de la masse atomique du système de fission pour la chaîne isotopique de l'uranium. La figure est tirée de [69]. Les données avec un triangle vert correspondent aux résultats provenant de LICORNE [63] en 2017. Celles avec un carré rouge au spectromètre GEANIE [67] de l'installation LANSCE WNR [70] et détaillées dans la référence suivante [68]. Celles avec un cercle noir aux mesures isotopiques directes effectuées au GANIL en 2019 et publiées dans [69]



# Chapitre 2

## La campagne expérimentale sur le spectromètre FIPPS de l'ILL avec la première cible active d'U-235

L'idée du spectromètre a été proposée par H. Faust à l'assemblée des utilisateurs de l'ILL en septembre 2010 [71]. Le développement de l'instrument FIPPS répondait à deux considérations : sélectionner et examiner par spectroscopie  $\gamma$  des noyaux rares ou exotiques et étudier le processus de fission. Ce chapitre a pour objectif de présenter le spectromètre FIPPS et ses différents composants ainsi que le déroulé de la campagne de mesure.

### 2.1 L'Institut Laue-Langevin

L'Institut Laue-Langevin (ILL), basé à Grenoble en France, est un centre de recherche international spécialisé dans l'étude de la matière à l'échelle atomique et moléculaire en utilisant la diffusion des neutrons. Fondé en 1967, cet institut est la source de neutrons, pour la recherche, la plus intense au monde, et il reste aujourd'hui l'un des principaux centres de recherche de ce genre.

Au cœur de l'ILL est installé un réacteur nucléaire à haut flux de neutrons, générant des faisceaux de neutrons de haute qualité dédiés à la recherche scientifique. Les chercheurs exploitent ces faisceaux de neutrons pour mener des investigations sur un large éventail de domaines scientifiques, tels que la physique de la matière condensée, la science des matériaux, la biologie moléculaire, la chimie, la physique des polymères, la géologie, et les sciences des polymères [72].

L'ILL fonctionne en tant d'organisme de recherche à but non lucratif, financé par les gouvernements de ses pays membres et géré conjointement par trois pays associés : la France (via le CEA et le CNRS), l'Allemagne et le Royaume-Uni [72].

Son réacteur, le Réacteur à Haut Flux, opère de manière continue durant des cycles de 50 jours. Son cœur est composé d'un élément combustible unique contenant de l'uranium très enrichi, refroidi à l'eau lourde, ce qui lui permet de générer le flux de neutrons le plus intense du monde, à hauteur de  $1,5 \times 10^{15}$  n, s<sup>-1</sup> cm<sup>-2</sup>. La puissance thermique de ce réacteur atteint 58 MW, et cette chaleur est évacuée par un circuit secondaire alimenté par eau. Pour assurer une protection contre les rayonnements

neutrons et gamma émis par le cœur, celui-ci est placé dans une cuve remplie d'eau lourde, elle-même immergée dans une piscine d'eau déminéralisée. Le pilotage du réacteur s'effectue au moyen d'une barre absorbante de neutrons, dont l'extraction est régulée en fonction de la consommation d'uranium. Par ailleurs, le réacteur est équipé de cinq barres de sécurité, également absorbantes de neutrons, qui assurent la fonction d'arrêt d'urgence. Les neutrons produits par la réaction de fission au sein du réacteur sont finalement utilisés pour alimenter les dispositifs expérimentaux [72].

Trois dispositifs situés à proximité immédiate du cœur permettent également de produire des neutrons chauds (10 km/s) ainsi que les neutrons froids et ultra-froids (700 m/s et 10 m/s) : il s'agit d'une part de la source chaude, constituée d'une sphère de graphite maintenue à 2600°C et de deux sources froides, dont la plus importante est constituée d'une sphère contenant 20 litres de Deutérium maintenue à l'état liquide à -248°C dans laquelle les neutrons, par une succession de collisions avec les atomes de deutérium sont ralentis à l'énergie recherchée. Les neutrons sont alors prélevés au sein de la cuve par une vingtaine de canaux, dont certains pointent sur l'une des sources froides ou chaudes. Ces canaux, prolongés éventuellement par des guides de neutrons alimentent ensuite une quarantaine d'aires expérimentales.

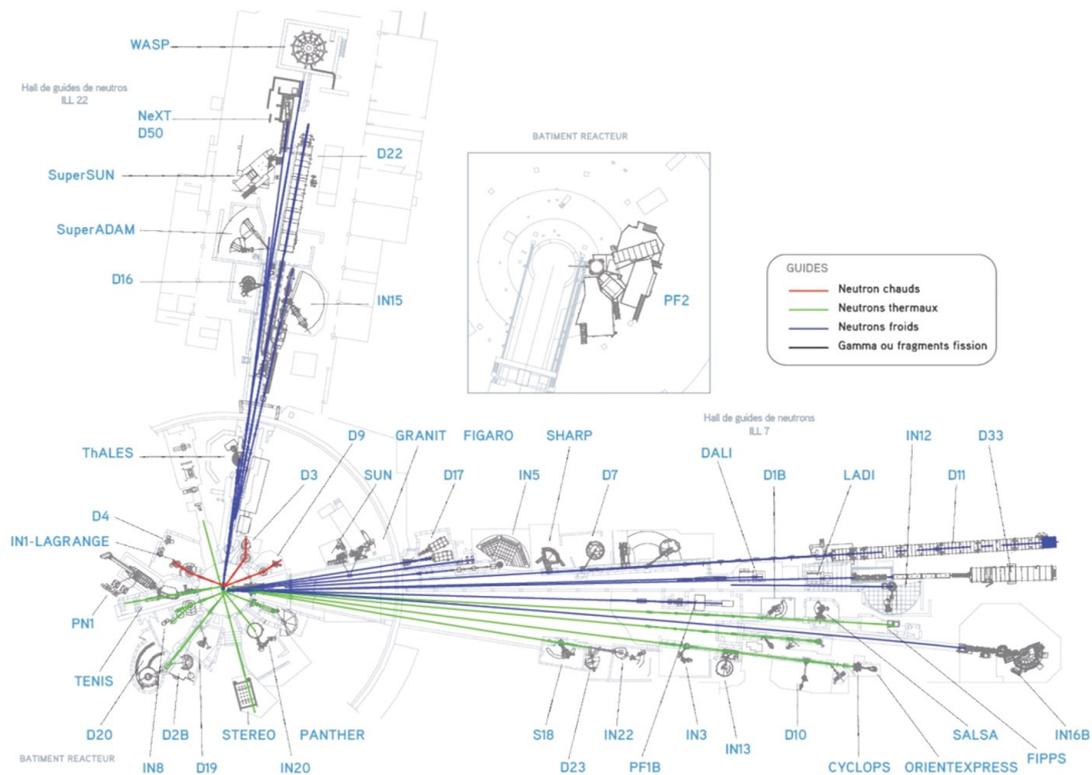


FIGURE 2.1 – Plan de l'Institut Laue-Langevin avec le réacteur à haut flux et les différents instruments. Le spectromètre FIPPS est situé à la fin du guide de neutron thermique H22. L'instrument ExILL était situé à l'emplacement de l'actuel PF1B à la fin d'un guide de neutrons froids [72].

## 2.2 Le spectromètre FIPPS

FIPPS (FISSION Product Prompt gamma ray Spectrometer) est un instrument installé à l'extrémité du guide de neutrons thermiques H22 et d'une série de collimateurs réduisant le faisceau de neutrons à un mince crayon de 1.5 cm de diamètre [73]. Le flux de neutrons est d'environ  $10^8 \text{ ns}^{-1} \text{ cm}^{-2}$  au niveau de la cible. Le spectromètre est composé de huit détecteurs clover appartenant à l'ILL - que l'on dénommera par la suite les clovers FIPPS - et de huit détecteurs clover prêtés par l'Institut National Horia Hulubei (IFIN-HH, Bucarest, Roumanie) - que l'on dénommera par la suite les clovers IFIN. Un détecteur clover est un assemblage de quatre cristaux de germanium de haute pureté (HPGe) dans un cryostat unique, refroidi à l'azote liquide. Ces détecteurs ont une bonne résolution en énergie avec une FWHM (*Full Width at Half Maximum*) de l'ordre de 2.3 keV à 1.3 MeV.

Plusieurs campagnes de mesures ont été réalisées sur le spectromètre FIPPS, avec des cibles stables et des cibles fissiles. Les données analysées dans le cadre de ma thèse de doctorat correspondent au cycle 183 du réacteur de l'ILL avec une cible active d' $^{235}\text{U}$  et une durée de 35 jours. La quantité d' $^{235}\text{U}$  contenue dans la cible active est difficile à évaluer car la proportion d' $^{235}\text{U}$  dans le liquide scintillant était mal chiffrée et le volume exact de liquide injecté dans la cible difficile à estimer suite à l'apparition d'une bulle d'air lors de l'injection. De ce fait, le taux de fission est évalué à partir de taux de comptage dans la cible active, ici environ  $10^4$  fissions par seconde.

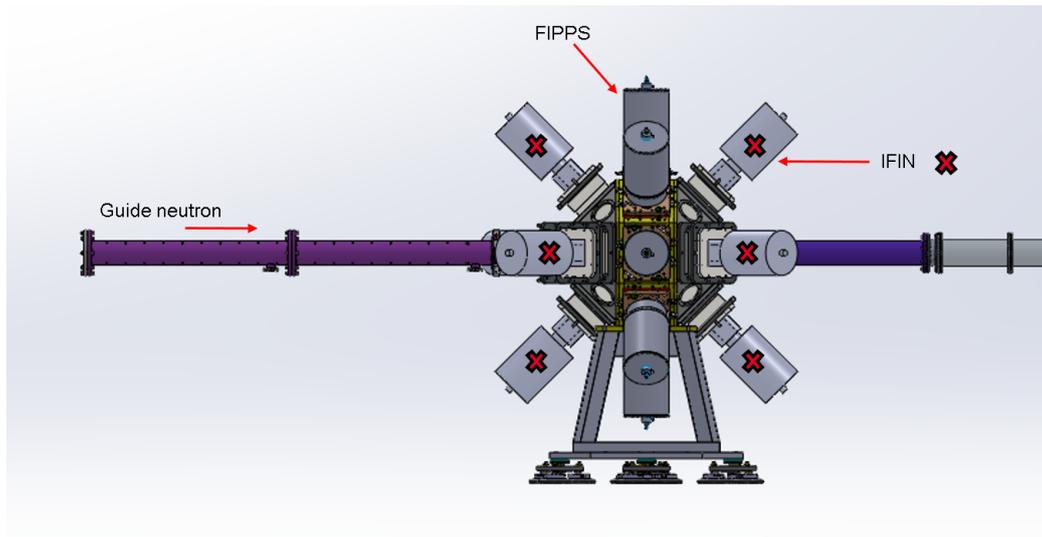


FIGURE 2.2 – Modèle en 3 dimensions de l'instrument FIPPS, avec le faisceau de neutrons entrant. Les huit clovers IFIN sont notés avec une croix rouge, les 8 autres sont les clover FIPPS répartis symétriquement en anneau autour de la cible [74].

### 2.2.1 Le faisceau de neutrons

Le guide H22 transporte un faisceau de neutrons thermiques depuis le réacteur et dessert trois instruments : le diffractomètre à deux axes D1B, l'imageur de contrainte SALSA et le spectromètre

gamma FIPPS. Le flux de neutrons arrivant sur FIPPS peut donc fluctuer selon les expériences en cours sur D1B et SALSA car une partie des neutrons est prélevé à l'aide de monochromateurs pour alimenter ces dispositifs. Le guide H22 se termine quelques mètres avant le spectromètre FIPPS et les neutrons traversent un tube sous vide dans lequel une succession d'ouvertures en carbure de bore réduit le faisceau initial de dimension  $30 \times 50 \text{ mm}^2$  et de flux égale à  $7 \times 10^8 \text{ n s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$  en un mince pinceau de 1.5 cm de diamètre et de flux  $1 \times 10^8 \text{ n s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$  [73].

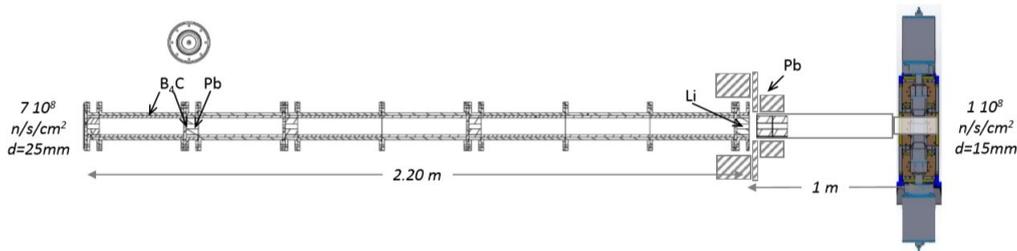


FIGURE 2.3 – Représentation schématique du faisceau de neutrons en entré de l'instrument FIPPS.

Autour de ces ouvertures, des absorbeurs en plomb de 5 cm d'épaisseur ont été disposés pour diminuer le bruit de fond gamma. Le tube est également tapissé de plastique boré de 1 cm d'épaisseur pour absorber les neutrons diffusés.

## 2.2.2 Les détecteurs

Le spectromètre gamma est composé de 16 clovers. Les clovers FIPPS sont répartis symétriquement en anneau à environ 9 cm de la cible active et à 90 degrés par rapport à la direction du faisceau. Les clovers IFIN sont disposés symétriquement par rapport à l'anneau de clover FIPPS, quatre à gauche et quatre à droite, à environ 13.5 cm de distance de la cible active. L'ensemble est illustré sur la figure 2.4. Les cristaux des clovers FIPPS sont légèrement plus grands que ceux des clovers IFIN. Les cristaux de FIPPS sont approximativement des cylindres tronqués de 50 mm de diamètre et 80 mm de longueur tandis que les cristaux de IFIN sont approximativement des cylindres tronqués de 40.1 mm de diamètre et 70 mm de longueur [73].

L'éloignement plus important des clovers IFIN du centre du dispositif a permis d'installer autour de ces derniers des boucliers anti-Compton, composés de détecteurs BGO. Ils ont pour utilité de détecter les rayons gamma effectuant une diffusion Compton au sein d'un clover et donc de les soustraire des gamma prompts de fission lors de l'analyse pour diminuer le bruit de fond. Cependant, nous avons décidé de ne pas les prendre en compte dans notre analyse car il n'y a pas de collimateur entre la cible et les boucliers anti-Compton. En effet, lorsqu'il y a un gamma détecté dans un clover et un autre dans le BGO de ce clover il y a deux possibilités. Si le gamma détecté dans le BGO provient d'une diffusion Compton sur le clover alors il est pertinent de l'éliminer pour nettoyer nos données car c'est un évènement de bruit de fond. Par contre, si ce sont deux gamma provenant directement de la cible on perd un gamma dans le clover sans nettoyer nos données.

Il est important de préciser que durant la campagne de prise de données, l'un des clover IFIN a été retiré pendant une longue période car trop bruité à cause d'un courant inverse trop important. Il

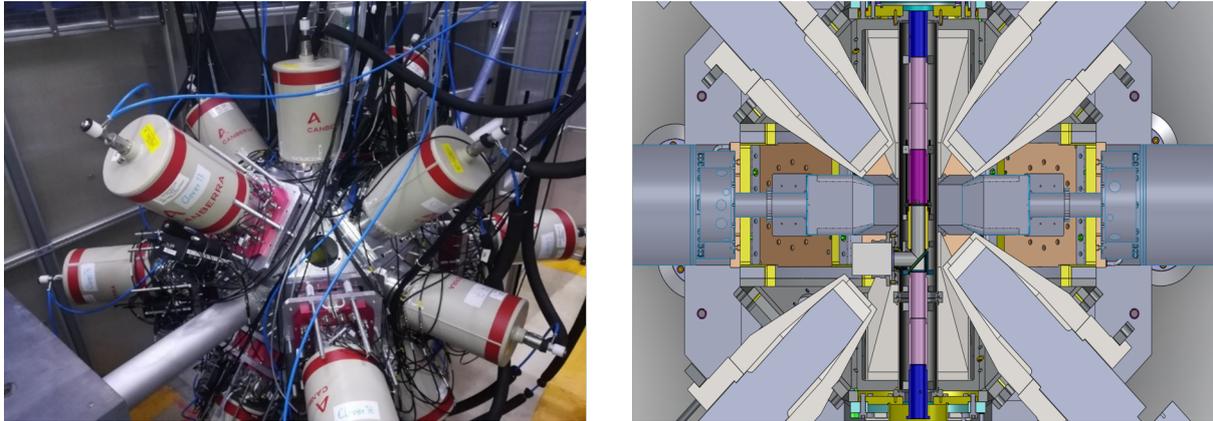


FIGURE 2.4 – A gauche, une photographie de l'instrument FIPPS montrant l'arrangement des détecteurs FIPPS et IFIN autour de la cible. A droite, une coupe dans la modélisation en 3D du dispositif montrant la cible active au centre entourée de détecteurs [74].

a été réinstallé, mais après plusieurs jours. Pour nous affranchir des problèmes engendrés nous avons donc décidé de supprimer ce clover pour l'analyse. Pour toute la suite, nous considérons donc FIPPS comme un spectromètre comportant 15 clovers (60 cristaux HPGe) et non pas 16 (64).

### 2.2.3 La cible active

Le faisceau de neutrons est dirigé sur une cible d' $^{235}\text{U}$ . Le processus de fission engendre des gamma prompts mais également un grand nombre de gamma retardés provenant de la désintégration bêta des produits de fissions. Or, dans le cadre des études du processus de fission, ces gamma retardés sont à l'origine d'un important bruit de fond venant polluer nos données. Pour s'en affranchir, une cible spécifique dite "cible active" a été fabriquée [75]. Elle consiste en  $650\ \mu\text{g}$  d' $^{235}\text{U}$  sous forme d' $\text{UO}_2$  diluée dans  $370\ \mu\text{l}$  de liquide scintillant composé de [76] :

- Toluène deutéré ( $\text{C}_7\text{D}_8$ ) comme solvant.
- Naphtalène deutéré ( $\text{C}_{10}\text{D}_8$ ) pour l'optimisation de la PSD.
- PBBO (2-(4-Biphénylyl)-6-phényl-1,3-benzoxazole).
- (HDEHP Hydrogénophosphate de bis(2-éthylhexyle)).

Le dispositif de la cible active est illustré à la figure 2.5. Les différents éléments sont :

1. Supports et vis en aluminium.
2. Fenêtre en saphir( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) d'une épaisseur de 0.2 mm.
3. Cadre en PTFE (polytétrafluoroéthylène) de 0.5 mm d'épaisseur.
4. Support centrale en PTFE de 0.2 mm d'épaisseur avec feuille de mylar aluminisée.
5. Fenêtre en saphir( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) d'une épaisseur de 0.2 mm.
6. Cadre en PTFE de 012 mm d'épaisseur.

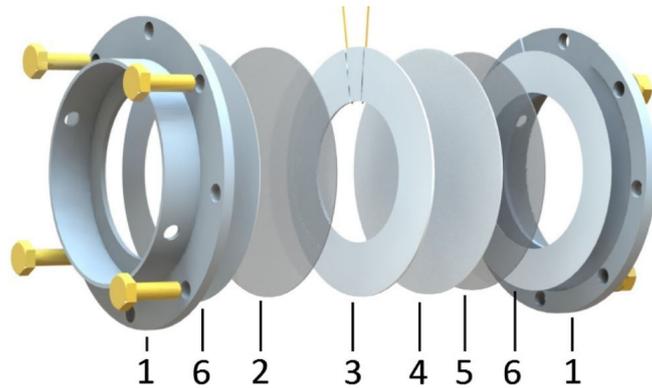


FIGURE 2.5 – Coupe dans la modélisation en 3D du dispositif de la cible active [76].

Le choix de fenêtres en saphir s'explique par la combinaison de la bonne stabilité mécanique du saphir et de sa bonne transmission de lumière. L'ensemble a été choisi pour que le scintillateur soit légèrement plus grand que le diamètre du faisceau de neutrons afin d'éviter au maximum que ce dernier ne croise les matériaux de support (aluminium, PTFE).

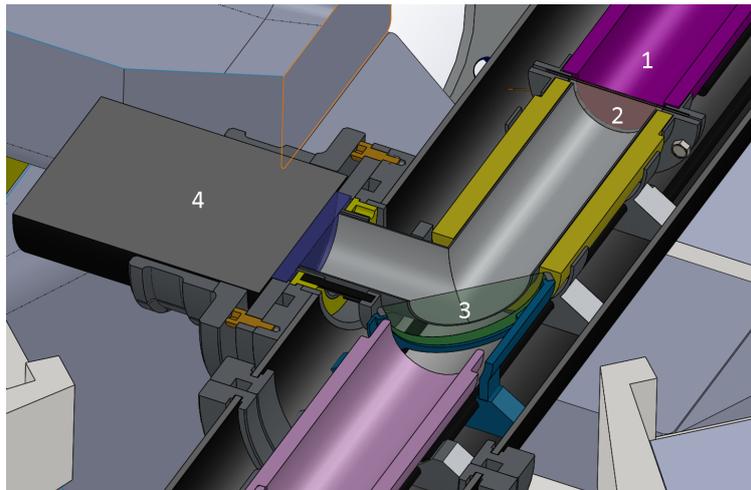


FIGURE 2.6 – Coupe schématisée de la cible active. Avec le faisceau de neutrons incident (1), la cible active (2), un miroir réfléchissant (3) et le photomultiplicateur (4).

La cible s'insère dans le dispositif tel que présenté dans la figure 2.6. Les neutrons du faisceau interagissent avec l'uranium de la cible et enclenchent le processus de fission. Les fragments de fission produits sont alors arrêtés dans le liquide scintillant, ce dernier générant une grande quantité de lumière. Celle-ci est ensuite guidée à travers un tube tapissé d'un film réfléchissant de VM2000 et un miroir jusqu'à un photomultiplicateur. La production de lumière par le liquide scintillant suite au ralentissement des fragments de fission est bien plus importante que celle générées lors de l'arrêt des électrons provenant des désintégrations bêta. Cette différence nous permet de *tagger* les événements de fission et donc de discriminer les gamma prompts des gamma retardés. C'est ce qui fait une grande

différence avec par exemple l'expérience ExILL précédente [77]. Cette discrimination des évènements de fission est illustré à la figure 2.7 sur le spectre du photomultiplicateur.

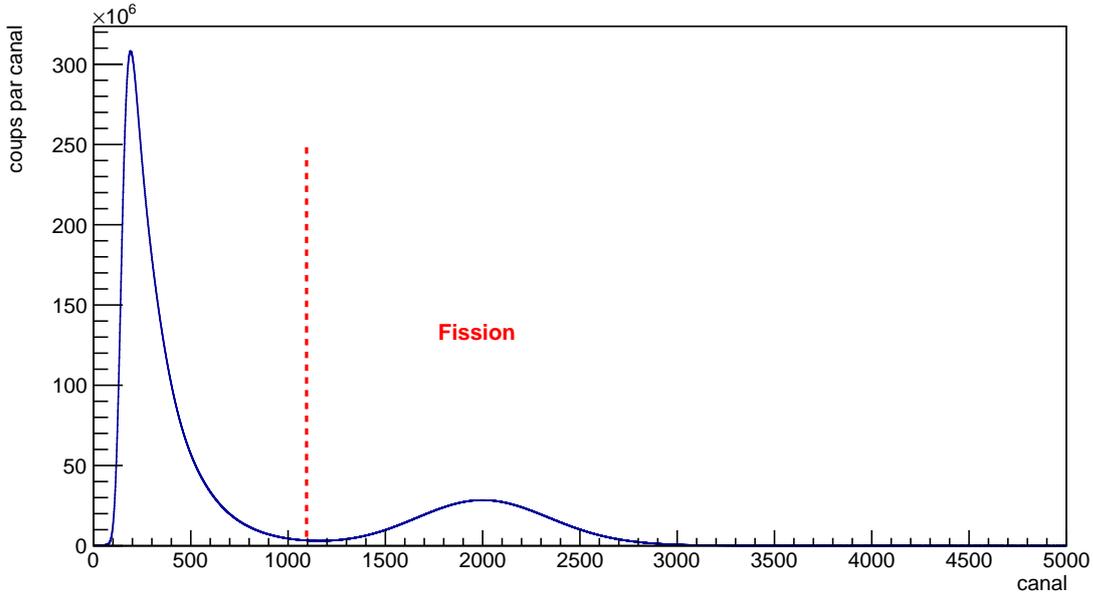


FIGURE 2.7 – Allure du spectre du photomultiplicateur avec le nombre de coups en fonction des canaux. On distingue deux grandes zones séparées par les pointillés en rouge : une zone correspondant aux évènements de fission à droite et une autre correspondant essentiellement aux désintégrations bêta.

A partir des données du photomultiplicateur, on peut mieux différencier les différentes particules détectées à l'aide de la PSD (*Pulse Shape Discrimination*). La PSD peut être calculée avec la méthode de comparaison de charges. Elle se définit comme le rapport de la différence entre les composantes totale  $Q_{tot}$  et lente  $Q_{short}$  du signal avec la composante totale :  $PSD = (Q_{tot} - Q_{short}) / Q_{tot}$ .

Le principal intérêt de la PSD est dans notre cas de visualiser trois principales zones bien définies illustrées à la figure 2.8 :

1. une région associée aux fissions binaires.
2. une région associée aux désintégrations bêta de  $^{28}\text{Al}$  ou des produits de fission.
3. une région peu intense associée aux fissions ternaires.

Tout le reste correspond à des évènements de *pile-up* à l'exception de la partie en dessous des zones 2 et 1 qui correspond à des intégrations incomplètes des *pulses* des évènements de fissions. La PSD nous permet d'illustrer le bon fonctionnement de la cible active qui parvient à discriminer les évènements provenant de la fission de tous les autres.

Au vu de la figure 2.8 présentant la PSD, il serait possible de sélectionner plus proprement les évènements de fission en effectuant une coupure en deux dimensions de la zone 1. En pratique cependant,

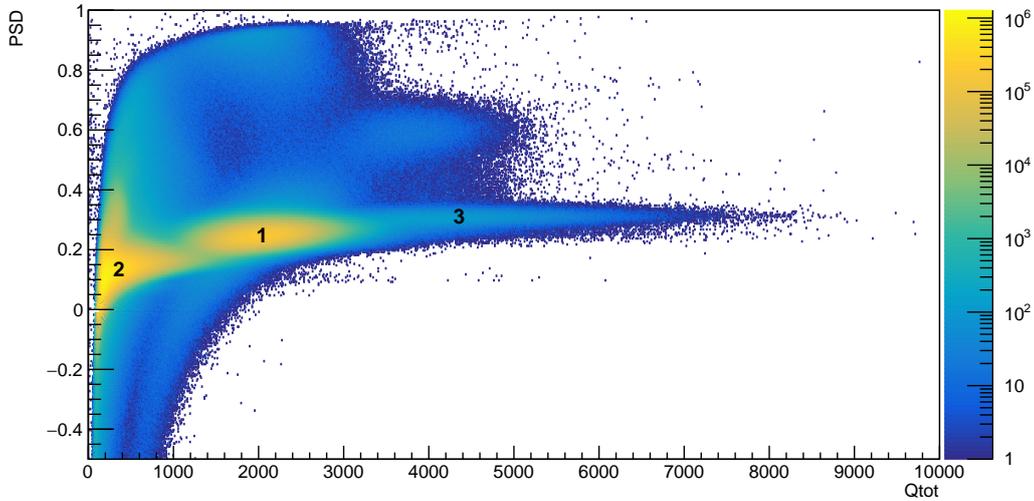


FIGURE 2.8 – La PSD en fonction de la charge totale détectée dans la cible active. Chaque région correspond à des évènements différents.

cette opération de discrimination utilisant la PSD a peu d'impact sur nos analyses. En effet, l'avantage d'effectuer une coupure en 2D à l'aide de la PSD, par rapport à une coupure simple dans le spectre en 1D, serait d'enlever des évènements provenant de la queue de la zone 2. Ces évènements correspondent en majorité à des désintégrations bêta de l' $^{28}\text{Al}$  mais aussi à des désintégrations beta des produits de fission. La désintégration beta de l' $^{28}\text{Al}$  s'accompagne de l'émission d'un gamma unique à 1178.9 keV qui disparaît donc, en principe, dans les matrices de coïncidence  $\gamma\gamma$  et les cubes de coïncidence  $\gamma\gamma\gamma$  qui sont in fine utilisés dans nos analyses. On verra également au chapitre 4 (section 4.4) que les gamma retardés des produits de fission ont un impact négligeable dans l'extraction des rendements des fragments que nous avons étudiés.

## 2.2.4 Le système d'acquisition

Le système d'acquisition numérique pour les 64 cristaux HPGe consiste en des cartes CAEN 1725 avec une fréquence d'échantillonnage de 100 MHz et une résolution de 14 bits. Le photomultiplicateur qui détecte les photons provenant de la cible active est, lui, relié à une carte CAEN V1751 avec une résolution de 10 bits et une fréquence d'échantillonnage de 1GHz [73]. Les données issues de l'acquisition sont enregistrées en list-mode au sein de fichiers binaires. Un fichier est produit toutes les 300 secondes (5 minutes), ce qui implique que l'acquisition est réinitialisée et redémarrée à chaque run pour éviter qu'un problème quelconque de l'acquisition ne fasse perdre une grande quantité de données. Une raison supplémentaire de produire des fichiers toutes les 5 minutes est que l'étalonnage change régulièrement dans le temps. Dans chacun des fichiers, les données enregistrées pour chaque évènement, c'est à dire pour chaque gamma détecté sont les suivantes :

1. Le numéro d'ADC (convertisseur analogique-numérique) correspondant au numéro du cristal HPGe touché, le zéro correspondant au photomultiplicateur.

2. L'amplitude du signal, qui donnera plus tard, après étalonnage, l'énergie du gamma.
3. L'horodatage, c'est à dire le temps écoulé (en ns) depuis le début de l'acquisition.

## 2.3 Le déroulement de l'expérience

La campagne de mesures avec la cible active correspond au cycle 183, elle s'est déroulée du 20/09/2018 au 29/10/2018, les données avec la source d' $^{152}\text{Eu}$  ont été prises ensuite pendant trois jours à partir du 04/11/2018. Pour le cycle avec la cible active, on dispose d'un total d'environ 12 000 fichiers pour environ 39 jours d'acquisition.

Il est important de préciser que tous les fichiers n'ont pas été utilisés. En effet, durant l'expérience, il est arrivé que le faisceau de neutrons soit arrêté suite à des problèmes du système de refroidissement des clovers. Un des clovers a été remplacé durant l'expérience car il était trop bruité. À de nombreuses reprises, le faisceau a été stoppé et l'acquisition également pour une multitude de raisons, le plus souvent pour modifier la haute tension appliquée au photomultiplicateur ou les seuils d'acquisition. C'est ce que j'illustre dans la figure 2.9, tous les pics pointant vers le bas correspondent à des arrêts ponctuels de l'acquisition pour un seul run. Par exemple, le faisceau doit être arrêté en cas d'entrée dans le hall instrument. De plus, durant le cycle, le réacteur lui même a été arrêté durant trois jours, ce qui explique l'absence de données entre les run 83100 et 84000. Au final, nous obtenons donc 9097 fichiers list-mode totalisant environ 20 To de données qu'il s'agit désormais de prétraiter pour les rendre exploitables.

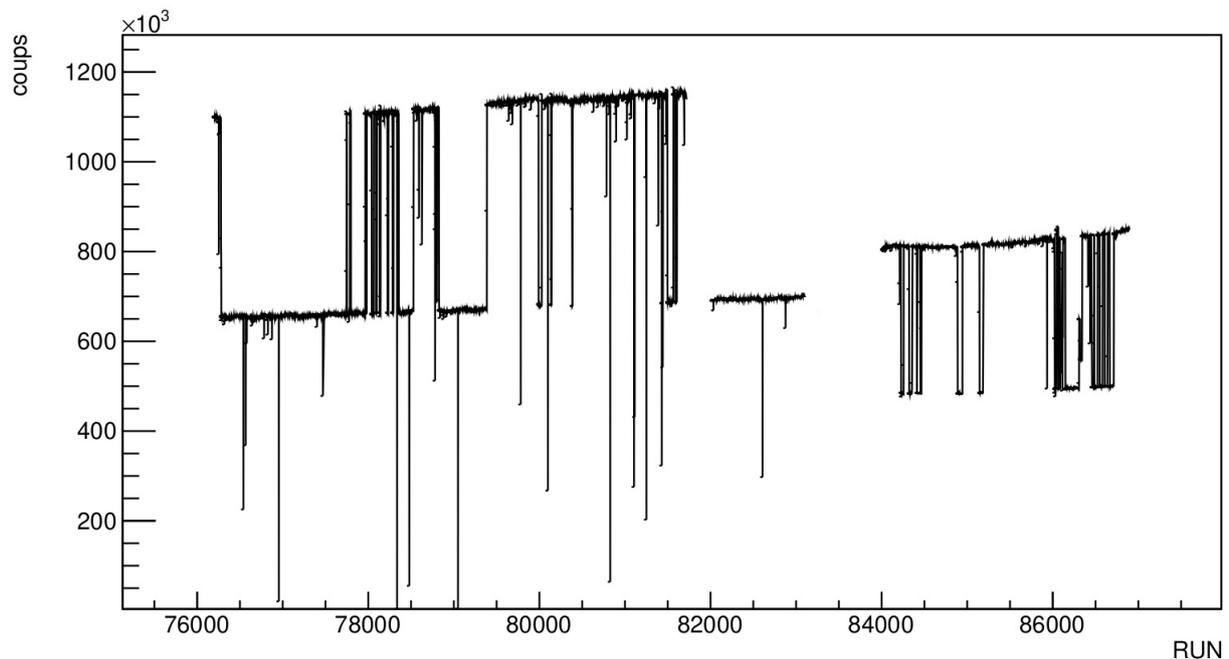


FIGURE 2.9 – Évolution du taux de fission en fonction du run et donc en fonction du temps durant les 39 jours du cycle 183.

## 2.4 Conclusion

En conclusion, le spectromètre FIPPS se compose de 16 clovers comprenant 64 cristaux de germanium entourant une cible active exposée à un faisceau de neutrons thermiques. Cependant, dans le cadre des données analysées durant ma thèse, on considère 15 clovers et 60 cristaux de germanium. La campagne de prise de données s'est étalée sur 39 jours. La particularité des données issu du spectromètre FIPPS, dans le cadre de ma thèse, est l'utilisation d'une cible active d' $^{235}\text{U}$ . Celle-ci permet de discriminer les événements de fission des désintégrations bêta de fragments ou des réactions  $(n,\gamma)$  sur le support de la cible.

# Chapitre 3

## Pré-traitement des données brutes

Ce chapitre se concentre sur le pré-traitement des données. Je présenterai en premier la phase consistant en la mise en coïncidence des données ainsi que la discrimination des événements analysés en plusieurs catégories. Dans un second temps, je détaillerai l'étalonnage en énergie et l'alignement en temps des détecteurs.

### 3.1 Mise en coïncidence des données

L'objectif de toute cette phase est de prétraiter les données enregistrées en list-mode pour les rendre exploitables pour l'analyse. C'est durant ce processus que sont effectuées l'étalonnage en énergie et l'alignement en temps qui seront détaillées dans les deux sections suivantes. Tout d'abord, nous avons utilisé le code *lst2root* [78] développé à l'ILL pour convertir les fichiers list-mode en fichiers *ROOT* comprenant pour chaque événement de fission les informations suivantes :

1. La multiplicité, c'est à dire le nombre de gamma détectés par les clovers, de 1 à 15 maximum.
2. L'énergie de chaque gamma.
3. L'énergie de la cible active.
4. Le numéro d'ADC, donc le cristal touché par chaque gamma.
5. L'horodatage (*timestamp*) correspondant au temps écoulé entre deux événements. A ce niveau, l'électronique traite le photomultiplicateur de la même manière qu'un cristal de germanium.

Avec le code *lst2root*, on effectue la *mise en coïncidence* des données. C'est à dire que l'on regroupe ensemble tous les gamma détectés dans la même *fenêtre de coïncidence*. Il s'agit d'une fenêtre temporelle ouverte à partir du premier événement détecté et fermée au bout d'un certain temps. A noter que les signaux sont traités indépendamment. Le choix de ce temps a été effectué en prenant en compte deux aspects :

- La fenêtre doit être suffisamment large pour comprendre les gamma issus de niveaux isomériques des fragments de fissions. Notamment les isomères nanosecondes.

- Nous sommes intéressés par les gamma prompts de fissions. La fenêtre ne doit donc pas être trop grande pour ne pas comprendre les gamma retardés issus de la désintégration bêta. Elle doit également ne pas être trop grande pour ne pas prendre en compte des événements accidentels, par exemple un gamma issues d'une fission différente.

En prenant en compte ces paramètres, nous avons décidé de fixer la fenêtre à 430 ns. Plus précisément entre 30 ns avant l'évènement de fission et 400 ns après, donc une fenêtre de 430 ns. Les données sont enregistrées aussi dans des fichiers *ROOT* au format similaire du précédent mais pour des événements mis en coïncidences. L'arbre des données en coïncidence contient les 5 informations suivantes :

1. L'amplitude enregistrée par le photomultiplicateur, donc l'énergie du tag fission ;
2. La multiplicité ;
3. La liste des cristaux touchés par des gamma ;
4. L'énergie de chaque gamma, fonction de la multiplicité ;
5. Le temps écoulé depuis l'évènement de fissions au sein de la fenêtre en coïncidence. Et s'il n'y a pas eu de fission, le temps écoulé à partir du premier gamma détecté.

Nous avons également discriminé et enregistré les données en catégories différentes, par rapport au tag fission :

- Toutes les données sans sélection.
- Uniquement les événements lors desquels le photomultiplicateur a détecté un événement, défini par la suite "Tag" .
- Tous les événements lorsque le photomultiplicateur n'a rien détecté, défini par la suite "antiTag".
- Tous les événements de "Tag" situé **au dessus** du seuil défini dans la figure 2.7 de la partie 2.2.3. Ils correspondent à tous les événements de fission la catégorie est appelée "Fission".
- Tous les événements de "Tag" situé **en dessous** du seuil défini dans la figure 2.7 de la partie 2.2.3, appelée catégorie "antiFission".

Pour l'analyse future des données, nous avons également décidé d'utiliser le code *GASPware*, développé à l'INFN par N. Marginean, C.A. Ur et D. Bazzacco. L'utilisation de *GASPware* est intéressante car le code permet tout d'abord de créer des histogrammes en 2D (matrices) et 3D (cubes) de nos données en coïncidences, et de les analyser facilement via une interface graphique. C'est la possibilité de construire des histogrammes en 3D avec GASP qui nous a surtout conduit à ce choix. Tous les détails sur l'utilisation de *GASPware* peuvent être trouvés en [79]. Pour ce faire nous avons développé un code transformant les arbres *ROOT* en fichiers au format *GASP* binaires. Les fichiers *GASP* sont écrits par blocs avec une longueur d'enregistrement fixe qui est généralement de 32k (1k = 1024 octets). Chaque bloc comporte un en-tête de 16 mots (1 mot = 2 octets) pour les informations générales comme par exemple le numéro du bloc. Ensuite, dans chaque bloc, tous les événements sont enregistrés sous la même forme avec un mot pour une information :

1. Indication de début d'évènement.

2. Le nombre de mots (=information) dans l'évènement et donc la longueur de l'évènement en octets.
3. Le nombre de cristaux touchés lors de l'évènement.
4. numéro du 1er cristal touché.
5. L'énergie correspondante.
6. Le numéro du 2ème cristal touché.
7. L'énergie correspondante, et ainsi de suite pour le nombre total de cristaux touchés.
8. Indication de fin d'évènement.

Ce format utilisé par les fichiers *GASP* est très spécifique et peut être lourd à utiliser, c'est pourquoi je ne rentre pas dans les détails. Plus d'informations peuvent être trouvées en [80].

Ensuite, nous pouvons directement utiliser le logiciel *gsort* sur les fichiers au format *GASP* pour obtenir nos matrices et cubes. Ce logiciel nécessite un ou plusieurs fichiers *GASP* en entrée et un fichier de *setup*. C'est dans ce dernier qu'est indiqué la fonction que l'on souhaite utiliser, par exemple *sort2d symm* pour construire une matrice symétrique ou *sort3d symm* pour construire un cube symétrique. On appelle matrice symétrique" un histogramme en deux dimensions de l'énergie quel que soit le détecteur en fonction de l'énergie quel que soit le détecteur. De même pour un cube mais en trois dimensions. Les détails et la liste des fonctions utilisables sont précisés en [81].

Finalement, ces cubes et matrices ont été construits pour trois des cinq catégories énumérées précédemment, en l'occurrence "Fission", "antiFission" et "antiTag". Les spectres correspondants sont illustrés dans la figure 3.1.

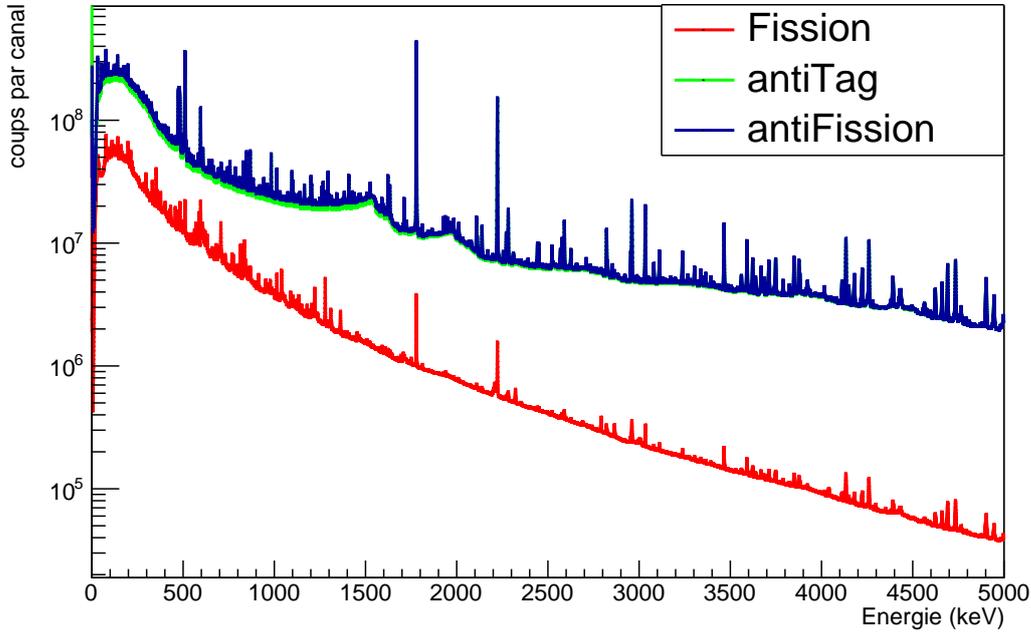


FIGURE 3.1 – Spectre des rayons gamma prompts des données FIPPS pour les trois catégories précédentes : en rouge "Fission", en vert "antiTag" et en bleu "antiFission".

Il est intéressant de comparer le spectre des rayons gamma prompts mesurés sur FIPPS (histogramme des événements dans la catégorie "Fission") avec celui prédit par la simulation FIFRELIN (après injection dans notre simulation GEANT4 du dispositif et une prise en compte de la résolution des détecteurs). Les deux spectres sont normalisés par le nombre de fissions. On observe que le spectre mesuré est globalement légèrement plus élevé que celui prédit par FIFRELIN. Cela peut s'expliquer par la présence d'un bruit de fond accidentel provenant probablement de l'environnement du spectromètre (diffusion Compton des rayons gamma produits par capture radiative dans les blindages). On voit également des pics supplémentaires à 1779 et 2223 keV, associés respectivement à la décroissance beta de  $^{28}\text{Al}$  et la capture radiative dans l'hydrogène. Ces rayons gamma ne sont pas en coïncidence avec la fission et sont acceptés accidentellement dans la fenêtre de coïncidence.

Je compare également à la figure 3.3 les matrices de coïncidence, zoomées autour du pic correspondant aux deux premières transitions du  $^{134}\text{Te}$  (1279 et 297 keV). On note la grande différence entre les données en "Fission" (figure 3.3a) et en "antiFission" (figure 3.3b). Le pic de coïncidence est nettement plus visible et isolé dans le premier cas où il n'y a que les événements en coïncidence avec la fission.

En résumé, au cours de cette phase de mise en forme des données, on part des données brutes issues de l'acquisition pour obtenir nos matrices et nos cubes de coïncidences, directement exploitables pour l'analyse.

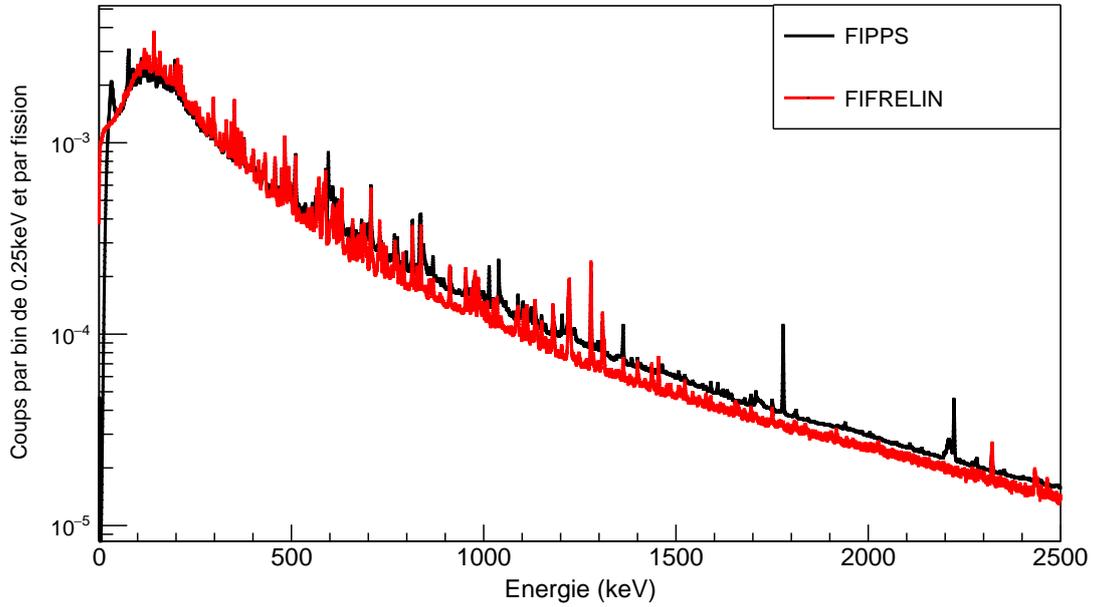
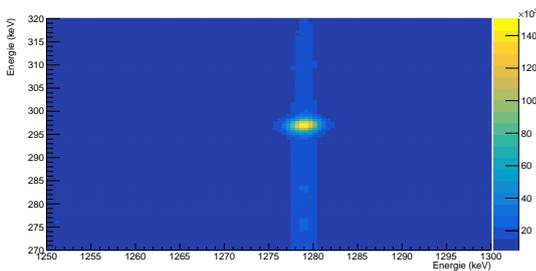
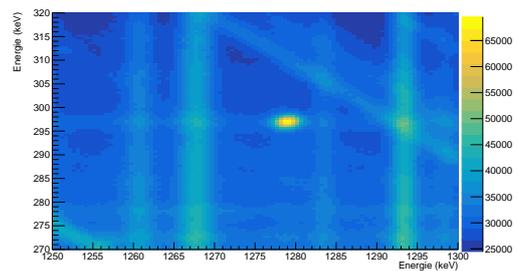


FIGURE 3.2 – Spectre des rayons gamma prompts des données FIPPS, en noir, comparé avec une simulation FIFRELIN, en rouge. L'axe des ordonnées a été normalisé au nombre total de fission. Les paramètres et modèles de la simulation FIFRELIN utilisée ici sont ceux indiqués dans le tableau 1.1.



(a) Matrice des évènements en "Fission" zoomé autour d'un pic correspondant à la coïncidences entre 2 transitions du  $^{134}\text{Te}$ .



(b) Matrice des évènements en "antiFission" zoomé autour d'un pic correspondant à la coïncidences entre 2 transitions du  $^{134}\text{Te}$

FIGURE 3.3 – Matrices des données FIPPS en mode "Fission" et en "antiFission".

## 3.2 Etalonnage en énergie des détecteurs

Une phase incontournable du prétraitement est l'étalonnage en énergie des données brutes. Celle-ci s'effectue une fois les fichiers list-mode binaires transformés en arbre *ROOT*. Le point principal à souligner immédiatement est que l'étalonnage varie significativement dans le temps tel qu'illustré dans la figure 3.4. Il est donc nécessaire de calibrer chacun des 60 cristaux des 9097 fichiers de données un par un.

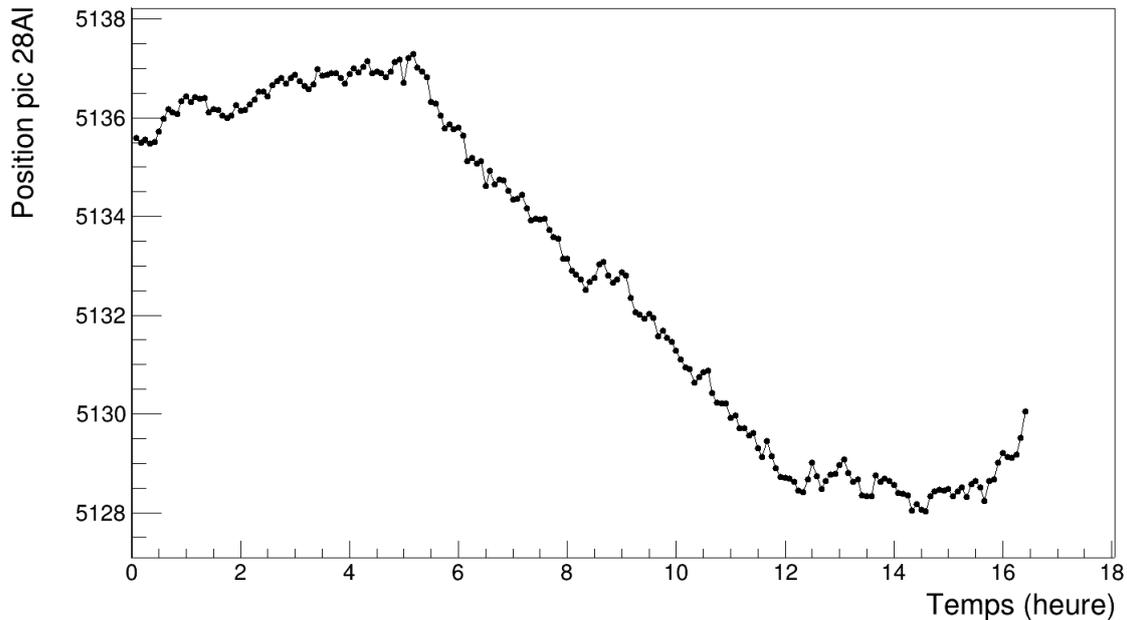


FIGURE 3.4 – Position du pic correspondant à un gamma issu de la décroissance bêta de l' $^{28}\text{Al}$  en fonction du temps en heure.

Pour ce faire, la première étape est d'identifier au sein du spectre gamma des pics d'intérêts, c'est à dire des pics facilement visibles et exploitables correspondant à des réactions ou des décroissances connues. Nous en avons déterminé trois, présentés dans le tableau 3.1.

Numéro de pic	Réaction	Énergie du gamma
1	$^{73}\text{Ge}(n, \gamma)^{74}\text{Ge}$	$595,847 \pm 0,006\text{keV}$
2	Décroissance $\beta^-$ du $^{28}\text{Al}$	$1778,9 \pm 0,1\text{keV}$
3	$H(n, \gamma)D$	$2223,245 \pm 0,003\text{keV}$

TABLE 3.1 – Réaction et transitions utilisées pour l'étalonnage en énergie

Pour l'étalonnage en énergie, nous utilisons les spectres gamma en "antiTag", c'est à dire sans

sélection du tag fission car c'est dans cette configuration que les trois pics apparaissent le mieux. En effet, les réactions mises en jeu sont totalement décorrélées de la fission. Le pic numéroté 1 dans la figure 3.5 correspond à l'activation neutronique du  $^{73}\text{Ge}$  présent dans les détecteurs. Le pic 2 est issu d'un gamma émis lors de la décroissance bêta de l' $^{28}\text{Al}$  produit par activation de l' $^{27}\text{Al}$ . La très forte intensité de ce pic s'explique surtout par la présence des fenêtres de saphir dans le trajet du faisceau de neutrons. En effet, le saphir de formule  $(\text{Al}_2\text{O}_3)$  contient de l'aluminium. Il y a aussi de l'aluminium contenu dans les supports tout autour dans la cible active. Le troisième pic est la conséquence de la capture d'un neutron sur un hydrogène du liquide scintillant qui engendre un deuton et un gamma correspondant à l'énergie de liaison du neutron.

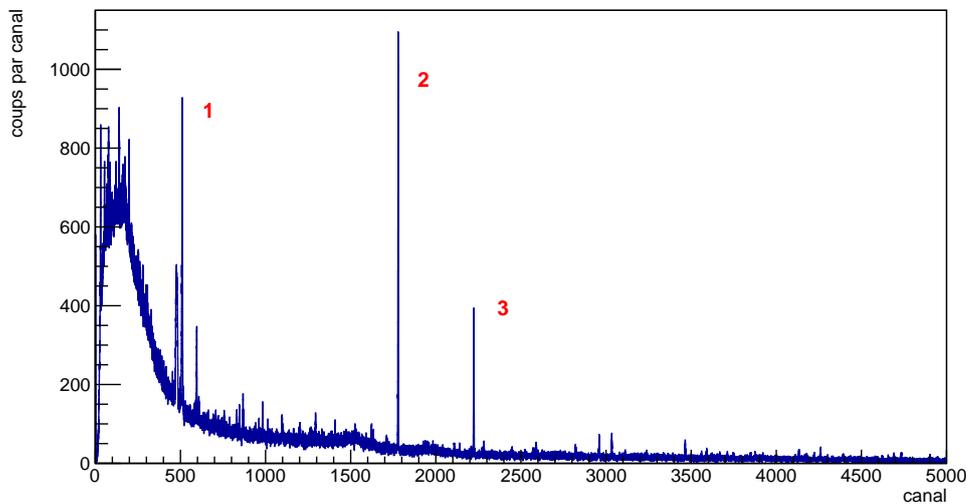


FIGURE 3.5 – Spectre non calibré d'un cristal de FIPPS avec un binning de 0.25 keV par canal.

L'étalonnage en lui même est réalisé en supposant qu'il est linéaire avec l'énergie et est ajusté sur les pics correspondant aux trois réactions décrites précédemment. Nous avons utilisé les spectres en "antiTag" car dans cette configuration on maximise tous les pics des évènements qui ne sont pas liés à la fission.

Finalement, la qualité du résultat de l'étalonnage en énergie peut et doit être vérifiée. Pour ce faire, on trace la superposition de trois spectres en énergie calibrés, correspondant, respectivement, :

- Au spectre d'un cristal d'un seul run.
- Au spectre de la somme des cristaux d'un seul run.
- Au spectre total correspondant à la somme des cristaux de tous les 9097 runs.

Ces trois spectres contiennent évidemment un nombre d'évènements totalement différent. Ils ont donc été normalisés respectivement sur leur intégrale des coups dans la région autour du pic. Ensuite, ces trois spectres ont été superposés tel que montré dans la figure 3.6.

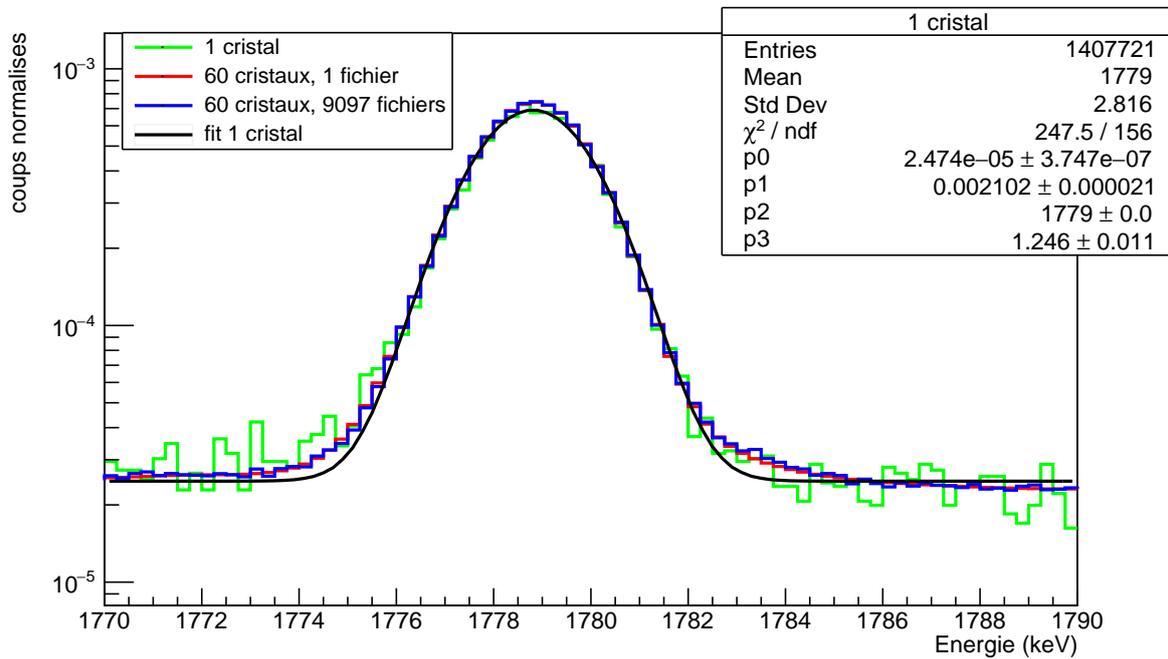


FIGURE 3.6 – Comparaison entre les trois spectres normalisés autour du pic à 1779 keV. En rouge le spectre pour l’ensemble des runs, en bleu pour la somme des cristaux d’un fichier et en vert pour un seul cristal d’un fichier.

On note immédiatement que l’étalonnage semble tout à fait satisfaisant, même si on relève quelques défauts. Comme on pouvait s’y attendre, on remarque une légère dégradation pour la courbe totale en rouge, ce qui implique simplement que l’étalonnage n’est pas parfait et donc qu’en sommant les spectres des 9097 fichiers les pics peuvent être très légèrement décalés. En l’occurrence cette dégradation reste très faible. On vérifie également l’étalonnage à haute énergie, illustré dans la figure 3.7. Ici on remarque que la dégradation est un peu plus prononcée. L’explication est que l’étalonnage avec les trois points situés à 595 keV, 1779 keV et 2223 keV s’obtient avec une certaine erreur. l’étalonnage est donc bien maîtrisé et avec une faible incertitude entre ces trois points. Cependant, plus l’énergie est élevée plus l’effet de levier sur l’incertitude originellement faible sera important. A haute énergie l’étalonnage commence donc à décaler les pics. Ce décalage reste pourtant faible et même négligeable dans la gamme d’énergie qui nous intéresse dans le cadre de l’analyse qui suivra.

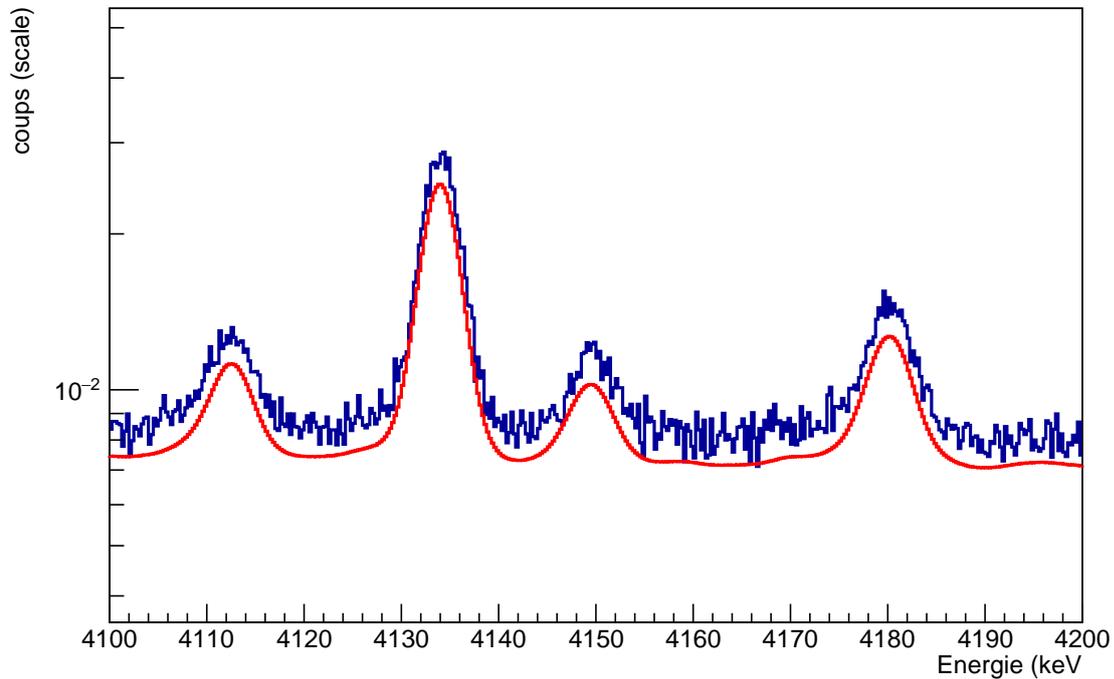


FIGURE 3.7 – Comparaison à haute énergie entre deux spectres normalisés, celui du spectre pour l'ensemble des runs et celui de la somme des cristaux d'un run en bleu. Le spectre vert est absent car la statistique pour un seul cristal d'un fichier est trop faible à haute énergie pour illustrer correctement quoi que ce soit.

### 3.3 Alignement en temps des détecteurs

Comme précisé auparavant, le processus de mise en coïncidence des données pour l'analyse nécessite la définition d'une fenêtre de coïncidences. Pour être définie, elle nécessite l'information sur le temps dont on dispose dans nos données. Une étape importante est donc l'alignement en temps qui consiste à modifier chaque bin pour que le pic principal soit centré sur le zéro de l'abscisse. De la même manière que l'alignement en énergie, l'alignement en temps doit être effectué pour chaque cristal des 9097 fichiers. L'opération a été effectuée en utilisant les données en "antiTag" tel que défini dans la section 3.1. Dans cette configuration l'essentiel des évènements correspond à des rayons gamma émis lors de la décroissance bêta de l' $^{28}\text{Al}$  dont le schéma de décroissance est dans la figure 3.8. Le temps est donc enregistré tel que le *start* du temps correspond à la décroissance bêta et le *stop* à l'émission d'une transition gamma.

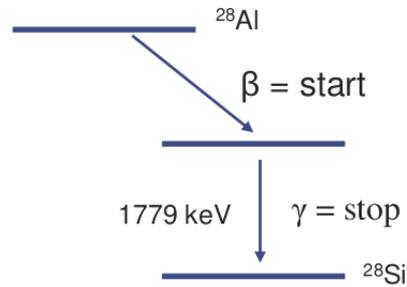


FIGURE 3.8 – Schéma de décroissance simplifié du  $^{28}\text{Al}$ .

La figure 3.9 présente le résultat de l'alignement pour un cristal d'un clover FIPPS. Par rapport au 0, notre fenêtre en coïncidence s'étend de -30 ns jusqu'à 400 ns, sur la figure 3.9 elle est zoomée entre -50 ns et 200 ns. En bleu, est présenté le spectre en temps des données en "antiTag" donc essentiellement des transitions gamma issues de l' $^{28}\text{Al}$ . L'ajustement de ce spectre est en rouge et prouve que l'alignement a été correctement effectué puisque le maximum du spectre est situé à  $1.728 \pm 0.441 \text{ ns}$  et que le  $\chi^2$  divisé par le nombre de paramètres libres est très proche de 1 ( $178.8/134 \approx 1.3$ ). Il est normal que le résultat ne soit pas exactement à zéro puisque le temps est enregistré par bin de 4 ns, le résultat de l'alignement est donc considéré satisfaisant lorsque situé entre -4 ns et 4 ns. De plus, cet alignement a été réalisé sur les données en "antiTag" puis appliqué sur l'ensemble des données, il faut donc le vérifier. C'est ce qui est illustré avec le spectre vert qui correspond au spectre en temps des rayons gamma prompt de fission (événement de la catégorie "Fission"). On note qu'il est tout à fait aligné avec le spectre bleu et l'ajustement (rouge).

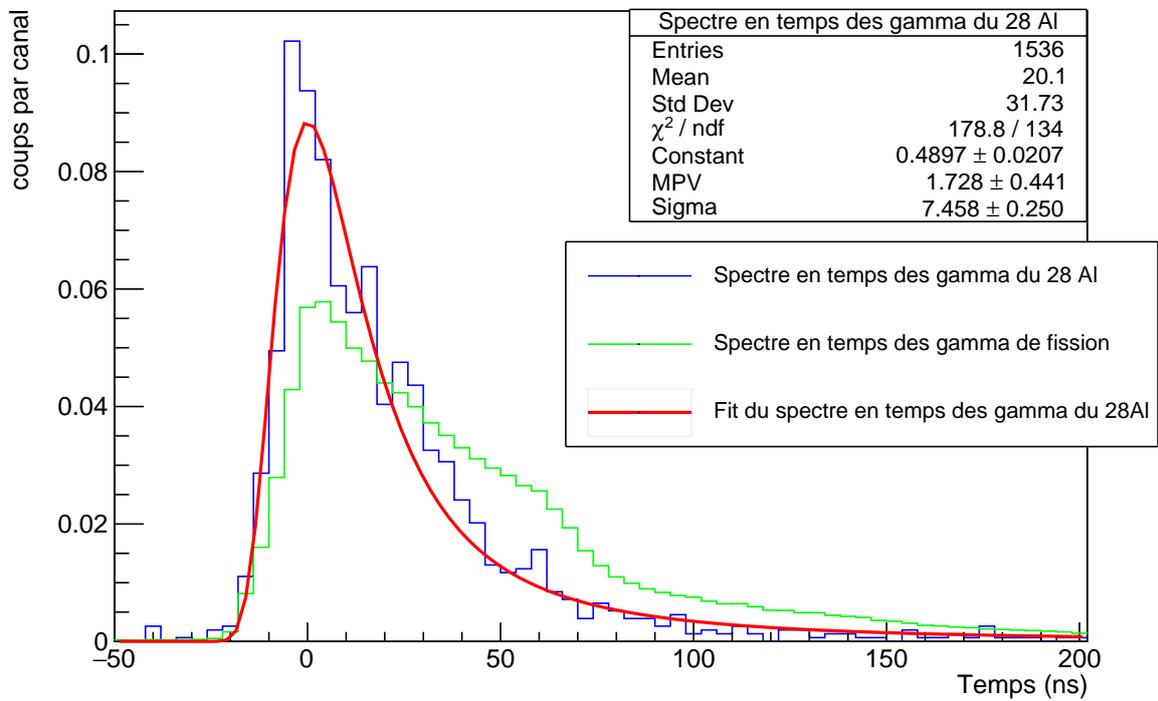


FIGURE 3.9 – Spectre en temps d’un cristal d’un clover de FIPPS après alignement. La bosse autour de 60 ns s’explique par l’absence de CFD (*C*onstant *F*raction *D*iscriminator) de temps lors de l’acquisition. Ce qui implique que le temps d’arrivée des gamma est enregistré différemment selon l’énergie.

### 3.4 Sommation de l'énergie des cristaux d'un même clover

Un problème apparaît concernant les événements comptabilisés. En effet, il est possible qu'il y ait une diffusion Compton d'un gamma sur plusieurs cristaux d'un même clover, ce qui a pour conséquence de nous faire perdre l'information sur certains événements.

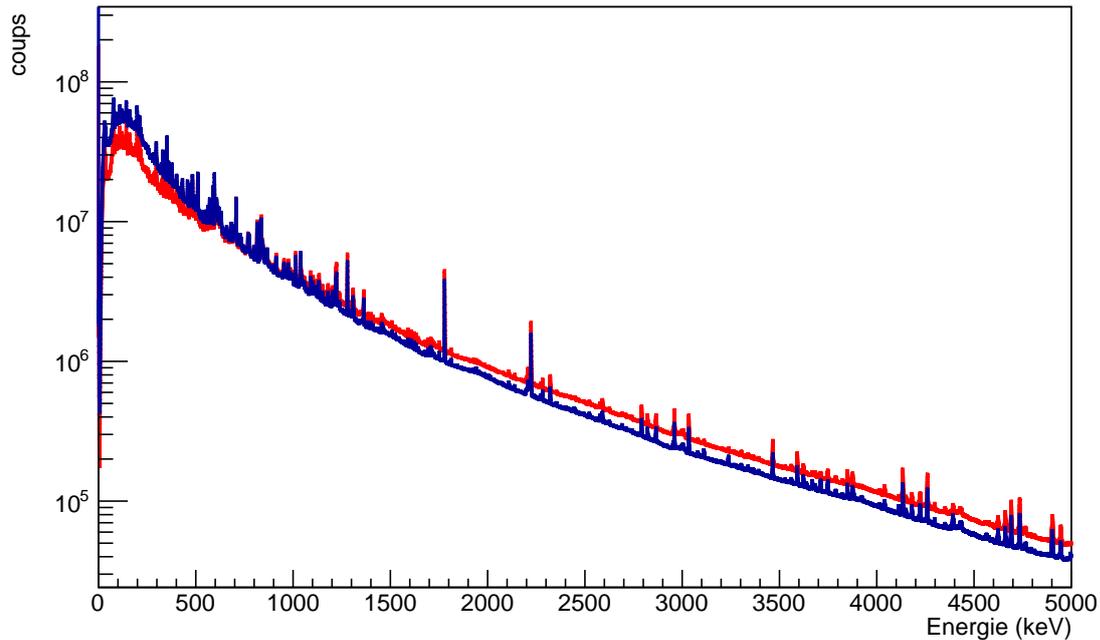


FIGURE 3.10 – Spectre des rayons gamma prompts de fission de FIPPS, en rouge pour les données en *addback*, en bleu sans *addback*.

Pour en tenir compte, on prend les événements en *addback*, c'est à dire qu'on considère qu'il n'y a qu'un seul gamma dont l'énergie correspond à la somme de tous ceux détectés dans les quatre cristaux. Cette technique permet de prendre en compte des événements supplémentaires et de diminuer le bruit de fond gamma. Lorsque la multiplicité est égale à 1, un seul cristal est touché, il n'y a donc aucune différence que l'on soit en *addback* ou pas. Cependant, à partir d'une multiplicité de 2, on observe un pic en *addback* d'énergie légèrement inférieure par rapport à la valeur en multiplicité 1, décalage dû à l'électronique. En effet, il est possible que lorsque les quatre cristaux d'un même clover ne sont pas reliés exactement à la même masse, il y ait des effets dits de *cross-talk*. C'est à dire une légère perte de tension et donc un léger décalage en énergie.

Il y a donc nécessité de corriger la formule de sommation des énergies. Nous prenons l'exemple d'une multiplicité 2, c'est à dire d'un gamma qui touche un premier cristal puis diffuse sur un second.

- $E_1$  : énergie du cristal n°1
- $E_2$  : énergie du cristal n°2

- $E_{table}$  : énergie tabulée du pic
- $E_{AB}$  : énergie totale mesurée en *adddback*

On part du constat que  $E_{AB} < E_1 + E_2 = E_{table}$ .

On a donc une différence d'énergie  $\Delta E = E_{table} - E_{AB} = \alpha E_{table}$  Avec  $\alpha$  : coefficient de correction indépendant de l'énergie du cristal 1 et du cristal 2, à appliquer à l'énergie en *adddback* pour corriger des effets de *cross-talk*.

D'où :

$$\begin{aligned}\alpha &= \frac{\Delta E}{E_{table}} \\ &= \frac{E_{table} - E_{AB}}{E_{table}}\end{aligned}\quad (3.1)$$

Avec  $E_{AB}$  déterminée par le fit du pic considéré en *adddback*. Ce paramètre alpha dépend du nombre de cristaux touchés, de leur configuration et du clover. Si on considère quatre cristaux numérotés de 0 à 3 :

- Pour multiplicité = 2, on a six combinaisons possibles : (0, 1), (0, 2), (0, 3), (1, 2), (1, 3), (2, 3)
- Pour multiplicité = 3, on a quatre combinaisons possibles : (0, 1, 2), (0, 2, 3), (0, 1, 3), (1, 2, 3)
- Pour multiplicité = 4, on a une seule combinaison possible : (0, 1, 2, 3)

Chacune d'entre elles est à multiplier par le nombre de clovers, c'est-à-dire 15, pour obtenir le nombre de coefficients alpha qu'il faut calculer. Ce paramètre alpha dépend du nombre de cristaux touchés et de leur configuration. Une fois le paramètre alpha déterminé dans chaque cas, on en déduit la correction à apporter à l'énergie en *adddback* :

$$\begin{aligned}E_{corr} &= E_{AB} + \Delta E \\ &= E_{AB} + \alpha E_{corr} \\ &= \frac{E_{AB}}{1 - \alpha}\end{aligned}\quad (3.2)$$

Un exemple des valeurs du coefficient correctif est donné dans le tableau 3.2 pour un clover. On peut maintenant appliquer cette correction, qui est illustrée dans la figure 3.11. On note que la correction décale bien le spectre en augmentant très légèrement l'énergie, de l'ordre d'un demi keV.

Combinaison	Coefficient correctif
(0, 1)	0.000535
(0, 2)	0.000601
(0, 3)	0.0006665
(1, 2)	0.000415
(1, 3)	0.000122
(2, 3)	0.0005035
(0, 1, 2)	0.00087
(0, 2, 3)	0.0007885
(0, 1, 3)	0.000571
(1, 2, 3)	0.0006415
(0, 1, 2, 3)	0.001452

TABLE 3.2 – Tableau des valeurs du coefficient correctif alpha pour le clover 1.

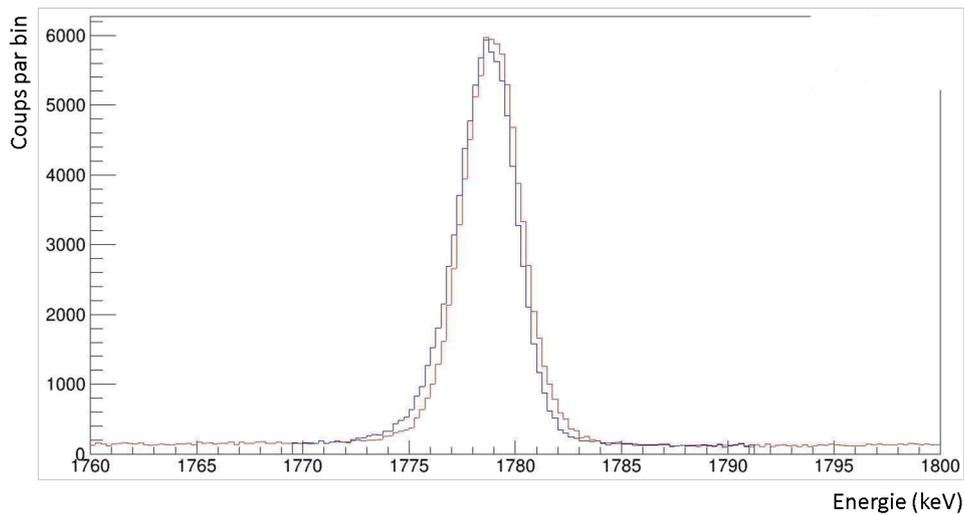


FIGURE 3.11 – Spectre des rayons gamma prompts de fission de FIPPS, en bleu avant la correction du *cross-talk*, en rouge après.

### 3.5 Conclusion

Le pré-traitement des données a été un travail crucial. Nous avons tout d'abord mis en coïncidence les données pour construire les matrices et les cubes de coïncidences. Ensuite, nous avons discriminé les données en cinq catégories selon leur rapport au tag fission. Nous avons réalisé l'étalonnage en énergie des détecteurs en nous appuyant sur trois transitions d'intérêts. Nous avons vérifié la bonne qualité de l'étalonnage en contrôlant que la dégradation de la résolution en énergie reste faible en sommant tous les spectres de tous les cristaux. Enfin, nous avons procédé à l'alignement en temps de ces détecteurs.

# Chapitre 4

## Caractérisation du spectromètre FIPPS et de la première cible active d' $^{235}\text{U}$

Dans ce chapitre, je vais détailler les différentes caractéristiques du spectromètre FIPPS et de la cible active d' $^{235}\text{U}$ . Dans un premier temps, j'expliquerai le calcul du temps mort liés aux détecteurs. Ensuite, je présenterai une simulation Geant4 du dispositif expérimental. Je poursuivrai par une partie très importante qui est la détermination de l'efficacité absolue du spectromètre. Enfin, je terminerai par l'analyse de la réponse de la cible active afin de déterminer le nombre total de fission détecté pendant la campagne de mesure.

### 4.1 Estimation du temps mort du système d'acquisition

Un système d'acquisition présente souvent un temps mort conduisant à une perte d'information, il est donc nécessaire de l'estimer pour pouvoir le corriger. Dans un premier temps, on dispose dans les fichiers de données, du temps écoulé depuis le début de l'acquisition pour chaque évènement. Si on sélectionne uniquement les évènements d'un cristal HPGe, on peut donc tracer la différence de temps entre deux évènements consécutifs enregistrés par le système, illustré dans la figure 4.1. Il s'agit ici d'un exemple pour un cristal de germanium d'un clover FIPPS.

La première remarque évidente est que le tracé de cette différence de temps est de la forme exponentielle (ici linéaire, en échelle logarithmique). Cela vient du fait que la probabilité se répète de manière identique à chaque unité de temps. La suite du raisonnement s'appuie sur cette supposition. En effet, puisqu'il s'agit d'une exponentielle décroissante, on peut faire l'analogie avec le temps de vie d'un noyau radioactif à partir de sa création. Ce qui implique que l'on peut appliquer les mêmes lois mathématiques. La fonction représentative de la différence de temps entre deux évènements consécutifs est donc de la forme générale :

$$A(t) = A(t_0) \exp(-\lambda t) \quad (4.1)$$

Donc  $\frac{1}{\lambda}$  est le projeté sur l'axe des abscisses de  $\frac{A(t=0)}{e}$  ce qui implique que  $\frac{1}{\lambda}$  est l'espérance mathématique de la fonction 4.1 mais également le temps moyen (en s) entre deux évènements consécutifs. Ce qui engendre finalement que  $\lambda$  est le taux de comptage, en nombre d'évènements par seconde,

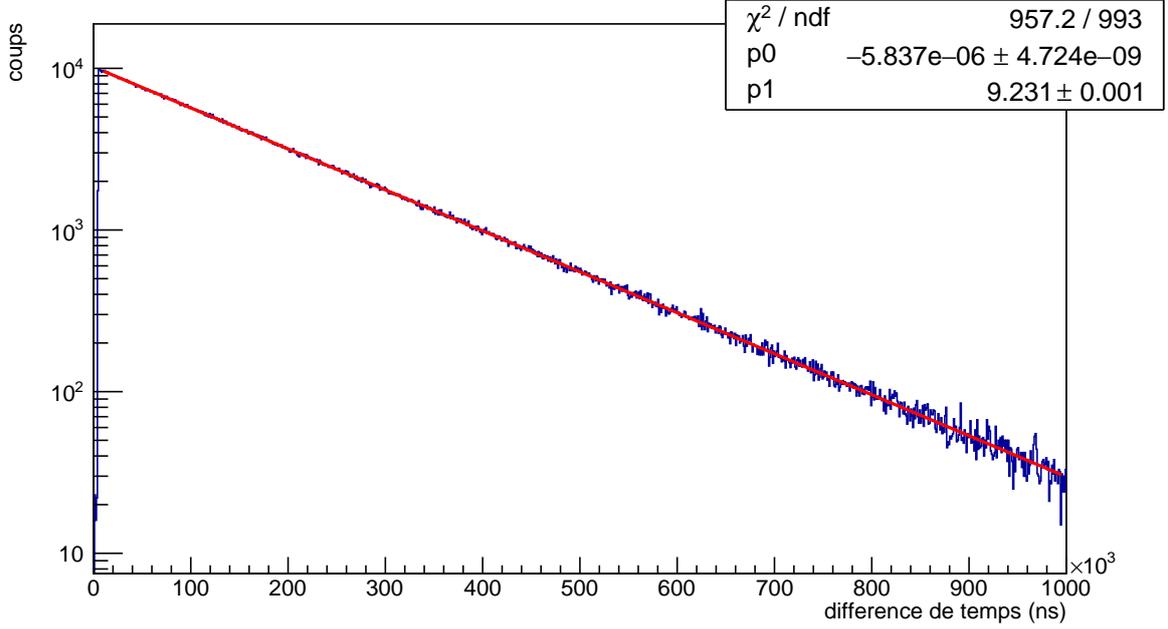


FIGURE 4.1 – Histogramme, en échelle logarithmique, illustrant le nombre de coup en fonction de la différence de temps entre deux évènements consécutifs. En rouge, la modélisation avec la fonction 4.1.

correspondant à la prise de données réalisée. De plus, on peut remonter facilement à la valeur de  $\lambda$  puisque d'après la fonction 4.1 il s'agit tout simplement de la pente de la droite correspondant à cette fonction (en échelle logarithmique). Cette pente est obtenue en effectuant une régression linéaire à l'aide de root. A ce stade, puisqu'on dispose du taux de comptage calculé, en nombre d'évènements par seconde, je peux accéder au nombre d'évènements total réel. En effet,  $A(t = 0) = \lambda \times N_{tot}$  avec  $N_{tot} = T \times \lambda$  le nombre d'évènements total et T le temps total de l'acquisition. Ce temps total est connu, il est de 300 secondes pour tous les fichiers. Pour résumer : on connaît T, on calcule  $\lambda$  avec la différence de temps entre deux évènements consécutifs, on fait le produit des deux et on retombe bien sur le nombre total d'évènements réels. Par ailleurs, le système d'acquisition nous donne le nombre d'évènements enregistrés  $N_{mesure}$ , mais avec un certain pourcentage de perte. Donc, si  $N_{mesure}$  est le nombre d'évènements enregistrés par le système d'acquisition alors

$$\alpha_\tau = \frac{N_{tot}}{N_{mesure}} > 1 \quad (4.2)$$

Avec  $\alpha_\tau$  le facteur correctif (sans unité) à appliquer à chaque acquisition pour retomber sur le nombre total d'évènements réels. Cette méthode permet donc d'accéder au nombre d'évènements perdus par le système d'acquisition.

De plus, on sait d'après [82] aux pages 119-120 que dans le cas d'un modèle non paramétrable :

$$\lambda - m = \lambda m \tau \quad (4.3)$$

D'où :

$$\tau = \frac{\lambda - m}{\lambda m} \quad (4.4)$$

Avec  $\lambda$  le taux de comptage réel,  $m$  le taux de comptage enregistré par le système d'acquisition et  $\tau$  le temps mort. Donc, le temps mort pour le spectromètre FIPPS avec la cible active :  $\tau = 5,1 \pm 0,3 \mu s$ .

Cette valeur du temps mort peut être comparée en effectuant un zoom sur l'histogramme déjà présenté dans la figure 4.1. C'est ce qui est illustré sur la figure 4.2. On observe que la différence de temps minimale entre les événements est effectivement située aux alentours de 5000 ns donc  $5 \mu s$ .

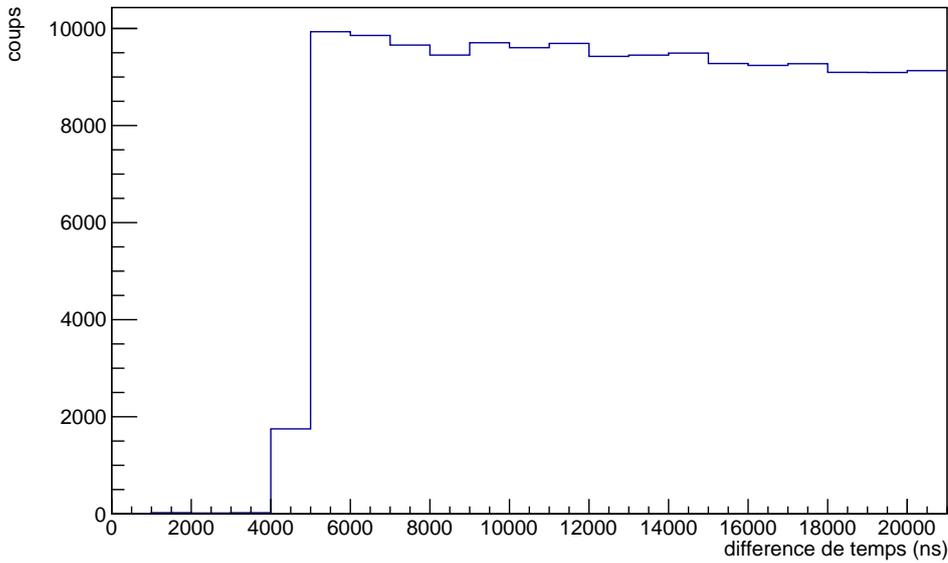


FIGURE 4.2 – Histogramme, en échelle logarithmique, illustrant le nombre de coup en fonction de la différence de temps entre deux événements consécutifs.

Toute cette opération peut être effectuée pour chacun des 60 cristaux. Le temps mort est le même pour tous les cristaux. Cependant, le facteur correctif du nombre d'évènements perdu à cause du temps mort est différent selon que l'on traite les cristaux de clover FIPPS ou de clover IFIN. Nous avons donc décidé de calculer la correction  $\alpha_\tau$  pour chaque cristal puis d'effectuer une moyenne pondérée par le taux de comptage. On obtient donc un facteur correctif du temps mort applicable à l'ensemble des cristaux de :  $\alpha_\tau = 1,023 \pm 0,002$ .

Les données du tag fission sont acquises par une électronique différente des clovers. Le temps mort est différent mais la méthode pour le déterminer est identique. On calcule donc exactement de la même manière le temps mort du photomultiplicateur, donc du tag fission, ce qui nous permet d'obtenir un coefficient correctif  $\alpha_\tau^{tag} = 1,0080 \pm 0,0005$ . Le temps mort obtenu pour le tag fission est de :  $\tau_{tag} = 0.25 \pm 0,05 \mu s$ .

## 4.2 Simulation Geant4 du dispositif

### 4.2.1 Motivation

La première motivation pour l'utilisation d'une simulation trouve son origine dans la détermination de l'efficacité du dispositif décrit dans la section 4.3. L'objectif était de développer une simulation réaliste permettant d'obtenir directement l'efficacité.

La seconde motivation est aussi liée à l'efficacité. En effet, la simulation peut être utilisée pour estimer les "effets de sommation" qui correspondent à un phénomène qui sera expliqué en section 4.3.

### 4.2.2 Développement et amélioration

Durant l'analyse, nous avons utilisé et amélioré une simulation Geant4 du spectromètre FIPPS. Nous disposons à l'origine d'une simulation développée par le groupe GRIFFIN (Gamma-Ray Infrastructure For Fundamental Investigations of Nuclei) [83] et qui a été adaptée au spectromètre FIPPS par Zoé Favier [84]. Cependant il a été nécessaire de l'améliorer pour prendre en compte les atténuations dans la cible active. L'image 4.3 illustre la simulation originelle avec uniquement 8 clover autour de la cible, le tube en carbone d'une épaisseur de 2 mm et le tube de fluorure de lithium (LiF) de 5 mm d'épaisseur. La cible d' $^{152}\text{Eu}$  se situe au centre du tube de LiF.

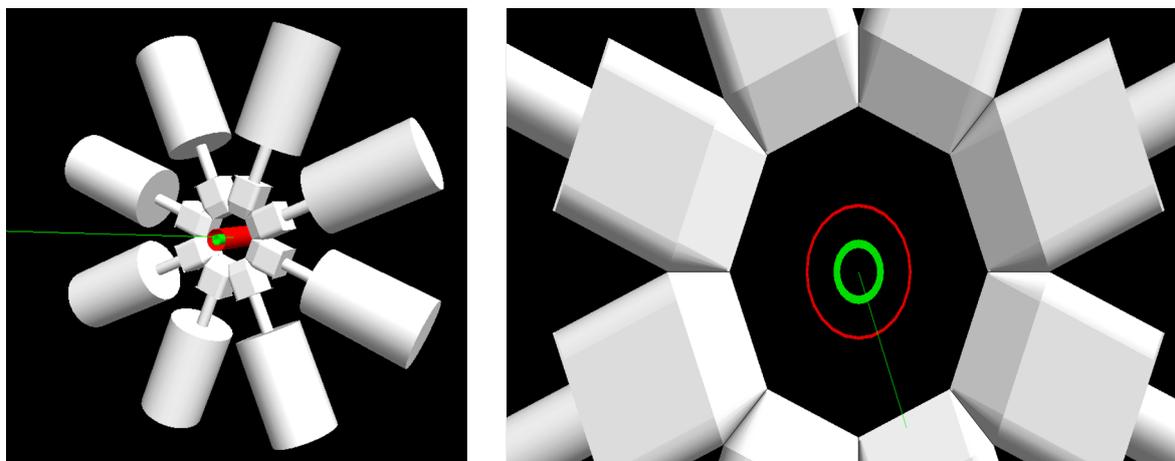


FIGURE 4.3 – A gauche, une visualisation des clovers FIPPS du spectromètre, répartis autour de la cible. A droite, une vue zoomée de la chambre de réaction selon un plan perpendiculaire au faisceau. Le cercle rouge est la vue de coupe du tube en carbone, le vert, celle du tube en fluorure de lithium (LiF).

La première étape a consisté à rajouter la géométrie de la cible active sur le modèle décrit schématiquement sur la figure 2.5 au sein de la simulation préexistante. La cible active modélisée est illustrée par l'image 4.4. En bleu le saphir, en jaune et rose les supports d'aluminium. Les quatre vis n'ont pas été modélisées.

La seconde étape a consisté à rajouter les huit détecteurs IFIN dans la simulation, initialement de la

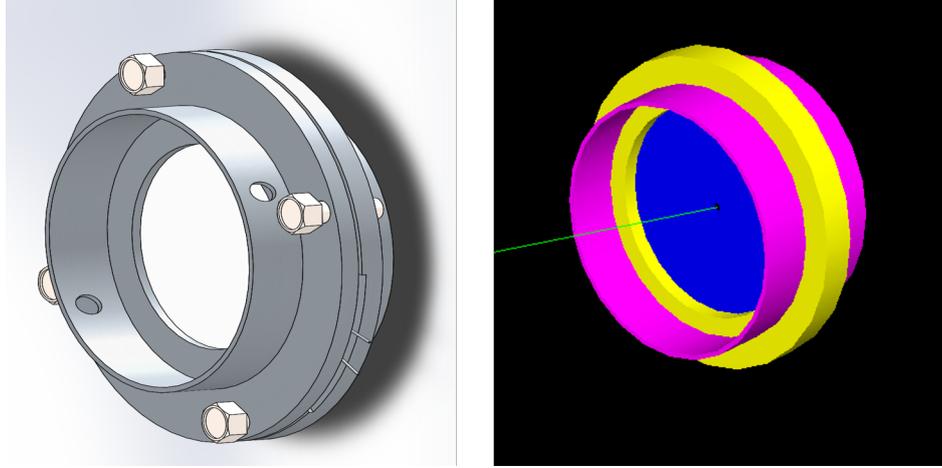


FIGURE 4.4 – A gauche une représentation de la structure réelle entourant la cible à active. A droite, une vue zoomée de cette structure telle que modélisée dans Geant4.

même manière que les détecteurs FIPPS, ce travail a été fait en collaboration avec Mattéo Ballu dans le cadre de son stage [85]. Ensuite, nous avons ajusté la distance des détecteurs à la cible pour que la simulation corresponde aux données expérimentales. En l'occurrence, aux données prises à la fin de la campagne de mesure avec une source d' $^{152}\text{Eu}$  dont l'activité sera calculé proprement par la suite. Pour ce faire, nous avons simulé trente configurations du dispositif (indiqué j) en faisant varier uniquement la distance des détecteurs par pas de 1 mm pour les FIPPS et 2 mm pour les IFIN. Nous avons ensuite cherché à minimiser l'écart entre la simulation et les données. Pour cela, on calcule un  $\chi^2$  défini par la relation 4.5 pour chaque clover à chaque distance pour les énergies considérées. Le meilleur ajustement correspond alors à la valeur minimale du  $\chi^2$  pour un clover.

$$\chi_j^2 = \sum_{i=1} \frac{(D_i/N_\beta - S_i^j/N_s)^2}{\sigma_D^2/N_\beta^2 + \sigma_S^2/N_s^2} \quad (4.5)$$

- $D_i$  : nombre de coups pour le pic considéré.
- $S_i$  : nombre de coups pour le pic considéré dans la simulation.
- $N_\beta = A \times \Delta T \times N_{runs}$  : nombre de désintégration, avec A l'activité de la source d' $^{152}\text{Eu}$ ,  $\Delta T$  le temps d'un run et  $N_{runs}$  le nombre de runs.
- $N_s$  : nombre de particules simulées.
- $\sigma_D$  et  $\sigma_S$  : incertitudes sur les nombres de coups.

De part le fait que les données sont bruitées, le  $\chi_{\text{réduit}}^2$  est aussi bruité. Le  $\chi_{\text{réduit}}^2$  est défini comme le  $\chi^2$  divisé par le nombre de paramètres libres. On va essayer d'estimer cette incertitude et en déduire une incertitude sur les distances optimales obtenues. En supposant que le  $\chi^2$  est la somme de N distributions normales au carré, on a alors la distribution suivante [86] :

$$P(\chi^2, N) = \frac{1}{2^{N/2}\Gamma(N/2)} (\chi^2)^{N/2-1} \exp(-\chi^2/2) \quad (4.6)$$

On peut approximer la distribution de  $\chi^2$  à N degrés de liberté par la loi normale de moyenne N et de variance 2N. La variance de  $\chi^2_{\text{réduit}}$  est alors  $2N/N^2 = 2/N^2$ . On prend alors  $\sigma = \sqrt{2/N}$  comme approximation de la largeur de la gaussienne. On peut alors considérer les simulations donnant un  $\chi^2_{\text{réduit}}$  dans l'intervalle  $\chi^2_{\text{min}} \pm 3\sigma$  comme acceptables. La figure 4.5 montre le tracé des  $\chi^2$  calculés pour chaque distance pour le clover n°1. On remarque que pour le premier clover FIPPS, elle pointe vers une distance de 9.5 cm au lieu de la valeur initiale de 9 cm.

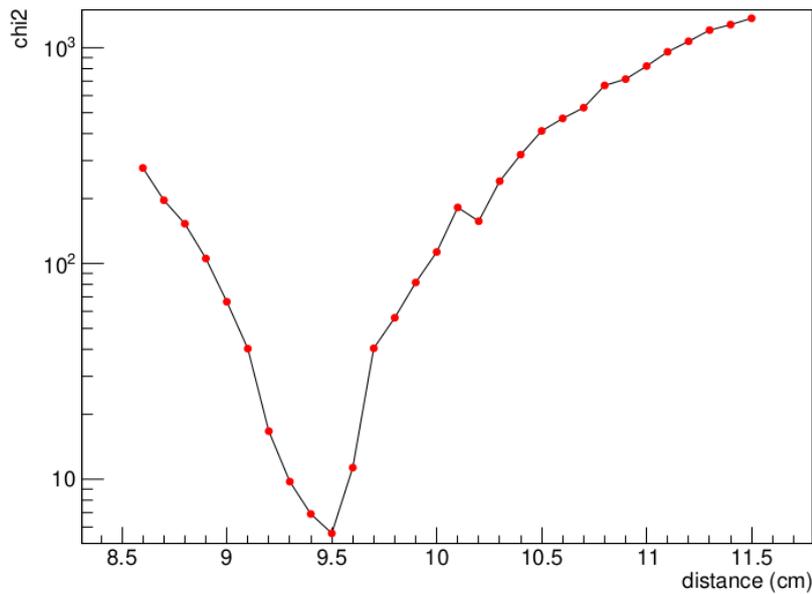


FIGURE 4.5 –  $\chi^2$  pour le clover 1 de FIPPS en fonction de la distance implémentée dans la simulation.

Les distances obtenues sont reportées dans les tables 4.1.

FIPPS		IFIN	
Clover	Distance (cm)	Clover	Distance (cm)
1	9.5	9	15.4
2	9.4	10	14.4
3	9.1	11	14.4
4	9.5	12	—
5	9.4	13	15.0
6	9.6	14	13.8
7	9.4	15	13.8
8	9.7	16	13.6

TABLE 4.1 – Distances obtenues pour les détecteurs FIPPS et IFIN.

## 4.3 Efficacité de FIPPS

L'un des paramètres les plus importants pour l'analyse des données est la connaissance et la bonne maîtrise de l'efficacité de l'instrument. A la fin de la campagne de prise de données, le réacteur a été arrêté, la cible active enlevée et remplacée par une source d' $^{152}\text{Eu}$ . Le spectre gamma de l' $^{152}\text{Eu}$  présente un grand nombre de raies très bien connues et peut donc être utilisé pour déterminer l'efficacité absolue du système de détection. Pour ce faire, nous avons d'abord réalisé une estimation de l'efficacité par une méthode simple et rapide puis une détermination par une méthode plus poussée.

### 4.3.1 Estimation utilisant l'activité connue

Tout d'abord, nous pouvons estimer l'efficacité à l'aide l'activité de l' $^{152}\text{Eu}$  et du spectre gamma illustré dans la figure 4.6.

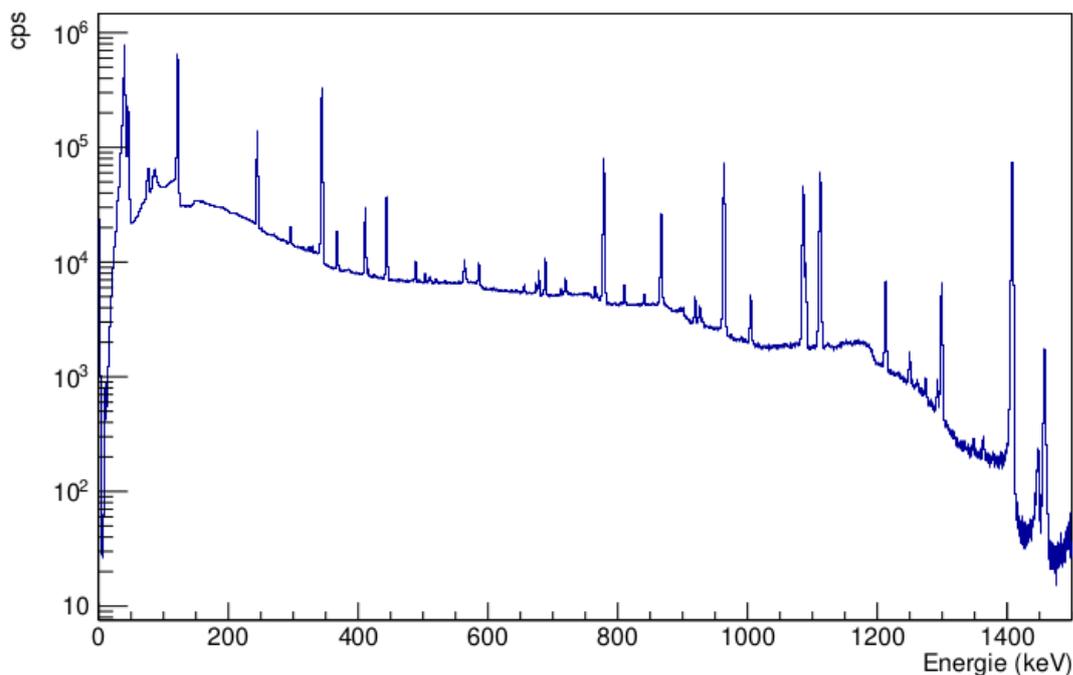


FIGURE 4.6 – Spectre en énergie calibré de l' $^{152}\text{Eu}$  pour le spectromètre FIPPS.

En effet, le nombre de gamma mesurés par les détecteurs à une énergie précise est donné par :

$$N_m(E_\gamma) = N_\beta \times I_\gamma(E_\gamma) \times \epsilon(E_\gamma) \times \alpha_\tau \quad (4.7)$$

Où  $N_m(E_\gamma)$  est le nombre de coups mesurés à cette énergie,  $I_\gamma$  l'intensité de la transition,  $A$  l'activité de la source en Bq,  $\Delta t$  le temps de mesure en s,  $\alpha_\tau$  le facteur correctif du temps mort (voir partie 4.1)

et  $N_\beta = A\Delta t$  le nombre de bêta émis. D'où l'efficacité absolue,  $\epsilon(E_\gamma)$ , du système de détection pour une particule  $\gamma$  à l'énergie  $E_\gamma$  est donnée par :

$$\epsilon(E_\gamma) = \frac{N_m(E_\gamma)}{I_\gamma \times A\Delta t \times \alpha_\tau} \quad (4.8)$$

Le premier paramètre à déterminer est le nombre de gamma émis à une énergie donnée. Pour ce faire, on mesure les raies gamma les plus intenses du spectre 4.6. Nous en avons choisi dix, résumées dans le tableau 4.2 [87].

Énergie (keV)	Photons pour 100 désintégrations (%)
121.7817	28.41
244.6974	7.55
344.2785	26.59
443.9650	3.12
778.9045	12.97
867.3800	4.243
964.0790	14.50
1112.0760	13.41
1212.9480	1.416
1408.0130	20.85

TABLE 4.2 – Raies gamma du  $^{152}\text{Eu}$  utilisées pour l'estimation de l'efficacité absolue de FIPPS.

Le second paramètre à déterminer est l'activité de la source lors de la campagne de mesures. On dispose de l'activité nominale fournie par le constructeur en date de septembre 2012, en l'occurrence  $4.20(13) \times 10^5 \text{ Bq}$ . On peut donc facilement remonter via la décroissance radioactive de l' $^{152}\text{Eu}$  à l'activité lors du cycle 183 en date de novembre 2018. En l'occurrence  $3.07(10) \times 10^5 \text{ Bq}$ . Les points d'efficacité sont ensuite ajustés en utilisant la fonction 4.9.

$$\epsilon(E_\gamma) = p_0 (\exp(p_2 \ln E + p_1 \ln E^2 + p_3 \ln E^3 + p_4 \ln E^4)) \quad (4.9)$$

La courbe obtenue est présentée sur la figure 4.7. Dans cette dernière, les effets de sommations détaillés dans la section suivante sont déjà pris en compte.

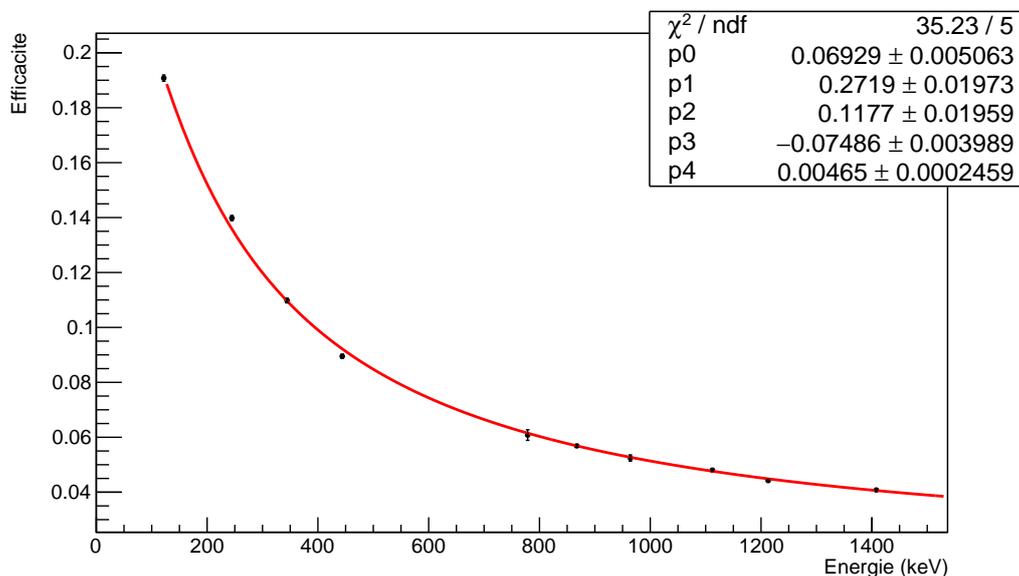


FIGURE 4.7 – Courbe d’efficacité spectromètre FIPPS réduit à 15 clovers sans addback - première estimation avec l’activité nominale.

Cependant, cette méthode de détermination de l’efficacité n’est pas optimale et ce pour deux principales raisons. Premièrement, l’activité de la source n’est pas suffisamment bien connue car le constructeur la fournit avec une incertitude de l’ordre de 10%. Cette incertitude se répercute par la suite sur l’efficacité et sur tous nos résultats. Deuxièmement, en prenant en compte uniquement des raies gamma de l’ $^{152}\text{Eu}$  on ne maîtrise pas notre efficacité sur l’ensemble de la gamme en énergie. Il nous manque des données en dessous de 120 keV et au dessus de 1408 keV. Il est donc nécessaire d’utiliser une autre méthode pour déterminer l’efficacité.

### 4.3.2 Effets de sommation

Il est important de s’arrêter sur le phénomène dit des "effets de sommation" car il a un impact important sur le calcul de l’efficacité et donc dans toute notre analyse. En effet, pour déterminer l’efficacité, nous effectuons un travail de spectrométrie gamma et donc dans la pratique un comptage du nombre de gamma mesurés par le spectromètre à une énergie donnée. Or, il est possible que deux rayons gamma d’une même cascade de désexcitation soient détectés en même temps par un même cristal. Par conséquent, ces deux rayons gamma (d’énergie  $E_1$  et  $E_2$  par exemple) seront comptés comme un gamma unique d’énergie  $E_1 + E_2$ . Cet effet entraîne une « perte » d’information sur les deux rayons gamma d’origine et a une incidence sur le spectre mesuré. Il est nécessaire de corriger les effets de sommation pour mesurer précisément un spectre de rayon gamma.

Pour ce faire, on détermine un coefficient correctif des effets de sommation en utilisant des simulations Geant4 de FIPPS. On réalise une simulation du dispositif avec une source d’ $^{152}\text{Eu}$ , et des simulations avec une source de rayons gamma monoénergétiques dont l’énergie est choisie identique à

celle de la transition émise par la source d' $^{152}\text{Eu}$  que l'on veut traiter. Pour chaque transition, le coefficient correctif des effets de sommation  $\alpha_{E_\gamma}^s$  est égal au rapport du nombre de rayons gamma détectés par le spectromètre FIPPS dans la simulation monoénergétique et du nombre de gamma détectés dans la simulation avec la source d' $^{152}\text{Eu}$ .

$$\alpha_{E_\gamma}^s = \frac{n_m^{Eu}(E_\gamma)/n_e^{Eu}I_\gamma}{n_m^{mono}(E_\gamma)/n_e^{mono}I_\gamma} \quad (4.10)$$

Avec :

- $n_m^{Eu}(E_\gamma)$  le nombre de coups mesurés avec la source europium à l'énergie  $E_\gamma$
- $n_m^{mono}(E_\gamma)$  le nombre de coups mesurés avec la source mono-énergétique à l'énergie  $E_\gamma$
- $I_\gamma$  l'intensité de la raie à l'énergie  $E_\gamma$
- $n_e^{Eu}$  le nombre de désintégration beta dans la simulation de la source d' $^{152}\text{Eu}$ .
- $n_e^{mono}$  le nombre de rayons gamma émis dans la simulation monoénergétique.

Les pertes par effet de sommation pour la source d' $^{152}\text{Eu}$  dans le spectromètre FIPPS (où on ne considère que 15 clovers sans addback) sont détaillées dans le tableau 4.3. Elles sont assez faibles, de l'ordre du %. Le facteur correctif peut s'obtenir avec la relation :  $\alpha_{E_\gamma}^s = 1/(1-p)$  où  $p$  est la perte par effet de sommation.

Énergie (keV)	Perte par effet de sommations (en %)
121.7817	0.9
244.6974	1.6
344.2785	0.4
443.9650	1.3
778.9045	1.3
867.3800	3.0
964.0790	0.9
1112.0760	0.5
1212.9480	0.4
1408.0130	1.0

TABLE 4.3 – Perte par effet de sommations dans le spectromètre FIPPS (réduit à 15 clovers) sans addback pour les dix transitions gamma utilisées de l' $^{152}\text{Eu}$ .

### 4.3.3 Efficacité absolue en utilisant les coïncidences et la simulation

Pour pallier aux problèmes rencontrés lors de l'estimation de l'efficacité, nous avons développé une méthode pour remonter à l'activité indépendamment de l'efficacité du système et sans utiliser celle fournie par le constructeur mais uniquement nos données. Elle a été testé avec succès dans le cas de l'expérience avec une cible d' $^{235}\text{U}$  non active par Mattéo Ballu dans le cadre des ses travaux de thèse. Je l'ai appliquée dans le cas de la cible active. Pour ce faire, nous utilisons les données de l' $^{152}\text{Eu}$  en coïncidence. Le nombre de coïncidences  $\gamma_1\gamma_2$  émis est  $n_e = ATI_{12}$  mais le nombre de coïncidences

réellement mesurées est  $n_m = n_m^v + n_m^F$  avec  $n_m^v$  le nombre de coïncidence vraies et  $n_m^F$  le nombre de coïncidences fortuites. Or :

$$n_m^v = A T I_{12} \sum_{i=1}^N \sum_{k=1; k \neq i}^N \epsilon_i(E_1) \epsilon_k(E_2) \alpha_\tau^2 \alpha_{ik}^s \quad (4.11)$$

avec :

- $n_m^v$  le nombre de coïncidences mesurées.
- $N$  le nombre de cristaux, ici  $N=60$ .
- $A$  l'activité de la source d' $^{152}Eu$ .
- $T$  la durée de l'acquisition des données analysées (en l'occurrence 300s pour un fichier).
- $I_{12}$  l'intensité des deux transitions gamma considérés en coïncidence.
- $\epsilon_i(E_1)$  : l'efficacité du cristal indexé  $i$  à l'énergie  $E_1$ .
- $\epsilon_k(E_2)$  : l'efficacité du cristal indexé  $k$  à l'énergie  $E_2$ .
- $\alpha_\tau$  le facteur correctif du temps mort.
- $\alpha_{ik}^s$  la correction des effets de sommation.

A noter que ce dernier terme concernant les pertes par effets de sommation de trois rayons gamma est négligeable ici pour les coïncidences observées de l' $^{152}Eu$  ( $<1\%$ ) car ce dernier se désintègre principalement avec l'émission de deux rayons gamma. On fait ensuite l'hypothèse que :

$$\begin{aligned} \epsilon(E_1, E_2) &= \sum_{k=1; k \neq i}^N \epsilon_i(E_1) \epsilon_k(E_2) \\ &\approx N(N-1) \frac{\epsilon(E_1)}{N} \frac{\epsilon(E_2)}{N} \\ &\approx \frac{N-1}{N} \epsilon(E_1) \epsilon(E_2) \end{aligned} \quad (4.12)$$

où  $\epsilon(E) = \sum_{i=1}^N \epsilon_i$

Si on injecte 4.12 dans 4.11, on trouve :

$$n_m^v(E_1, E_2) = A T I_{12} \alpha_\tau^2 \frac{N-1}{N} \epsilon(E_1) \epsilon(E_2) \quad (4.13)$$

Or, on sait que :

$$\begin{aligned} n_m(E_1) &= A T I_1 \alpha_\tau \alpha_{\gamma_1}^s \epsilon(E_1) \\ n_m(E_2) &= A T I_2 \alpha_\tau \alpha_{\gamma_2}^s \epsilon(E_2) \end{aligned} \quad (4.14)$$

avec  $n_m(E_1)$  le nombre de coïncidences mesurées dans le premier détecteur et  $n_m(E_2)$  le nombre de coïncidences mesurées dans le second détecteur. Et maintenant, si on divise 4.13 par 4.14, on trouve :

$$\frac{n_m^v(E_1, E_2)}{n_m(E_1)n_m(E_2)} = \frac{1}{A T} \frac{I_{12}}{I_1 I_2} \frac{1}{\alpha_{\gamma_1}^s \alpha_{\gamma_2}^s} \frac{N-1}{N} \quad (4.15)$$

On obtient ainsi l'expression de l'activité, indépendante de l'activité d'origine :

$$A = \frac{1}{T} \frac{I_{12}}{I_1 I_2} \frac{\alpha_{\gamma_1 \gamma_2}^s}{\alpha_{\gamma_1}^s \alpha_{\gamma_2}^s} \frac{N-1}{N} \frac{n_m(E_1) n_m(E_2)}{n_m^v(E_1, E_2)} \quad (4.16)$$

Désormais, dans l'expression 4.16, il reste à déterminer le nombre de coïncidences vraies  $n_m^v(E_1, E_2)$  qui correspond au nombre de coïncidences mesurées  $n_m(E_1, E_2)$  moins le nombre de coïncidences fortuites  $n_m^f(E_1, E_2)$  :  $n_m^v = n_m - n_m^f$ . L'inconnu ici est  $n_m^f$  que l'on ne peut pas directement mesurer. D'après [82], le taux de coïncidences fortuites entre deux détecteurs est :

$$\frac{n_m^f(E_1, E_2)}{T} = \frac{n_m(E_1)}{T} \times \frac{n_m(E_2)}{T} \times \Delta T \quad (4.17)$$

Avec  $\Delta T$  un intervalle de temps et  $n_m(E_1)$  et  $n_m(E_2)$  définis en 4.14.

A partir de 4.17 on définit maintenant  $n_{1,2}^f$  le taux de coïncidences fortuites entre deux transitions gamma en coïncidences et  $n_{1,1}^f$  le taux de coïncidences fortuites pour la même transition gamma. L'avantage est que  $n_{1,1}^f$  est mesurable et nous permettra de calculer  $n_{1,2}^f$ . On a :

$$\begin{aligned} \frac{n_{1,2}^f}{T} &= \frac{n_m(E_1)}{T} \times \frac{n_m(E_2)}{T} \times \Delta T \\ n_{1,2}^f &= A I_1 \alpha_\tau \alpha_{\gamma_1}^s \epsilon(E_1) \times A I_2 \alpha_\tau \alpha_{\gamma_2}^s \epsilon(E_2) \times \Delta T \end{aligned} \quad (4.18)$$

$$\begin{aligned} \frac{n_{1,1}^f}{T} &= \frac{n_m(E_1)}{T} \times \frac{n_m(E_1)}{T} \times \Delta T \\ n_{1,1}^f &= A I_1 \alpha_\tau \alpha_{\gamma_1}^s \epsilon(E_1) \times A I_1 \alpha_\tau \alpha_{\gamma_1}^s \epsilon(E_1) \times \Delta T \end{aligned} \quad (4.19)$$

Maintenant, on effectue le ratio de 4.18 et 4.19, qui nous permet d'extraire l'expression du nombre de coïncidences fortuites  $n_{1,2}^f$  entre deux transitions gamma :

$$\begin{aligned} \frac{n_{1,2}^f}{n_{1,1}^f} &= \frac{I_2 \alpha_\tau \alpha_{\gamma_2}^s \epsilon(E_2)}{I_1 \alpha_\tau \alpha_{\gamma_1}^s \epsilon(E_1)} \\ n_{1,2}^f &= n_{1,1}^f \times \frac{I_2 \alpha_{\gamma_2}^s \epsilon(E_2)}{I_1 \alpha_{\gamma_1}^s \epsilon(E_1)} \end{aligned} \quad (4.20)$$

Nous avons maintenant toutes les informations pour calculer l'activité avec des paires de gamma en coïncidences de l' $^{152}\text{Eu}$ . Nous avons choisi les cinq suivantes :

- 121 keV & 1408 keV
- 344 keV & 778 keV
- 964 keV & 121 keV
- 1112 keV & 121 keV
- 244 keV & 121 keV

Il s'agit d'un processus itératif où l'activité est calculée une première fois et injectée dans l'opération effectuée précédemment pour la calculer de nouveau. Après une première itération, l'activité avec des paires de gamma en coïncidences de l' $^{152}\text{Eu}$  est montrée dans la figure 4.8. Le processus converge très rapidement et dès la deuxième itération le résultat est satisfaisant. Ce qui nous permet d'obtenir l'activité définitive illustrée dans la figure 4.9.

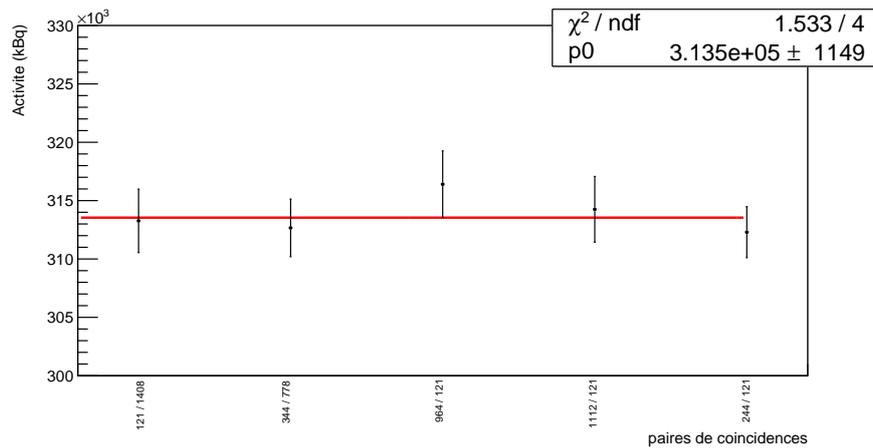


FIGURE 4.8 – Activité de la source d' $^{152}\text{Eu}$  calculée à partir de cinq paires différentes de rayons gamma en coïncidences après une première itération.

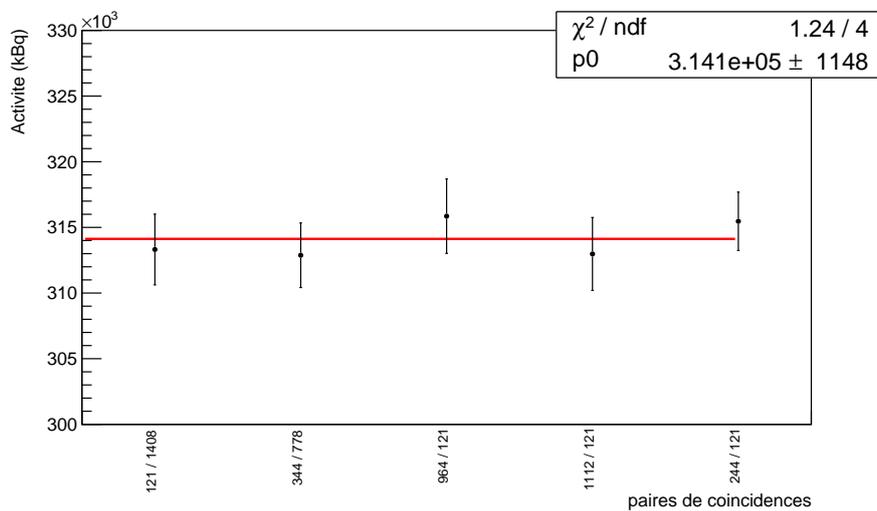


FIGURE 4.9 – Activité de la source d' $^{152}\text{Eu}$  calculée à partir de cinq paires différentes de rayons gamma en coïncidences après une deuxième itération.

Finalement, pour le calcul de l'efficacité nous avons donc pris en compte une activité égale à :  $A = 314 \text{ kBq} \pm 1 \text{ kBq}$ . Donc une incertitude de l'ordre de 0,3% contrairement aux 10% obtenu précé-

demment.

Le calcul de l'efficacité s'effectue avec les transitions gamma de l' $^{152}\text{Eu}$ , donc dans une gamme en énergie comprise globalement entre 100 keV et 1500 keV. Pour obtenir la courbe d'efficacité pour les hautes énergies, supérieures à 1500 keV, il faut trouver d'autres transitions. On commence par rajouter un pic correspondant à la somme des rayons X de la couche  $K_\alpha$  de l' $^{152}\text{Eu}$  situé à 39.5229 keV et 40.1186 keV.

On rajoute également quatre pics correspondant à des transitions gamma provenant d'une réaction  $(n, \gamma)$  sur l' $^{27}\text{Al}$  et d'énergie :

- 1408.22 keV
- 2590.19 keV
- 3034.09 keV
- 4133.98 keV

Nous avons choisi ces quatre transitions car ce sont celles sur lesquelles les effets de sommations sont les plus faibles, inférieurs à 1%. Ces effets peuvent être obtenus car nous disposons de la simulation Geant4 du dispositif et que les désintégrations  $(n, \gamma)$  de l' $^{27}\text{Al}$  ont été implémentées dans FIFRELIN [88]. La transition de 1408.22 keV a été choisie car très proche de celle de 1408 keV de l' $^{152}\text{Eu}$ , elle permet de faire le lien et de garder la continuité entre les points issus des transitions de l' $^{152}\text{Eu}$  et ceux issus de la  $(n, \gamma)$ . Finalement, on obtient 14 points expérimentaux tel que présenté dans la figure 4.10. Les données sont modélisées en utilisant la fonction 4.21 de l'efficacité absolue à une énergie d'un gamma donné. Ce sont les valeurs données par la fonction que nous utiliserons par la suite.

$$\epsilon(E_\gamma) = \exp(p_0 + (p_1 + p_2 \exp(-p_3 E_\gamma)) \ln E_\gamma + p_4 \ln E_\gamma^2 + p_5 \ln E_\gamma^3) \quad (4.21)$$

Le rapport, pour chaque point, entre les données et la fonction 4.21 est présenté dans la figure 4.11. Il nous permet d'illustrer que notre fonction modélise correctement nos données.

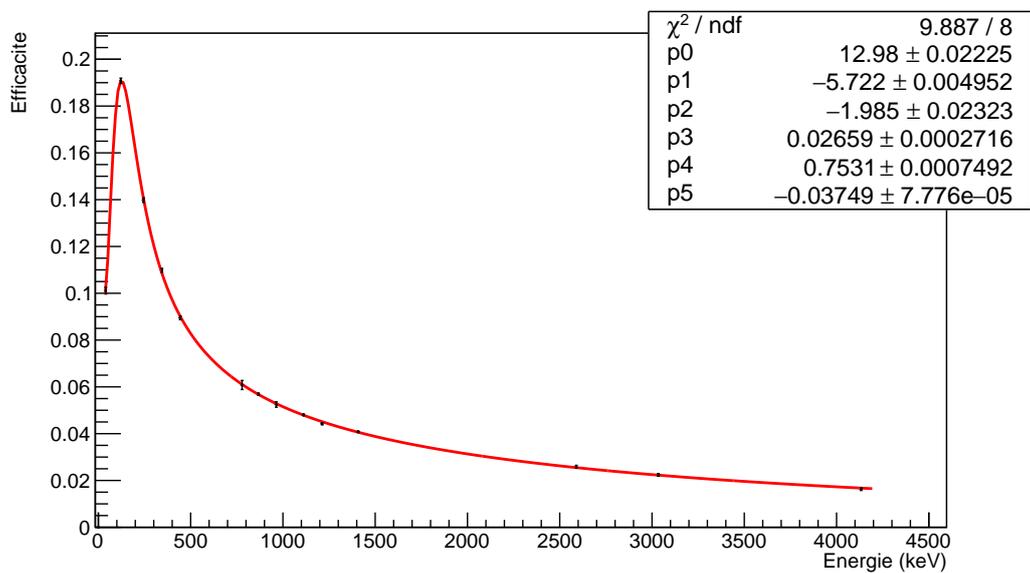


FIGURE 4.10 – Courbe d’efficacité expérimentale du spectromètre FIPPS (réduit à 15 clovers, sans addback)

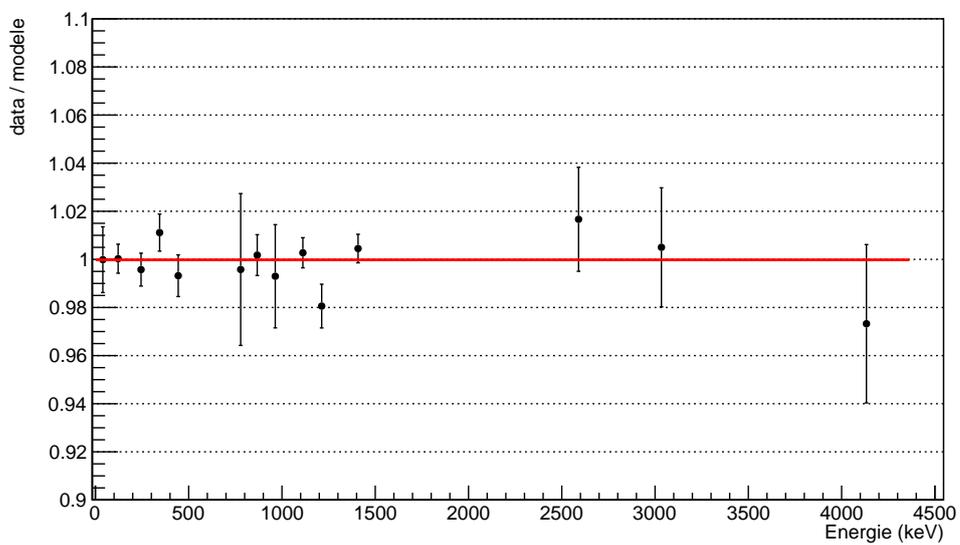


FIGURE 4.11 – Rapport entre l’efficacité calculée avec nos données et l’efficacité modélisée.

Enfin, nous pouvons comparer l'efficacité calculée précédemment, et illustrée dans la figure 4.11, avec la simulation Geant4. C'est ce qui est montré dans la figure 4.12. On note que la simulation (points verts) surestime d'environ 30% les données à très basse énergie. Entre 100 keV et 250 keV, la simulation est supérieure d'environ 5%. Enfin, plus l'énergie augmente, plus la simulation devient proche des données. C'est en raison de cette grande différence à basse énergie que nous n'avons pas utilisé l'efficacité simulée. Les simulations Geant4 ne sont utilisées que pour l'estimation des effets de sommation, qui sont dans le cas de la source de  $^{152}\text{Eu}$  de l'ordre de 0.5% à 3%. Ils sont suffisamment faibles pour que l'on puisse considérer les simulations valables lors de ces calculs.

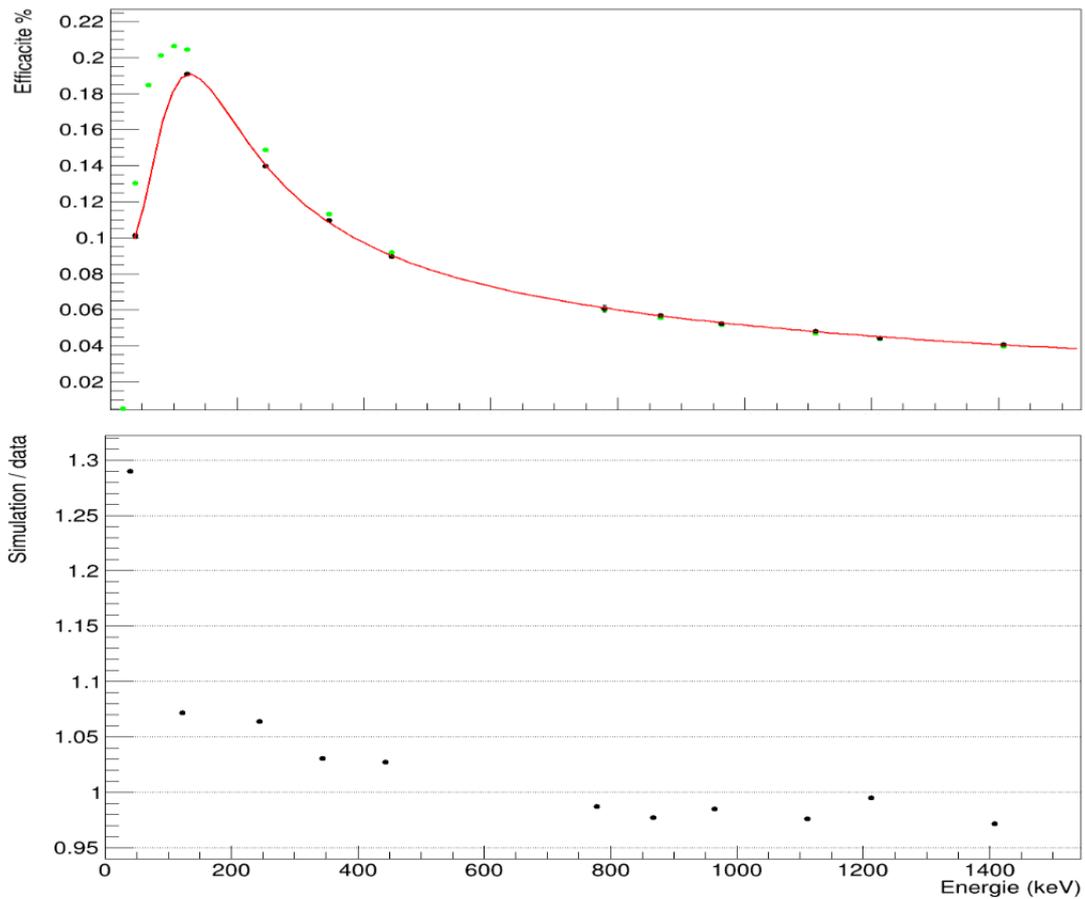


FIGURE 4.12 – En haut, la comparaison entre l'efficacité simulée, en vert, et calculée avec les données, en noir. L'ajustement des données est en rouge. En bas, le rapport entre les points simulés et calculés avec les données.

## 4.4 Analyse de la réponse de la cible active et estimation du nombre de fissions

Le principal avantage de la campagne de mesures avec la cible active réside dans la possibilité de remonter au nombre absolu de fissions dans nos données. C'est une particularité cruciale car elle nous permettra par la suite de réaliser une normalisation absolue (et pas relative) des mesures de rendements.

Pour estimer ce nombre, il faut partir du spectre en énergie du photomultiplicateur déjà présenté sur la figure 2.7. Le spectre du PMT comprend deux composantes, une exponentielle décroissante et une gaussienne, en plus d'un effet de seuil en raison d'un filtrage des basses énergies. L'histogramme des énergies cinétiques de tous les fragments de fission forme une gaussienne selon FIFRELIN. Donc la composante gaussienne du spectre du PMT peut correspondre à la distribution des énergies cinétiques des fragments de fission, élargie par la résolution en énergie du scintillateur. Cette gaussienne correspond donc aux événements de fission. La tendance exponentielle, quant à elle, traduit la somme de toutes les distributions en énergies des bêta issues des désintégrations  $\beta$  des fragments de fission [89] et de la décroissance de l' $^{28}\text{Al}$  créée par activation neutronique de l' $^{27}\text{Al}$ . Le Quenching d'ionisation permet d'expliquer pourquoi la quantité de charge collectée par événement  $\beta$  et par événement fission est du même ordre de grandeur alors que les énergies cinétiques mises en jeu ne le sont pas [90]. L'énergie cinétique moyenne des fragments pour la fission de l' $^{235}\text{U}$  est de l'ordre de 170 MeV mais inférieure à 10 MeV pour les bêta.

Ces deux composantes sont raffinées afin de prendre en compte d'autres effets. En observant la distribution en énergie des  $\beta$  du  $^{235}\text{U}$  on observe une tendance exponentielle avec une légère inflexion à haute énergie. Cette tendance est introduite à l'aide d'une exponentielle décroissante avec un polynôme de degrés 2. L'autre effet est la prise en compte des fissions ternaires. En effet, il est possible qu'au lieu de former deux fragments par fission, la fission forme parfois deux fragments plus un noyau léger, typiquement un hélium ( $\cong 0,17\%$  des fissions pour l' $^{235}\text{U}$ ). La fonction utilisée pour ajuster les données du spectre du PMT a été proposée par Quentin Poirier [91]. Elle est détaillée dans les équations 4.22, 4.24 et 4.23.

$$N_{\text{spectre}}(x) = N_{\text{fission}}(x) + N_{\beta}(x) \quad (4.22)$$

$$N_{\text{fission}}(x) = \frac{N_{\text{kin}}}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-(x-\mu)^2/2\sigma^2} + \frac{N_0(1 + \tanh(\tau_0 - k_0x))}{\sqrt{2\pi}\sigma_0} e^{-(x-\mu_0)^2/2\sigma_0^2} + \frac{N_1(1 + \tanh(\tau_1 - k_1x))}{\sqrt{2\pi}\sigma_1} e^{-(x-\mu_1)^2/2\sigma_1^2} \quad (4.23)$$

$$N_{\beta}(x) = N_b(x) \exp(-(\lambda_0x + \lambda_1x^2)) \quad (4.24)$$

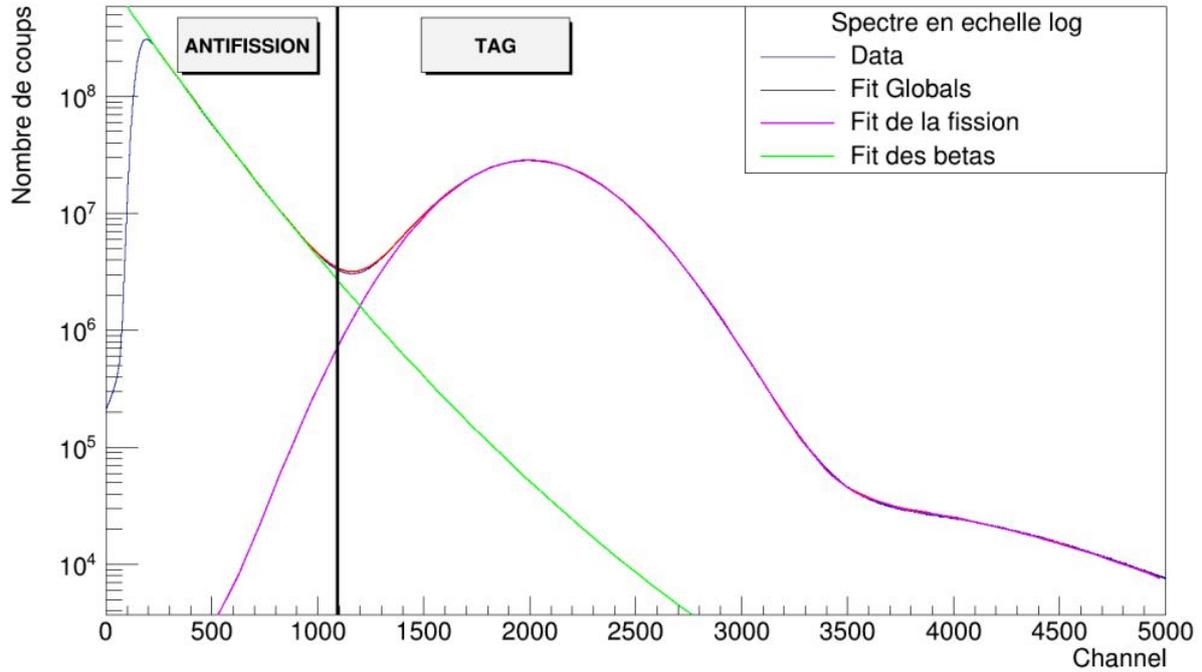


FIGURE 4.13 – Spectre du PMT en échelle logarithmique, ajusté via les équations 4.22, 4.24 et 4.23.

Le nombre total de fissions correspond alors à l'intégrale sur le spectre entier de la composante fission, soit :  $n_{fission}^{tag} = \int_0^{\infty} N_{fission} dE = 2.447 \cdot 10^{10} \pm 7,2 \cdot 10^7$ . Le nombre total de fission au dessus du seuil est de  $n_{fission}^{tag} = \int_{1100}^{\infty} N_{fission} dE = 2.437 \cdot 10^{10} \pm 7,2 \cdot 10^7$ . Il arrive que le photomultiplicateur soit touché deux fois dans la fenêtre en coïncidence de 400 ns. Si on rejette ces cas, le nombre total de fissions au dessus du seuil est finalement :  $n_{fission}^{tag} = 2.418 \cdot 10^{10} \pm 7,2 \cdot 10^7$ . C'est cette valeur qui sera utilisée par la suite dans les calculs de rendement par spectrométrie des rayons gamma prompts.

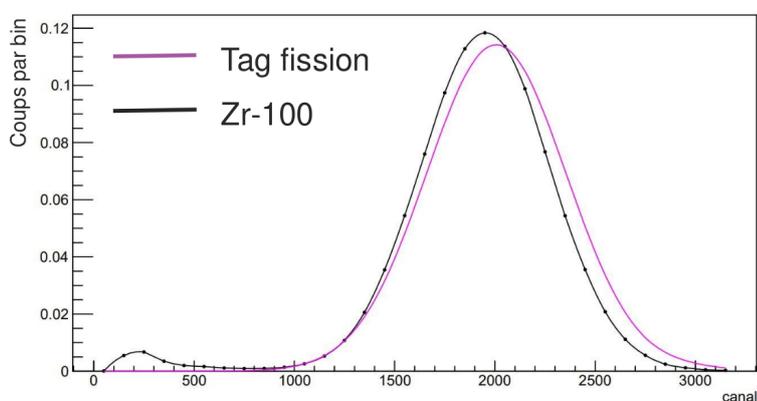
Le spectre du PMT est illustré sur la figure 4.13. Nous avons défini sur ce spectre un seuil  $S_{PMT} = 1100$  au dessus duquel nous considérons que les évènements sont en coïncidence avec la fission. Cependant certains évènements en coïncidence avec la fission ne le sont pas vraiment, ceci peut également être observé sur la figure 4.13.

Par intégration, on peut estimer ces contaminations respectives :

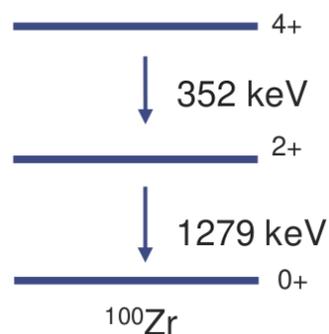
- $2.24 \pm 0.01$  % des évènements supérieurs au seuil  $S_{PMT}$  sont des  $\beta$  et non pas de la fission.
- $0.35 \pm 0.01$  % des fissions sont situées sous le seuil  $S_{PMT}$ .

La question est maintenant de vérifier le bon fonctionnement de la cible active (donc du tag fission) et de la discrimination entre les évènements issus de la fission et les autres. Ces autres évènements proviennent essentiellement de la décroissance bêta des fragments de fission. Pour ce faire, on utilise deux produits de fission, le  $^{100}\text{Zr}$  et le  $^{138}\text{Ba}$ . En effet, la particularité du  $^{100}\text{Zr}$  est qu'il est produit très majoritairement directement par la fission alors que le  $^{138}\text{Ba}$  est issu très majoritairement de la

radioactivité  $\beta^-$  du  $^{138}\text{Cs}$ . Dans le cas du  $^{100}\text{Zr}$  on sélectionne deux transitions gamma en coïncidence de son schéma de niveau, celles illustrées dans la figure 4.14b, et on regarde leur position dans le tag fission. Le résultat est montré dans la figure 4.14a. On observe que la courbe noire correspondant aux transitions en coïncidence du  $^{100}\text{Zr}$  est quasiment superposée avec la bosse correspondant aux événements de fission et centré sur le canal 2000. Ce résultat est logique pour un fragment produit directement par la fission. De la même manière, on effectue la même opération pour le  $^{138}\text{Ba}$ , les transitions en coïncidences utilisées sont présentées sur la figure 4.15b et le résultat sur la figure 4.15a. Cette fois ci, on note que la courbe noire correspondant aux transitions en coïncidence du  $^{138}\text{Ba}$  est située entièrement en dehors de la bosse correspondant aux événements de fission ce qui est logique puisque le  $^{138}\text{Ba}$  est produit par radioactivité  $\beta^-$ . Le tag fission permet donc bien de séparer les événements provenant de la fission des autres.



(a) Position dans le tag fission du  $^{100}\text{Zr}$ . La courbe en rose correspond à l'ajustement en rose également de la figure 4.13.

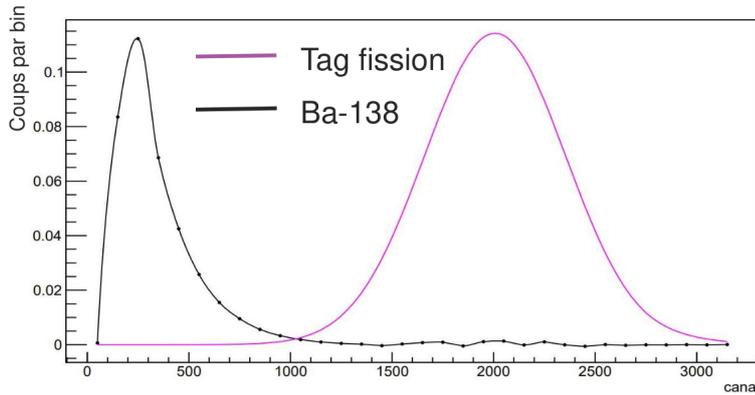


(b) Le  $^{100}\text{Zr}$  est produit principalement par la fission.

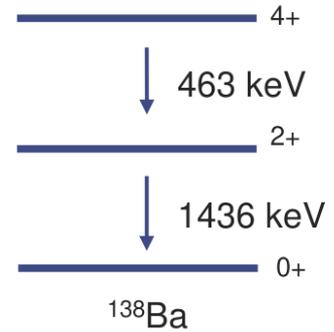
FIGURE 4.14 – Vérification du bon fonctionnement du tag fission pour discriminer les événements issus de la fission de tous les autres. Ici en utilisant le  $^{100}\text{Zr}$ .

## 4.5 Vérification du nombre de fissions avec les rayons gamma retardés

Afin de tester la cohérence du nombre de fissions obtenu via le spectre du PMT, une deuxième méthode a été développée, indépendante de la précédente. Comme expliqué précédemment, le nombre de fission est un facteur de normalisation commun à toutes les distributions de  $\gamma$ . Le nombre de  $\gamma$  retardés associés à la désintégration  $\beta$  d'un produit de fission est relié au nombre de fissions ayant eu lieu durant la mesure. Ceci est également vrai pour le nombre de coïncidences entre deux  $\gamma$  après une désintégration  $\beta$ . Ainsi en extrayant le nombre de coïncidences  $N_{\gamma\gamma}$  associées à un produit de fission dans la matrice des  $\gamma$  retardés en coïncidence, il est possible, via l'utilisation de données nucléaires, de remonter au nombre de fissions. La matrice des gamma retardés en coïncidence correspond à une matrice des données en "antiFission". C'est à dire une matrice contenant tous les événements qui ne sont pas de la fission (essentiellement des désintégrations bêta).



(a) Position dans le tag fission du  $^{138}\text{Ba}$ . La courbe en rose correspond à l'ajustement en rose également de la figure 4.13.



(b) Le  $^{138}\text{Ba}$  est produit par radioactivité  $\beta^-$  du  $^{138}\text{Cs}$

FIGURE 4.15 – Vérification du bon fonctionnement du tag fission pour discriminer les évènements issus de la fission de tous les autres. Ici en utilisant le  $^{142}\text{Ba}$ .

$$N_{fission-\gamma\gamma} = \frac{N_{fit} \alpha_\tau^2}{\epsilon \tau^{ICC} y_c I_\beta} \quad (4.25)$$

- $N_{fit}$  correspond au nombre de coïncidences.
- $\alpha_\tau$  est une correction prenant en compte le temps mort du système d'acquisition.
- $\tau^{ICC} = \frac{1}{(1 + \alpha)}$  avec  $\alpha$  le coefficient de transition interne (ICC).
- $\epsilon$  est l'efficacité du système de détection.
- $I_\beta$  correspond à la ou les probabilité(s) d'émission(s) du premier gamma de la chaîne de coïncidences par décroissance  $\beta$ .
- $y_c$  correspond aux rendements cumulés du père (JEFF 3.3).

L'obtention de la correction due au temps mort a déjà été expliquée dans la section 4.1. Les coefficients de transition interne sont obtenus via le code BrIcc [92]. L'efficacité est obtenue selon la méthode présentée dans la section précédente. Enfin, les données  $I_\beta$  et les rendements proviennent de NNDC [93]. Pour obtenir le nombre de fissions via la vérification croisée il ne reste donc qu'à extraire un nombre de coïncidences. Nous effectuons ce travail de vérification pour une dizaine de noyaux produits par désintégration bêta. Nous avons choisi les plus produits et ceux présentant les coïncidences les plus nettes et les moins polluées par le bruit de fond. Dans chaque cas nous pouvons extraire le nombre de coïncidences selon deux méthodes différentes.

La première consiste à travailler en deux dimensions. Bien que les données bêtas soient plus propres que les données fission, il reste une perturbation importante en raison du spectre d'émission du rayonnement Compton de tous les rayons gammas émis. En effet, imaginons un cas simple : soit 2 gamma  $\gamma_1$  et  $\gamma_2$  en coïncidence, d'énergie respective  $E_1$  et  $E_2$ .  $\gamma_1$  peut interagir par effet photoélectrique dans un des cristaux.  $\gamma_2$ , quant à lui, a plusieurs interactions possibles, soit ne pas interagir du tout, soit par effet photoélectrique, soit par effet Compton, ou bien par création paire. Si le  $\gamma_2$  réalise un Compton

avec un cristal et dépose  $\Delta E$  énergie , alors du point de vue du système ,  $\gamma_1(E_1)$  et  $\gamma_2(\Delta E)$  sont en coïncidence. Évidemment, des cas intermédiaires sont possibles avec deux gamma ayant tous deux interagit par effet Compton. Ce phénomène se traduit dans la matrice par des "tunnels de coïncidence " que l'on nomme "tunnels Compton" compliquant l'analyse. Une illustration est fournie à la figure 4.16. La deuxième méthode consiste à projeter et soustraire le bruit de fond sur un axe puis d'ajuster les gaussiennes en une dimension. Cette méthode permet certes de pouvoir mieux discerner les coïncidences du bruit de fond mais implique un risque de perdre de la statique en soustrayant plus que du bruit de fond. Pour illustrer ces deux méthodes, prenons le cas simple du  $^{129}_{52}\text{Te}$  et d'une coïncidence entre un gamma de 1031 keV, et un autre de 814 keV. L'allure de la matrice à  $8\sigma$  autour du pic est montré dans la figure 4.16. Dans cette exemple quelle que soit la méthode , il faudra prendre en compte et ajuster en conséquence les "tunnels Compton". Pour l'ajustement tous les paramètres sont libres . Le résultat pour les deux méthodes est illustré dans la figure 4.17.

	2D	1D
Nombre de coups	$(6.20 \pm 0.08) \times 10^4$	$(6.90 \pm 0.08) \times 10^4$
$\chi_r^2$	2.68	6.78

TABLE 4.4 – Tableau récapitulatif des résultats obtenus avec les deux méthodes.

Dans les deux cas l'ajustement est satisfaisant, en effet dans les deux cas les "tunnels Compton" sont reproduits. Cependant on observe un écart que les incertitudes ne permettent pas d'expliquer. Ici, par exemple, on se trouve dans le cas où l'ajustement en 2D serait pertinent, car le  $\chi^2$  réduit est le plus faible.

Désormais, on peut comparer pour une dizaine de produits de fission, le nombre de coïncidences prédit par les données nucléaires avec le nombre de coïncidences déterminées avec les données FIPPS via la méthode précédente. Le résultat est dans la figure 4.18. Normalement, si le nombre de fissions déterminé en section 4.4 de  $N_{fission} = 2.447 \times 10^{10} \pm 7.2 \times 10^7$  était exact, le rapport devrait être égal à 1. Le nombre de fission calculé précédemment semble tout à fait pertinent puisque le rapport moyen est de  $0.97 \pm 0.02$ .

## 4.6 Conclusion

Pour conclure, nous avons commencé par estimer le temps mort du système d'acquisition à la fois pour le photomultiplicateur,  $\tau_{tag} = 0.25 \pm 0,05 \mu s$ , et les germanium,  $\tau = 5,1 \pm 0,3 \mu s$ . Ensuite, en nous appuyant sur les données prises avec une source d' $^{152}\text{Eu}$ , nous avons pu déterminer l'efficacité absolue du système de détection avec une incertitude inférieure à 2%. La principale difficulté pour calculer l'efficacité a été de s'affranchir de la valeur de l'activité fournie par le fabricant de la source d' $^{152}\text{Eu}$ . Toujours dans le cadre du calcul de l'efficacité il a également été nécessaire de déterminer la valeur des effets de sommations, ce qui a nécessité le développement et l'amélioration d'une simulation Geant4 du dispositif expérimentale. Enfin, nous avons utilisé la capacité de discrimination de la cible active pour estimer le nombre total de fission durant les 39 jours d'acquisition :  $2.4504 \times 10^{10} \pm 7,2 \times 10^7$ .

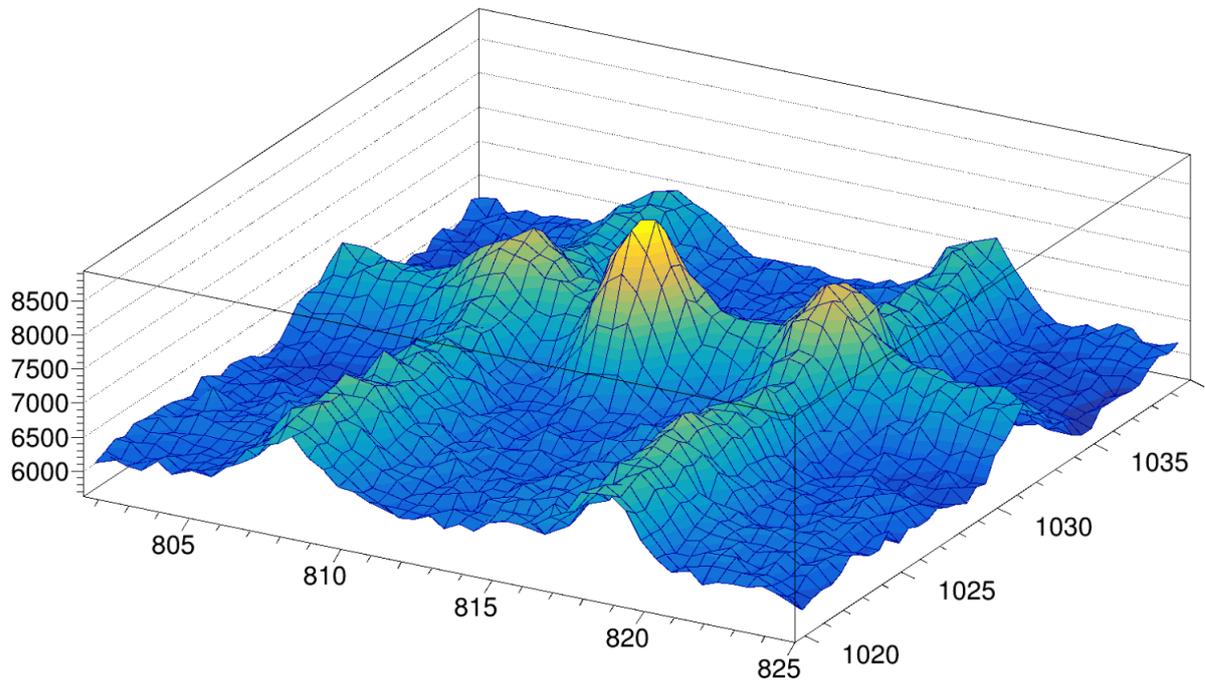


FIGURE 4.16 – Matrice centrée sur le pic du  $^{129}\text{Te}$  (1031 keV / 814 keV). L'axe Z représente le nombre de coups détectés pour le point d'énergie  $(E_1, E_2)$  pour un binning de 2 keV.

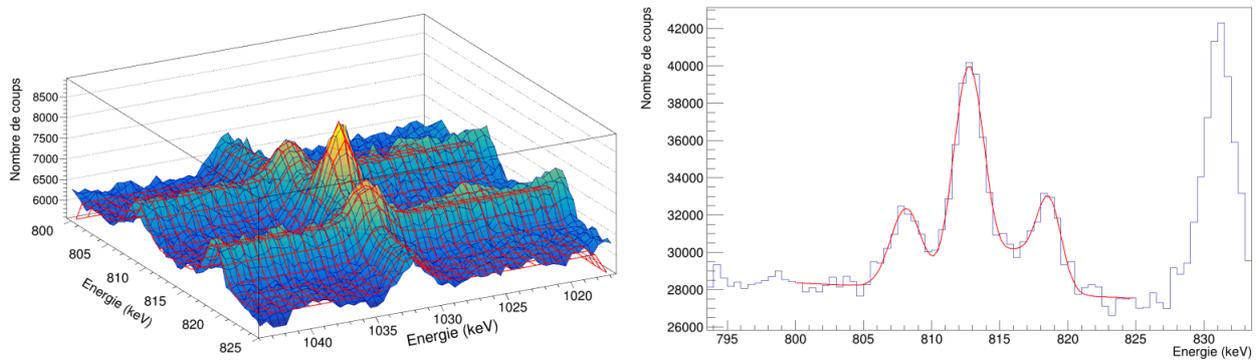


FIGURE 4.17 – A gauche, ajustement de la matrice 4.16 en 2D. A droite, ajustement de la même matrice en 1D.

Ce nombre, crucial pour la suite de l'analyse, a été également vérifié en utilisant les rayons gamma retardés.

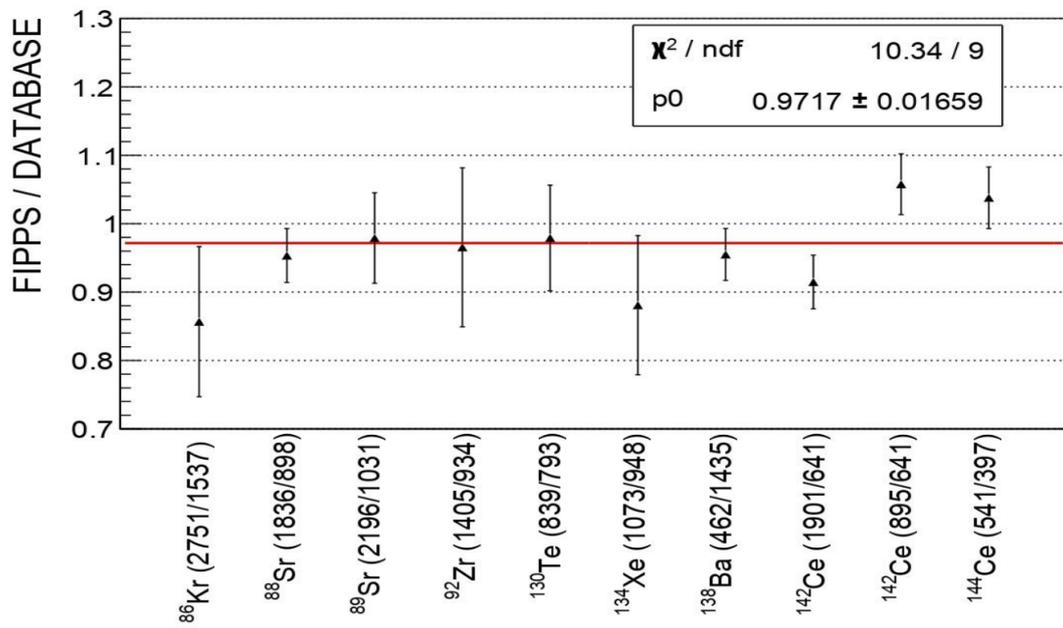


FIGURE 4.18 – Pour dix produits de fission, le nombre de coïncidences prédit par les données nucléaires avec le nombre de coïncidences déterminé avec les données FIPPS.



# Chapitre 5

## Mesure des rendements isotopiques des produits de fission par la spectrométrie des rayons gamma prompts

Dans ce chapitre, les données FIPPS seront utilisées pour mesurer les rendements de fission isotopiques indépendants d'une série de fragments pairs-pairs bien produits par la fission thermique de  $^{235}\text{U}$ . Pour commencer, je décrirai en détail la méthode que nous avons développée et les différentes corrections qui doivent être prises en compte. Ensuite, cette méthode sera appliquée à neuf fragments de fission et les résultats seront comparés aux valeurs des rendements évalués et, quand ils existent, aux rendements mesurés sur Lohengrin. Le cas spécifique de  $^{132}\text{Sn}$ , dont le rendement présente une anomalie en fission rapide, sera ensuite traité avec nos données. Je terminerai par une présentation globale de ces résultats.

### 5.1 Description de la méthode

Une fois le pré-traitement des données effectué, nous disposons des histogrammes en 1D, 2D et 3D des rayons gamma prompts de fission de  $^{235}\text{U}$ . L'objectif du travail est de déterminer s'il est possible d'utiliser une méthode de spectrométrie gamma pour remonter aux rendements isotopiques indépendants.

#### 5.1.1 Spectrométrie des gamma prompts

Une première méthode serait d'utiliser le spectre des rayons gamma prompts de fission de  $^{235}\text{U}$ , qui est présenté à la figure 5.1. En effet, le rendement d'un fragment de fission donné peut être obtenu en sommant toutes les transitions gamma observées vers l'état fondamental. Le tout devant être normalisé au nombre total de fissions. En pratique, le calcul du rendement d'un élément donné se résume à l'équation suivante :

$$Y\left(\frac{A}{Z}X\right) = \frac{1}{N_f} \times \sum_j \frac{N(E_j)}{\epsilon(E_j)} (1 + \alpha_j) \quad (5.1)$$

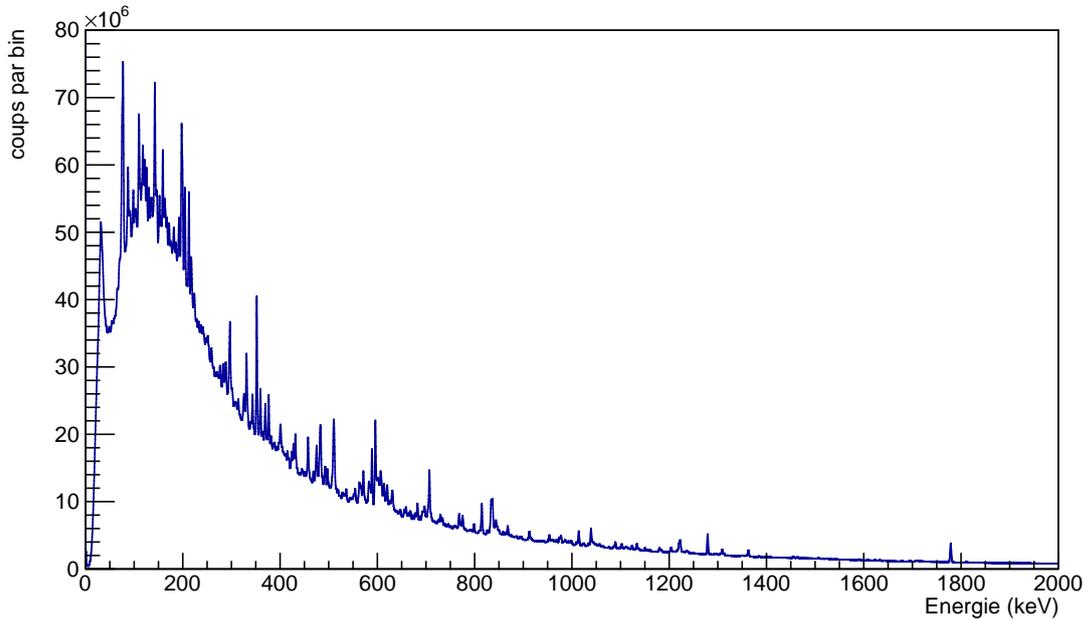


FIGURE 5.1 – Spectre des rayons gamma prompts en coïncidence avec le tag fission mesuré durant toute la durée du cycle 183 du réacteur de l'ILL avec le spectromètre FIPPS.

dans laquelle :

- $N_f$  correspond au nombre total de fissions, déterminé dans la sous section précédente 4.4.
- $N(E_j)$  est le nombre de rayon gamma de la transition  $j$  vers l'état fondamental.
- $\epsilon(E_j)$  est l'efficacité absolue de spectromètre FIPPS à l'énergie de la transition considérée.
- $\alpha_j$  est le coefficient de conversion interne (ICC) de la transition. Il permet de prendre en compte le fait qu'une partie de la transition s'effectue par conversion interne plutôt que par l'émission d'un rayon gamma.

Si le schéma de niveaux d'un élément était bien connu et plus précisément, si les transitions vers l'état fondamental étaient toutes identifiées, il serait donc possible de remonter à son rendement de fission. Avant de critiquer cette affirmation, on peut déjà en tirer une première limitation. Le schéma de niveaux d'un noyau n'est souvent que partiellement connu et il est d'autant plus exhaustif que ce noyau a été étudié et sa cascade mesurée avec plusieurs réactions. Le schéma de niveaux des noyaux très riches en neutrons sont donc parfois assez peu fournis. De plus, les transitions bien produites lors de la désexcitation d'un fragment de fission ne sont pas nécessairement identiques à celles bien produites par la désintégration beta du noyau père. Le schéma de niveaux des noyaux impair-pair, pair-impair et impair-impair sont souvent plus complexe que celui des noyaux pair-pair. C'est pourquoi, dans le cadre de l'étude qui suit, nous nous sommes limités à des fragments bien produits par la fission et aux noyaux pair-pair, dont le schéma de niveaux est assez bien établi.

Pour illustrer la méthode, je prendrai le cas du  $^{136}\text{Te}$ , un noyau pair-pair dont la cascade de

désexcitation gamma, reproduite à la figure 5.2 est un exemple parfait puisqu'elle ne présente qu'une seule transition très intense vers l'état fondamental.

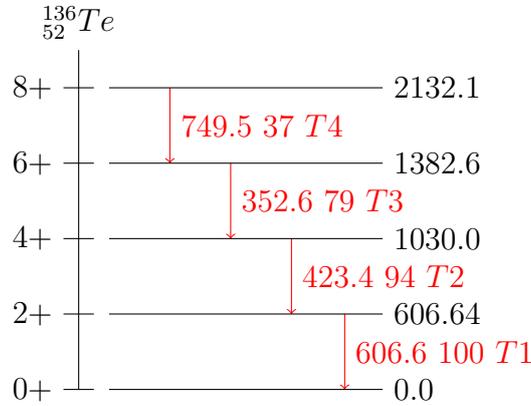


FIGURE 5.2 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{136}_{52}\text{Te}$  dans la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ . En rouge les transitions d'une intensité relative par rapport à la transition à l'état fondamental supérieur à 10%, en bleu supérieure à 1%. Le même code couleur sera utilisé par la suite sur toutes les illustrations de schéma de niveaux. Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [95].

Il suffirait donc de mesurer le nombre de gamma à 606.6 keV dans le spectre des gamma prompts de fission pour accéder directement au rendement du  $^{136}\text{Te}$ . Cependant, on remarque immédiatement sur le spectre des rayons gamma prompts, illustré à la figure 5.3, que la zone correspondant au pic du  $^{136}\text{Te}$  est bien trop dense. Le pic du  $^{136}\text{Te}$  est loin d'être le seul dans la région et une dizaine d'autres pics sont présents et ce, même après coïncidence avec le tag fission. Cette forte densité de pics est valable pour toute la gamme en énergie jusqu'à 1500 keV environ. Dans la pratique, il est donc difficile d'extraire les rendements des fragments de fission simplement à partir du spectre des gamma prompts sauf dans des cas très particuliers comme celui du  $^{132}\text{Sn}$  qui sera détaillé en partie 5.3.

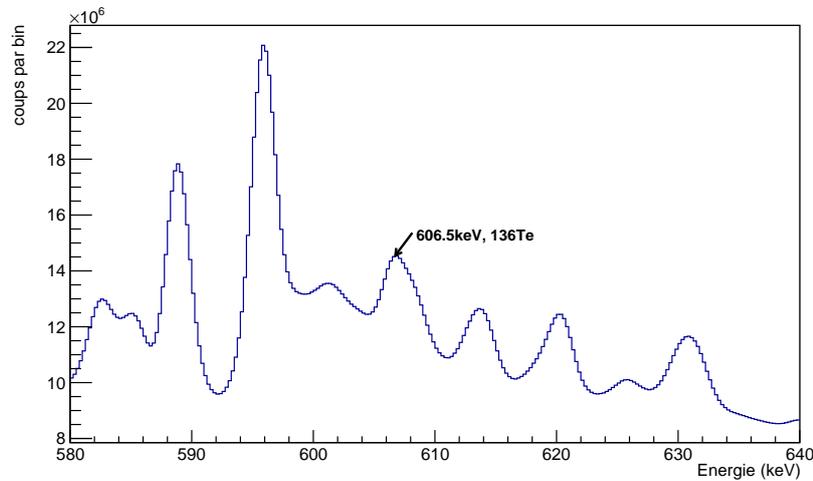


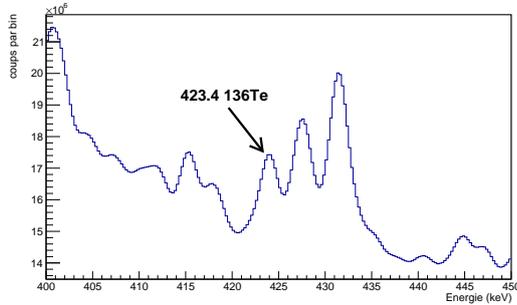
FIGURE 5.3 – Spectre des rayons gamma prompts en coïncidence avec le tag fission zoomé entre 580 keV et 640 keV.

### 5.1.2 Spectrométrie des coïncidences gamma-gamma

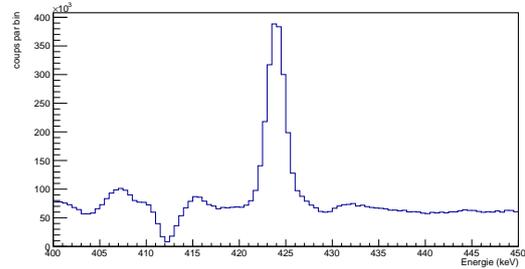
Il est donc nécessaire de trouver un autre moyen pour déterminer les rendements de fission. Pour ce faire, nous avons utilisé les matrices et les cubes de coïncidences créés lors du prétraitement des données. Pour illustrer la méthode, je prendrai encore une fois comme exemple le cas du  $^{136}\text{Te}$ .

Pour déterminer le rendement du  $^{136}\text{Te}$ , au lieu de compter le nombre de transitions à 606.6 keV comme précédemment, nous utilisons la matrice pour compter le nombre de transitions à 606.6 keV en coïncidence avec les transitions à 423.4 keV. Ce faisant, on s'affranchit du problème rencontré dans le spectre, à savoir la grande densité de pics ne correspondant pas aux transitions gamma du  $^{136}\text{Te}$ . C'est ce qui est illustré dans la figure 5.4a. Le pic correspondant à la transition à 423.4 keV du  $^{136}\text{Te}$  est noyé au milieu de nombreux autres pics provenant des transitions d'autres éléments. En pratique, on n'essaie pas d'ajuster (fitter) le pic à (606.6, 423.4) en 2D dans la matrice de coïncidence car cela est rendu particulièrement compliqué par les "tunnels Compton" déjà rencontrés en partie 4.5. On préfère utiliser une autre technique assez standard en spectroscopie gamma que l'on applique sur les données en mode "Fission" tel que défini dans la section 3.1 du chapitre 3. Dans un premier temps, on sélectionne dans la matrice tous les gamma en coïncidence avec la transition à 606.6 keV puis tous les gamma en coïncidence avec le bruit de fond. Ce bruit de fond provient en grande partie de la diffusion Compton des pics à plus haute énergie. On appelle ces sélections des **portes de coïncidence**, en l'occurrence ici la porte autour de 606.6 keV (603.5, 609.5) et la porte de bruit de fond (610, 616).

On obtient deux spectres dont on effectue la soustraction. Ce qui nous donne alors un dernier spectre 5.4b dans lequel la plupart des pics étrangers au  $^{136}\text{Te}$  ont été nettoyés et où les pics des transitions du  $^{136}\text{Te}$  ressortent clairement. En effet, sur le spectre 5.4b on remarque que contrairement à précédemment, le pic correspondant à la transition à 423.4 keV du  $^{136}\text{Te}$  ressort nettement.



(a) Spectre total des rayons gamma prompts zoomé entre 400 keV et 450 keV.



(b) Spectre des rayons gamma prompts en coïncidence avec la transition à 606 keV après soustraction du bruit de fond et zoomé entre 400 keV et 450 keV.

FIGURE 5.4 – Illustration du spectre des gamma prompts, avant (à gauche) et après (à droite) l’application de la méthode décrite.

Cependant, un premier problème apparaît. En effet, en ne comptant que le nombre de coïncidences (423.4,606.6), on ne prend pas en compte toutes les autres transitions possibles vers le niveau  $2+$  à 606 keV qui ne proviennent pas du niveau  $4+$  à 1030.0 keV. Ces transitions dites de *side feeding* (ou alimentation latérale) englobent trois cas différents :

- La production par fission directement au niveau  $2+$ .
- La production par fission puis émission de neutron vers le niveau  $2+$ .
- Un autre gamma provenant d’un niveau discret plus élevé ou du continuum vers le niveau  $2+$ .

Pour prendre en compte cette alimentation parallèle (*side feeding*), on mesure le rapport entre la production de la transition gamma à 424.4 keV et la production de celle à 606.6 keV. Ce rapport peut être déterminé avec nos données. Pour ce faire, nous utilisons le cube des données en coïncidence avec le tag fission (voir la section 3.1) et le fragment complémentaire le plus produit du  $^{136}\text{Te}$ , le  $^{98}\text{Zr}$  dont la cascade de désexcitation est présentée en 5.5.

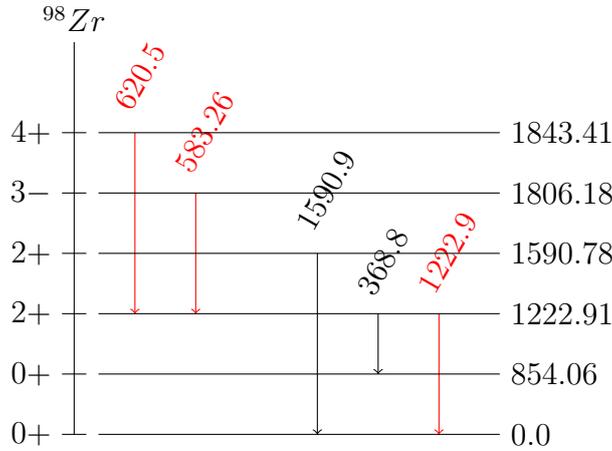


FIGURE 5.5 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{98}\text{Zr}$  dans la fission spontanée  $^{248}\text{Cm}$ .

Précédemment nous avons défini des "portes de coïncidence" à appliquer sur la matrice pour obtenir des spectres. Nous effectuons le même travail ici mais avec le cube donc en trois dimensions. On commence par sélectionner, dans le cube, deux portes de coïncidence comprenant les deux transitions les plus produites du fragment  $^{98}\text{Zr}$  complémentaire du  $^{136}\text{Te}$ . En l'occurrence les transitions (620.4, 1222.5) du  $^{98}\text{Zr}$  illustrées dans le schéma de niveaux 5.5. Ce faisant, on s'assure d'obtenir un spectre dans lequel les pics correspondant à la masse des  $^A\text{Te}$  seront prépondérants. Dans le spectre obtenu après cette double sélection, on mesure simplement le nombre de coups dans les pics correspondant aux deux transitions les plus produites du  $^{136}\text{Te}$ .

Il faut souligner un point important ici. Lorsqu'on effectue une sélection avec des portes de coïncidence sur une matrice, on parle de  **doubles coïncidences** . Lorsqu'on effectue cette sélection sur un cube on parle de  **triples coïncidences** . Un exemple de doubles coïncidences dans le  $^{136}\text{Te}$  correspond à la sélection (606.6, 423.4). Un exemple de triples coïncidences dans le  $^{136}\text{Te}$  et  $^{98}\text{Zr}$  correspond à la sélection (606.6, 423.4, 1222.6).

Moyennant la connaissance des efficacités aux énergies considérées, on peut obtenir le rapport R d'intensité entre les deux transitions. Il faut tout de même prendre en compte qu'en appliquant cette méthode sur le cube, la statistique est beaucoup plus faible qu'en appliquant une simple sélection sur la matrice. Le nombre de coups mesurés dans les pics du spectre obtenu sont de l'ordre de quelques milliers, accroissant les incertitudes. Maintenant que nous avons accès au rapport d'intensité, l'expression du rendement devient :

$$Y(^A_ZX) = \frac{1}{N_f} \times \frac{N_{\gamma_1\gamma_2}^{\text{coinc}}}{\epsilon(E_1, E_2)} \times \frac{1}{R} \quad (5.2)$$

avec :

- $N_f$  correspond au nombre total de fissions, déterminé précédemment dans la section 4.4.
- $N_{\gamma_1\gamma_2}^{\text{coinc}}$  est le nombre de coïncidences entre les 2 transitions considérées, déterminée avec la matrice des événements en coïncidence avec le tag fission.

- $\epsilon$  est l'efficacité absolue de FIPPS à l'énergie de la transition considérée. Avec  $\epsilon(E_1, E_2) = \frac{N-1}{N} \epsilon_1 \epsilon_2$  et  $N$  le nombre de cristaux de Ge.
- $R$  est le rapport de l'intensité entre les deux transitions considérées.

Il s'agissait ici de la méthode générale pour calculer les rendements de fission. Il faut cependant prendre en compte un certain nombre de corrections à apporter, valable pour tous les fragments étudiés.

## Conversion interne

La première correction consiste à prendre en compte les conversion internes. En effet, il est possible que lors d'une désexcitation, un électron du cortège électronique emporte l'énergie de la transition au lieu qu'un rayonnement gamma ne soit émis. Le coefficient de conversion interne d'une transition est défini comme le rapport des probabilités de la transition par conversion interne et par émission gamma. Ces coefficients sont généralement plus élevés pour les transitions de faible énergie et de grande multipolarité. Les coefficients de conversion interne des transitions nécessaires à nos analyses ont été obtenus avec le code BrICC [92].

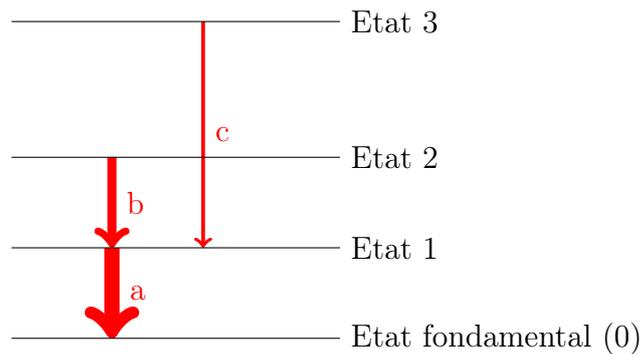


FIGURE 5.6 – Exemple schématique simplifié d'une cascade de désexcitations gamma.

Pour obtenir la correction à appliquer à notre estimation du rendement d'un fragment, on va supposer, pour simplifier la démonstration, une efficacité du système de détection égale à 100% à toute les énergies et un fragment de fission se désexcitant selon le schéma de la figure 5.6. Dans tous les cas de figure, la désexcitation du noyau passe par l'état excité 1 et émet un gamma ou un électron de conversion (transition  $1 \rightarrow 0$ ) avec une probabilité totale par fission égale à  $a$ . Soit également  $a^*$ , la probabilité que cette transition se fasse par l'émission d'un gamma, on a :  $a^* = a / (1 + \alpha_a)$  où  $\alpha_a$  est le coefficient de conversion interne de la transition  $1 \rightarrow 0$ . Si on était capable de mesurer directement la transition gamma entre l'état 1 et l'état fondamental, le rendement de fission de ce noyau serait :

$$Y = a = a^* \times (1 + \alpha_a) \quad (5.3)$$

On peut obtenir le rendement du fragment grâce 1) à la mesure du nombre de coïncidences des transitions  $1 \rightarrow 0$  et  $2 \rightarrow 1$  (égale ici à la probabilité par fission  $b$  car une transition  $2 \rightarrow 1$  est nécessairement suivie d'une transition  $1 \rightarrow 0$ ) et 2) grâce au rapport entre les transitions  $2 \rightarrow 1$  et  $1 \rightarrow 0$ , à savoir  $b/a$ , et

qui peut par exemple est estimé par coïncidence avec une transition d'un fragment complémentaire. On a ainsi :

$$Y = b \times \frac{a}{b} \quad (5.4)$$

Si les deux transitions sont partiellement converties et  $b^* = b/(1 + \alpha_b)$  avec  $\alpha_b$  le coefficient de conversion interne de la transition  $2 \rightarrow 1$ , le nombre de coïncidence  $\gamma\gamma$  mesurées se réduit à  $b^* \times \frac{a^*}{a}$  et le rapport des transitions gamma mesurées est  $\frac{b^*}{a^*}$ . Le rendement apparent  $Y^*$ , basé uniquement sur les rayons gamma, est alors :

$$Y^* = (b^* \times \frac{a^*}{a}) \times \frac{a^*}{b^*} = \frac{(a^*)^2}{a} \quad (5.5)$$

Puisque le rendement  $Y = a$ , la relation entre le rendement du fragment et le rendement apparent s'obtient par :

$$Y = Y^* \times (\frac{a}{a^*})^2 = Y^*(1 + \alpha_a)^2 \quad (5.6)$$

L'équation 5.2 corrigé des conversions internes s'écrit finalement :

$$Y(\frac{A}{Z}X) = \frac{1}{N_f} \times \frac{N_{\gamma_1\gamma_2}^{coinc}}{\epsilon(E_1, E_2)} \times (1 + (\alpha_{\gamma_1}))^2 \times \frac{1}{R} \quad (5.7)$$

avec  $\alpha_{\gamma_1}$  le coefficient de conversion interne de la transition du premier état excité vers l'état fondamental (d'énergie  $E_1$ ) et  $R$  le rapport des transitions  $\gamma_2$  et  $\gamma_1$ , obtenu par coïncidence avec une ou deux transitions d'un fragment complémentaire du fragment étudié.

## Temps mort

La seconde correction consiste à prendre en compte le temps mort du système d'acquisition qui a été obtenu à la section 4.1. La correction de temps mort est prise au carré car chaque voie de détection est considérée indépendante. On a donc :

$$Y(\frac{A}{Z}X) = \frac{1}{N_f} \times \frac{N_{\gamma_1\gamma_2}^{coinc}}{\epsilon(E_1, E_2)} \times (1 + \alpha_{\gamma_1})^2 \times \frac{1}{R} \times \alpha_\tau^2 \quad (5.8)$$

où  $\alpha_\tau$  est le facteur correctif du temps mort.

## Effets de sommation

Une correction importante mais plus compliquée à estimer doit être considérée maintenant : celle reliée aux effets de sommation lors de la détection des gamma prompts. Cet effet dépend de la multiplicité des gamma émis lors de la désexcitation du fragment, de la distance entre la source et les détecteurs et de la cascade gamma du fragment. Les corrections doivent donc être estimées pour chaque fragment étudié.

Les effets de sommations avaient déjà été calculé dans la partie 4.3.2 dans le cas de la décroissance de  $^{152}Eu$  à l'aide de la simulation Geant4 du spectromètre FIPPS détaillée en partie 4.2. Nous les

avons calculé en faisant, à une énergie donnée, le rapport du nombre de coups mesurés pour une source simulée d' $^{152}\text{Eu}$  avec une source simulée monoénergétique.

Dans le cas de la fission induite de  $^{235}\text{U}$ , nous utilisons une approche similaire sur la même simulation Geant4 mais cette fois ci pour une coïncidence donnée entre deux transitions. Pour estimer les effets de sommations pour une coïncidence donnée nous commençons par placer en fichier d'entrée de la simulation Geant4 un fichier de sortie d'une simulation FIFRELIN de la désexcitation des fragments de fission de  $^{235}\text{U}$ . Le résultat nous donne une première grandeur qui correspond approximativement à une simulation de nos données. Ensuite, toujours à travers la simulation Geant4, nous simulons deux transitions gamma monoénergétique en coïncidence, Le résultat nous donne la deuxième grandeur. Pour finir nous effectuons le rapport des deux pour obtenir une estimation des effets de sommations à appliquer pour une coïncidence donnée.

L'expression du rendement est donc modifiée tel que :

$$Y({}_Z^A X) = \frac{1}{N_f} \times \frac{N_{\gamma_1 \gamma_2}^{coinc}}{\epsilon(E_1, E_2)} \times (1 + \alpha_{\gamma_1})^2 \times \frac{1}{R} \times \alpha_\tau^2 \times \alpha^s \quad (5.9)$$

dans laquelle  $\alpha^s$  est la correction relative aux effets de sommations.

Pour estimer ces effets de sommations et l'incertitude à leur appliquer nous avons utilisé trois simulations FIFRELIN. La première, CGCM-N, considère le modèle CGCM pour les densités de niveaux et des scaling factor de 1.7 pour les fragments légers et 1.6 pour les fragments lourds. La seconde, CGCM-G, considère le modèle CGCM pour les densités de niveaux et des scaling factor de 1.7 à la fois pour les fragments légers et lourds. La troisième, HFB, considère le modèle HFB pour les densités de niveaux et des scaling factor de 1.7 à la fois pour les fragments légers et lourds. On estime la valeur de perte par effet de sommation pour chaque coïncidence de chaque fragment comme la moyenne indiquée dans le tableau 5.1. De plus, la dernière colonne correspond à une simulation utilisant le modèle CGCM pour les densités de niveaux et des scaling factor de 1.2 pour les fragments légers et lourds. Cette simulation reproduit mieux les cascades de désexcitation gamma mais moins bien les rendements des fragments de fission. C'est pour cette raison qu'on ne la prend pas en compte pour la valeur des effets de sommation, cependant, elle est prise en compte pour l'estimation de l'incertitude. En effet, nous avons choisi de prendre comme incertitude associée aux effets de sommation la différence entre la valeur moyenne prédite par les simulations CGCM-N, CGCM-G HFB et la valeur prédite par la simulation CGCM-1.2.

La relation entre les pertes par effet de sommation  $p$  données dans le tableau 5.1 et le coefficient correctif  $\alpha^s$  est :

$$\alpha^s = \frac{1}{1 - p} \quad (5.10)$$

## Production à l'état fondamental

Dans certains cas, des fragments peuvent être produits sans émission de gamma prompts mesurables. Il y a deux cas possibles à prendre en compte : la production à la fission de fragment directement à l'état fondamental, directement à l'état fondamental après émission de neutrons. Cette correction est

Isotope	$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	CGCM-N (%)	CGCM-G (%)	HFB (%)	Moyenne (%)	STD	CGCM-1.2
$^{88}\text{Kr}$	775.3	868.5	16.1	16.3	17.2	16.5	0.6	12.2
$^{98}\text{Zr}$	1222.5	620.4	12.9	11.9	12.1	12.3	0.5	10.3
$^{100}\text{Zr}$	212.5	352.0	13.5	13.4	13.9	13.6	0.3	11.8
$^{94}\text{Sr}$	836.9	1309.1	16.1	17.5	16.1	16.6	0.8	12.6
$^{94}\text{Sr}$	836.9	1089.4	17.2	18.8	19.2	18.4	1.1	13.3
$^{96}\text{Sr}$	814.9	977.8	14.0	14.2	14.8	14.3	0.4	11.6
$^{134}\text{Te}$	1279.3	297.0	14.2	14.1	14.3	14.2	0.1	11.9
$^{136}\text{Te}$	606.6	423.4	16.6	16.2	15.5	16.1	0.6	13.4
$^{140}\text{Xe}$	376.7	457.6	17.7	17.9	17.8	17.8	0.1	15.3
$^{142}\text{Ba}$	359.6	475.2	17.0	17.5	16.8	17.1	0.4	13.1

TABLE 5.1 – Perte par effet de sommation pour les neuf fragments de fissions selon trois simulations FIFRELIN différentes (sans addback).

estimée par les simulations FIFRELIN. On considère également dans cette correction les transitions gamma vers l'état fondamental très peu produites et non mesurables. Cette correction est assez faible pour la majorité des fragments (de quelques pourcent) à l'exception notable du  $^{134}\text{Te}$  et de l'  $^{132}\text{Sn}$ . Nous reviendrons plus en détail sur cette correction à la section 5.3, consacrée au cas particulier de l'  $^{132}\text{Sn}$ .

L'expression du rendement devient finalement :

$$Y(\text{}^A_Z\text{X}) = \frac{1}{N_f} \times \frac{N_{\gamma_1\gamma_2}^{\text{coinc}}}{\epsilon(E_1, E_2)} \times (1 + \alpha_{\gamma_1})^2 \times \frac{1}{R} \times \alpha_\tau^2 \times \alpha^s \times \alpha^p \quad (5.11)$$

dans laquelle  $\alpha^p$  est la correction relative à la production de l'état fondamental.

## Contaminations

Le nombre de transitions gamma étant très élevé, les pics en deux dimensions (doubles coïncidences) et trois dimensions (triples coïncidences) peuvent être contaminés. Pour estimer ces contaminations, on utilise les simulations FIFRELIN. En effet, comme FIFRELIN simule toutes les cascades gamma, on peut sélectionner la région d'intérêt en énergie en 2D (ou 3D) et regarder toutes les doubles (ou triples) coïncidences prédites par FIFRELIN dans cette région. En deux dimensions, on considère en général un carré de 6 keV de côté (proche de  $6\sigma$ ) autour du pic 2D d'intérêt et on calcule l'intégrale du pic d'intérêt sur ce carré,  $IP$ , ainsi que celles de tous les autres pics sur ce même carré,  $IC_k$ . La proportion du pic d'intérêt sur le total,  $IP/\sum_k IC_k$ , est une estimation de sa pureté selon FIFRELIN. Le nombre de coïncidences mesurées est corrigé par cette valeur. Dans certain cas, un contaminant intense et suffisamment éloigné du pic d'intérêt peut être visible sur le spectre et être déjà pris en compte dans l'ajustement. Il est dans ce cas retiré de la somme dans le calcul de la pureté.

La même opération est effectuée pour les triples coïncidences. La seule difficulté tient à l'interprétation des résultats. En effet, pour les triples coïncidences, il est possible qu'un contaminant ne pose en réalité pas de problème. C'est par exemple le cas dans le calcul du rapport pour la mesure du rendement du  $^{88}\text{Kr}$ . On considère les triple coïncidences (330.86, 431.34, 775.32) et (330.86, 431.34, 868.46) qui sont produites par la paire de fragments ( $^{144}\text{Ba}$ ,  $^{88}\text{Kr}$ ) et représentent respectivement 93.3% et 96% du

total produit dans les cubes de 6 keV de côté. La paire ( $^{146}\text{Ba},^{88}\text{Kr}$ ) produit les triple coïncidences (332.62, 428.54, 775.32) et (332.62, 428.54, 868.46) dans les mêmes cubes à hauteur respectivement de 6.5% et 3.8%. Ce n'est cependant pas un problème puisque le  $^{144}\text{Ba}$  et le  $^{146}\text{Ba}$  sont tous les deux des fragments complémentaires du  $^{88}\text{Kr}$  et que le rapport des transitions à 775.32 et 868.46 keV est par hypothèse identique quelque soit le complémentaire avec lequel il est obtenu. La somme des contributions (93.3+6.5 et 96+3.8) est dans les deux cas très proche de 100% et on considère donc que les pics ne sont pas contaminés.

L'incertitude sur la pureté d'un pic est difficile à juger. La simulation FIFRELIN utilisée pour estimer les contaminations (CGCM-G) et dont les paramètres sont donnés à la section 1.3.4 ne reproduit pas nécessairement bien les productions des différentes transitions gamma. La simulation CGCM-1.2, avec un scaling factor plus faible, de l'ordre de 1.2, reproduit mieux les intensités gamma (comme on le montrera dans la section sur les perspectives) mais moins bien la multiplicité neutrons et donc a priori moins bien les rendements de paires de fragments (après évaporation des neutrons). On a donc décidé de fixer arbitrairement l'incertitude sur la contamination d'un pic à 50%.

## 5.2 Application aux fragments pair-pair les plus produits

Dans cette partie, je vais passer en revue tous les fragments étudiés selon la méthodologie suivante pour chacun d'entre eux. Tout d'abord, l'application de la méthode décrite précédemment pour le calcul du rendement, ensuite la recherche d'éventuelles contaminations dans la mesure et enfin la présentation des résultats. Je préciserai également si le fragment analysé présente des particularités ou non par rapport aux autres.

### 5.2.1 Rendement du $^{136}\text{Te}$

Je commence par détailler l'application de la méthode sur le  $^{136}\text{Te}$  puisque celui-ci a servi d'exemple précédemment. Son schéma de niveaux utilisé pour les explications est présenté à la figure 5.7.

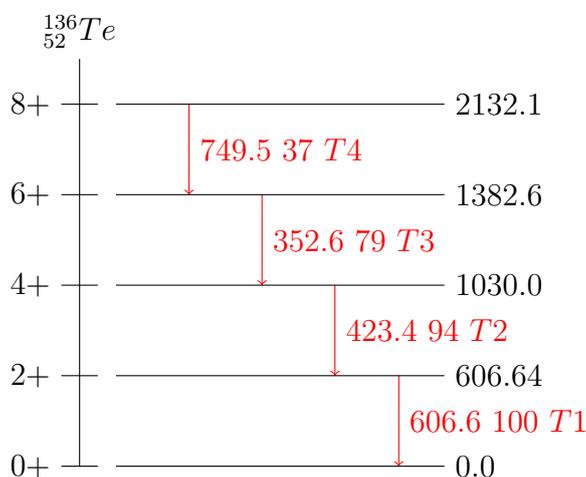
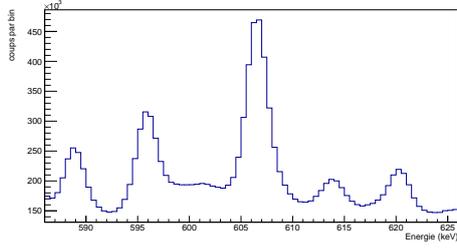


FIGURE 5.7 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{136}_{52}\text{Te}$  dans la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ . Le code couleur qui est utilisé sur toutes les illustrations de schéma de niveaux est le suivant : les transitions dont l'intensité relative par rapport à la transition à l'état fondamental est supérieure à 10% sont en rouge, celles dont l'intensité est comprise entre 1% et 10% sont en bleu. Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94]. Les intensités gamma proviennent dans cette figure de l'article [95].

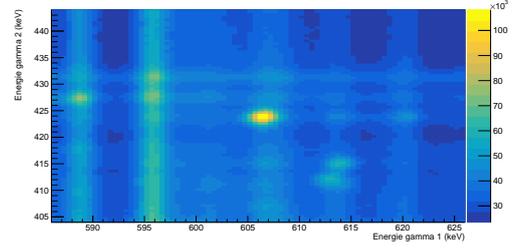
### Nombre de coïncidences

J'applique, premièrement, la méthode sur la matrice des gamma en coïncidences. On voit sur la matrice de coïncidence illustrée à la figure 5.8a que le pic de coïncidence à (606.6,423.4) et son environnement immédiat est relativement propre. J'applique la méthode standard d'analyse avec une porte de coïncidence en utilisant le code d'ajustement xtrackn (GASP) [96] pour ajuster le pic, déterminer l'intensité du pic et l'incertitude associée.

FIFRELIN nous prédit que d'autres transitions que celle à 606.6 keV peuplent l'état fondamental depuis des niveaux plus élevés. La transition principale à 606.6 keV ne représente selon FIFRELIN qu'environ 91% du total. L'estimation de l'incertitude sur cette valeur est effectuée en comparant les



(a) Projection sur l'axe des abscisses de la zone 421-424 keV en ordonné.



(b) Matrice des gamma des transition 606.6 keV et 423.4 keV en coïncidence.

FIGURE 5.8 – Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à 423.4 keV.

résultats de plusieurs simulations FIFRELIN avec des paramètres différents (modèle de densité de niveaux, CGCM ou HFB), qui ont mené à une valeur de  $91\% \pm 3\%$ .

Je vérifie ensuite s'il y a des contaminations au sein même de la coïncidence en utilisant une simulation FIFRELIN où sont produites toutes les doubles coïncidences pour les gammes d'énergies  $606.6 \pm 3 \text{ keV}$  et  $423.4 \pm 3 \text{ keV}$ , le tableau 5.2 en fait un résumé. Elles y sont classées par ordre décroissant de production. Environ 95% provient de la coïncidence que l'on souhaite mesurer. Les pollutions provenant d'autres pic de coïncidence, (604,423.4) issue des fragments complémentaires  $^{99}\text{Zr}$  et  $^{136}\text{Te}$ , et (603.7,422.3) issue des fragments  $^{135}\text{I}$  et  $^{99}\text{Y}$ , représentent 5% du total et sont trop proches du pic et/ou trop faibles pour être prise en compte dans un ajustement. On doit donc les prendre en compte pour corriger le nombre de coïncidences mesurées. Comme on a fixé l'incertitude sur les contaminations prédites par FIFRELIN à 50%, on doit donc prendre en compte une contamination de  $5 \pm 2.5\%$ .

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production (%)
606.64	423.36	136	52	136	52	94.8
604	423.36	99	40	136	52	2.5
603.68	422.36	135	53	99	39	2.1

TABLE 5.2 – Coïncidences produites via FIFRELIN pour le  $^{136}\text{Te}$  aux énergies  $606.6 \pm 3 \text{ keV}$  et  $423.4 \pm 3 \text{ keV}$ .

## Rapport d'intensités

Je cherche maintenant à déterminer le rapport d'intensités entre les transitions 606.6 keV et 423.4 keV. Pour ce faire, je pars du cube (histogramme en 3D) des données en coïncidences et j'utilise le fragment complémentaire le plus produit du  $^{136}\text{Te}$ , en l'occurrence le  $^{98}\text{Zr}$ . Le schéma de niveau avec les transitions utilisées est présenté sur la figure 5.27. La figure 5.9 représente le spectre des gamma en coïncidence avec les transitions d'énergies 1222.9 keV et 620.5 keV du  $^{98}\text{Zr}$ .

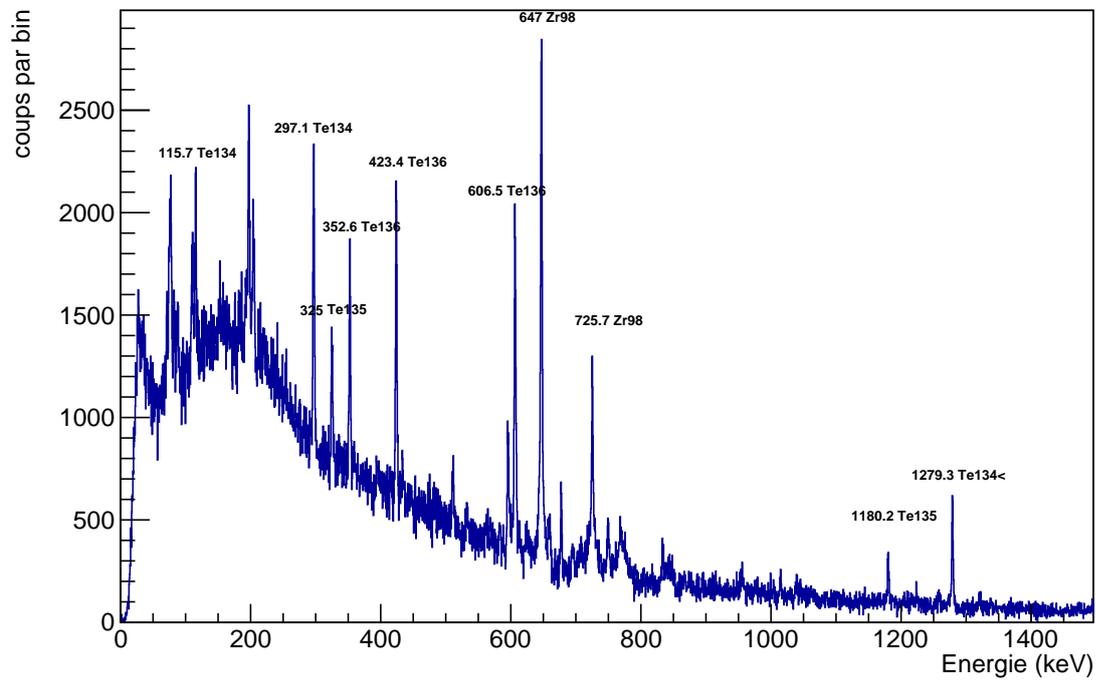


FIGURE 5.9 – Spectre des gamma en coïncidence avec les deux transitions d'énergies 1222.9 keV et 620.5 keV du  $^{98}\text{Zr}$ . Les pics les plus intenses correspondent aux transitions les plus produites du  $^{136}\text{Te}$ ,  $^{135}\text{Te}$  et  $^{134}\text{Te}$  mais également aux transitions du  $^{98}\text{Zr}$  plus élevées dans le schéma de niveau.

Maintenant, je vérifie que la sélection des transitions et du bruit de fond ne pose pas de problèmes.

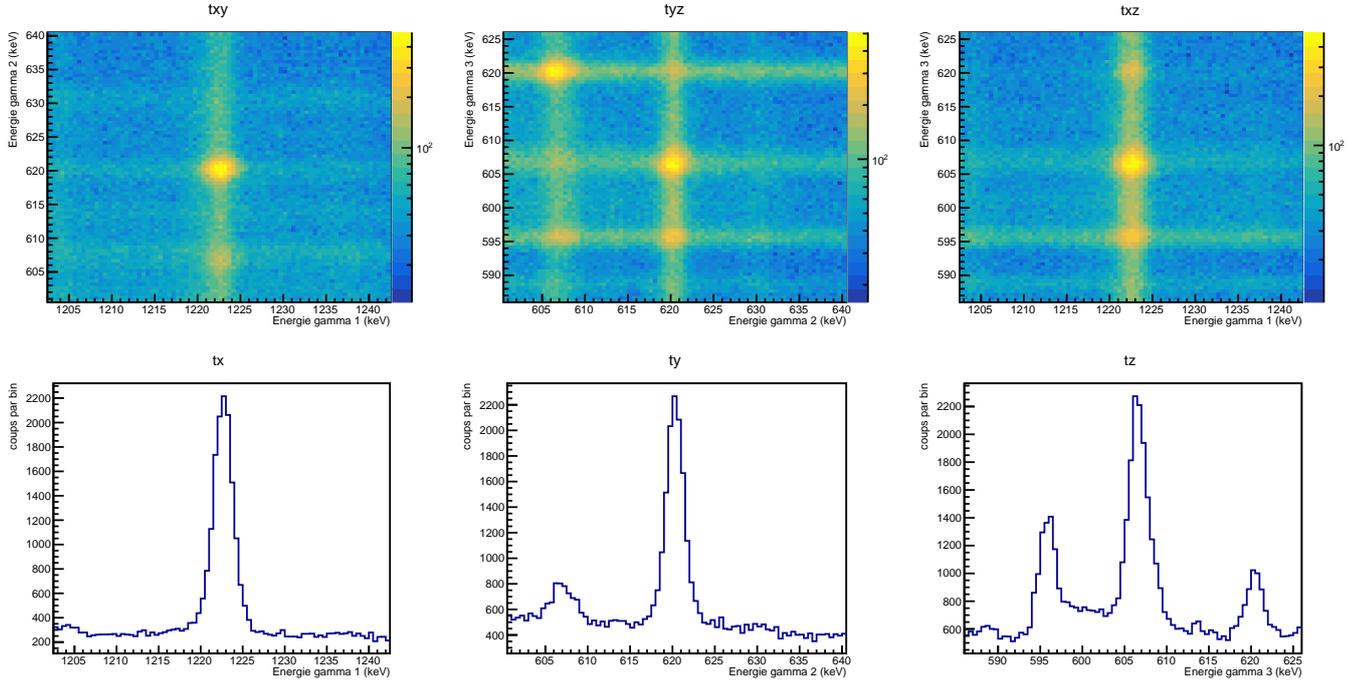


FIGURE 5.10 – La matrice txy est une coupe selon l’axe z dans le cube, autour du pic à 606.6 keV. La matrice tyz est une coupe selon l’axe x dans le cube, autour du pic à 1222.9 keV. La matrice txz est une coupe selon l’axe y dans le cube, autour du pic à 620.5 keV. En dessous sont présentées les projections respectives de chacune des matrices selon, l’axe x pour tx, l’axe y pour ty et l’axe z pour tz.

Le bruit de fond est pris à droite des pics principaux des graphiques tx et ty de la figure 5.10. On note rapidement qu’il n’y a aucun polluant visible d’importance.

Ensuite, je vérifie la propreté des triples coïncidences utilisées pour les rapports d’intensité illustrés dans les tableaux 5.3 et 5.4.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
1222.5	620.53	606.64	98	40	98	40	136	52	88.2
1222.5	620.53	608.2	98	40	98	40	137	52	11.5
1220.85	620.53	606.64	98	40	98	40	136	52	0.2

TABLE 5.3 – Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d’énergie suivantes  $1222.9 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $620.5 \pm 3 \text{ keV}$  et  $606.6 \pm 3 \text{ keV}$ . Seuls les productions supérieures à 0.1% ont été prises en compte.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
1222.92	620.53	423.36	98	40	98	40	136	52	91.5
1222.92	620.53	424.65	98	40	98	40	135	52	7.7
1220.85	620.53	423.36	98	40	98	40	136	52	0.2

TABLE 5.4 – Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes  $1222.5 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $620.3 \pm 3 \text{ keV}$  et  $423.4 \pm 3 \text{ keV}$ . Seuls les productions supérieures à 0.1% ont été prises en compte.

On remarque très rapidement que dans le premier cas, sur le tableau 5.3 et en arrondissant à l'unité, la triple coïncidence est polluée à hauteur de 12% et dans le second cas, sur le tableau 5.4, à hauteur de 8%. Malheureusement, utiliser un autre fragment complémentaire n'est pas plus intéressant car les triples coïncidences sont encore plus polluées. Lors du calcul du rapport d'intensité, il est donc nécessaire d'utiliser ces deux triples coïncidences en prenant en compte les contaminations obtenues via la simulation FIFRELIN. Pour le  $^{136}\text{Te}$ , on obtient un rapport d'intensités entre les transitions 423.4 keV et 606.6 keV égal à  $R = 0.84 \pm 0.09$ . Dans le cas de la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ , le rapport est de  $R = 0.94 \pm 0.10$  d'après [97]. Le résultat obtenu ici est proche dans les barres d'incertitudes mais cela ne nous renseigne pas forcément sur sa validité. En effet, on sait que dans le cas de la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$  les fragments seront produits avec une énergie d'excitation plus élevée qu'en fission de l' $^{235}\text{U}$ . Par contre, rien n'indique que la répartition du spin de départ entre les fragments est la même pour la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  et la fission induite du  $^{235}\text{U}$ . Lors de la campagne de mesure ExILL, les rapports déterminés par [98] étaient régulièrement proches, dans les barres d'incertitudes, des rapports déterminés pour la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$  et du  $^{252}\text{Cf}$ .

## Résultat

Le résultat obtenus sur le  $^{136}\text{Te}$  sont dans le tableau 5.5. J'explique le calcul du rendement en commençant par le rapport d'intensité dans l'équation 5.12. Le nombre de coïncidence à (423.4, 1222.5, 620.3), 286000, doit être corrigé de 8% de contamination, soit par un facteur correctif de 0.92. De même, le nombre de coïncidence à (606.6, 1222.5, 620.3), 279000 doit être corrigé de 13% de contamination, soit par un facteur correctif de 0.87.

$$R = \frac{286000 \times 0.92}{279000 \times 0.87} \times \frac{0.072}{0.093} \approx 0.84 \quad (5.12)$$

Le calcul du rendement pour le  $^{136}\text{Te}$  avant les corrections d'effets de sommation et de production de l'état fondamental est détaillé dans l'équation 5.13. Il n'y a pas de valeur pour  $(1 + \alpha_{\gamma_1})^2$  car la conversion électronique dans le cas du  $^{136}\text{Te}$  est négligeable. Le facteur 0.95 correspond à la correction

Grandeur	Valeur	Incertitude
Nombre de coïncidences (606.6, 423.4)	1570000	40000
Contamination coïncidences (606.6, 423.4) (%)	5	3
Nombre de coïncidences (606.6, 1222.5, 620.3)	279000	5000
Contamination coïncidences (606.6, 1222.5, 620.3) (%)	13	8
Nombre de coïncidences (423.4, 1222.5, 620.3)	286000	7500
Contamination coïncidences (423.4, 1222.5, 620.3) (%)	8	4
Rapport d'intensité	0.84	0.09
Efficacité 606.6 keV	0.072	0.002
Efficacité 423.4 keV	0.093	0.002
Correction ICC	//	//
<b>Rendement avant correction</b>	<b>1.17</b>	<b>0.20</b>
Correction sommation ( $1/\alpha^s$ )	0.84	0.03
Correction production fondamental ( $1/\alpha^p$ )	0.91	0.03
<b>Rendement après correction</b>	<b>1.53</b>	<b>0.22</b>

TABLE 5.5 – Récapitulatif des résultats obtenus pour le  $^{136}\text{Te}$ .

des 5% de contaminations dans la double coïncidences (606.6, 423.4). La légère différence du résultat, 1.16 au lieu de 1.17, est liée aux arrondis.

$$\begin{aligned}
Y({}_Z^AX) &= \frac{1}{N_f} \times \frac{N_{\gamma_1\gamma_2}^{coinc}}{\epsilon(E_1, E_2)} \times (1 + \alpha_{\gamma_1})^2 \times \frac{1}{R} \times \alpha_\tau^2 \\
Y({}_{52}^{136}\text{Te}) &= \frac{1}{2.418 \cdot 10^{10}} \times \frac{0.95 \times 1570000}{0.072 \times 0.093} \times \frac{1}{0.84} \times (1.023)^2 \\
Y({}_{52}^{136}\text{Te}) &\approx 1.16
\end{aligned} \tag{5.13}$$

Le calcul du rendement en prenant en compte toutes les corrections est effectué dans l'équation 5.14. Le  $\frac{1}{0.84}$  correspond à la correction des effets de sommation et le  $\frac{1}{0.91}$  à la correction de production de l'état fondamental.

$$\begin{aligned}
Y({}_Z^AX) &= \frac{1}{N_f} \times \frac{N_{\gamma_1\gamma_2}^{coinc}}{\epsilon(E_1, E_2)} \times (1 + \alpha_{\gamma_1})^2 \times \frac{1}{R} \times \alpha_\tau^2 \times \alpha^s \times \alpha^p \\
Y({}_{52}^{136}\text{Te}) &= \frac{1}{2.418 \cdot 10^{10}} \times \frac{0.95 \times 1570000}{0.072 \times 0.093} \times \frac{1}{0.84} \times (1.023)^2 \times \frac{1}{0.84} \times \frac{1}{0.91} \\
Y({}_{52}^{136}\text{Te}) &\approx 1.52
\end{aligned} \tag{5.14}$$

Le résultats comparés aux bases de données est présenté dans la figure 5.11. Le rendement du  $^{136}\text{Te}$  calculé avec FIPPS est compatible dans les barres d'incertitudes avec les bases de données.

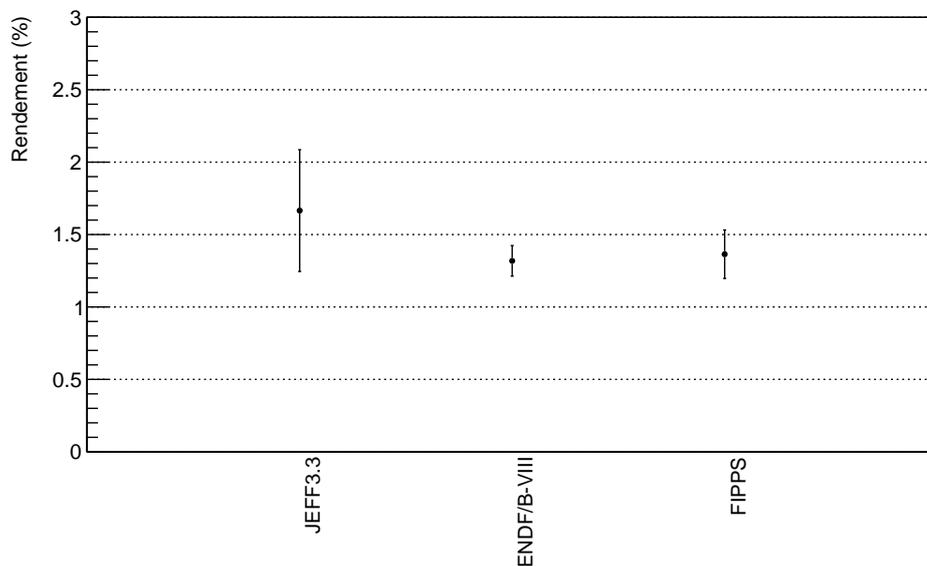


FIGURE 5.11 – Rendement du  $^{136}\text{Te}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII comparé au résultat obtenu avec FIPPS.

## 5.2.2 Rendement du $^{134}\text{Te}$

Le  $^{134}\text{Te}$  a été le premier étudié, tout simplement car il s'agit du fragment produit en fission thermique de  $^{235}\text{U}$  avec le rendement le plus élevé. Son schéma de niveaux simplifié utilisé pour les explications est présenté sur la figure 5.12.

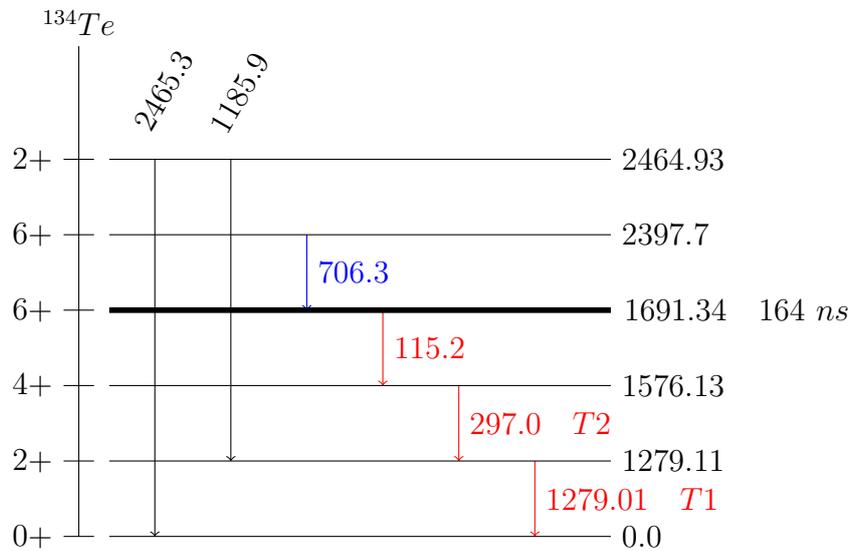


FIGURE 5.12 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{134}\text{Te}$  dans la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [99].

### Nombre de coïncidences

Comme précédemment, le spectre total est trop dense comme on peut le voir sur la figure 5.13. Sur la matrice, illustrée à la figure 5.15a, on voit que la coïncidence de la transition T1 avec la transition T2 est beaucoup plus propre. J'applique donc la méthode décrite dans la section 5.1.2. On obtient un spectre de tous les gamma en coïncidence avec la transition T1 montré sur la figure 5.14 qui est bien plus propre que le spectre total.

On peut vérifier visuellement que la porte de coïncidence a été prise correctement. Pour ce faire, on part de la matrice et on regarde les deux projections. La première, figure 5.15c, correspond à la projection sur l'axe des abscisses d'une gamme en énergie autour du pic à 1279.01 keV. La seconde, figure 5.15b, correspond à la projection sur l'axe des ordonnées d'une gamme en énergie autour du pic à 297.0 keV. Sur cette dernière, on remarque qu'il n'y a aucun pic ni à gauche ni à droite du pic principal autour de 1279.01 keV. Ce qui implique que la zone de bruit de fond prise entre 1284 keV et 1291 keV n'est polluée par aucune transition et donc que le bruit de fond est soustrait correctement.

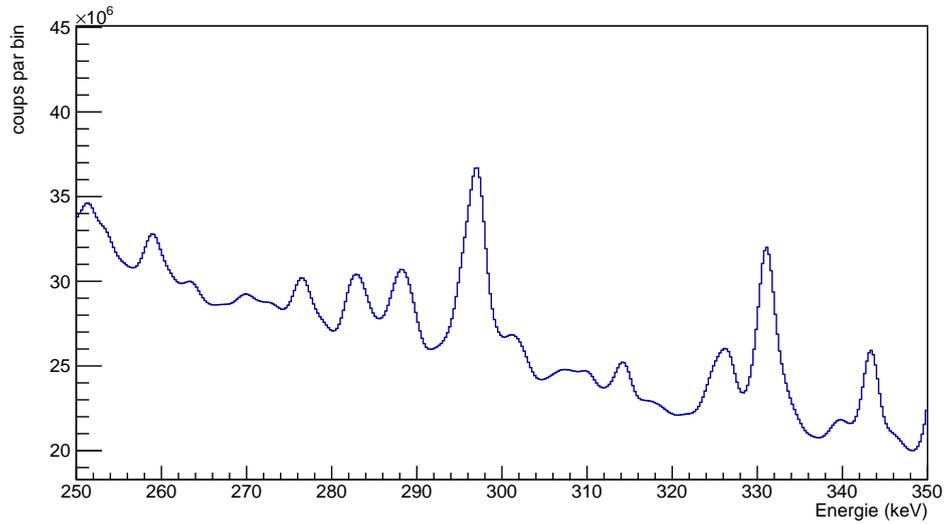


FIGURE 5.13 – Spectre total dans la région 250 keV / 350 keV des transitions gamma en coïncidences avec le tag fission.

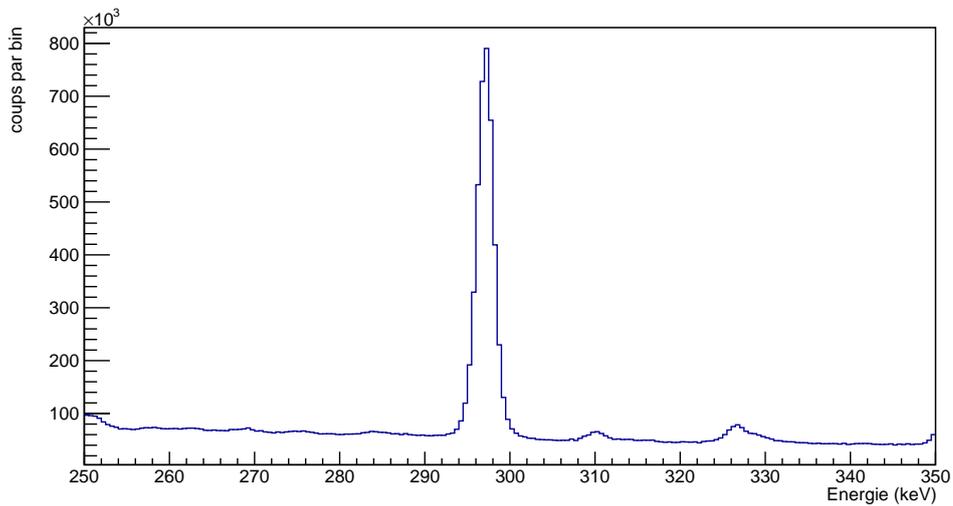
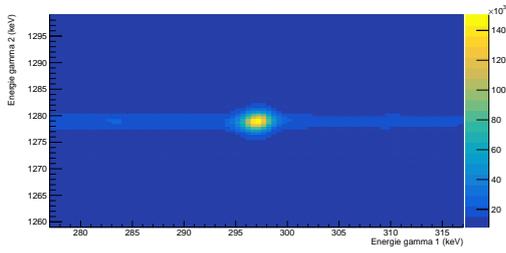
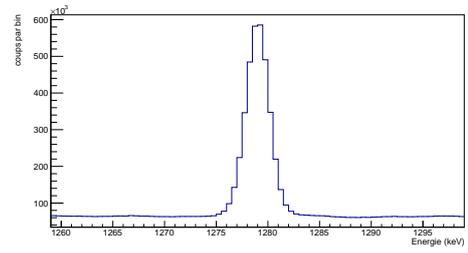


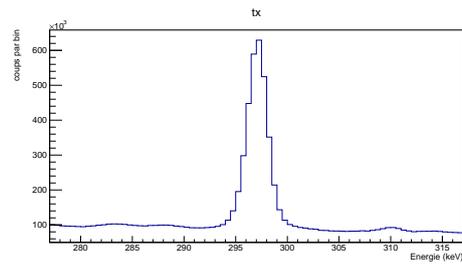
FIGURE 5.14 – Spectre après mise en coïncidence avec la transition à 1279.01 keV du  $^{134}\text{Te}$ . Toujours dans la région 250 keV / 350 keV.



(a) Matrice des gamma des transition T1 et T2 en coïncidence.



(b) Projection sur l'axe des ordonnées de la zone 294-300 keV en abscisse.



(c) Projection sur l'axe des abscisses de la zone 1276-1282 keV en ordonné.

FIGURE 5.15 – Spectres permettant de vérifier visuellement les possibles contaminations.

## Rapport d'intensité

Je cherche maintenant à déterminer le rapport d'intensité entre les transitions T1 et T2. Pour ce faire, je pars du cube (histogramme en 3D) des données en coïncidences et j'utilise le fragment complémentaire le plus produit du  $^{134}\text{Te}$ , en l'occurrence le  $^{100}\text{Zr}$ . Le schéma de niveaux avec les transitions utilisées est présenté dans la figure 5.19. La figure 5.16 représente le spectre des gamma en coïncidence avec les transitions d'énergies 212.6 keV et 352.0 keV du  $^{100}\text{Zr}$ .

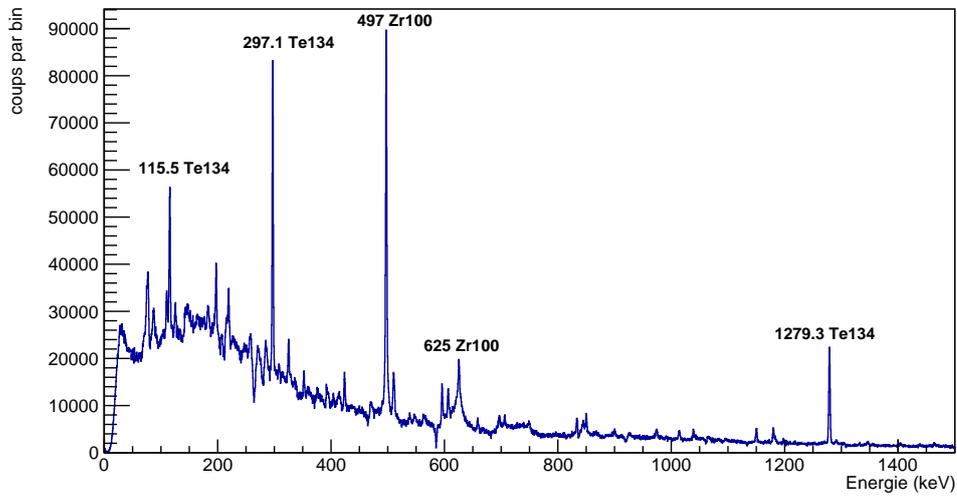


FIGURE 5.16 – Spectre des gamma en coïncidence avec les deux transitions d'énergies 212.6 keV et 352.0 keV du  $^{100}\text{Zr}$ . Les pics les plus intenses correspondent aux transitions les plus produites du  $^{134}\text{Te}$  mais également aux transitions du  $^{100}\text{Zr}$  plus élevées dans le schéma de niveaux.

De la même manière que précédemment avec la matrice, je vérifie ici visuellement si la triple coïncidence semble polluée par d'autres transitions, notamment si le bruit de fond a été soustrait correctement, grâce à la figure 5.17.

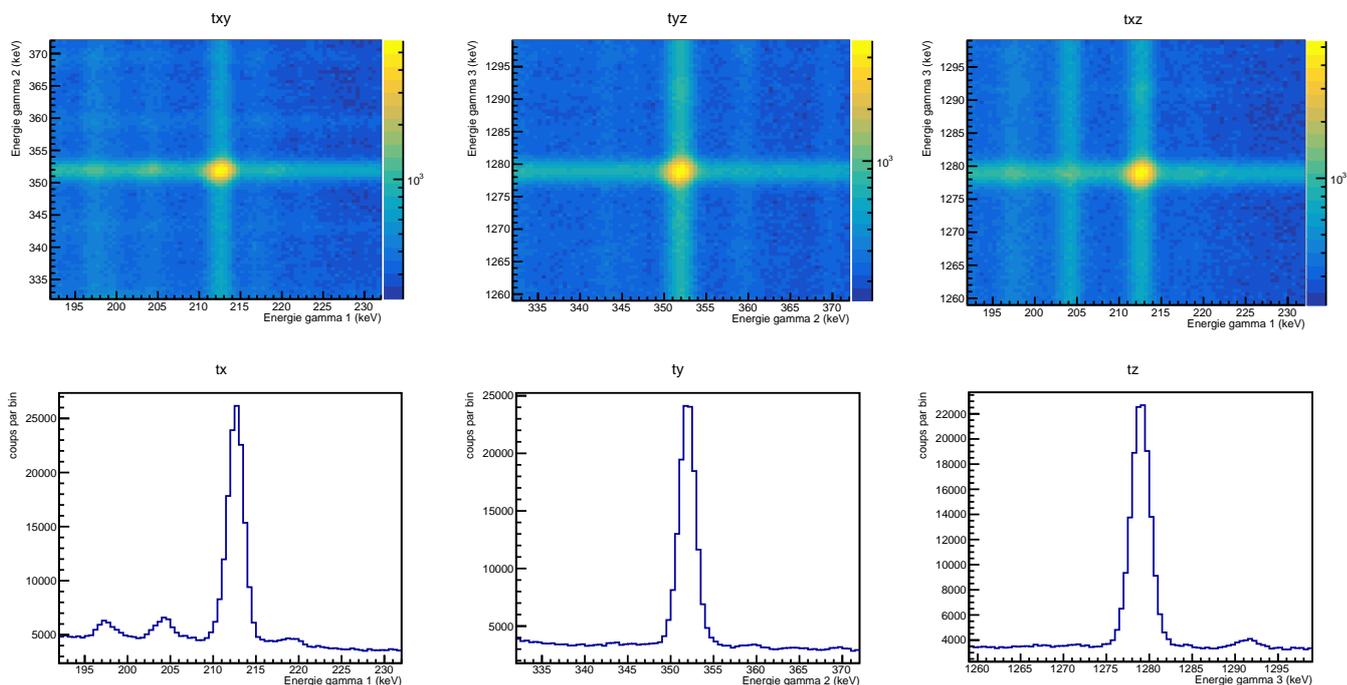


FIGURE 5.17 – Coupe dans la matrice pour chercher les possibles contaminations respectivement autour des énergies  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $212.6 \pm 3 \text{ keV}$  et  $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ .

La matrice txy est une coupe selon l'axe z dans le cube, autour du pic à 1279.01 keV du  $^{134}\text{Te}$ . La matrice tyz est une coupe selon l'axe x dans le cube, autour du pic à 212.6 keV du  $^{100}\text{Zr}$ . La matrice txz est une coupe selon l'axe y dans le cube, autour du pic à 352.0 keV du  $^{100}\text{Zr}$ . En dessous sont présentées les projections respectives de chacune des matrices, selon l'axe x pour tx, l'axe y pour ty et l'axe z pour tz. Les deux projections qui nous intéressent sont tx et ty car elles nous permettent de savoir si la sélection du bruit de fond est correcte. On note tout de suite que pour ty il n'y a pas d'autres pics à droite du pic principal donc que le bruit de fond peut être pris dans cette zone. Par contre, pour tx, on note un pic non négligeable entre 218 keV et 220 keV. Pour savoir s'il pose un problème ou non il faut l'identifier.

## Contaminations

C'est la première des corrections à apporter aux mesures du nombre de coïncidences et du rapport d'intensité : la recherche de contaminations due à d'autres transitions, dans les transitions mesurées, tel que détaillée dans la sous-section 5.1.2. Pour la mesure du nombre de coïncidence, FIFRELIN simule toutes les doubles coïncidences pour les gammes d'énergies  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$  et  $297.0 \pm 3 \text{ keV}$ , le tableau 5.6 en fait un résumé où elles sont classées par ordre décroissant de production. On relève qu'au sein de la coïncidence entre les transitions T1 et T2, il y a une pollution de 5% d'éléments provenant d'autres transitions. On appliquera donc simplement un coefficient correctif de 0.95 pour s'en affranchir.

Pour la mesure du rapport d'intensité, on souhaite tout d'abord identifier les pollutions possibles

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production (%)
1279.11	297.02	134	52	134	52	94.3
1279.11	298.75	134	52	101	40	4.0
1279.11	296.89	134	52	97	40	0.6
1278.39	294.983	86	34	148	58	0.5
1279.11	295.6	134	52	101	40	0.5

TABLE 5.6 – Coïncidences produites aux énergies  $1279.01 \text{ keV} \pm 3 \text{ keV}$  et  $297.0 \text{ keV} \pm 3 \text{ keV}$  dans le cadre de l'analyse du  $^{134}\text{Te}$ .

autour du pic principal. FIFRELIN nous permet de prédire toutes les triples coïncidences pour les gammes d'énergies  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $212.6 \pm 3 \text{ keV}$  et  $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ , le tableau 5.7 en fait un résumé. Ensuite, on souhaite identifier le pic polluant la zone du bruit de fond entre 218 keV et 220 keV. De la même manière, FIFRELIN prédit toutes les triples coïncidences pour les gammes d'énergies  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $219.0 \pm 3 \text{ keV}$  et  $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ , le tableau 5.8 en fait un résumé. Dans le premier, il n'y a aucune pollution notable dans la triple coïncidence que l'on mesure. Dans le deuxième cas, on remarque immédiatement d'où vient le pic dans le bruit de fond, en l'occurrence d'un fragment de  $^{100}\text{Zr}$ , ce qui ne nous pose donc aucun problème étant donné qu'il s'agit d'un fragment complémentaire du  $^{134}\text{Te}$ .

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
1279.11	212.53	351.956	134	52	100	40	100	40	99.7
1279.11	212.53	352.99	134	52	100	40	100	40	0.2

TABLE 5.7 – Coïncidences produites pour le  $^{134}\text{Te}$  aux énergies  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $212.6 \pm 3 \text{ keV}$  et  $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
219.69	351.956	1279.11	100	40	100	40	134	52	97.2
<b>219.69</b>	<b>352.99</b>	<b>1279.11</b>	<b>100</b>	<b>40</b>	<b>100</b>	<b>40</b>	<b>134</b>	<b>52</b>	<b>2.5</b>
218.05	351.956	1279.11	134	52	100	40	134	52	0.2

TABLE 5.8 – Coïncidences produites pour le  $^{134}\text{Te}$  aux énergies  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $219.0 \pm 3 \text{ keV}$  et  $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ . La ligne en gras correspond au pic situé dans le bruit de fond.

## Niveau isomère

Le schéma de niveaux du  $^{134}\text{Te}$  présente une particularité qui nécessite une correction supplémentaire. En effet, comme illustré dans la figure 5.12, il y a un niveau isomère d'une durée de vie de 164 ns (niveau 6+, 1691.34 keV). Or la fenêtre de temps prise pour les événements en coïncidence est de 400 ns et la désexcitation du niveau isomère peut être représentée sous la forme d'une exponentielle

décroissante. Donc une partie des transitions gamma du  $^{134}\text{Te}$ , en dessous de ce niveau isomère, ne s'effectuera qu'en dehors de la fenêtre en coïncidence de 400 ns définie lors du prétraitement des données (voir figure 3.9 en section 3.3). Je détaille ci-dessous le calcul de l'impact du niveau isomère sur le calcul du rendement du  $^{134}\text{Te}$ .

$$N(\Delta t) = \frac{\int_0^{400} \exp(-\lambda t) dt}{\int_0^{\infty} \exp(-\lambda t) dt} = 1 - \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} * \Delta t\right) \quad (5.15)$$

- $\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$ .
- $T_{1/2} = 164 \text{ ns}$  la demi vie du niveau isomère.
- $\Delta t = 400 \text{ ns}$  la fenêtre en temps pour la coïncidence.
- N est la proportion de niveau isomère décroissant à l'intérieur de la fenêtre en coïncidence.

D'où le facteur correctif égal à  $\frac{1}{N} = \frac{1}{1 - \exp\left(-\frac{\ln 2}{164} * 400\right)} = 1.226 \pm 0.012$ .

## Résultat

Les résultats obtenus sur le  $^{134}\text{Te}$  sont présentés dans le tableau suivant 5.9.

Grandeur	Valeur	Incertitude
Nombre de coïncidences (1279.01, 297)	3930000	50000
Contamination coïncidences (1279.01, 297) (%)	5	3
Nombre de coïncidences (1279.01, 212.6, 352)	173000	2000
Contamination coïncidences (1279.01, 212.6, 352) (%)	//	//
Nombre de coïncidences (297, 212.6, 352)	437000	8000
Contamination coïncidences (297, 212.6, 352) (%)	//	//
Rapport d'intensité	0.90	0.02
Efficacité 1279.01 keV	0.043	0.003
Efficacité 297 keV	0.121	0.002
Correction ICC	1.000877	0.000013
Correction isomère	1.226	0.012
<b>Rendement avant correction</b>	<b>3.40</b>	<b>0.23</b>
Correction sommation ( $1/\alpha^s$ )	0.84	0.01
Correction production fondamental ( $1/\alpha^p$ )	0.83	0.02
<b>Rendement après correction</b>	<b>5.98</b>	<b>0.40</b>

TABLE 5.9 – Récapitulatif des résultats obtenus pour le  $^{134}\text{Te}$ .

Pour le  $^{134}\text{Te}$  on obtient donc un rapport d'intensités entre les transitions 297.0 keV et 1279.01 keV égal à :  $R = 0.90 \pm 0.02$ . Le même rapport déterminé avec les données ExILL [98] était de :  $R_{ExILL} = 0.86 \pm 0.03$ . Le résultat obtenu avec FIPPS est cohérent avec celui obtenu avec ExILL dans les barres d'incertitudes, on peut donc le considérer comme crédible. Le résultat du rendement comparé

aux bases de données est présenté dans la figure 5.18. Le rendement calculé avec FIPPS du  $^{134}\text{Te}$  mais sans appliquer la correction de la production du fondamental est en rouge. Il est inférieur à la valeur des bases de données d'environ 20%. Les simulations FIFRELIN nous prédisent une production directement au fondamental de  $17 \pm 2 \%$  et qui nous permet d'estimer une correction du rendement qui est désormais compatible dans les barres d'incertitudes avec les bases de données.

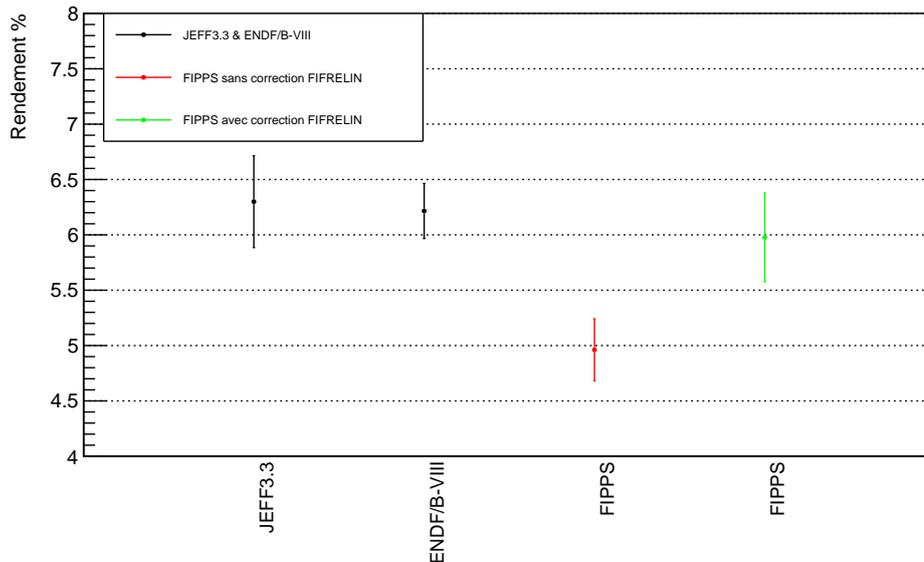


FIGURE 5.18 – Rendement du  $^{134}\text{Te}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII comparé au résultat obtenu avec FIPPS (avant et après correction de la production de l'état fondamental).

### 5.2.3 Rendement du $^{100}\text{Zr}$

Le  $^{100}\text{Zr}$  a été le second fragment étudié car complémentaire du  $^{134}\text{Te}$ . Son schéma de niveaux utilisé pour les explications est présenté dans la figure 5.19.

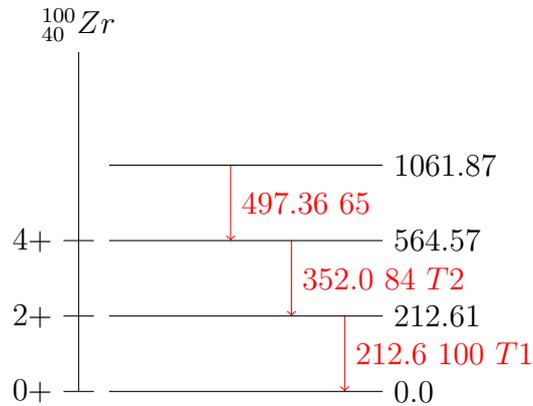


FIGURE 5.19 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{100}\text{Zr}$  pour la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [100].

### Nombre de coïncidences

J'applique la méthode cette fois ci sur le  $^{100}\text{Zr}$ . Le spectre total et la matrice sont respectivement représenté dans la figure 5.20 et la 5.22a.

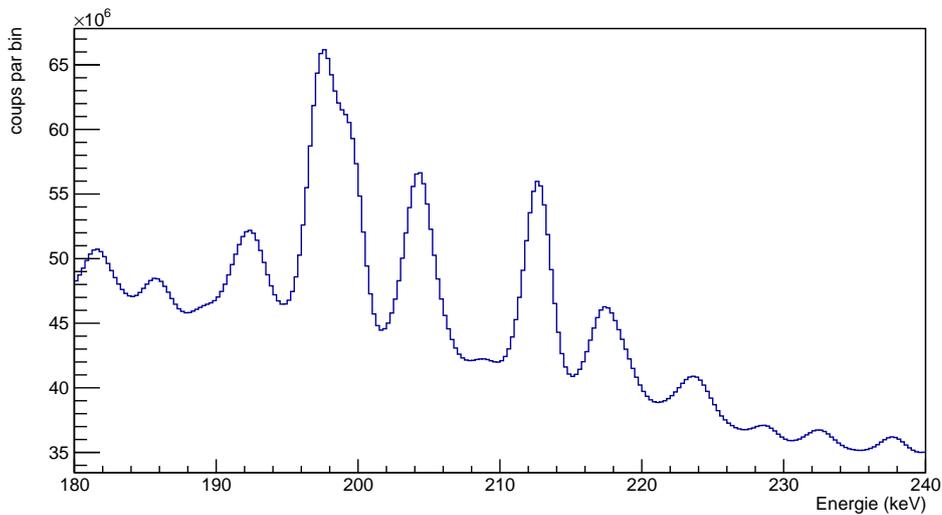


FIGURE 5.20 – Spectre total dans la région 180 keV / 240 keV.

Je vérifie visuellement si la coïncidence semble polluée ou non par d'autres transitions comme précédemment. Il y a cependant une différence. Sur la projection 5.22c, on remarque qu'il semble y avoir un pic entre 217-220 keV à droite du pic principal autour de 212 keV. Ce qui implique que la zone de bruit de fond prise entre 215-219 keV est potentiellement polluée par une transition, il faudra donc identifier ce pic dans la sous-partie consacrée aux contaminations.

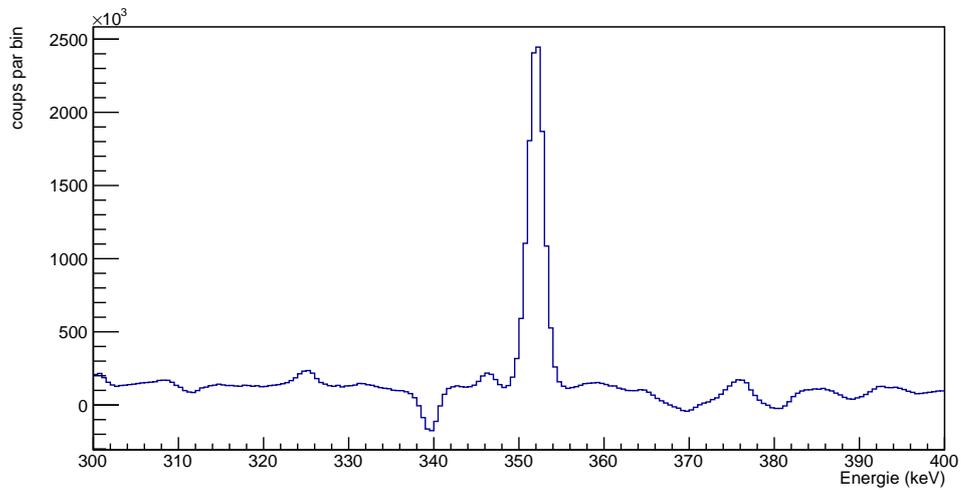
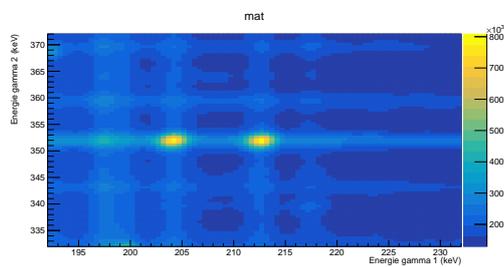
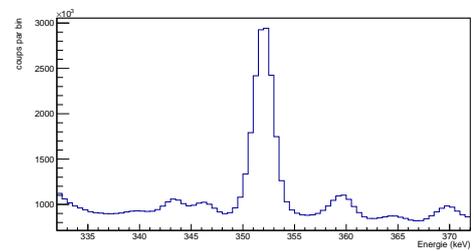


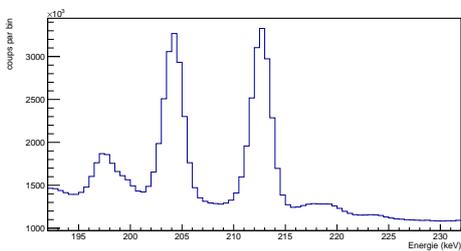
FIGURE 5.21 – Spectre après mise en coïncidence avec la transition à 212.6 keV du qui permet de clairement faire ressortir le pic correspondant à la transition 352 keV du  $^{100}\text{Zr}$ . Dans la région 300 keV / 400 keV.



(a) Matrice des gamma des transition T1 et T2 en coïncidence.



(b) Projection sur l'axe des ordonnées de la zone 212-215 keV en abscisse.



(c) Projection sur l'axe des abscisses de la zone 351-354 keV en ordonné.

FIGURE 5.22 – Matrice autour de la coïncidence (212.6, 352.0) et projections.

## Rapport d'intensité

Je cherche maintenant à déterminer le rapport d'intensité entre les transitions T1 et T2. Pour ce faire, je pars du cube (histogramme en 3D) des données en coïncidences et j'utilise le fragment complémentaire le plus produit du  $^{100}\text{Zr}$ , en l'occurrence le  $^{134}\text{Te}$ . La figure 5.23 représente le spectre des gamma en coïncidence avec les transitions d'énergies 1279.01 keV et 297.0 keV du  $^{134}\text{Te}$ .

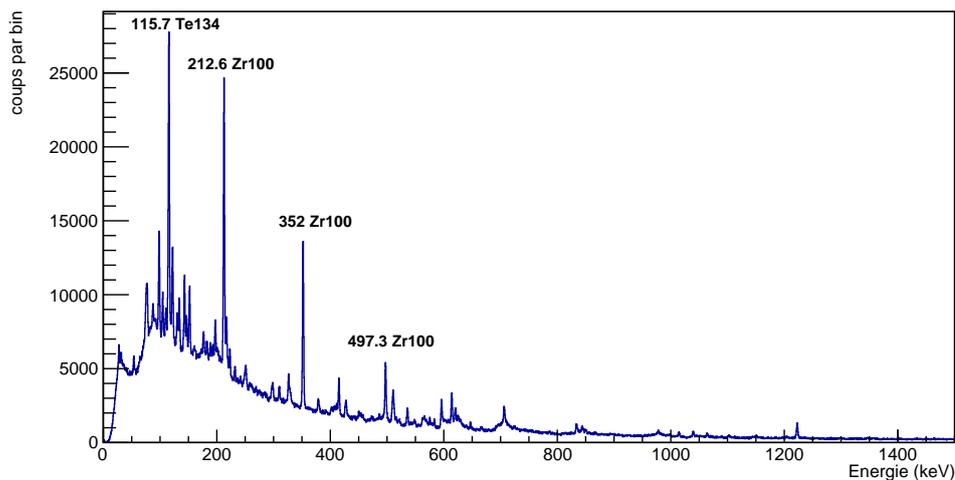


FIGURE 5.23 – Spectre des gamma en coïncidence avec les deux transitions d'énergies 1279.01 keV et 297.0 keV du  $^{134}\text{Te}$ . Les pics les plus intenses correspondant logiquement aux transitions les plus produites du  $^{100}\text{Zr}$  mais on peut également observer à 115.2 keV une transition du  $^{134}\text{Te}$ .

Je vérifie également si la triple coïncidence semble polluée par d'autres transitions, notamment si le bruit de fond a été soustrait correctement, grâce aux figure 5.24 et 5.25.

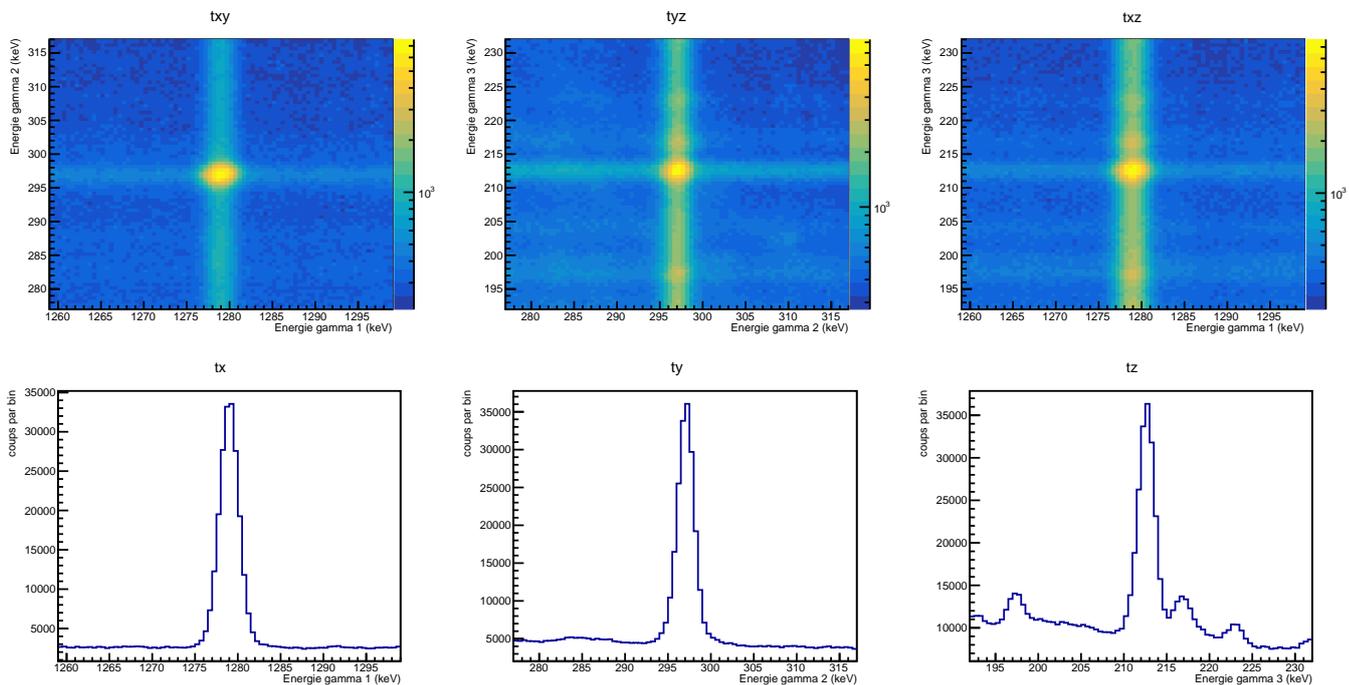


FIGURE 5.24 – Coupes dans la matrice pour chercher les possibles contaminations.

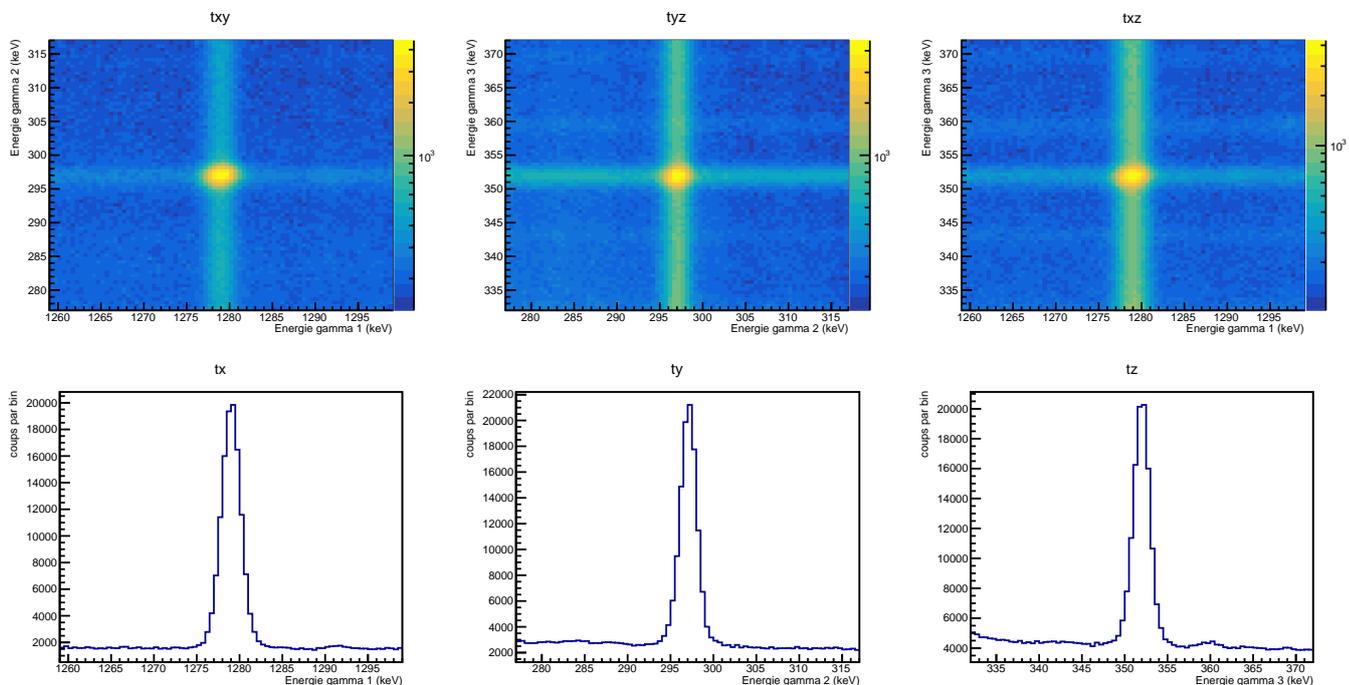


FIGURE 5.25 – Coupes dans la matrice pour chercher les possibles contaminations.

Dans la figure 5.24 la matrice txy est une coupe selon l'axe z dans le cube, autour du pic à 212.6 keV. La matrice tyz est une coupe selon l'axe x dans le cube, autour du pic à 1279.01 keV. La matrice txz est une coupe selon l'axe y dans le cube, autour du pic à 297 keV. En dessous sont présentées les projections respectives de chacune des matrices selon, l'axe x pour tx, l'axe y pour ty et l'axe z pour tz. Les deux projections qui nous intéressent sont tx et ty car elles nous permettent de savoir si la sélection du bruit de fond est correcte. On note tout de suite que pour les deux il n'y a aucun pic dans la zone de bruit de fond, à droite du pic principal. Le bruit de fond sélectionné dans ces zones semble donc non pollué et correct.

Dans la figure 5.25, il s'agit exactement des mêmes explications à la différence que la coupe selon l'axe z dans le cube est effectuée autour du pic à 352.0 keV. De la même manière, le bruit de fond sélectionné dans ces zones semble non pollué et a donc été soustrait correctement.

## Contaminations

On cherche tout d'abord les possibles contaminations sur le calcul du nombre de coïncidences. Tout d'abord, lors de la sélection du bruit de fond, un pic gênant apparaissait dans la zone 217-220 keV. Je simule donc avec FIFRELIN toutes les doubles coïncidences dans les gammes d'énergies 217 – 220 keV et 350 – 353 keV, le tableau 5.10 en fait un résumé. On note qu'il s'agit d'un agrégat de plusieurs pics correspondant à différents éléments (essentiellement  $^{100}\text{Zr}$ ,  $^{136}\text{Te}$ ,  $^{94}\text{Rb}$  et  $^{139}\text{Cs}$ ). Cependant 90% de l'intensité correspond à deux transitions du  $^{100}\text{Zr}$ , on considère donc cette pollution comme non problématique et la sélection du bruit de fond valable.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production (%)
219.69	351.956	100	40	100	40	86.6
219.28	352.9	94	37	139	55	3.8
217.3	352.9	94	37	139	55	3.5
219.69	352.99	100	40	100	40	2.2
219.69	352.6	100	40	136	52	1.2

TABLE 5.10 – Coïncidences produites pour le  $^{100}\text{Zr}$  aux énergies 217–220 keV et  $352.0 \pm 3$  keV. Seules les transitions avec des intensités supérieures à 1% sont montrées, ce qui explique que le total n'est pas exactement égal à 100%.

Je vérifie ensuite s'il y a des contaminations au sein même de la coïncidence en demandant à FIFRELIN de prédire toutes les doubles coïncidences pour les gammes d'énergies  $212.6 \pm 3$  keV et  $352.0 \pm 3$  keV, le tableau 5.11 en fait un résumé. Près de 98% provient de la coïncidence que l'on souhaite mesurer. La seule pollution notable est de 1.3% provenant d'une transition du  $^{136}\text{Te}$  et qui est trop proche du pic principal pour être ajusté. Cette petite pollution nous oblige à accroître l'incertitude sur la mesure de l'ordre de 2%.

Je vérifie maintenant les contaminations possibles pour les triples coïncidences permettant de calculer le rapport d'intensité. On observe rapidement que dans le premier cas, dans le tableau 5.12, il y a une petite pollution de 1% qui est prise en compte lors de l'ajustement des données. Dans

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production (%)
212.53	351.956	100	40	100	40	97.6
212.53	352.6	100	40	136	52	1.3
212.53	352.99	100	40	100	40	0.3
215.53	352.6	98	40	136	52	0.3
211.264	349.37	142	55	142	55	0.2

TABLE 5.11 – Coïncidences produites pour le  $^{100}\text{Zr}$  aux énergies  $212.6 \pm 3 \text{ keV}$  et  $352.0 \pm 3 \text{ keV}$ .

le deuxième cas, en tableau 5.13, la pollution est négligeable, 99.6% de la coïncidence provient des transitions souhaitées.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
1279.11	297.02	212.53	134	52	134	52	100	40	97.8
1279.11	297.02	215.53	134	52	134	52	98	40	1.1
1279.11	297.02	211.6	134	52	134	52	101	40	0.6
1279.11	297.02	215.37	134	52	134	52	99	40	0.3
1279.11	297.02	215.37	134	52	134	52	99	40	0.3

TABLE 5.12 – Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $212.6 \pm 3 \text{ keV}$  et  $297.0 \pm 3 \text{ keV}$ . Seuls les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
1279.11	297.02	351.956	134	52	134	52	100	40	99.5
1278.39	294.983	352.81	86	34	148	58	148	58	0.2
1279.11	297.02	352.99	134	52	134	52	100	40	0.2

TABLE 5.13 – Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $352.0 \pm 3 \text{ keV}$  et  $297.0 \pm 3 \text{ keV}$ . Seuls les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte.

## Résultat

Le tableau 5.14 illustre les résultats obtenus sur le  $^{100}\text{Zr}$ .

Pour le  $^{100}\text{Zr}$ , on obtient donc un rapport d'intensité entre les transitions 212.6 keV et 352.0 keV égal à  $R = 0.89 \pm 0.04$ . Le même rapport déterminé avec les données ExILL [98] était de  $R_{ExILL} = 0.78 \pm 0.03$ . Pour la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  ce même rapport est de  $R_{252\text{Cf}} = 0.84 \pm 0.04$ . Le résultat obtenu avec FIPPS est cohérent avec celui mesuré en  $^{252}\text{Cf}$  mais pas avec ExILL. Le résultat du rendement comparé aux bases de données est présenté dans la figure 5.26. On note que le rendement

Grandeur	Valeur	Incertitude
Nombre de coïncidences (212.6, 352)	11100000	300000
Contamination coïncidences (212.6, 352) (%)	2	1
Nombre de coïncidences (212.6, 1279.01, 297.0)	227000	3000
Contamination coïncidences (212.6, 1279.01, 297.0) (%)	//	//
Nombre de coïncidences (352, 1279.01, 297.0)	140000	2000
Contamination coïncidences (352, 1279.01, 297.0) (%)	//	//
Rapport d'intensité	0.89	0.04
Efficacité 212.6 keV	0.155	0.003
Efficacité 352 keV	0.107	0.003
Correction ICC	1.0722	0.0011
<b>Rendement avant correction</b>	<b>3.67</b>	<b>0.30</b>
Correction sommation ( $1/\alpha^s$ )	0.865	0.020
Correction production fondamental ( $1/\alpha^p$ )	0.96	0.01
<b>Rendement après correction</b>	<b>5.42</b>	<b>0.39</b>

TABLE 5.14 – Récapitulatif des résultats obtenus pour le  $^{100}\text{Zr}$ .

du  $^{100}\text{Zr}$  calculé avec FIPPS est cohérent dans les barres d'incertitudes avec les bases de données et le même rendement déterminé par Lang avec l'instrument Lohengrin.

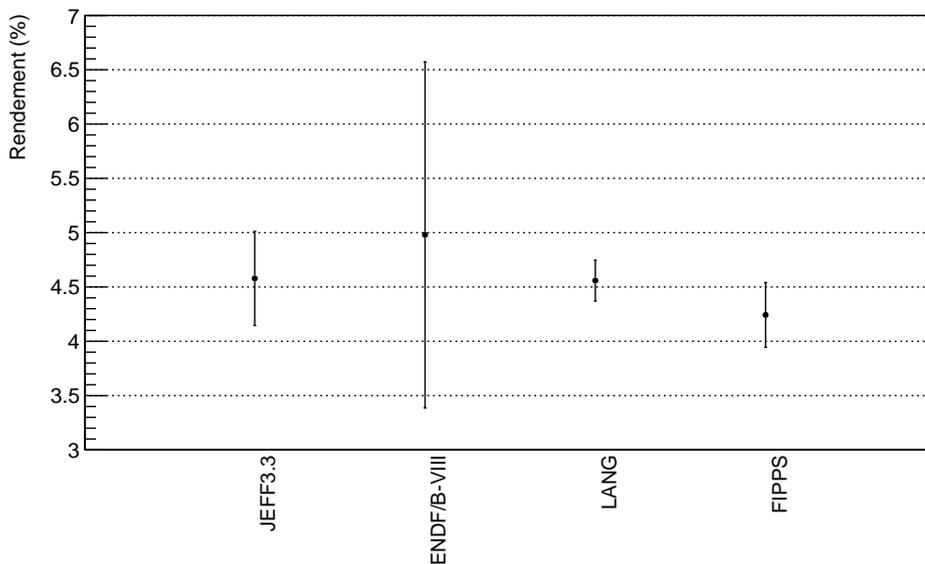


FIGURE 5.26 – Rendement du  $^{100}\text{Zr}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS.

## 5.2.4 Rendement du $^{98}\text{Zr}$

On passe maintenant au  $^{98}\text{Zr}$ . Son schéma de niveaux utilisé pour les explications est présenté sur la figure 5.27.

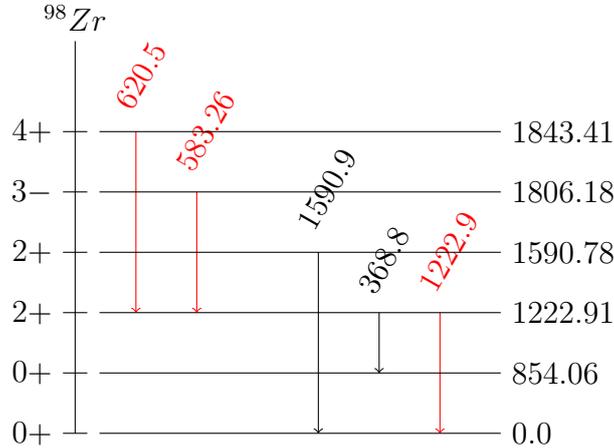


FIGURE 5.27 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{98}_{40}\text{Zr}$  dans la fission spontanée  $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94].

### Nombre de coïncidences

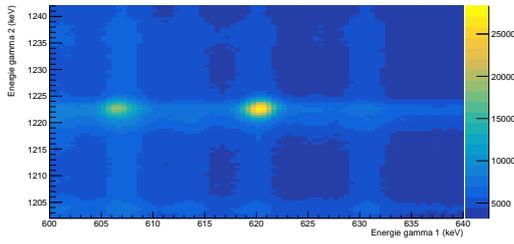
Le calcul du nombre de coïncidences entre les transitions  $620.5\text{ keV}$  et  $1222.9\text{ keV}$  pour le  $^{98}\text{Zr}$  ne présente aucune particularité. Le bruit de fond sélectionné entre  $1226\text{--}1230\text{ keV}$  ne présente visiblement aucun problème (voir la figure 5.28c). Le seul détail notable est qu'outre la transition à  $1222.9\text{ keV}$  une autre transition non négligeable à  $1590.9\text{ keV}$  peuple l'état fondamental. Elle est à une énergie suffisamment élevée pour être mesurée directement sur le spectre sans passer par les coïncidences. Cette deuxième transition est prise en compte comme une correction de la première. Le calcul est détaillé dans l'équation 5.16 :

$$Y({}^A_ZX) = \frac{1}{N_f} \times \frac{N_{\gamma_1\gamma_2}^{coinc}}{\epsilon(E_1, E_2)} \times \frac{1}{R_1} \times \alpha_\tau^2 \times \alpha^s \times \alpha^p \times [(1 + \alpha_{\gamma_1})^2 + R_2(1 + \alpha_{\gamma_2})] \quad (5.16)$$

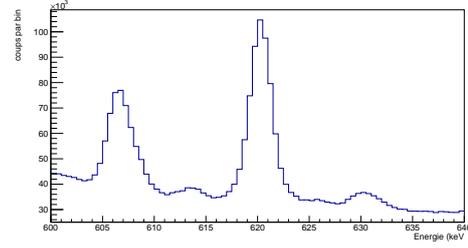
dans laquelle :

- $R_1$  est le rapport de l'intensité entre les deux transitions considérées pour la coïncidence ( $620.5, 1222.9$ ).
- $R_2$  est le rapport de l'intensité entre la transition à  $1590.9\text{ keV}$  et celle à  $1222.9\text{ keV}$ .
- $\alpha_{\gamma_1}$  est le coefficient de conversion interne de la transition à  $1222.9\text{ keV}$ .
- $\alpha_{\gamma_2}$  est le coefficient de conversion interne de la transition à  $1590.9\text{ keV}$ .

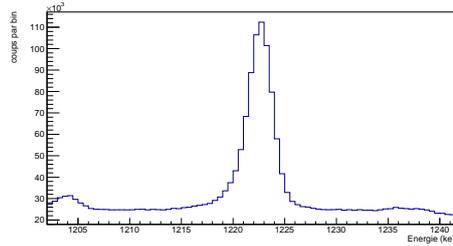
De plus, tel qu'illustré en tableau 5.15, les contaminations au sein même de la coïncidence  $620.5\text{ keV}$  et  $1222.9\text{ keV}$  sont totalement négligeables, inférieures à 1%.



(a) Matrice des gamma des transition T1 et T2 en coïncidence.



(b) Projection sur l'axe des abscisses de la zone 1221-1224 keV en ordonné.



(c) Projection sur l'axe des ordonnées de la zone 619-622 keV en abscisse.

FIGURE 5.28 – Représentation de la matrice et des projections pour le  $^{98}\text{Zr}$ .

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production %
1222.92	620.53	98	40	98	40	99.3
1220.85	620.53	98	40	98	40	0.2
1221.26	620.17	130	50	104	42	0.1

TABLE 5.15 – Contaminations pour la double coïncidence  $^{98}\text{Zr}$  aux énergies  $1222.9 \pm 3 \text{ keV}$  et  $620.5 \pm 3 \text{ keV}$  obtenue via une simulation FIFRELIN.

## Rapport d'intensité

Je cherche maintenant le rapport d'intensité entre les deux transitions mesurées en coïncidence. Le plus logique, suivant la méthode, aurait été d'utiliser le fragment complémentaire le plus produit du  $^{98}\text{Zr}$ , en l'occurrence le  $^{136}\text{Te}$ . J'aurais sélectionné les coïncidences des deux transitions les plus produites du  $^{136}\text{Te}$ , celle d'énergies 606.6 keV et 423.4 keV, et obtenu un spectre des gamma en coïncidence avec ces deux transitions. Cependant, on note un premier problème sur le triple coïncidence (620.5, 606.6, 423.4) visible grâce à la figure 5.29. Les deux projections tx et ty présentent chacune une pollution non négligeable à droite du pic principal. Le bruit de fond sélectionné dans ces zones semble donc pollué. A l'opposé, pour la triple coïncidence (1222.9, 606.6, 423.4), on ne note pas de pollution visible, dans la figure 5.30.

Je montre les contaminations possibles pour la triple coïncidence (1222.9, 606.6, 423.4) permettant de calculer le rapport d'intensité dans le tableau 5.16. On relève immédiatement que cette coïncidence est largement polluée à hauteur de presque 8% par une transition du  $^{136}\text{Te}$  en coïncidence avec le  $^{98}\text{Zr}$ .

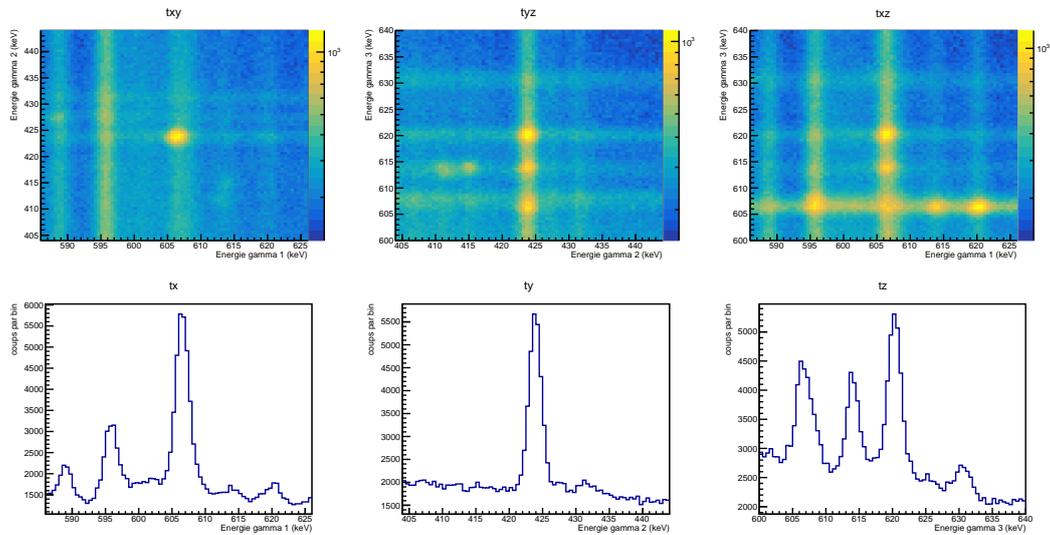


FIGURE 5.29 – La matrice txy est une coupe selon l’axe z dans le cube, autour du pic à 620.5 keV. La matrice tyz est une coupe selon l’axe x dans le cube, autour du pic à 606.6 keV. La matrice txz est une coupe selon l’axe y dans le cube, autour du pic à 423.4 keV. En dessous sont présentées les projections respectives de chacune des matrices selon, l’axe x pour tx, l’axe y pour ty et l’axe z pour tz.

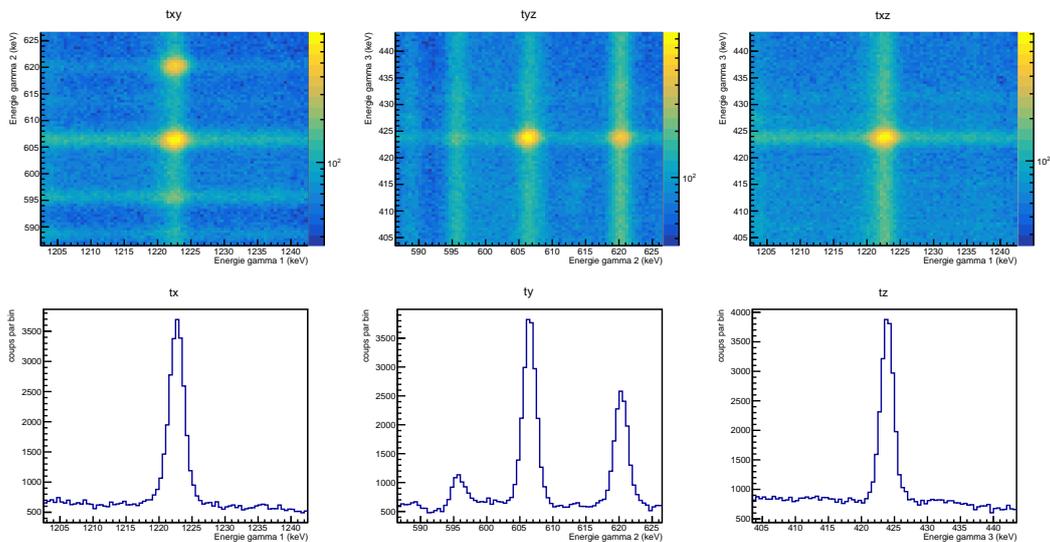


FIGURE 5.30 – La matrice txy est une coupe selon l’axe z dans le cube, autour du pic à 1222.9 keV. La matrice tyz est une coupe selon l’axe x dans le cube, autour du pic à 606.6 keV. La matrice txz est une coupe selon l’axe y dans le cube, autour du pic à 423.4 keV. En dessous sont présentées les projections respectives de chacune des matrices selon, l’axe x pour tx, l’axe y pour ty et l’axe z pour tz.

A cause de ces deux contaminations, à la fois au sein même de la triple coïncidence et dans la sélection du bruit de fond, il commence à devenir hasardeux de calculer le rapport d’intensité en utilisant comme complémentaire le  $^{136}\text{Te}$ . Nous avons donc décidé de le calculer en utilisant un autre

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
1222.92	423.36	620.53	98	40	136	52	98	40	91.5
1222.92	424.65	620.53	98	40	135	52	98	40	7.5
1220.85	423.36	620.53	98	40	136	52	98	40	0.2

TABLE 5.16 – Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes  $1222.9 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $423.4 \pm 3 \text{ keV}$  et  $620.5 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte.

fragment complémentaire possible du  $^{98}\text{Zr}$ , le  $^{134}\text{Te}$ . Il est même possible de le faire en utilisant les doubles coïncidences et pas les triples pour deux raisons. Tout d'abord, les doubles coïncidences du  $^{98}\text{Zr}$  avec  $^{134}\text{Te}$  aux énergies  $1222.9 \pm 3 \text{ keV}$  et  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$  et  $620.5 \pm 3 \text{ keV}$  et  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$  sont polluées à moins de 2% comme illustré dans les tableaux 5.17 et 5.18.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production %
1222.92	1279.11	98	40	134	52	98.2
1222.71	1279.11	96	40	134	52	1.1

TABLE 5.17 – Contaminations pour la double coïncidences  $^{98}\text{Zr} / ^{134}\text{Te}$  aux énergies  $1222.9 \pm 3 \text{ keV}$  et  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$  obtenu via FIFRELIN.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production %
620.53	1279.11	98	40	134	52	99.3
622.4	1279.11	98	40	134	52	0.2

TABLE 5.18 – Contaminations pour la double coïncidences  $^{98}\text{Zr} / ^{134}\text{Te}$  aux énergies  $620.5 \pm 3 \text{ keV}$  et  $1279.01 \pm 3 \text{ keV}$  obtenue via FIFRELIN.

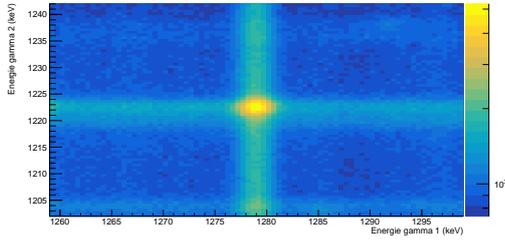
Ensuite, le bruit de fond en double coïncidence est propre et ne représente aucune pollution visible à droite du pic de la figure 5.31b. Il est donc bien plus pertinent d'utiliser le  $^{134}\text{Te}$  comme complémentaire du  $^{98}\text{Zr}$  pour calculer les rapports d'intensité.

## Résultat

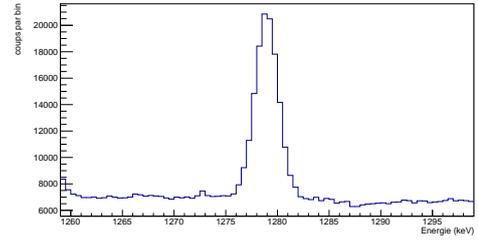
Le tableau 5.19 illustre les résultats obtenus sur le  $^{98}\text{Zr}$ .

Pour le  $^{98}\text{Zr}$  on obtient donc un rapport d'intensité entre les transitions 620.5 keV et 1222.9 keV égal à  $R = 0.53 \pm 0.03$ . Le rapport entre les transitions 1590.9 keV et 1222.9 keV est de  $R = 0.13 \pm 0.01$ . Dans le premier cas, le même rapport déterminé pour la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$  est de  $R_{248\text{Cm}} = 0.58 \pm 0.03$ . Dans le second cas, il est de  $R_{248\text{Cm}} = 0.12 \pm 0.03$ . Nos résultats avec FIPPS semblent cohérents puisque compatibles dans les barres d'incertitudes avec les rapports mesurés en  $^{248}\text{Cm}$ .

Le résultat du rendement comparé aux bases de données est présenté dans la figure 5.32. On note que le rendement calculé avec FIPPS est trop bas pour être compatible avec les bases de données et



(a) Matrice des gamma des transition T1 et T2 en coïncidence.



(b) Projection sur l'axe des abscisses de la zone 1221-1224 keV en ordonné.

FIGURE 5.31 – Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à 1222.9 keV.

Grandeur	Valeur	Incertitude
Nombre de coïncidences (1222.9, 620.4)	596000	12000
Contamination coïncidences (1222.9, 620.5) (%)	//	//
Nombre de coïncidences (1222.9, 1279.01)	92000	1600
Contamination coïncidences (1222.9, 1279.01) (%)	//	//
Nombre de coïncidences (620.5, 1279.01)	78000	3000
Contamination coïncidences (620.5, 1279.01) (%)	//	//
Rapport d'intensité 620.5 avec 1222.9	0.53	0.03
Nombre de coïncidences (1590.9, 1279.01)	10055	822
Contamination coïncidences (1590.9, 1279.01) (%)	//	//
Rapport d'intensité 1590.9 avec 1222.9	0.13	0.01
Efficacité 1222.9 keV	0.045	0.002
Efficacité 620.5 keV	0.071	0.003
Efficacité 1590.9 keV	0.037	0.002
Correction ICC	//	//
<b>Rendement avant correction</b>	<b>1.75</b>	<b>0.18</b>
Correction sommation ( $1/\alpha^s$ )	0.87	0.02
Correction production fondamental ( $1/\alpha^p$ )	0.98	0.01
<b>Rendement après correction</b>	<b>2.02</b>	<b>0.19</b>

TABLE 5.19 – Récapitulatif des résultats obtenus pour le  $^{98}\text{Zr}$ .

Lang (Lohengrin). Une explication possible serait que le schéma de niveaux est incomplet ou que la production du fondamental selon la simulation FIFRELIN est inexacte. Il est également possible que l'état isomère (17-, 6601.9 keV) joue un rôle.

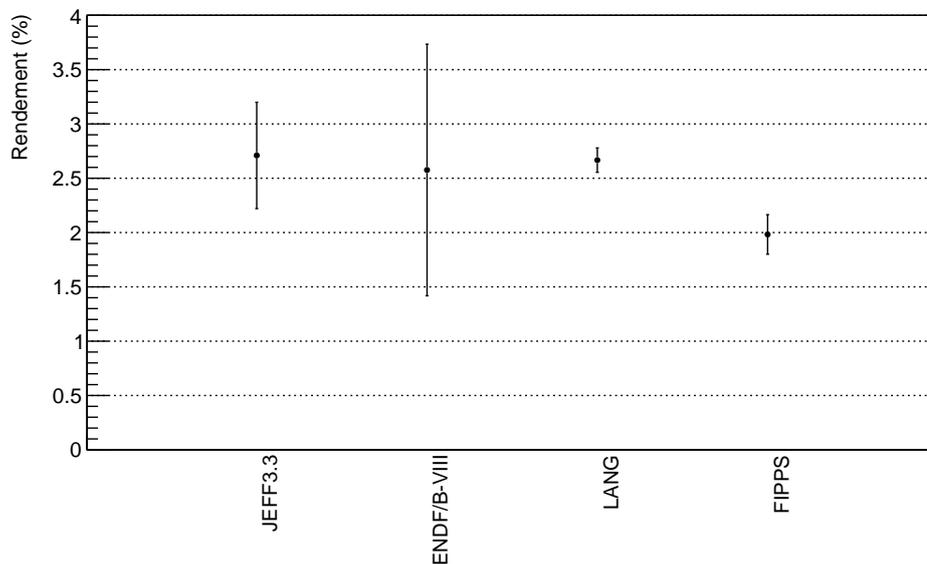


FIGURE 5.32 – Rendement du  $^{98}\text{Zr}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS.

### 5.2.5 Rendement du $^{140}\text{Xe}$

On passe maintenant au  $^{140}\text{Xe}$ . Son schéma de niveaux utilisé pour les explications est présenté dans la figure 5.33.

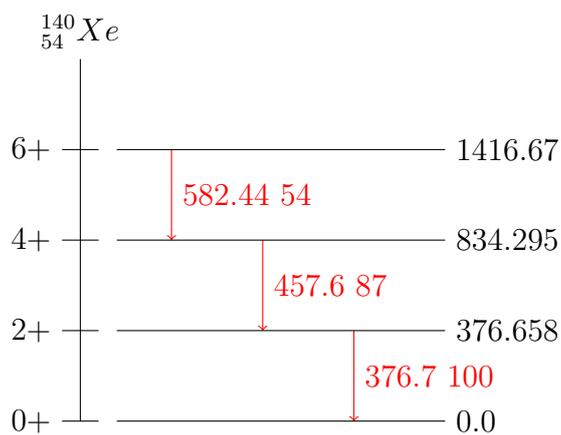


FIGURE 5.33 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{140}_{54}\text{Xe}$  dans la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [101].

## Nombre de coïncidences

J'applique la même méthode que décrite plusieurs fois précédemment, la double coïncidence ne présente aucune pollution ou problème particuliers.

## Rapport d'intensités

Pour le calcul des rapports d'intensité du  $^{140}\text{Xe}$ , le plus logique aurait été de choisir le fragment complémentaire le plus produit, en l'occurrence le  $^{94}\text{Sr}$ . Cependant, lorsque l'on regarde les prédictions de FIFRELIN au sein de la triple coïncidence (836.9 keV, 1309.1 keV, 457.6 keV), on note une pollution de presque 20% comme illustré dans le tableau 5.20. Il est donc préférable de choisir un autre complémentaire, en l'occurrence le  $^{96}\text{Sr}$  puisque les triples coïncidences (815.0 keV, 977.8 keV, 457.6 keV) (tableau 5.22) et (815.0 keV, 977.8 keV, 376.7 keV) (tableau 5.21) ne sont pas polluées.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
836.9	1309.1	457.637	94	38	94	38	140	54	80.7
836.9	1309.1	457.94	94	38	94	38	94	38	10.9
836.9	1309.1	460	94	38	94	38	94	38	8.0

TABLE 5.20 – Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes  $836.9 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $1309.1 \pm 3 \text{ keV}$  et  $457.6 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
814.93	977.84	376.658	96	38	96	38	140	54	97.7
814.93	977.69	376.658	96	38	140	54	140	54	1.7
814.93	977.84	376.77	96	38	96	38	140	54	0.4

TABLE 5.21 – Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes  $815.0 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $977.8 \pm 3 \text{ keV}$  et  $376.7 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$E_3$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	$A_3$	$Z_3$	Production %
814.93	977.84	457.637	96	38	96	38	140	54	97.9
814.93	977.69	457.637	96	38	140	54	140	54	1.1

TABLE 5.22 – Triples coïncidences prédites par FIFRELIN dans les gammes d'énergie suivantes  $815.0 \pm 3 \text{ keV}$ ,  $977.8 \pm 3 \text{ keV}$  et  $457.6 \pm 3 \text{ keV}$ . Seules les productions supérieures à 0.2% ont été prises en compte.

Grandeur	Valeur	Incertitude
Nombre de coïncidences (376.7, 457.6)	5140000	120000
Contamination coïncidences (376.7, 457.6) (%)	5	3
Nombre de coïncidences (376.7, 815.0, 977.8)	6100	200
Contamination coïncidences (376.7, 815.0, 977.8) (%)	//	//
Nombre de coïncidences (457.6, 815.0, 977.8)	4900	300
Contamination coïncidences (457.6, 815.0, 977.8) (%)	//	//
Rapport d'intensité	0.94	0.07
Efficacité 376.7 keV	0.101	0.003
Efficacité 457.6 keV	0.088	0.002
Correction ICC	1.0205	0.0003
<b>Rendement avant correction</b>	<b>2.61</b>	<b>0.29</b>
Correction sommation	0.87	0.02
Correction production fondamental	//	//
<b>Rendement après correction</b>	<b>3.22</b>	<b>0.30</b>

TABLE 5.23 – Récapitulatif des résultats obtenus pour le  $^{140}\text{Xe}$ .

## Résultat

Les résultats obtenus sur le  $^{140}\text{Xe}$  se trouvent dans le tableau 5.23.

Pour le  $^{140}\text{Xe}$  on obtient donc un rapport d'intensités entre les transitions 212.6 keV et 352.0 keV égal à :  $R = 0.94 \pm 0.07$ . Le même rapport déterminé avec les données ExILL était de [98] :  $R_{ExILL} = 0.94 \pm 0.04$ . Dans ENSDF pour la fission thermique de  $^{235}\text{U}$   $R_{ENSDF} = 0.87 \pm 0.03$ . Notre résultat avec FIPPS est donc compatible dans les barres d'incertitudes avec le rapport mesuré avec ExILL et avec ENSDF.

Le résultat du rendement comparé aux bases de données est présenté dans la figure 5.34. Le rendement du  $^{140}\text{Xe}$  calculé avec FIPPS est compatible dans les barres d'incertitudes avec les bases de données. Le léger déficit pourrait s'expliquer par une mauvaise estimation de la proportion de fragments de  $^{140}\text{Xe}$  produits directement au fondamental..

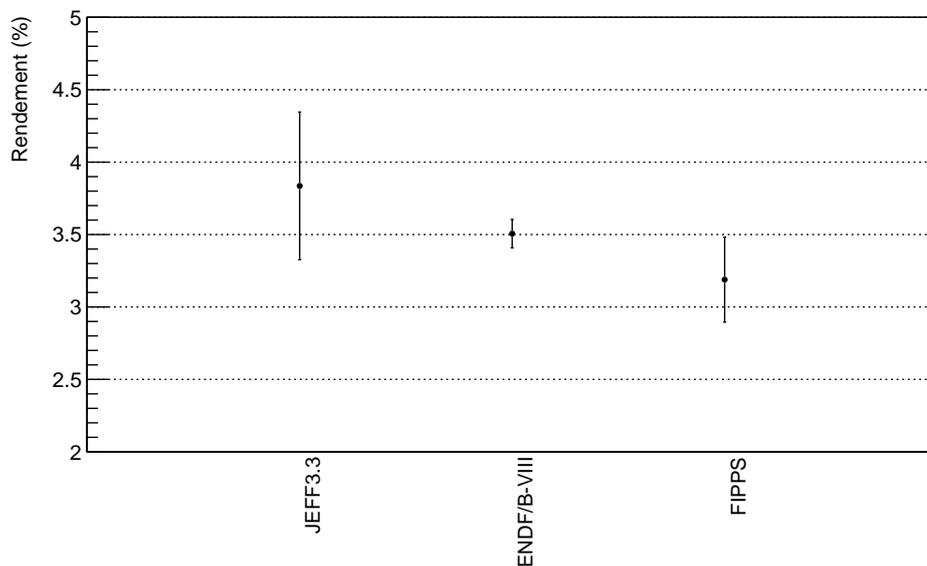


FIGURE 5.34 – Rendement du  $^{140}\text{Xe}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII comparé au résultat obtenu avec FIPPS.

### 5.2.6 Rendement du $^{96}\text{Sr}$

On passe maintenant au  $^{96}\text{Sr}$ . Son schéma de niveaux utilisé pour les explications est présenté dans la figure 5.35.

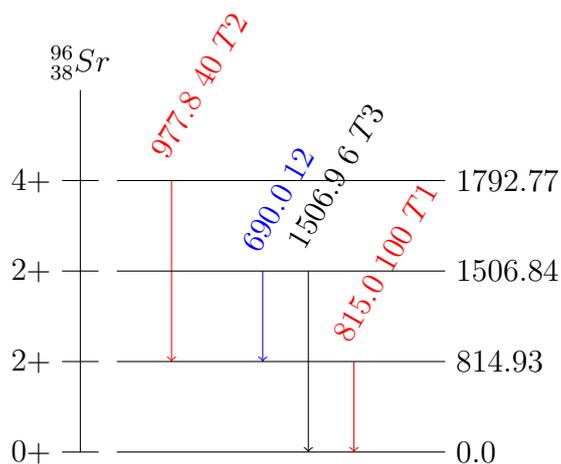
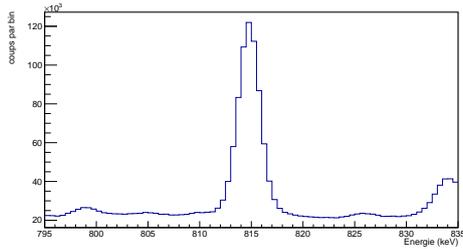


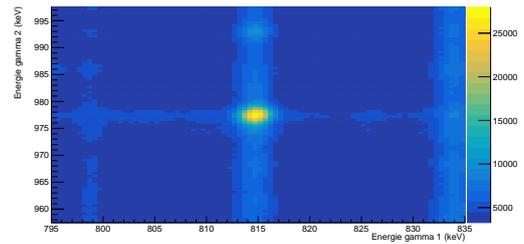
FIGURE 5.35 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{96}_{38}\text{Sr}$  dans la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [102].

## Nombre de coïncidences

Le calcul du nombre de coïncidences se fait entre les transitions  $815.0 \text{ keV}$  et  $977.8 \text{ keV}$  pour le  $^{96}\text{Sr}$ , coïncidence T1/T2. La matrice et le spectre illustrant la double coïncidence sont sur la figure 5.36. Le seul détail notable est qu'outre la transition à  $815.0 \text{ keV}$  une autre transition non négligeable à  $1506.9 \text{ keV}$  peuple l'état fondamental. Cette dernière est prise en compte de la même manière que pour le  $^{98}\text{Zr}$  en partie 5.2.4.



(a) Projection sur l'axe des abscisses de la zone  $815.0 \pm 3 \text{ keV}$  en ordonné.



(b) Matrice des gamma des transition T1 et T2 en coïncidence.

FIGURE 5.36 – Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à  $815.0 \text{ keV}$ .

Les contaminations au sein même de la coïncidence ( $620.5, 1222.9$ ) sont données dans le tableau 5.24. Elles nous obligent à prendre en compte un coefficient correctif, arrondi à l'unité, de l'ordre de 4% sur la mesure du nombre de coïncidences ( $620.5, 1222.9$ ).

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production %
814.93	977.84	96	38	96	38	95.8
814.93	975.06	96	38	136	54	3.4
813.26	975.06	96	38	136	54	0.2

TABLE 5.24 – Contaminations pour la double coïncidences aux énergies  $815.0 \pm 3 \text{ keV}$  et  $977.8 \pm 3 \text{ keV}$ .

## Rapports d'intensités

Les rapports d'intensité sont calculés comme précédemment, ici c'est le fragment de  $^{138}\text{Xe}$  qui est utilisé comme complémentaire (schéma de niveaux en 5.37). Une différence par rapport aux autres cas est que le  $^{138}\text{Xe}$  a deux transitions très proches  $482.1 \text{ keV}$  et  $483.6 \text{ keV}$  impossibles à différencier dans nos données, les deux sont en coïncidences avec celle de  $588.8 \text{ keV}$ . J'utilise donc trois transitions pour calculer les rapports d'intensité des transitions du  $^{96}\text{Sr}$  mais dans la pratique on considère les deux transitions indifférenciables du  $^{138}\text{Xe}$  comme une seule.

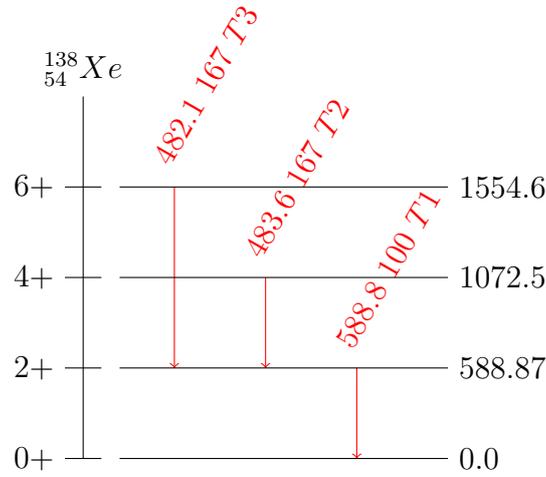


FIGURE 5.37 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{138}_{54}\text{Xe}$  pour la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ .

Pour le  $^{96}\text{Sr}$  on obtient donc un rapport d'intensités entre les transitions 977.8 keV et 815.0 keV égal à :  $R = 0.33 \pm 0.02$ . Le rapport entre les transitions 1506.9 keV et 815.0 keV est de :  $R = 0.05 \pm 0.01$ . Ces rapports n'ont pas été déterminés avec les données ExILL. Les facteurs 0.95, 0.93 et 0.98 correspondent aux contaminations dans les triples coïncidences utilisées pour calculer ces rapports d'intensités (cf le tableau récapitulatif 5.25). Pour la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$  ces mêmes rapports [102] sont de  $R_{248\text{Cm}} = 0.40 \pm 0.03$  et de  $R_{248\text{Cm}} = 0.06 \pm 0.01$ . Nos résultats avec FIPPS ne sont pas exactement dans les barres d'incertitudes pour le  $^{248}\text{Cm}$  mais restent proches. Cependant, on ne s'attend pas à ce que les rapports d'intensité pour la fission de  $^{235}\text{U}$  soient égaux à ceux pour la fission de  $^{248}\text{Cm}$  mais simplement qu'ils soient proches, ce qui est le cas.

## Résultats

Les résultats obtenus sur le  $^{96}\text{Sr}$  sont présentés dans le tableau suivant 5.25 et le résultat comparé aux bases de données est présenté sur la figure 5.38. Le rendement du  $^{96}\text{Sr}$  calculé avec FIPPS est compatible dans les barres d'incertitudes avec les bases de données.

Grandeur	Valeur	Incertitude
Nombre de coïncidences (815.0, 977.8)	664000	20000
Contamination coïncidences (815.0, 977.8) (%)	3	2
Nombre de coïncidences (815.0, 588.8, 483.6)	135000	2000
Contamination coïncidences (815.0, 588.8, 483.6) (%)	5	3
Nombre de coïncidences (977.8, 588.8, 483.6)	40300	700
Contamination coïncidences (977.8, 588.8, 483.6) (%)	7	4
Nombre de coïncidences (1506.9, 588.8, 483.6)	4400	200
Contamination coïncidences (1506.9, 588.8, 483.6) (%)	2	1
Rapport d'intensité 977.8 avec 815.0	0.33	0.02
Rapport d'intensité 1506.9 avec 815.0	0.05	0.01
Efficacité 815.0 keV	0.059	0.002
Efficacité 977.8 keV	0.052	0.002
Efficacité 1506.9 keV	0.039	0.002
Correction ICC	//	//
<b>Rendement avant correction</b>	<b>2.89</b>	<b>0.45</b>
Correction sommation ( $1/\alpha^s$ )	0.86	0.03
Correction production fondamental ( $1/\alpha^p$ )	//	//
<b>Rendement après correction</b>	<b>3.37</b>	<b>0.45</b>

TABLE 5.25 – Récapitulatif des résultats obtenus pour le  $^{96}\text{Sr}$ .

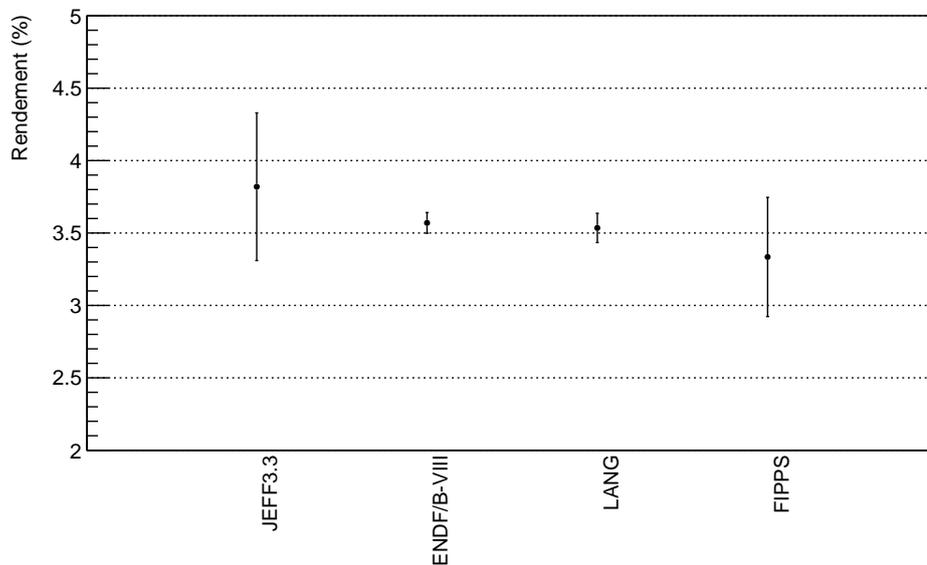


FIGURE 5.38 – Rendement du  $^{96}\text{Sr}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS.

## 5.2.7 Rendement du $^{142}\text{Ba}$

On passe maintenant au  $^{142}\text{Ba}$ . Son schéma de niveaux utilisé pour les explications est présenté dans la figure 5.39.

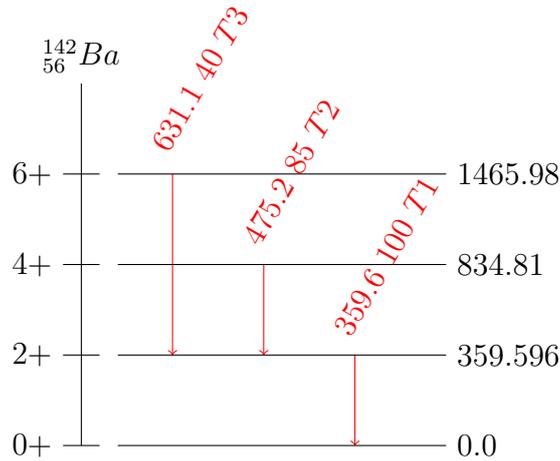
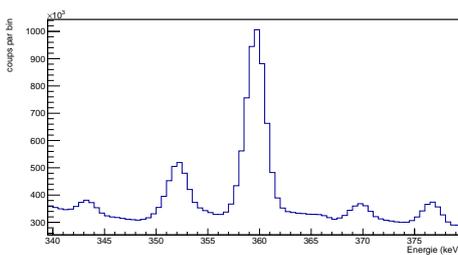


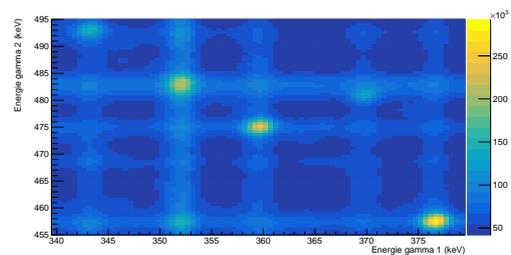
FIGURE 5.39 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{142}_{56}\text{Ba}$  dans la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [103].

### Nombre de coïncidences

J'applique la même méthode que décrite plusieurs fois précédemment, la double coïncidence ne présente pas de pollution ou problème particuliers. La matrice et le spectre illustrant la double coïncidence sont illustrés sur la figure 5.40.



(a) Projection sur l'axe des abscisses de la zone  $359.6 \pm 3 \text{ keV}$  en ordonné.



(b) Matrice des gamma des transition T1 et T2 en coïncidence.

FIGURE 5.40 – Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à  $359.6 \text{ keV}$ .

Les contaminations au sein même de la coïncidence  $(359.6, 475.2)$  sont données dans le tableau 5.26. Elles nous obligent à prendre ne compte un coefficient correctif de l'ordre de 7% sur la mesure du nombre de coïncidences  $(359.6, 475.2)$ .

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production %
359.596	475.214	142	56	142	56	92.9
361.1	475.214	91	36	142	56	5.8
357.7	475.214	92	36	142	56	0.6

TABLE 5.26 – Contaminations pour la double coïncidences aux énergies  $359.6 \pm 3 \text{ keV}$  et  $475.2 \pm 3 \text{ keV}$ .

## Rapports d'intensités

Les rapports d'intensité sont calculés comme précédemment, ici c'est le fragment de  $^{92}\text{Kr}$  qui est utilisé comme complémentaire (schéma de niveaux en 5.41). J'utilise les deux transitions à 768.6 keV et 1035.3 keV pour calculer les rapports d'intensité des transitions du  $^{142}\text{Ba}$ .

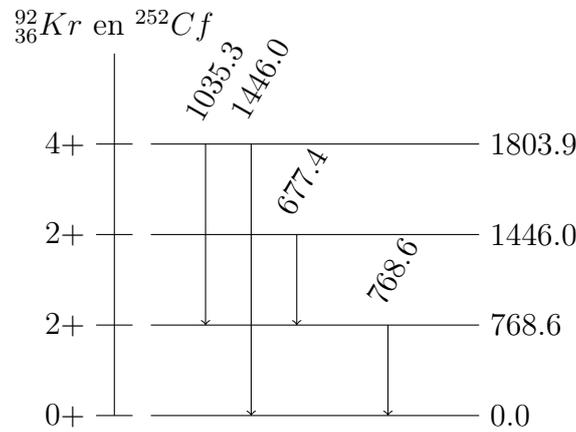


FIGURE 5.41 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{92}_{36}\text{Kr}$  dans la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$ .

Pour le  $^{142}\text{Ba}$  on obtient donc un rapport d'intensités entre les transitions 359.6 keV et 475.2 keV égal à :  $R = 0.80 \pm 0.03$ . Le même rapport déterminé avec les données ExILL [98] était de :  $R_{ExILL} = 0.80 \pm 0.04$ . Le résultat obtenu avec FIPPS est cohérent avec celui obtenu avec ExILL dans les barres d'incertitudes.

## Résultats

Les résultats obtenus sur le  $^{142}\text{Ba}$  sont présentés dans le tableau ci-dessous 5.27 et le résultat comparé aux bases de données est présenté dans la figure 5.42. Le rendement du  $^{142}\text{Ba}$  calculé avec FIPPS est compatible dans les barres d'incertitudes avec les bases de données.

Grandeur	Valeur	Incertitude
Nombre de coïncidences (359.6, 475.2)	4250000	160000
Contamination coïncidences (359.6, 475.2) (%)	7	4
Nombre de coïncidences (359.6, 768.6, 1035.3)	13500	200
Contamination coïncidences (359.6, 768.6, 1035.3) (%)	//	//
Nombre de coïncidences (475.2, 768.6, 1035.3)	8800	300
Contamination coïncidences (475.2, 768.6, 1035.3) (%)	//	//
Rapport d'intensité	0.80	0.03
Efficacité 359.6 keV	0.105	0.003
Efficacité 475.2 keV	0.086	0.003
Correction ICC	1.0257	0.0004
<b>Rendement avant correction</b>	<b>2.48</b>	<b>0.28</b>
Correction sommation ( $1/\alpha^s$ )	0.83	0.02
Correction production fondamental ( $1/\alpha^p$ )	//	//
<b>Rendement après correction</b>	<b>3.02</b>	<b>0.30</b>

TABLE 5.27 – Récapitulatif des résultats obtenus pour le  $^{142}\text{Ba}$ .

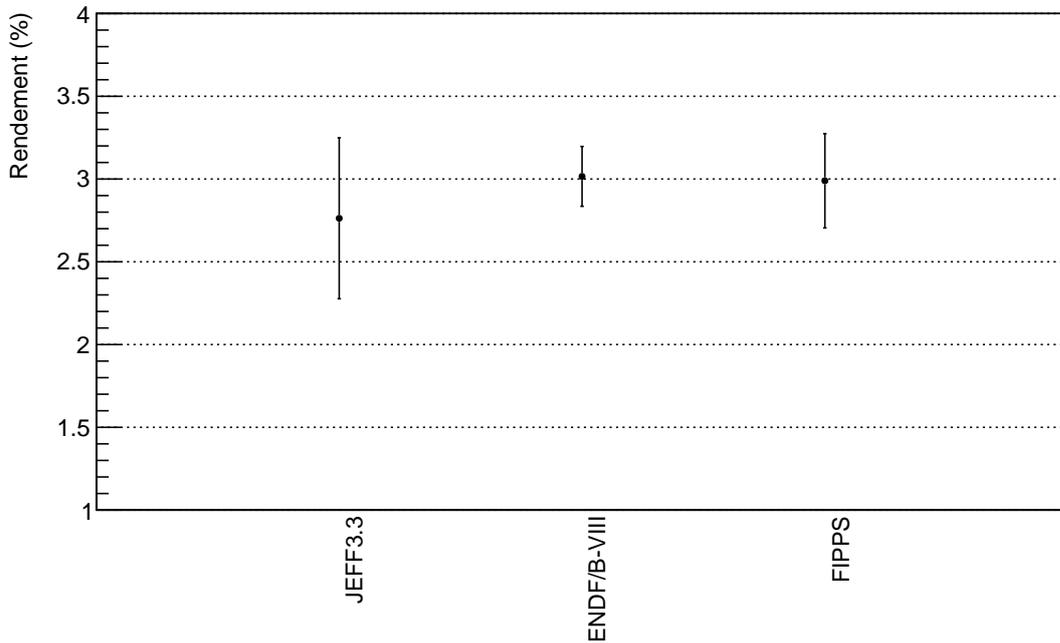


FIGURE 5.42 – Rendement du  $^{142}\text{Ba}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII comparé au résultat obtenu avec FIPPS.

## 5.2.8 Rendement du $^{94}\text{Sr}$

On passe maintenant au  $^{94}\text{Sr}$ , le plus logique aurait été de choisir le fragment complémentaire le plus produit en l'occurrence le  $^{140}\text{Xe}$ . Son schéma de niveaux utilisé pour les explications est présenté sur la figure 5.43. La particularité du  $^{94}\text{Sr}$  est que l'on peut et que l'on a mesuré le même rendement à l'aide de deux coïncidences différentes. L'une avec les transitions 837.0 keV et 1089.4 keV (coïncidence T1/T2), l'autre avec les transitions de 836.9 keV et 1309.1 keV, (coïncidence T1/T3).

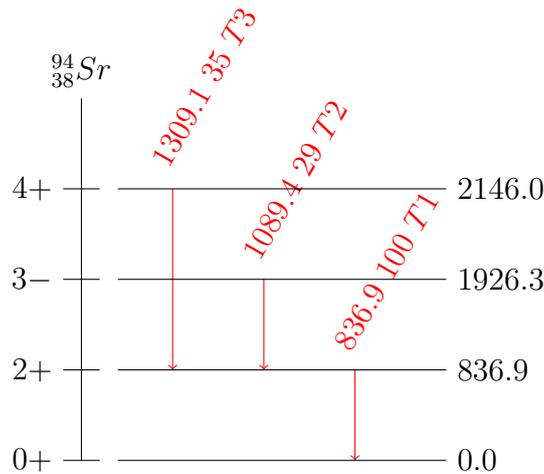


FIGURE 5.43 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{94}_{38}\text{Sr}$  dans la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [104].

### Nombre de coïncidences

J'applique la même méthode que décrite plusieurs fois précédemment, les deux doubles coïncidences ne présentent aucune pollution ou problème particuliers.

### Rapport d'intensités

De la même manière, les rapports d'intensité sont calculés comme précédemment, c'est le fragment de  $^{140}\text{Xe}$  qui est utilisé comme complémentaire.

Pour le  $^{94}\text{Sr}$ , on obtient donc un rapport d'intensités entre les transitions 1089.4 keV et 836.9 keV égal à  $R = 0.27 \pm 0.01$ . Le même rapport déterminé avec les données ExILL [98] était de  $R_{ExILL} = 0.24 \pm 0.01$ . Pour la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ , ce même rapport [104] est de  $R_{248\text{Cm}} = 0.29 \pm 0.01$ . Selon nos données, le rapport entre les transitions 1309.1 keV et 836.9 keV est de  $R = 0.33 \pm 0.02$ . Le même rapport déterminé avec les données ExILL était de  $R_{ExILL} = 0.31 \pm 0.01$ . Pour la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ , ce même rapport est de  $R_{248\text{Cm}} = 0.35 \pm 0.02$ . Nos résultats avec FIPPS sont compatibles avec les résultats obtenus sur ExILL et pour la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$ .

## Résultats

Les résultats obtenus sur le  $^{94}\text{Sr}$  sont présentés ci-dessous dans le tableau 5.28 et le résultat comparé aux bases de données est présenté dans la figure 5.44.

Grandeur	Valeur	Incertitude
Nombre de coïncidences (836.9, 1089.4)	563000	6000
Contamination coïncidences (836.9, 1089.4) (%)	2	1
Nombre de coïncidences (836.9, 1309.1)	609000	5000
Contamination coïncidences (836.9, 1309.1) (%)	2	1
Nombre de coïncidences (836.9, 376.7, 457.6)	60000	1000
Contamination coïncidences (836.9, 376.7, 457.6) (%)	3	2
Nombre de coïncidences (1089.4, 376.7, 457.6)	13000	300
Contamination coïncidences (1089.4, 376.7, 457.6) (%)	//	//
Nombre de coïncidences (1309.1, 376.7, 457.6)	15100	300
Contamination coïncidences (1309.1, 376.7, 457.6) (%)	6	3
Rapport d'intensité 1089.4 avec 836.9	0.27	0.01
Rapport d'intensité 1309.1 avec 836.9	0.33	0.02
Efficacité 836.9 keV	0.058	0.003
Efficacité 1309.1 keV	0.043	0.002
Efficacité 1089.4 keV	0.048	0.002
Correction ICC	1.000888	0.000013
<b>Rendement avant correction avec 1089.4</b>	<b>3.24</b>	<b>0.26</b>
<b>Rendement avant correction avec 1308.9</b>	<b>3.21</b>	<b>0.34</b>
Correction sommation ( $1/\alpha^s$ ) (836.9, 1089.4)	0.83	0.02
Correction sommation ( $1/\alpha^s$ ) (836.9, 1309.1)	0.84	0.04
Correction production fondamental ( $1/\alpha^p$ )	0.98	0.01
<b>Rendement après correction avec 1089.4</b>	<b>3.98</b>	<b>0.27</b>
<b>Rendement après correction avec 1309.1</b>	<b>3.90</b>	<b>0.35</b>

TABLE 5.28 – Récapitulatif des résultats obtenus pour le  $^{94}\text{Sr}$ .

Le rendement du  $^{94}\text{Sr}$  calculé avec FIPPS est cohérent avec JEFF 3.3 mais en dessous de ENDF-B/VIII et de LANG, d'environ 15%. Il y a trois explications possibles ou plutôt une combinaison d'explications. La première est que la production de fragments directement à l'état fondamental pourrait être plus importante que prédit actuellement dans les simulations FIFRELIN. La deuxième est que le rapport d'intensités R entre les transitions du  $^{94}\text{Sr}$  dépend du fragment complémentaire sélectionné. La troisième est qu'il existe une autre transition vers l'état fondamental mais qui n'a jamais été mesurée.

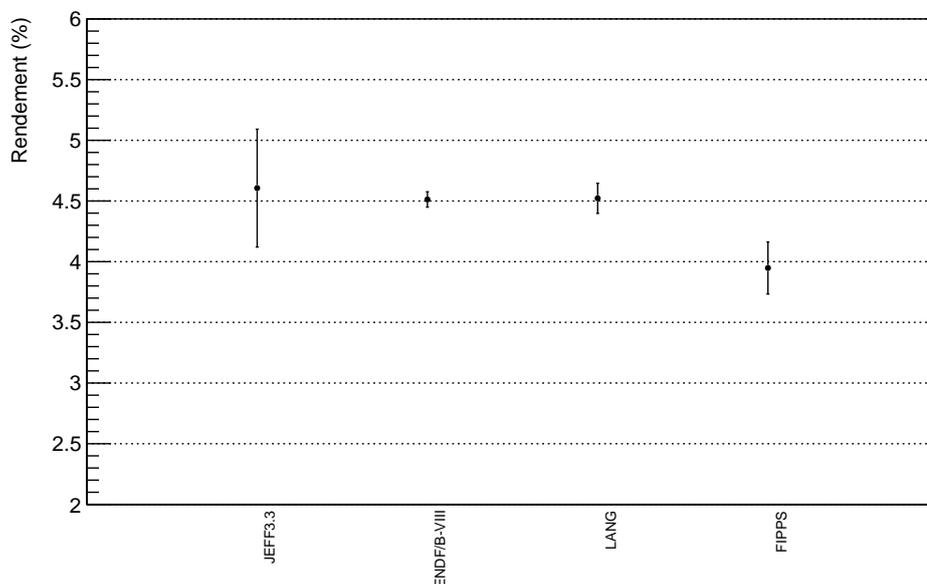


FIGURE 5.44 – Rendement du  $^{94}\text{Sr}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS.

### 5.2.9 Rendement du $^{88}\text{Kr}$

Le dernier fragment étudié ici est le  $^{88}\text{Kr}$ . Son schéma de niveaux utilisé pour les explications est présenté dans la figure 5.45.

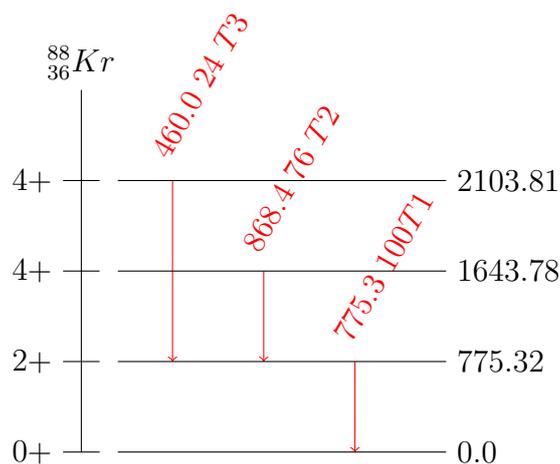


FIGURE 5.45 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{88}\text{Kr}$  dans la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$ . Les énergies des transitions proviennent des évaluations ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [94]. Les intensités gamma proviennent de l'article suivant [105].

## Nombre de coïncidences

J'applique la même méthode que décrite plusieurs fois précédemment, la double coïncidence est propre. La matrice et le spectre illustrant la double coïncidence sont dans la figure 5.46.



(a) Projection sur l'axe des abscisses de la zone  $775.3 \pm 3 \text{ keV}$  en ordonné.

(b) Matrice des gamma des transition T1 et T2 en coïncidence.

FIGURE 5.46 – Représentation en 1D (à gauche) et en 2D (à droite) de la gamme en énergie comprenant la transition à  $775.3 \text{ keV}$ .

Les contaminations au sein même de la coïncidence (868.4, 775.3) sont données dans le tableau 5.29. Il n'y en a aucune de notable, la coïncidence est propre à plus de 99%.

$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$A_1$	$Z_1$	$A_2$	$Z_2$	Production %
775.32	868.46	88	36	88	36	99.5
774.36	868.73	130	50	104	42	0.1
775.32	867.28	88	36	146	56	0.1

TABLE 5.29 – Contaminations pour la double coïncidences aux énergies  $775.2 \pm 3 \text{ keV}$  et  $868.4 \pm 3 \text{ keV}$ .

## Rapports d'intensités

Les rapports d'intensité sont calculés comme précédemment. Dans le cas du  $^{88}\text{Kr}$  le fragment complémentaire le plus produit est le  $^{146}\text{Ba}$ , cependant les triples coïncidences de transitions du  $^{146}\text{Ba}$  avec celles du  $^{88}\text{Kr}$  sont polluées à hauteur de 10%. Je vérifie alors si je peux utiliser un autre fragment complémentaire comme le  $^{144}\text{Ba}$  dont le schéma de niveaux est illustré sur la figure 5.47. Effectivement, les triples coïncidences des transitions (330.8 keV, 431.4 keV, 775.2 keV) et (330.8 keV, 431.4 keV, 868.8 keV) ne sont pas polluées. C'est donc le  $^{144}\text{Ba}$  que l'on choisit pour mesurer les rapports d'intensité du  $^{88}\text{Kr}$ .

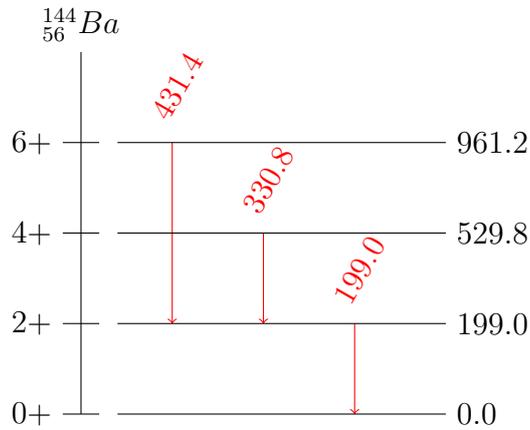


FIGURE 5.47 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{144}_{56}\text{Ba}$  pour la fission spontanée  $^{252}\text{Cf}$ .

Pour le  $^{88}\text{Kr}$  on obtient donc un rapport d'intensités entre les transitions 775.3 keV et 868.4 keV égal à :  $R = 0.65 \pm 0.02$ . Le même rapport pour le  $^{252}\text{Cf}$  est de :  $R_{252\text{Cf}} = 0.76 \pm 0.05$ .

## Résultats

Les résultats obtenus sur le  $^{88}\text{Kr}$  sont présentés ci-dessous dans le tableau 5.30. Le rendement du  $^{88}\text{Kr}$  calculé avec FIPPS est en dessous des bases de données et de LANG, d'environ 30%. Les explications possibles sont les mêmes que pour le  $^{94}\text{Sr}$  décrit précédemment. À savoir, une potentielle production de fragments directement à l'état fondamental plus importante que prédit actuellement dans les simulations FIFRELIN. Ou encore que le rapport d'intensités entre les transitions du  $^{88}\text{Kr}$  dépend du fragment complémentaire sélectionné. Enfin, il est toujours possible qu'il existe une autre transition vers l'état fondamental mais qui n'a jamais été mesurée.

Grandeur	Valeur	Incertitude
Nombre de coïncidences (775.3, 868.4)	522000	9000
Contamination coïncidences (775.3, 868.4) (%)	7	4
Nombre de coïncidences (775.3, 330.8, 431.4)	48200	700
Contamination coïncidences (775.3, 330.8, 431.4) (%)	//	//
Nombre de coïncidences (868.4, 330.8, 431.4)	29200	900
Contamination coïncidences (868.4, 330.8, 431.4) (%)	//	//
Rapport d'intensité	0.65	0.02
Efficacité 775.3 keV	0.061	0.003
Efficacité 868.4 keV	0.057	0.003
Correction ICC	1.000327	000005
<b>Rendement avant correction</b>	<b>1.02</b>	<b>0.07</b>
Correction sommation ( $1/\alpha^s$ )	0.84	0.02
Correction production fondamental ( $1/\alpha^s$ )	0.96	0.02
<b>Rendement après correction</b>	<b>1.26</b>	<b>0.08</b>

TABLE 5.30 – Récapitulatif des résultats obtenus pour le  $^{88}\text{Kr}$ .

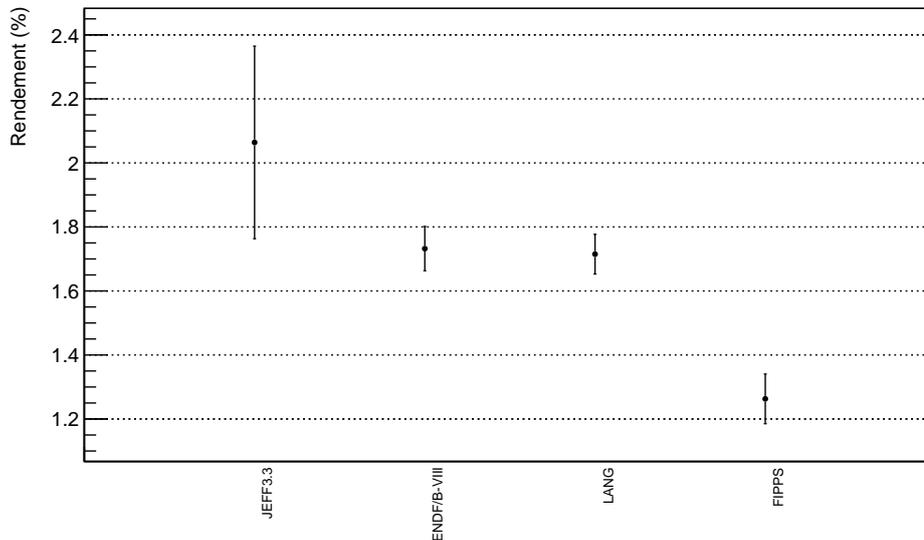
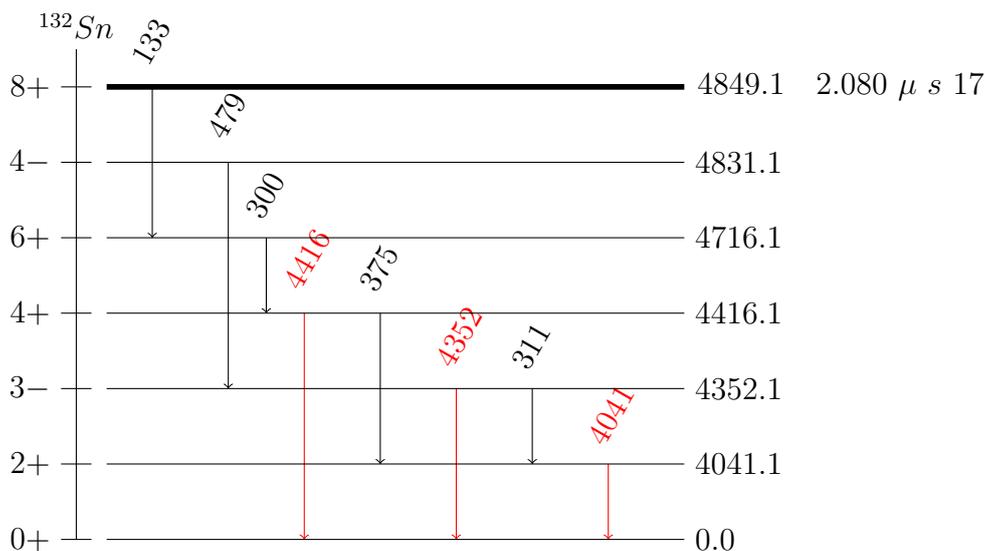


FIGURE 5.48 – Rendement du  $^{88}\text{Kr}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3, ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec Lohengrin (Lang) et FIPPS.

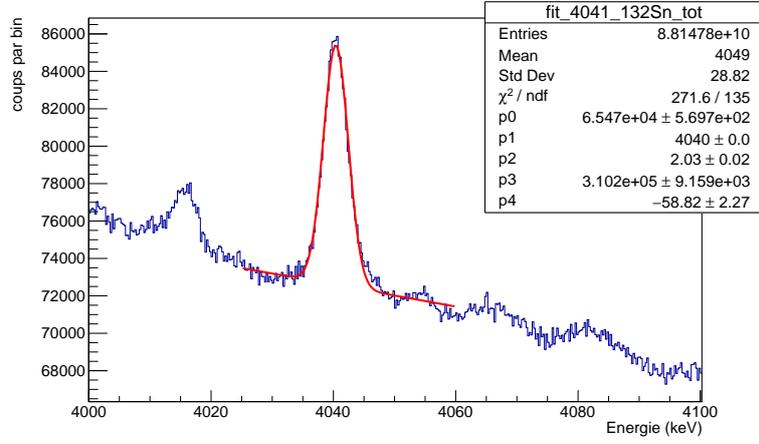
### 5.3 Le cas particulier du $^{132}\text{Sn}$

L'intérêt de remesurer avec notre méthode le rendement de  $^{132}\text{Sn}$  a été détaillé dans la définition des objectifs à la section 1.4. Pour rappel, une campagne expérimentale avec la source de neutrons rapides LICORNE [65], située à l'IPN d'Orsay, a été menée en 2015 pour mesurer notamment les rendements indépendants en charge pour la fission rapide de  $^{238}\text{U}$ . Les rendements ont été obtenus par spectrométrie  $\gamma$ . Les résultats obtenus ont été comparés aux données expérimentales et se sont avérés être en accord raisonnable pour de nombreux noyaux. Cependant, dans son article [63], Wilson et ses collègues observent des anomalies importantes allant jusqu'à 600% pour l'étain. Nous avons donc décidé de regarder si avec les données FIPPS, nous obtenions les même anomalies pour la fission thermique de  $^{235}\text{U}$ . Au sein des isotopes de l'étain, nous nous sommes restreints à  $^{132}\text{Sn}$  pour la raison suivante : sa cascade de désexcitation, voir la figure 5.49, présente trois transitions connues vers l'état fondamental, toutes à haute énergie aux alentours de 4 MeV. C'est l'avantage principal de cet élément en spectrométrie gamma car à ces énergies, le spectre est suffisamment propre pour mesurer directement les transitions sans passer par les coïncidences.

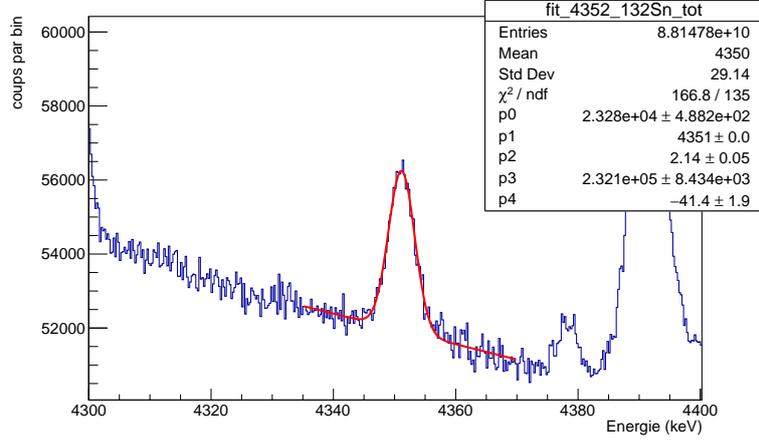
FIGURE 5.49 – Schéma partiel de désexcitation du  $^{132}\text{Sn}$  dans la fission spontanée du  $^{248}\text{Cm}$  avec, en rouge, les trois transitions vers l'état fondamental.



La figure 5.50 illustre l'ajustement que nous avons effectué pour deux de ces transitions.



(a) Spectre total avec le tag fission.



(b) Spectre total avec le tag fission.

FIGURE 5.50 – Illustration de l’ajustement des pics de transitions gamma du  $^{132}\text{Sn}$ .

Dans le cas du  $^{132}\text{Sn}$ , il faut également prendre en compte l’état isomère à 4849.1 keV de 2.080  $\mu\text{s}$  duquel proviennent 5% des transitions selon [51]. D’où le facteur  $\alpha^{iso}$  supplémentaire dans l’expression du rendement. Si on ne prend pas en compte de correction pour la production de l’état fondamentale, on a :

$$Y_{(50)}^{(132)\text{Sn}} = \frac{\frac{N(4041)}{\epsilon(4041)} \times \frac{N(4352)}{\epsilon(4352)} \times \frac{N(4416)}{\epsilon(4416)}}{N_f} \times \alpha_\tau \times \alpha^s \times \alpha^{iso} \quad (5.17)$$

avec :

- $N(4041) = 261880 \pm 5697$  correspond au nombre de coups pour la transition à 4041.1 keV.
- $N(4352) = 93120 \pm 4882$  correspond au nombre de coups pour la transition à 4352.1 keV.
- $N(4416) = 10261 \pm 2063$  correspond au nombre de coups pour la transition à 4416.1 keV.

On obtient donc :

$$\begin{aligned}
 Y({}_{50}^{132}\text{Sn}) &= \frac{\frac{261880}{0.0170} \times \frac{93120}{0.0158} \times \frac{10261}{0.0156}}{2.436E10} \times 1.023 \times 1.06 \times 1.05 \\
 Y({}_{52}^{132}\text{Sn}) &= 0.103 \pm 0.005
 \end{aligned}
 \tag{5.18}$$

Le rendement de  ${}^{132}\text{Sn}$ , tabulé dans les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII est respectivement :  $Y({}_{50}^{132}\text{Sn})(JEFF) = 0.74 \pm 0.2$  et  $Y({}_{50}^{132}\text{Sn})(ENDF) = 0.59 \pm 0.02$ . Le rendement obtenu avec FIPPS est très largement inférieur, d'un facteur 6, par rapport aux bases de données. C'est le premier fragment que nous rencontrons avec une telle différence entre nos mesures et les bases de données.

### Comparaison avec les gamma retardés

La première possibilité est que le rendement donné par les bases de données n'est pas correct. Nous avons donc cherché à vérifier le rendement de  ${}^{132}\text{Sn}$  avec une méthode différente. Nous avons utilisé les gamma retardés présents dans nos données mesurés sur FIPPS. En effet, d'après les bases de données JEFF et ENDF, le rendement isotopique indépendant de  ${}^{132}\text{Sn}$  est quasiment égal à son rendement cumulé :  $Y_{cum}(JEFF) = 0.738 \pm 0.156$  et  $Y_{cum}(ENDF) = 0.598 \pm 0.016$ . Donc, mesurer le rendement cumulé de  ${}^{132}\text{Sn}$  en utilisant les gamma retardés revient à mesurer le rendement indépendant. Dans le schéma de décroissance bêta de  ${}^{132}\text{Sn}$  de la figure 5.52, on observe que 99% de  ${}^{132}\text{Sn}$  décroît sur l'état  $3+$  à 1325.15 keV de  ${}^{132}\text{Sb}$ . Sa cascade de désexcitation est complexe mais l'état  $3+$  peut notamment se désexciter jusqu'à l'état  $3+$  à 85.55 keV en émettant deux transitions en coïncidence à 899 keV et à 340.5 keV. Le pic de coïncidence est bien visible sur la matrice des gamma retardés à la figure 5.51. L'expression du rendement cumulé de  ${}^{132}\text{Sn}$  s'écrit :

$$Y_{cum}({}^{132}\text{Sn}) = \frac{N(899, 340.5) \times \alpha_{\tau}}{N_f \times I(899) \times \epsilon(899, 340.5)}
 \tag{5.19}$$

avec :

- $Y_{cum}({}^{132}\text{Sn})$ , le rendement cumulé du  ${}^{132}\text{Sn}$ .
- $N(899, 340.5)$ , le nombre de coïncidence  $\gamma\gamma$  entre les transitions à 899 et 340.5 keV.
- $N_f$ , le nombre total de fissions.
- $I(899)$ , l'intensité de la transition à 899 keV par décroissance beta.
- $\epsilon(899, 340.5)$ , l'efficacité de la coïncidence.
- $\alpha_{\tau}$ , le facteur correctif du temps mort.

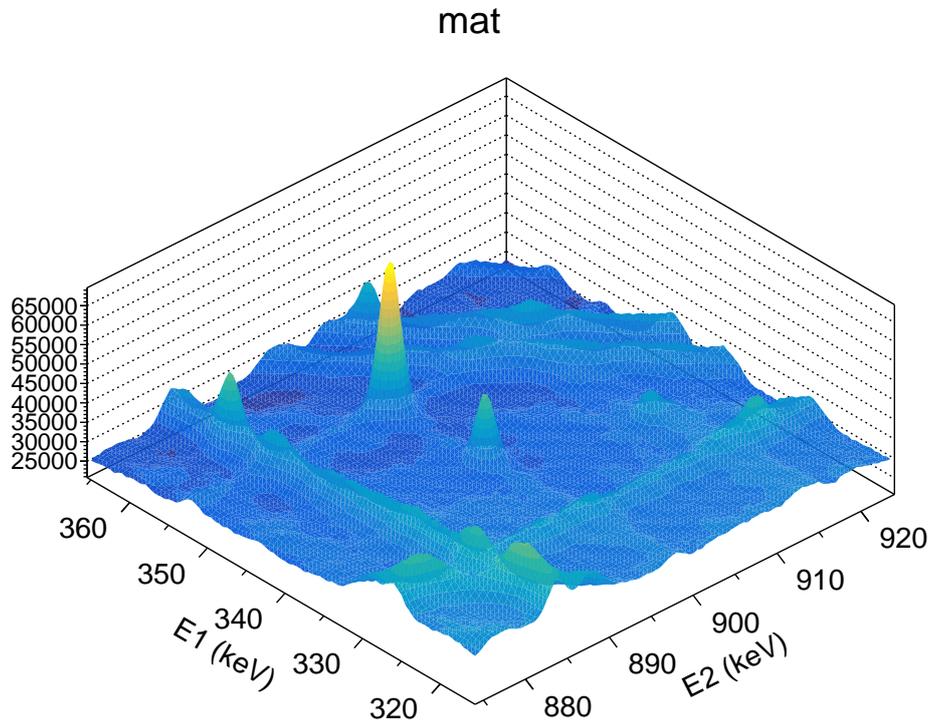


FIGURE 5.51 – Matrice de coïncidence des gamma retardés zoomée dans la gamme en énergie 320-360 keV et 820-860 keV. On note que le pic de la coïncidence qui nous intéresse à (899 keV, 340.5 keV) est loin d’être simple à ajuster car il est très proche d’un pic plus intense et d’une trainée Compton diagonale.

On obtient pour le rendement cumulé de l’ $^{132}\text{Sn}$  :

$$\begin{aligned}
 Y_{cum}(^{132}\text{Sn}) &= \frac{3.795 \cdot 10^5 \times 1.04}{2.447 \cdot 10^{10} \times (44.6/100) \times 0.0059} \\
 Y_{cum}(^{132}\text{Sn}) &= 0.0061 \pm 0.0004 \\
 Y_{cum}(^{132}\text{Sn}) &= (0.61 \pm 0.04) \%
 \end{aligned}
 \tag{5.20}$$

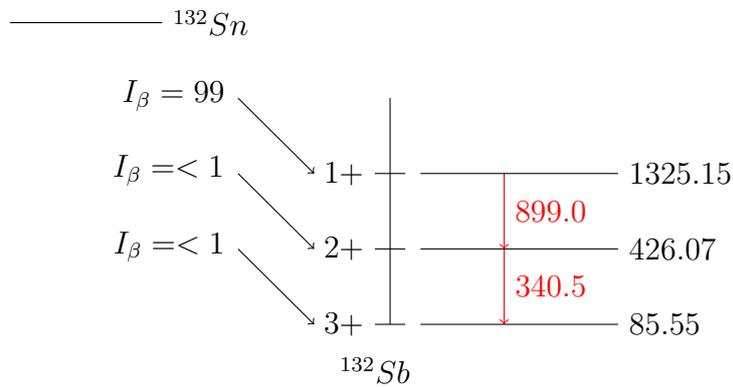


FIGURE 5.52 – Schéma de désintégration bêta du  $^{132}\text{Sn}$ .

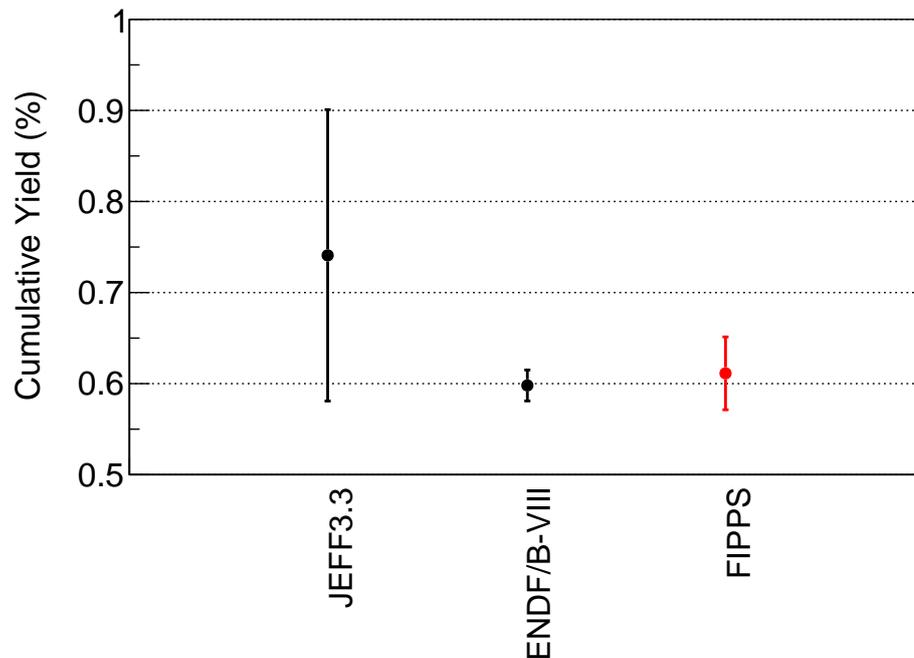


FIGURE 5.53 – Comparaison du rendement cumulé de l' $^{132}\text{Sn}$  obtenu avec FIPPS et avec les bases de données ENDF/B-VIII et JEFF 3.3.

Notre résultat est comparé aux rendements des bases de données dans la figure 5.53. On remarque que le rendement cumulé obtenu avec FIPPS est parfaitement compatible avec les bases de données. Le problème ne semble donc pas venir du rendement de l' $^{132}\text{Sn}$  mais plutôt de la méthode de spectrométrie gamma avec les gamma prompts.

## Comparaison avec FIFRELIN

Il est désormais évident que cette différence d'un facteur six provient de l'utilisation d'une méthode de spectrométrie gamma avec les rayons gamma prompts. Pour savoir d'où vient le problème, nous avons décidé d'utiliser une simulation FIFRELIN. En effet, lors de la phase précédente de pré-traitement des données, nous avons développé une simulation GEANT4 du spectromètre FIPPS. Or, il est tout à fait possible de placer en entrée de la simulation GEANT4 les résultats d'une simulation FIFRELIN de la fission thermique de  $^{235}\text{U}$  et de la désexcitation des fragments de fission.

Le résultat est édifiant. FIFRELIN nous prédit que 66% des fragments de  $^{132}\text{Sn}$  sont produits directement par la fission à l'état fondamental. Toujours selon FIFRELIN, 14% de ces fragments sont produits après émission de neutrons directement à l'état fondamental. Nous avons donc un total de 80% de fragments de  $^{132}\text{Sn}$  produits sans émission de rayons gamma prompts. Nous devons donc corriger le rendement obtenu avec FIPPS par un facteur de 80% correspondant à tous les fragments de  $^{132}\text{Sn}$  produits sans émission de gamma prompts. Le résultat est présenté dans la figure 5.54.

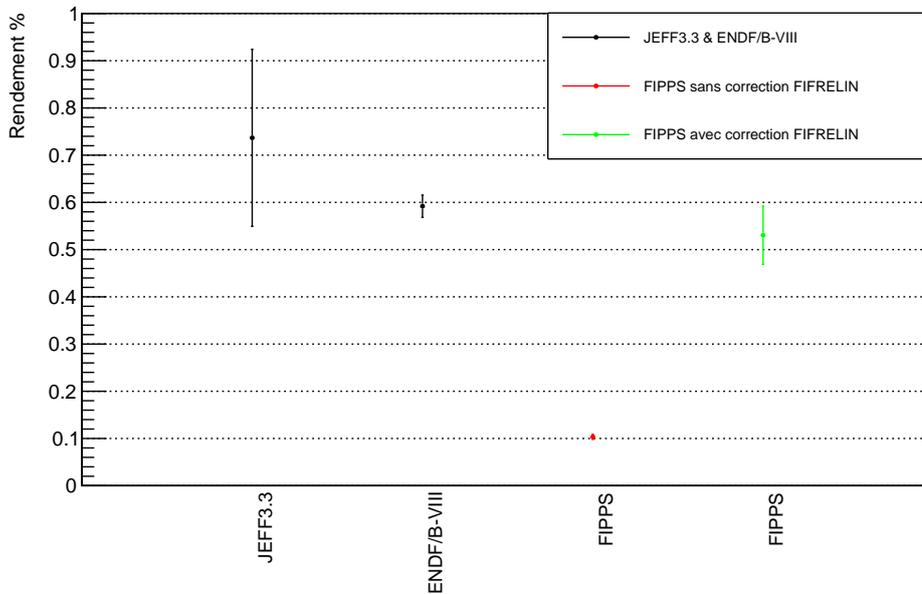


FIGURE 5.54 – Rendement du  $^{132}\text{Sn}$  fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII puis comparé au résultat obtenu avec FIPPS.

Après cette correction, le rendement du  $^{132}\text{Sn}$  calculé avec FIPPS est cohérent, dans les incertitudes, avec les bases de données. C'est cette correction pour le  $^{132}\text{Sn}$  qui nous a mené à estimer le pourcentage de production de l'état fondamental pour tous les fragments de fission étudiés grâce aux simulations FIFRELIN.

Cette très importante production directement à l'état fondamental pour l' $^{132}\text{Sn}$  peut s'expliquer. L' $^{132}\text{Sn}$  est un noyau doublement magique et son premier état excité est très élevé, à 4041 keV. Lors de la fission, les fragmentations avec peu d'énergie d'excitation ne pourront produire de l' $^{132}\text{Sn}$  qu'à l'état fondamental et le reliquat d'énergie d'excitation sera donné au fragment complémentaire.

L'estimation de la correction à apporter au rendement du  $^{132}\text{Sn}$  avec FIFRELIN est très importante. Nous avons donc regardé comment varie la production de  $^{132}\text{Sn}$  en fonction du paramètre  $R_T^{max}$  qui pilote la répartition de l'énergie d'excitation entre les fragments de fission. Pour rappel, l'explication est dans le chapitre 1, dans la partie 1.3.1. Nous avons effectué plusieurs simulations FIFRELIN en faisant varier le facteur  $R_T^{max}$  de 1.1 à 1.4 par pas de 0.05, ce qui revient à faire varier la région d'entrée des fragments de fission en terme d'énergie d'excitation et de spin. Ce scan du paramètre  $R_T^{max}$  est représenté dans la figure 5.55. Les simulations FIFRELIN sont optimisées pour reproduire au mieux la multiplicité neutron. En prenant en compte cette condition, le paramètre  $R_T^{max}$  doit être situé à 1.25 ce qui entraîne une production de  $^{132}\text{Sn}$  à 22% via la cascade gamma prompts. Or, cette valeur ne permet pas de corriger suffisamment le rendement obtenu avec FIPPS pour être cohérent avec les bases de données. La valeur qui conviendrait pour être cohérent avec ENDF/B-VIII est de 18% et elle correspond à un  $R_T^{max}$  de 1.28. Cependant, il ne serait pas pertinent de modifier cette valeur de  $R_T^{max}$  si cela menait à une valeur très différente de la multiplicité neutron, qui est la contrainte majeure des simulation FIFRELIN. La multiplicité neutron pour la fission thermique de l' $^{235}\text{U}$  est de 2.43 avec une incertitude de l'ordre de 1% [60] [55]. La valeur de multiplicité neutron obtenue avec un paramètre  $R_T^{max}$  de 1.28 est donnée dans le tableau 5.31. Elle reste cohérente avec la valeur attendue.

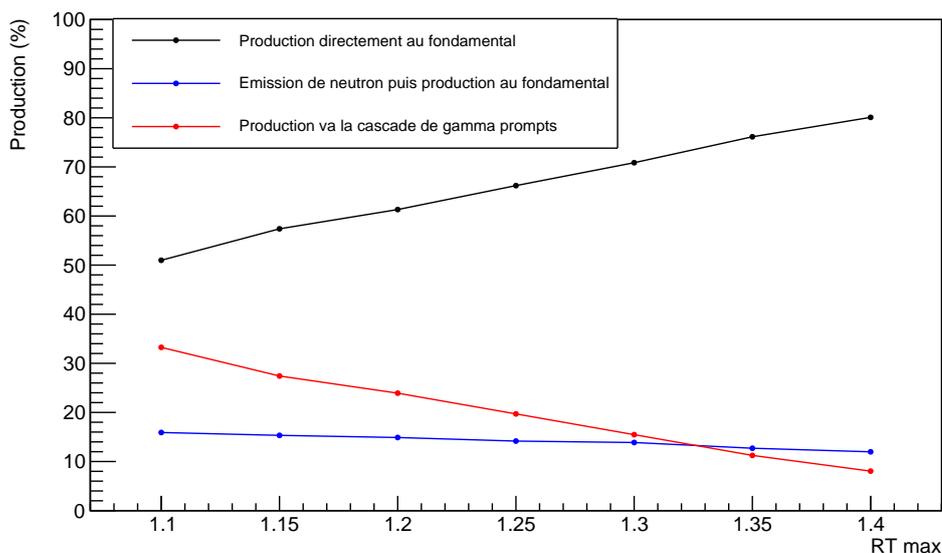


FIGURE 5.55 – Variation de la production de  $^{132}\text{Sn}$  en fonction du paramètre  $R_T^{max}$  de FIFRELIN. En noir, la production directement à l'état fondamental, en rouge la production via la cascade de gamma prompts, en bleu émission de neutron puis production à l'état fondamental.

	$R_T^{max} = 1.25$	$R_T^{max} = 1.28$	Valeur attendue [60]
$\nu_{tot}$	$2.469 \pm 0.008$	$2.460 \pm 0.008$	$2.430 \pm 0.024$

TABLE 5.31 – Multiplicité neutron moyenne totale attendue et pour deux simulations FIFRELIN. L'une avec  $R_T^{max} = 1.25$ , l'autre pour  $R_T^{max} = 1.28$ . Les incertitudes sur les valeurs de multiplicité pour les deux simulations sont fournies par le fichier de sortie de FIFRELIN.

## 5.4 Résultats et conclusions

Les résultats définitifs de notre analyse, pour les dix fragments étudiés, sont résumés à la figure 5.56.

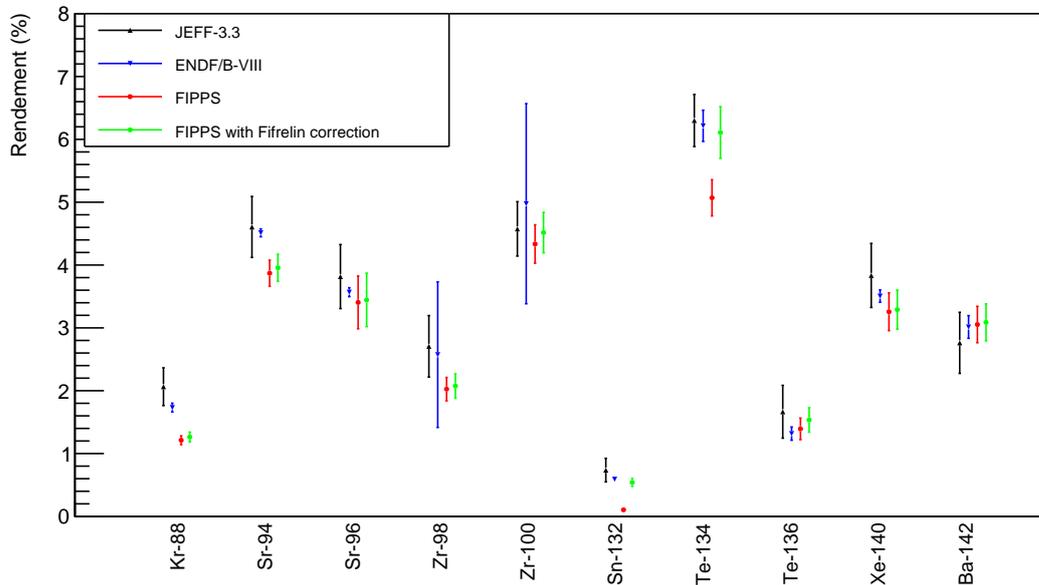


FIGURE 5.56 – Rendement de tous les fragments étudiés, fourni par les bases de données JEFF 3.3 et ENDF-B/VIII puis comparé aux résultats obtenus avec FIPPS avant et après corrections grâce aux simulations FIFRELIN.

Pour les cinq fragments suivants,  $^{96}\text{Sr}$ ,  $^{100}\text{Zr}$ ,  $^{136}\text{Te}$ ,  $^{140}\text{Xe}$ ,  $^{142}\text{Ba}$ , les résultats obtenus avec FIPPS étaient déjà cohérents sans la correction de production de l'état fondamental puisque cette dernière n'est pas notable, de l'ordre de 1% pour ces fragments. Pour les deux fragments de  $^{132}\text{Sn}$  et  $^{134}\text{Te}$ , la correction de l'état fondamental est respectivement de 80% et de 17% et explique la différence initiale entre le résultat obtenu sur FIPPS et les bases de données. Pour les deux fragments  $^{88}\text{Kr}$  et  $^{94}\text{Sr}$ , la différence, respectivement de l'ordre de 30% et de 15%, est encore importante. Des explications ont été avancées et devront faire l'objet de plus amples recherches pour déterminer d'où vient le problème. Le cas du  $^{98}\text{Zr}$  est moins clair, il est cohérent dans les incertitudes avec ENDF/B-VIII mais pas avec JEFF3.3 ni avec les mesures sur Lohengrin. Ce fragment nécessiterait également des recherches plus

poussées.

En conclusion, la mesure des rendements de fissions isotopiques indépendants par la spectrométrie des rayons gamma prompts semble donner des résultats intéressants. Cependant, cette méthode est loin d'être parfaite car elle nécessite d'estimer plusieurs corrections (contaminations des pics, effet de sommation, production de l'état fondamental) à l'aide de simulations avec le code FIFRELIN. De plus, à l'heure actuelle, les rendements de deux fragments étudiés ne sont toujours pas cohérents et nous nous pouvons qu'avancer des hypothèses pour l'expliquer et pas d'explications satisfaisantes. Toutefois, nous arrivons à être cohérent avec les bases de données existantes pour la majorité des fragments étudiés et parfois avec des incertitudes plus faibles que celles des bases de données.



# Conclusions

L'objectif était d'étudier le processus de fission à travers les rendements isotopiques indépendants et de confronter les résultats aux bases de données. Ce travail devait être effectué en utilisant les données issues du spectromètre FIPPS de l'ILL. Ces motivations et l'état de l'art ont été présentés dans le premier chapitre et le fonctionnement du spectromètre détaillé dans le deuxième.

La première phase de mon travail de thèse, le prétraitement des données, a consisté à calibrer en temps et en énergie les événements provenant des clovers HPGe de FIPPS puis à générer des histogrammes (spectres, matrices, cubes) en coïncidence (ou non) avec le tag fission. Cette partie est détaillée dans le chapitre trois. La détermination de l'efficacité absolue du spectromètre en fonction de l'énergie des rayons gamma a été obtenue avec une incertitude inférieure à 1%. Ce chapitre analyse également la réponse de la cible active. Cet élément nous a permis d'exploiter l'un des grands avantages de FIPPS qui est la possibilité de discriminer les événements provenant de la fission de tous les autres et également de remonter au nombre total de fissions durant la prise de données.

Une fois ces étapes de prétraitement terminées, l'analyse en elle-même a pu être menée. Nous avons utilisé une méthode de spectrométrie gamma pour extraire les rendements isotopiques indépendants de  $^{235}\text{U}$  en neutrons thermiques. Les rendements de dix fragments pairs-pairs bien produits ont été analysés et les résultats ont été comparés aux bases de données JEFF 3.3, ENDF/B-VIII et, quand cela était possible, avec les rendements obtenus avec Lohengrin. Dans la plupart des cas, les rendements extraits des données FIPPS sont cohérents avec les valeurs existantes. Le code FIFRELIN a été utilisé pour estimer les potentielles corrections à apporter en raison de contaminations dans nos données ou de transitions qui ne pouvaient être mesurées. Dans certains cas, les rendements obtenus sur FIPPS ont des incertitudes inférieures à celles actuellement dans ENDF/B-VIII.

Nous avons aussi étudié le cas spécifique du  $^{132}\text{Sn}$  dont le rendement calculé dans un premier temps présentait une anomalie significative qui avait déjà été observée pour la fission en neutrons rapides de  $^{238}\text{U}$ . L'origine de l'anomalie a pu être trouvée en utilisant le code de simulation FIFRELIN qui prédit que le  $^{132}\text{Sn}$  est produit par la fission directement (ou après émission de neutrons) dans son état fondamental dans environ 80% des cas - donc sans émission de rayons gamma. De plus, nous avons pu utiliser cette particularité pour ajuster le paramètre  $R_T^{max}$  de FIFRELIN pour que le résultat prédit par la simulation corresponde mieux à la mesure expérimentale. Et ceci sans changer la multiplicité neutrons totale de la simulation.



# Perspectives

Dans le cadre des mesures de rendements, nous avons également mesurés, pour plusieurs fragments, les rapports d'intensités entre différentes transitions gamma. Il est donc possible de reconstruire en partie les cascades gamma des fragments en mesurant les rapports d'intensités. Une cascade schématisée est représentée en figure 5.57. Il s'agit de mesurer les rapports entre les différentes transitions :  $R_1=I_1/T_0$ ,  $R_2=I_2/T_0$ ,  $R_3=I_3/T_0$  et ainsi de suite. Ce travail a été effectué sur les fragments pairs-pairs les plus produits par la fission induite de  $^{235}\text{U}$ . Dans les cas du  $^{134}\text{Te}$ ,  $^{100}\text{Zr}$ ,  $^{98}\text{Zr}$ ,  $^{142}\text{Ba}$ ,  $^{140}\text{Xe}$  et  $^{94}\text{Sr}$  nous avons mesurés deux rapports. Dans les cas du  $^{144}\text{Ba}$  et du  $^{146}\text{Ba}$ , nous avons mesuré respectivement quatre et trois rapports.

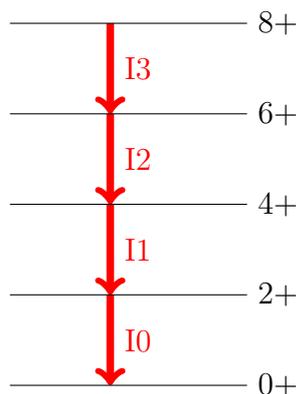


FIGURE 5.57 – Exemple schématisé simplifié d'une cascade de désexcitations gamma.

De la même manière que précédemment avec la production de  $^{132}\text{Sn}$ , il est envisageable d'utiliser ces grandeurs pour confronter nos données au code FIFRELIN. Au moment de l'écriture de la thèse ce travail n'a été effectué que de manière préliminaire. C'est pourquoi il est considéré comme une perspective de ce qui pourrait se faire par la suite.

Les paramètres libres d'une simulation FIFRELIN sont définis pour optimiser la multiplicité neutron totale, de manière à ce que celle-ci soit la plus proche possible des bases de données. Parmi ces paramètres libres, il y a notamment le *scaling factor*, divisé en deux valeurs, un pour les fragments lourds et un pour les fragments légers. Il sert à définir la région d'entrée des fragments en terme de spin et d'énergie d'excitation tel qu'expliqué en partie 1.3.2. Dans notre cas le *scaling factor* était fixé à 1.7 à la fois pour les fragments lourds et légers. Il est donc possible de scanner ces deux paramètres en

effectuant une simulation FIFRELIN pour chaque valeur de *scaling factor* dans une certaine gamme. Avec ce scan des paramètres, nous pouvons comparer les rapports d'intensités prédits par FIFRELIN avec ceux mesurés dans nos données. Ensuite, nous ajustons les résultats et nous extrayons la valeur du  $\chi^2$  réduit pour chaque valeur de *scaling factor*. Le  $\chi^2$  réduit le plus faible nous permet de déterminer pour quelle valeur de *scaling factor* la simulation est la plus proche des valeurs que nous mesurons.

Ce travail avait déjà été effectué avec les données ExILL pour le cas du  $^{100}\text{Zr}$  dans le cadre de la thèse de M. Rapala [98]. Le résultat est présenté en figure 5.58. On relève que la valeur  $\chi^2$  réduit la plus faible correspond à 1.2, ce qui est éloigné de 1.7, la valeur implémentée pour optimiser la multiplicité neutron.

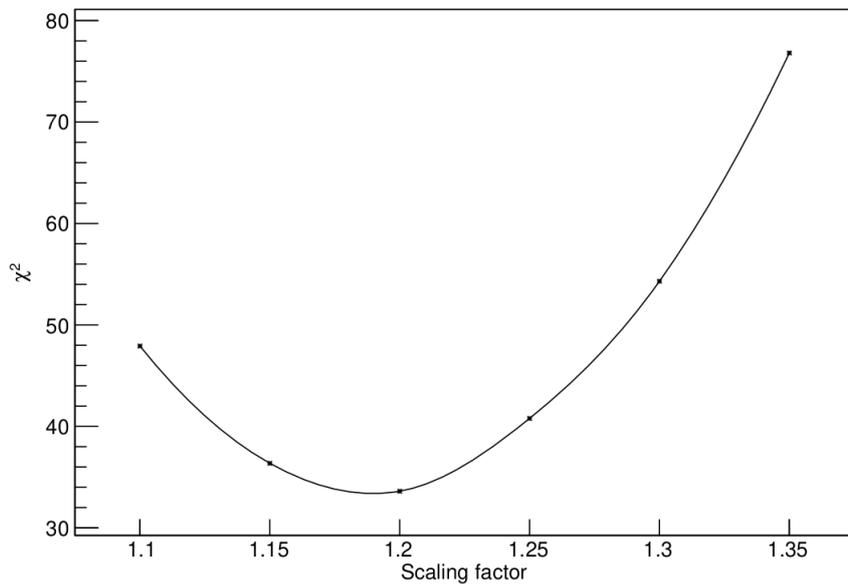


FIGURE 5.58 – Valeur du  $\chi^2$  pour les transitions de la bande principale  $\gamma$  dans le  $^{100}\text{Zr}$  pour des simulations FIFRELIN avec différentes valeurs de *scaling factor* [98].

Dans le cas de cette thèse, nous avons pu effectuer un travail préliminaire similaire sur neuf fragments de fissions. Le résultat est présenté en figure 5.59. Tout d'abord, il est important de noter que ces résultats ont été obtenus en ne mesurant que peu de transitions dans chaque fragment, entre trois et cinq. Ce manque de statistique rend l'ajustement très dépendant de la qualité de la mesure. Au vu des résultats, il est possible que dans le cas du  $^{144}\text{Ba}$ , il y ait un problème de contaminations dans nos mesures. Si on exclut le  $^{144}\text{Ba}$ , on relève que nos résultats pointent dans sept cas sur huit vers un *scaling factor* compris entre 0.8 et 1.0. Le huitième cas étant le  $^{146}\text{Ba}$  dont le  $\chi^2$  réduit le plus faible est de 1.2. Ces valeurs sont donc éloignées de celles actuellement implémentées dans FIFRELIN pour optimiser la multiplicité neutron. Elles sont en fait près de deux fois plus faibles.

Plusieurs raisons permettraient de l'expliquer et un travail plus approfondi est nécessaire. Tout d'abord, il faudrait améliorer la qualité des mesures actuelles. Il serait particulièrement nécessaire de

mesurer plus de transitions pour chaque fragment et de vérifier pour chacune d'entre elles les contaminations possibles, de la même manière que pour les rendements. Dans un second temps, il faudrait effectuer ce travail pour beaucoup plus de fragments et notamment les fragments complémentaires de ceux déjà analysés. Ensuite, ici nous avons scanné le *scaling factor* en fixant les valeurs de  $R_T^{min}$  et  $R_T^{max}$ . Il serait alors intéressant d'effectuer un scan en faisant varier tous ces paramètres à la fois pour essayer de faire correspondre les résultats des simulations avec les données. Enfin, si aucune valeur ne permet de rendre cohérentes les données et la simulation, la dernière possibilité pourrait être de modifier le code FIFRELIN en lui-même.

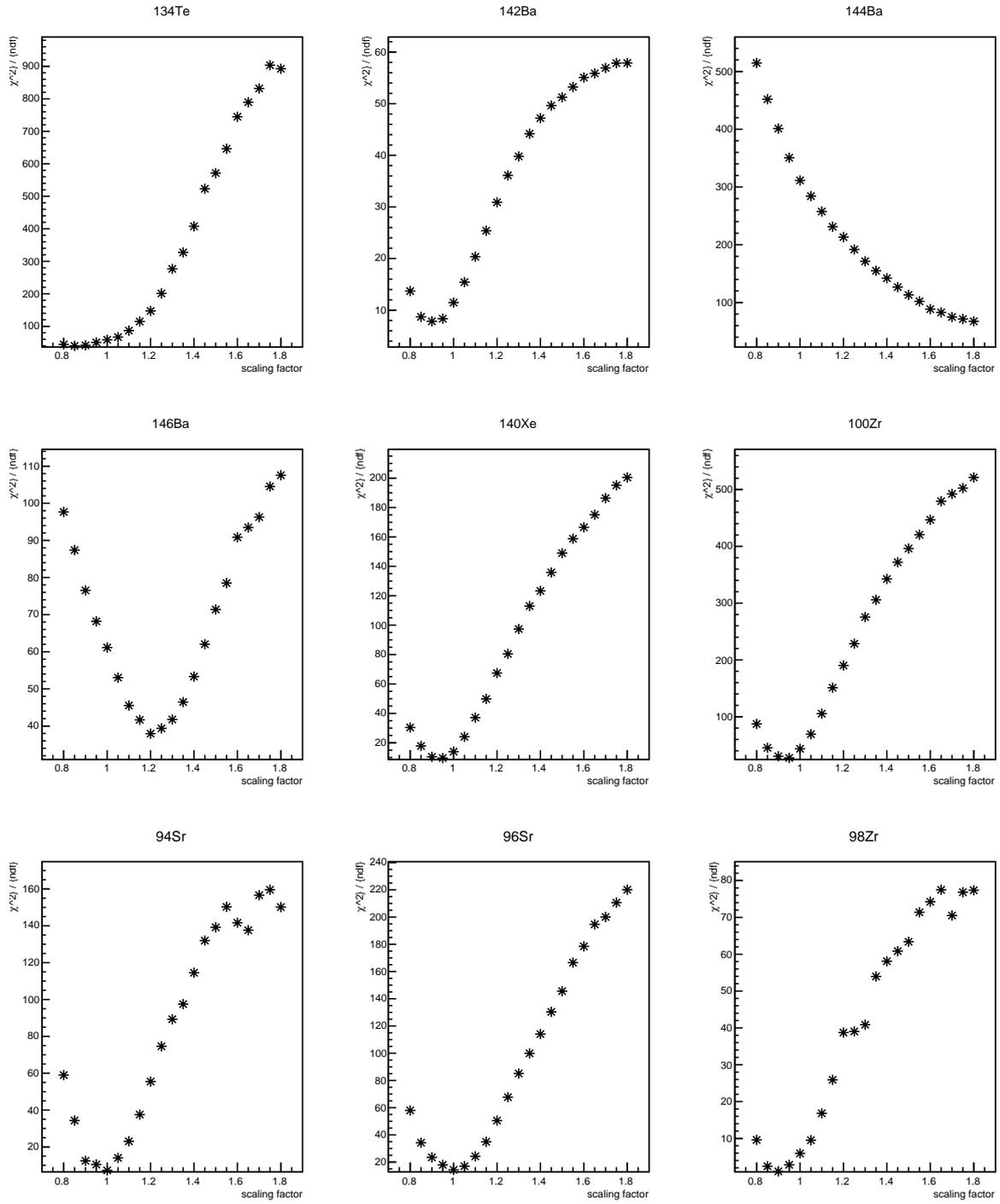


FIGURE 5.59 – Valeur du  $\chi^2$  réduit pour les transitions de la bande principale  $\gamma$  de neuf fragments de fissions pour des simulations FIFRELIN avec différentes valeurs de *scaling factor*.

# Bibliographie

- [1] O. HAHN et F. STRASSMANN. “Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle”. In : *Die Naturwissenschaften* 27.1 (1939). Cited by : 432, 11 – 15. DOI : [10.1007/BF01488241](https://doi.org/10.1007/BF01488241).
- [2] C. MEITNER et AL. “Disintegration of Uranium by neutrons : a new type of nuclear reaction”. In : *Nat.* 143 (1939), p. 239-240.
- [3] J.F BERGER. “La fission : de la phénoménologie à la théorie”. In : *Ecole internationale Joliot-Curie de physique nucléaire* (2006).
- [4] W.D. MYERS, G. MANTZOURANIS et J. RANDRUP. “Adiabaticity criterion for charge equilibration with application to fission”. In : *Physics Letters B* 98.1 (1981), p. 1-4. ISSN : 0370-2693. DOI : [https://doi.org/10.1016/0370-2693\(81\)90353-1](https://doi.org/10.1016/0370-2693(81)90353-1).
- [5] D. REGNIER, O. LITAIZE et O. SEROT. “An improved numerical method to compute neutron/gamma deexcitation cascades starting from a high spin state”. In : *Computer Physics Communications* 201 (2016), p. 19-28. ISSN : 0010-4655. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.cpc.2015.12.007>.
- [6] C WAGEMANS. *The nuclear fission process*. CRC Press, 1991.
- [7] J.F. BERGER, M. GIROD et D. GOGNY. “Microscopic analysis of collective dynamics in low energy fission”. In : *Nuclear Physics A* 428 (1984), p. 23-36. DOI : [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(84\)90240-9](https://doi.org/10.1016/0375-9474(84)90240-9).
- [8] Niels BOHR et John Archibald WHEELER. “The Mechanism of Nuclear Fission”. In : *Phys. Rev.* 56 (5 1939), p. 426-450. DOI : [10.1103/PhysRev.56.426](https://doi.org/10.1103/PhysRev.56.426).
- [9] C.F. WEIZSÄCKER et ALL. “Zur Theorie der Kernmassen”. In : *Zeitschrift für Physik* 96.7-8 (1935), p. 431-458. DOI : [10.1007/BF01337700](https://doi.org/10.1007/BF01337700).
- [10] S.M. POLIKANOV et ALL. In : *Soviet Phys. JETP* 15 (1962), p. 1016.
- [11] V. STRUTINSKY et ALL. In : *Nucl. Phys. A* 95 (1967), p. 420.
- [12] P. MÖLLER et ALL. “Nuclear fission modes and fragment mass asymmetries in a five-dimensional deformation space”. In : *Nat.* 406 (), p. 785-789.
- [13] T. ICHIKAWA, A. IWAMOTO et ALL. “Contrasting fission potential-energy structure of actinides and mercury isotopes”. In : *Phys. Rev. C* 86 (2012).

- [14] K.-H. SCHMIDT et al. “General Description of Fission Observables : GEF Model Code”. In : *Nuclear Data Sheets* 131 (2016). Special Issue on Nuclear Reaction Data, p. 107-221. ISSN : 0090-3752. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.nds.2015.12.009>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375215000745>.
- [15] U. BROSA et ALL. “In the exit channel of nuclear fission”. In : *Z. Phys. A* 310 (1983), p. 177-187.
- [16] Karl-Heinz SCHMIDT et Beatriz JURADO. “Entropy Driven Excitation Energy Sorting in Superfluid Fission Dynamics”. In : *Phys. Rev. Lett.* 104 (21 2010), p. 212501. DOI : [10.1103/PhysRevLett.104.212501](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.104.212501). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.104.212501>.
- [17] *Compilation and Evaluation of Fission Yield Nuclear Data*. TECDOC Series 1168. Vienna : INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2001. URL : <https://www.iaea.org/publications/6027/compilation-and-evaluation-of-fission-yield-nuclear-data>.
- [18] MÖLLER, PETER et SCHMITT, CHRISTELLE. “Evolution of uranium fission-fragment charge yields with neutron number - Strong effect of multi-chance fission on yield asymmetries”. In : *Eur. Phys. J. A* 53.1 (2017), p. 7. DOI : [10.1140/epja/i2017-12188-6](https://doi.org/10.1140/epja/i2017-12188-6).
- [19] E. PIAN et al. “Spectroscopic identification of r-process nucleosynthesis in a double neutron-star merger”. In : *Nature* 551 (nov. 2017). DOI : [10.1038/nature24298](https://doi.org/10.1038/nature24298).
- [20] G. HERRMANN et H.O. DENSCHLAG. “Rapid chemical separations”. In : *Ann. Rev. Nucl. Sci.* 19 (1969), p. 1-31.
- [21] G. HERRMANN et N. TRAUTMANN. “Rapid chemical methods for identification and study of short-lived nuclides”. In : *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.* 32 (1982), p. 117-147.
- [22] H.O. DENSCHLAG. “Independent fission yield measurements”. In : *Nucl. Sci. Engineering* 94 (1986), p. 337.
- [23] A. OED et al. “A mass spectrometer for fission fragments based on time-of-flight and energy measurements”. In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* 219.3 (1984), p. 569-574. ISSN : 0167-5087. DOI : [https://doi.org/10.1016/0167-5087\(84\)90232-1](https://doi.org/10.1016/0167-5087(84)90232-1). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0167508784902321>.
- [24] DORE, D. et al. “FALSTAFF : A new tool for fission studies”. In : *EPJ Web of Conferences* 62 (2013), p. 05005. DOI : [10.1051/epjconf/20136205005](https://doi.org/10.1051/epjconf/20136205005). URL : <https://doi.org/10.1051/epjconf/20136205005>.
- [25] K. MEIERBACHTOL et al. “The SPIDER fission fragment spectrometer for fission product yield measurements”. In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 788 (2015), p. 59-66. ISSN : 0168-9002. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.02.032>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900215002314>.

- [26] M.O. FRÉGEAU et al. “First results from the new double velocity–double energy spectrometer VERDI”. In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 817 (2016), p. 35-41. ISSN : 0168-9002. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.nima.2016.02.011>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900216001613>.
- [27] Stuart WARREN. “Development of the STEFF detector for the neutron Time Of Flight facility (nTOF), CERN”. Presented 2017. Manchester U., 2016. URL : <https://cds.cern.ch/record/2313675>.
- [28] H.W. SCHMITT, J.H. NEILER et F.J. WALTER. “Fragment energy correlation measurements for Cf252 spontaneous fission and U235 thermal-neutron fission”. In : *Physical Review* 141.3 (1966). Cited by : 244, 1146 – 1160. DOI : [10.1103/PhysRev.141.1146](https://doi.org/10.1103/PhysRev.141.1146). URL : <https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-0000759311&doi=10.1103%2fPhysRev.141.1146&partnerID=40&md5=3cff37279c0d4e54ed3c932010331d42>.
- [29] E. PELLEREAU et al. “Accurate isotopic fission yields of electromagnetically induced fission of  $^{238}\text{U}$  measured in inverse kinematics at relativistic energies”. In : *Phys. Rev. C* 95 (5 2017), p. 054603. DOI : [10.1103/PhysRevC.95.054603](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.95.054603). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.95.054603>.
- [30] John R. DE LAETER. “THE ROLE OF OFF-LINE MASS SPECTROMETRY IN NUCLEAR FISSION”. In : *Mass Spectrometry Reviews* 15 (1996), p. 261-281.
- [31] P. ARMBRUSTER et al. “The recoil separator Lohengrin : Performance and special features for experiments”. In : *Nuclear Instruments and Methods* 139 (1976), p. 213 -222. ISSN : 0029-554X. DOI : [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(76\)90677-7](https://doi.org/10.1016/0029-554X(76)90677-7). URL : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0029554X76906777>.
- [32] S. MUKHOPADHYAY et al. “Prompt  $\gamma$  spectroscopic studies of fragment nuclei in thermal neutron induced fission of  $^{235}\text{U}$ ”. In : *Phys. Rev. C* 85 (6 2012), p. 064321. DOI : [10.1103/PhysRevC.85.064321](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.85.064321). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.85.064321>.
- [33] P. BANERJEE et al. “ $\gamma$ -ray spectroscopy of fission fragments produced in  $^{208}\text{Pb}(^{18}\text{O}, f)$ ”. In : *Phys. Rev. C* 92 (2 2015), p. 024318. DOI : [10.1103/PhysRevC.92.024318](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.92.024318). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.92.024318>.
- [34] PENTTILÄ, H. et al. “Fission yield studies at the IGISOL facility”. In : *Eur. Phys. J. A* 48.4 (2012). DOI : [10.1140/epja/i2012-12043-4](https://doi.org/10.1140/epja/i2012-12043-4). URL : <https://doi.org/10.1140/epja/i2012-12043-4>.
- [35] POMP, STEPHAN et al. “Measurement of fission yields and isomeric yield ratios at IGISOL”. In : *EPJ Web Conf.* 169 (2018), p. 00017. DOI : [10.1051/epjconf/201816900017](https://doi.org/10.1051/epjconf/201816900017). URL : <https://doi.org/10.1051/epjconf/201816900017>.
- [36] PENTTILÄ, H. et al. “Independent isotopic yields in 25 MeV and 50 MeV proton-induced fission of natU”. In : *Eur. Phys. J. A* 52.4 (2016), p. 104. DOI : [10.1140/epja/i2016-16104-4](https://doi.org/10.1140/epja/i2016-16104-4). URL : <https://doi.org/10.1140/epja/i2016-16104-4>.

- [37] Aniruddha DEY et al. “Measurement of relative isotopic yield distribution of even-even fission fragments from  $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$  following  $\gamma$ -ray spectroscopy”. In : *Phys. Rev. C* 103 (2021), p. 044322. DOI : [10.1103/PhysRevC.103.044322](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.103.044322).
- [38] G. FIONI et al. “Reduction of energy dispersion on a parabola mass spectrometer”. In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 332.1 (1993), p. 175 -180. ISSN : 0168-9002. DOI : [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(93\)90756-8](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)90756-8). URL : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168900293907568>.
- [39] J.P. BOCQUET, R. BRISSOT et H.R. FAUST. “A large ionization chamber for fission fragment nuclear charge identification at the LOHENGRIN spectrometer”. In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 267.2 (1988), p. 466-472. ISSN : 0168-9002. DOI : [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(88\)90487-1](https://doi.org/10.1016/0168-9002(88)90487-1). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168900288904871>.
- [40] U. QUADE et al. “Nuclide yields of light fission products from thermal-neutron induced fission of  $^{233}\text{U}$  at different kinetic energies”. In : *Nuclear Physics A* 487.1 (1988), p. 1 -36. ISSN : 0375-9474. DOI : [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(88\)90127-3](https://doi.org/10.1016/0375-9474(88)90127-3). URL : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375947488901273>.
- [41] H.-G. CLERC et al. “Nuclear charge distribution of mass-separated isobars from thermal-neutron-induced fission of  $^{235}\text{U}$ ”. In : *Nuclear Physics A* 247.1 (1975), p. 74-90. ISSN : 0375-9474. DOI : [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(75\)90278-X](https://doi.org/10.1016/0375-9474(75)90278-X). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/037594747590278X>.
- [42] G. SIEGERT et al. “Direct determination of the nuclear charge distribution of mass separated fission products from  $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ ”. In : *Phys. Lett. B* 53 (1974), p. 45-47. DOI : [10.1016/0370-2693\(74\)90339-6](https://doi.org/10.1016/0370-2693(74)90339-6).
- [43] J.L. SIDA et al. “Mass, charge, and energy distributions in very asymmetric thermal fission of  $^{235}\text{U}$ ”. In : *Nuclear Physics A* 502 (1989), p. 233-242. ISSN : 0375-9474. DOI : [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(89\)90664-7](https://doi.org/10.1016/0375-9474(89)90664-7). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375947489906647>.
- [44] G. MARTINEZ et al. “Mass and nuclear charge yields for  $^{237}\text{Np}(2n_{\text{th}}, f)$  at different fission fragment kinetic energies”. In : *Nuclear Physics A* 515.3 (1990), p. 433-465. ISSN : 0375-9474. DOI : [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(90\)90593-B](https://doi.org/10.1016/0375-9474(90)90593-B). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/037594749090593B>.
- [45] C. SCHMITT et al. “Fission yields at different fission-product kinetic energies for thermal-neutron-induced fission of  $^{239}\text{Pu}$ ”. In : *Nuclear Physics A* 430.1 (1984), p. 21-60. ISSN : 0375-9474. DOI : [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(84\)90191-X](https://doi.org/10.1016/0375-9474(84)90191-X). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/037594748490191X>.
- [46] Adeline BAIL. “Mesures de rendements isobariques et isotopiques des produits de fission lourds sur le spectromètre de masse Lohengrin”. Thèse de doct. 2009. URL : <http://www.theses.fr/2009B0R13799/document>.

- [47] Charlotte AMOUROUX. “Mesure des rendements de fission de l' $^{242}\text{Am}$  auprès du spectromètre Lohengrin (réacteur ILL) & amélioration et validation du code semi-empirique GEF”. Thèse de doct. Université Paris Sud, 2014.
- [48] Florence MARTIN. “Etude des distributions en masse, charge nucléaire et énergie cinétique des produits de fission de l' $^{233}\text{U}(n_t h, f)$  et du  $^{241}\text{Pu}(n_t h, f)$  mesurées auprès du spectromètre de masse Lohengrin (ILL)”. Thèse de doct. Université de Grenoble, 2015.
- [49] Sylvain JULIEN-LAFERRIÈRE. “Approche expérimentale et phénoménologique des rendements de la fission induite par neutron thermique du  $^{239}\text{Pu}$  et du  $^{241}\text{Pu}$ ”. Theses. Université Grenoble Alpes, oct. 2018. URL : <https://theses.hal.science/tel-01995046>.
- [50] Abdelaziz CHEBBOUBI. “Contribution à l'étude de la fission nucléaire : de LOHENGRIN à FIPPS”. Thèse de doct. 2015. URL : <http://www.theses.fr/2015GREAY039/document>.
- [51] A. CHEBBOUBI et al. “Kinetic energy dependence of fission fragment isomeric ratios for spherical nuclei  $^{132}\text{Sn}$ ”. In : *Physics Letters B* 775 (2017), p. 190-195. ISSN : 0370-2693. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.physletb.2017.10.067>.
- [52] W. LANG. In : *Nuclear Physics A* 345 (1980), p. 34-71.
- [53] M. JENTSCHHEL et al. “EXILL - a high-efficiency, high-resolution setup for  $\gamma$ -spectroscopy at an intense cold neutron beam facility”. In : *Journal of Instrumentation* 12.11 (2017), P11003. URL : <http://stacks.iop.org/1748-0221/12/i=11/a=P11003>.
- [54] O. LITAIZE et O. SEROT. “Investigation of phenomenological models for the Monte Carlo simulation of the prompt fission neutron and  $\gamma$  emission”. In : *Phys. Rev. C* 82 (5 2010), p. 054616. DOI : [10.1103/PhysRevC.82.054616](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.82.054616).
- [55] O. LITAIZE, O. SEROT et L. BERGE. “Fission modelling with FIFRELIN”. In : *Eur. Phys. J. A* 51.177 (2015). DOI : <https://doi.org/10.1140/epja/i2015-15177-9>.
- [56] G. AUDI et A.H. WAPSTRA. “The 1995 update to the atomic mass evaluation”. In : *Nuclear Physics A* 595.4 (1995), p. 409-480. ISSN : 0375-9474. DOI : [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(95\)00445-9](https://doi.org/10.1016/0375-9474(95)00445-9).
- [57] R. CAPOTE et ALL. “RIPL – Reference Input Parameter Library for Calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations”. In : *Nuclear Data Sheets* 110.12 (2009), p. 3107-3214. ISSN : 0090-3752. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.nds.2009.10.004>.
- [58] David RÉGNIER. “Contribution à l'étude des gammas prompts de fission”. Thèse de doctorat dirigée par Sérot, Olivier Mécanique, génie mécanique Grenoble 2013. Thèse de doct. 2013. URL : <http://www.theses.fr/2013GRENI065>.
- [59] E. E. MASLIN, A. L. RODGERS et W. G. F. CORE. In : *Physical Review A* 164 (1967), p. 1520-1527.
- [60] K. NISHIO et et ALL. In : *Nuclear Physics A* 632 (1998), p. 540-558.

- [61] A. Vorobyev et ALL. “Investigation of the prompt neutron emission mechanism in low energy fission of  $^{235,233}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$  and  $^{252}\text{Cf}(sf)$ ”. In : *EPJ Web of Conferences* 8 (2010).
- [62] Frances PLEASANTON, Robert L. FERGUSON et H. W. SCHMITT. “Prompt Gamma Rays Emitted in the Thermal-Neutron-Induced Fission of  $^{235}\text{U}$ ”. In : *Phys. Rev. C* 6 (3 1972), p. 1023-1039. DOI : [10.1103/PhysRevC.6.1023](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.6.1023).
- [63] J. N. WILSON et al. “Anomalies in the Charge Yields of Fission Fragments from the  $^{238}\text{U}(n, f)$  Reaction”. In : *Phys. Rev. Lett.* 118 (22 2017), p. 222501. DOI : [10.1103/PhysRevLett.118.222501](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.118.222501).
- [64] N. WARR et al. “The Miniball spectrometer”. In : *Eur. Phys. J. A* 49 (2013).
- [65] M. LEBOIS et al. “Development of a kinematically focused neutron source with the  $p(7\text{Li},n)7\text{Be}$  inverse reaction”. In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 735 (2014), p. 145-151. ISSN : 0168-9002. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.07.061>.
- [66] J.N WILSON et ALL. “Anomalies in the Charge Yields of Fission Fragments from the  $^{238}\text{U}(n, f)$  Reaction”. In : *Phys. Rev. Lett.* 118 (2017).
- [67] J. A. BECKER et R. O. NELSON. In : *Nucl. Phys. News International* 7 11 (1997).
- [68] N. FOTIADES et ALL. In : *Phys. Rev. C* 99 024606 (2019).
- [69] D. RAMOS et ALL. In : *Phys. Rev. Lett.* 123 092503 (2019). DOI : [10.1103/PhysRevLett.123.092503](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.092503).
- [70] P. W. LISOWSKI et al. In : *Nucl. Sci. Eng.* 106 208 (1990).
- [71] H. FAUST et al. *Fipps - fission product prompt gamma-ray spectrometer*. Rapp. tech. 2011.
- [72] Rapport annuel réacteur à haut FLUX. “Rapport Transparence et Sécurité Nucléaire”. In : (2021). URL : [https://www.ill.eu/fileadmin/user\\_upload/ILL/5\\_Reactor\\_and\\_safety/High-flux\\_reactor/TSN/Annuel-TSN-2021.pdf](https://www.ill.eu/fileadmin/user_upload/ILL/5_Reactor_and_safety/High-flux_reactor/TSN/Annuel-TSN-2021.pdf).
- [73] Caterina MICHELAGNOLI et al. “FIPPS (Fission Product Prompt  $\gamma$ -ray Spectrometer) and its first experimental campaign”. In : *EPJ Web of Conferences* 193 (jan. 2018), p. 04009. DOI : [10.1051/epjconf/201819304009](https://doi.org/10.1051/epjconf/201819304009).
- [74] Thomas MATERNA. “Contribution à l’étude de la fission nucléaire et de la désexcitation des fragments de fission avec les spectromètres LOHENGRIN, ExILL et FIPPS.” Habilitation à diriger des recherches. Université Paris-Saclay, 2019.
- [75] G. BELIER et al. “Characterization and development of an active scintillating target for nuclear reaction studies on actinides”. In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 664.1 (2012), p. 341-346.
- [76] F.KANDZIA et al. “Development of a liquid scintillator based active fission target for FIPPS”. In : *Eur. Phys. J. A* 56 (2020), p. 207. DOI : <https://doi.org/10.1140/epja/s10050-020-00201-0>.

- [77] M. JENTSCHHEL et ALL. “EXILL—a high-efficiency, high-resolution setup for  $\gamma$ -spectroscopy at an intense cold neutron beam facility”. In : *JINST* 12 (2017). DOI : [10.1088/1748-0221/12/11/P11003](https://doi.org/10.1088/1748-0221/12/11/P11003).
- [78] A.BLANC, Y.L.GOC et O.STEZOWSKI. “Data Pre-Processing using ROOT.” In : *Technical report, Institut Laue-Langevin* (2013b). DOI : <https://doi.org/10.1140/epja/s10050-020-00201-0>.
- [79] D. BAZZACCO et N. MARGINEAN. “Private Communication, INFN Sezione di Padova”. In : (1997). URL : <https://github.com/sztaylor89/GASPware-1/tree/master>.
- [80] D. BAZZACCO et A. UR. “Private Communication, INFN Sezione di Padova”. In : (1997). URL : <https://github.com/sztaylor89/GASPware-1/blob/master/doc/cmat.pdf>.
- [81] D. BAZZACCO et A. UR. “GSORT PROGRAM : Part of the GASP Data Analysis Program Package”. In : (1997), p. 31-34. URL : <https://github.com/sztaylor89/GASPware-1/blob/master/doc/gsort.pdf>.
- [82] G.F KNOLL. *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, 2010.
- [83] C. SVENSSON et A. GARNSWORTHY. “The GRIFFIN spectrometer”. In : *Hyperfine Interactions* 225 (oct. 2013). DOI : [10.1007/s10751-013-0889-3](https://doi.org/10.1007/s10751-013-0889-3).
- [84] Zoé FAVIER. *Formes des noyaux et populations des fragments de fission*. Rapp. tech. DPHN IRFU CEA Saclay, 2018.
- [85] Mattéo BALLU. *Analyse des données sur la réaction de fission thermique de l'uranium 235 avec le spectromètre gamma FIPPS*. Rapp. tech. CEA/DRF/Irfu/DPhN/LEARN, 2022.
- [86] Rene ANDRAE, Tim SCHULZE-HARTUNG et Peter MELCHIOR. “Dos and don'ts of reduced chi-squared”. In : *arXiv preprint arXiv :1012.3754* (2010).
- [87] “LNHB/CEA – Table de Radionucléides”. In : (). URL : [http://www.lnhb.fr/nuclides/Eu-152\\_tables.pdf](http://www.lnhb.fr/nuclides/Eu-152_tables.pdf).
- [88] L. THULLIEZ et al. “Calibration of nuclear recoils at the 100 eV scale using neutron capture”. In : *Journal of Instrumentation* 16.07 (2021), P07032. DOI : [10.1088/1748-0221/16/07/P07032](https://doi.org/10.1088/1748-0221/16/07/P07032).
- [89] N. HAAG et al. *Re-publication of the data from the BILL magnetic spectrometer : The cumulative  $\beta$  spectra of the fission products of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ , and  $^{241}\text{Pu}$* . 2014.
- [90] J.B. BIRKS. *The Theory and Practice of Scintillation Counting*. 1964. DOI : <https://doi.org/10.1016/C2013-0-01791-4>.
- [91] Quentin POIRIER. *Analyse des gamma retardés des fragments de fission dans les données du spectromètre FIPPS sur la réaction de fission thermique de l'U-235*. Rapp. tech. CEA/DRF/Irfu/DPhN/LEARN, 2022.
- [92] *BrIcc Conversion Coefficient Calculator*. URL : <https://bricc.anu.edu.au/>.
- [93] *National Nuclear Data Center*. URL : <https://www.nndc.bnl.gov/>.

- [94] *National Nuclear Data Center*. URL : <https://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>.
- [95] A KORĞUL, W URBAN et ALL. “Properties of  $N = 84$ , Even-Even Nuclei Populated in the Spontaneous Fission of  $^{248}\text{Cm}$ ”. In : *Eur.Phys.J. A* 7 (2000), p. 167.
- [96] D. BAZZACCO et N. MARGINEAN. “Private Communication, INFN Sezione di Padova”. In : (1997).
- [97] J. A. CIZEWSKI et al. “New  $N=84$  isotone :  $^{136}\text{Te}$ ”. In : *Phys. Rev. C* 47 (3 1993), p. 1294-1297. DOI : [10.1103/PhysRevC.47.1294](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.47.1294).
- [98] Michal RAPALA. “Study of nuclear fission by spectrometry of the prompt gamma rays”. Thèse de doct. 2018. URL : <https://theses.hal.science/tel-01988955v1/document>.
- [99] S. K. SAHA et al. “Excitations of two- and three-valence-proton nuclei  $^{134}\text{Te}$  and  $^{135}\text{I}$ ”. In : *Phys. Rev. C* 65 (1 2001), p. 017302. DOI : [10.1103/PhysRevC.65.017302](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.65.017302). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.65.017302>.
- [100] J. K. HWANG et al. “Identification of high spin states in  $^{100}\text{Zr}$ ”. In : *Phys. Rev. C* 74 (1 2006), p. 017303. DOI : [10.1103/PhysRevC.74.017303](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.74.017303). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.74.017303>.
- [101] W. URBAN et ALL. “First evidence of  $\gamma$  collectivity close to the doubly magic core  $^{132}\text{Sn}$ ”. In : *Phys. Rev. C* 93 (3 2016), p. 034326. DOI : [10.1103/PhysRevC.93.034326](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.93.034326). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.93.034326>.
- [102] W. URBAN et al. “Medium-spin structure of  $^{96,97}\text{Sr}$  and  $^{98,99}\text{Zr}$  nuclei and the onset of deformation in the  $A$  100 region”. In : *Nuclear Physics A* 689.3 (2001), p. 605-630. ISSN : 0375-9474. DOI : [https://doi.org/10.1016/S0375-9474\(00\)00612-6](https://doi.org/10.1016/S0375-9474(00)00612-6).
- [103] W. URBAN et al. “Octupole correlations in neutron-rich, even-even barium isotopes”. In : *Nuclear Physics A* 613.1 (1997), p. 107-131. ISSN : 0375-9474. DOI : [https://doi.org/10.1016/S0375-9474\(96\)00393-4](https://doi.org/10.1016/S0375-9474(96)00393-4). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947496003934>.
- [104] T. RZAÇA-URBAN et al. “ $(h_{11/2}, g_{7/2})_{9-}$  neutron excitation in  $^{92,94,96}\text{Sr}$ ”. In : *Phys. Rev. C* 79 (2 2009), p. 024319. DOI : [10.1103/PhysRevC.79.024319](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.79.024319).
- [105] M. CZERWINSKI et ALL. “Yrast excitations in the neutron-rich  $N=52$  isotones”. In : *Phys. Rev. C* 88 (4 2013), p. 044314. DOI : [10.1103/PhysRevC.88.044314](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.88.044314). URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.88.044314>.