



HAL
open science

Mesure, modélisation et évaluation de sections efficaces à seuil ($n, xn\gamma$) d'intérêt pour les applications de l'énergie nucléaire

François Claeys

► To cite this version:

François Claeys. Mesure, modélisation et évaluation de sections efficaces à seuil ($n, xn\gamma$) d'intérêt pour les applications de l'énergie nucléaire. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université de Strasbourg, 2023. Français. NNT : 2023STRAE027 . tel-04528872

HAL Id: tel-04528872

<https://theses.hal.science/tel-04528872>

Submitted on 16 Apr 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.

ÉCOLE DOCTORALE 182 – Physique et Chimie-Physique

Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien – URM7178

CEA/DES/IRESNE/DER/SPRC/Laboratoire d'Etudes de Physique

THÈSE

présentée par :

François Claeys

soutenue le : **31 mars 2023**

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université de Strasbourg**

Discipline/ Spécialité : **Physique subatomique**

Mesure, modélisation et évaluation de sections efficaces à seuil ($n, xn\gamma$) d'intérêt pour les applications de l'énergie nucléaire

THÈSE dirigée par :

Mme. KERVENO, Maëlle

M. DE-SAINT-JEAN, Cyrille

Chargée de Recherche, CNRS, IPHC, Université de Strasbourg
Directeur de Recherche, CEA/DAM-DIF, Université Paris-Saclay

RAPPORTEURS :

M. ROIG, Olivier

M. ROCHMAN, Dimitri

Directeur de Recherche, CEA/DAM-DIF
Chercheur, Paul Scherrer Institut

AUTRES MEMBRES DU JURY :

Mme. DORE, Diane

M. GALL, Benoît

M. RAVAUX, Simon

Directrice de Recherche, CEA/DRF
Professeur, Université de Strasbourg
Ingénieur docteur en neutronique, FRAMATOME

MEMBRES INVITES :

M. DESSAGNE, Philippe

M. NOGUERE, Gilles

Directeur de Recherche, CNRS, IPHC
Directeur de Recherche, CEA/DES

Remerciements

Je tiens en premier lieu à remercier chaleureusement M. Olivier Roig et M. Dimitri Rochman d'avoir accepté d'être rapporteurs de mon travail de thèse et d'avoir pris le temps de faire des retours précieux sur mon travail, que cela concerne le manuscrit ou la soutenance. Je remercie également Mme. Diane Doré, M. Benoît Gall et M. Simon Ravaux pour vos retours et commentaires en tant qu'examineurs. Le présent manuscrit ne serait pas le même sans ces différentes contributions. Pour cela, je vous suis très reconnaissant et vous exprime par ces quelques lignes toute ma gratitude.

Ma thèse s'est déroulée dans deux laboratoires, l'IPHC à Strasbourg et le LEPH au CEA de Cadarache. Qui dit deux laboratoires dit deux fois plus de remerciements et j'espère que ces derniers seront à la hauteur des personnes dont j'ai croisé la route pendant cette aventure doctorale.

Je remercie les équipes de direction, en les personnes de M. Rémi Barillon et Mme. Sandrine Courtin pour l'IPHC et M. Nicolas Devictor, M. Jean-Christophe Bosq et Mme. Véronique Bellanger-Villard, respectivement chef du Département d'Etude de Réacteur, chef du Service de Physique des Réacteurs et du Cycle et cheffe du Laboratoire d'Étude de Physique ainsi que les équipes administratives, plus particulièrement Mme. Régine Sommer et Mme. Claire Boucher. Merci de m'avoir accueilli dans vos unités et d'avoir fait en sorte que ma thèse se déroule sous les meilleurs hospices et dans les meilleures conditions possibles. Je tiens également à remercier M. Arjan Plompen, ainsi que les équipes de l'EC-JRC Geel pour leur accueil.

Je ne saurais exprimer ô combien je suis reconnaissant à mes directrice et directeur de thèse, Mme. Maëlle Kerveno et M. Cyrille De Saint Jean pour votre soutien indéfectible, votre disponibilité et votre implication dans mon travail. J'exprime cette même gratitude à M. Philippe Dessagne et M. Gilles Noguere pour m'avoir encadré au quotidien à Strasbourg et à Cadarache. Merci à tous de m'avoir conduit jusqu'à la soutenance et d'avoir été présents à mes côtés, que cela soit pour les jours fastes ou pour les jours plus difficiles (quand je devais recommencer pour une énième fois l'analyse de données de l'U3 par exemple). Il est évident à mes yeux que cette réussite, je vous la dois en grande partie et, j'ose le dire, notre collaboration va me manquer.

Mes pensées vont bien sûr à mes chers collègues strasbourgeois. En particulier merci Greg d'avoir partagé ma passion des Lego et pour ces pauses café toujours pleines d'anecdotes insolites. Je te souhaite bon courage pour tous les lundis (trop nombreux à mon goût) qu'il te reste à vivre!

Je n'oublie pas non plus l'ensemble de mes collègues du LEPH et plus largement du SPRC avec qui j'ai passé un an et demi. Merci en particulier à David et Olivier B. pour l'intérêt que vous avez porté à mon travail tout au long de ma thèse, Pierre T. pour ta

patience et ta disponibilité concernant CONRAD, Grégoire, Olivier L., Olivier S., Axel et Giorgio pour vos conseils avisés et les discussions toujours instructives que nous avons eues. Merci également à Tangi, un autre grand fan de Lego, pour ta bonne humeur, partager mon bureau avec toi fut un véritable plaisir. Enfin, merci à Kevin et Fanny pour la bonne ambiance apportée du LE2C. Mais que serait le LEPH sans ses petites mains ? Je tiens à remercier chaleureusement tous les doctorants (et nouveaux docteurs) que j'ai croisés lors de ma thèse. J'ai une pensée particulière pour Fiona, Valentin et Pierre qui m'ont ouvert la voie et ont soutenu leur thèse juste avant moi. Bon vent bonne mer pour la suite ! Merci aussi aux supers thésards du LEPH : Victor et Mathias, la team bus 9 ; Claire, nos discussions Lego, musique classique et potins me manqueront cruellement ; Dorian, mon partenaire sportif ; Maxime (alias « Bathmax ») et Sidi (alias « Monsieur chef »), ce fut un plaisir de servir à vos côtés ; Giorgos, have fun in Belgium ; Kahina, Solene, Dusan, Baptiste, Aitor et Guillaume qui commencez, bon courage pour la suite. De belles amitiés se sont forgées pendant cette année et demie, j'espère qu'elles dureront encore longtemps.

J'ai également une pensée particulière pour mes amis danseurs strasbourgeois, les badouillards, qui m'auront rendu les confinements beaucoup plus supportables ! Merci Bé-rangère, Quentin, Loïc, Adeline, Lise-Anne, Alexandre, Sharon, Marjolaine, Pia et Héroïse.

Terminer une thèse, c'est une page qui se tourne et avec elle, toute une rétrospective de mes années d'études qui s'opère. Il faut que je remonte en 2005, alors que j'étais en 6^{ème}, pour remonter à l'origine de ma passion des matières scientifiques en la personne de Pierre Deloche qui m'a transmis le goût des mathématiques dès mon plus jeune âge. Plus tard en Terminale, c'est Hélène Bruère qui m'a orienté vers la Physique. Mais c'est à Richard Taillet et Frank Thuillier du LAPTh (Laboratoire d'Annecy de Physique théorique) en particulier que je dois mon parcours universitaire. Ils ont su me transmettre leur passion pour la Physique, la vulgarisation scientifique et leur goût pour la recherche. Je suis profondément reconnaissant d'avoir croisé votre route et je vous remercie pour tout ce que vous avez fait pour moi.

Pour terminer, un immense merci à mes parents, Martine et Jean-Paul et ma sœur Marine pour leur soutien durant toutes ces années d'études qui s'achèvent. J'ai toujours pu compter sur vous et si j'en suis arrivé là aujourd'hui, c'est bien grâce à vous ! Merci également d'avoir contribué, dans sa forme, à la qualité de ce manuscrit que je vous dédis.

Table des matières

| | |
|--|-----------|
| Introduction générale | 1 |
| 1 Contexte général | 5 |
| 1.1 Le contexte énergétique actuel | 5 |
| 1.2 Les réacteurs de Génération IV | 9 |
| 1.2.1 La fission nucléaire | 9 |
| 1.2.2 Fonctionnement d'un réacteur nucléaire de type REP | 10 |
| 1.2.3 Les différentes filières de Génération IV | 13 |
| 1.2.4 Les cycles surgénérateurs | 15 |
| 1.3 Les bases de Données Nucléaires | 16 |
| 1.3.1 La base de données expérimentales EXFOR | 16 |
| 1.3.2 Les bases de données évaluées | 17 |
| 1.3.3 Amélioration des bases de données nucléaires | 18 |
| 1.4 Les réactions induites par neutrons sur les actinides de très haute activité | 20 |
| 2 Les réactions (n, xn) | 25 |
| 2.1 Rôle des réactions (n, xn) dans le cycle électronucléaire | 26 |
| 2.2 Les méthodes expérimentales liées aux mesures de section efficace de réactions (n, xn) | 28 |
| 2.2.1 Mesures directes et indirectes | 28 |
| 2.2.2 La spectroscopie γ -prompte | 29 |
| 2.2.3 Le temps de vol | 30 |
| 2.3 GRAPhEME auprès de GELINA | 31 |
| 2.3.1 GELINA | 32 |
| 2.3.2 GRAPhEME | 33 |
| 2.3.3 Méthodologie expérimentale | 40 |
| 2.4 Resimulateur | 50 |
| 2.4.1 Configuration | 51 |
| 2.4.2 Convergence | 52 |
| 2.4.3 Validation du code | 53 |
| 2.5 Conclusion | 54 |
| 3 L'Uranium-233 | 57 |
| 3.1 Introduction | 57 |
| 3.2 L'acquisition des données avec TNT | 58 |
| 3.3 L'alignement des données | 59 |
| 3.4 Caractérisation expérimentale des détecteurs | 62 |
| 3.5 Identification des transitions γ | 64 |
| 3.6 La cible d' ^{233}U | 66 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 3.7 | Méthodologie d'extraction du nombre de coups | 68 |
| 3.7.1 | Constitution des spectres en énergie à analyser | 68 |
| 3.7.2 | L'ajustement des données | 71 |
| 3.8 | Résultats et discussions | 72 |
| 3.8.1 | Les sections efficaces $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ | 73 |
| 3.8.2 | Discussion | 73 |
| 3.8.3 | Des sections efficaces aux intensités γ | 77 |
| 3.9 | Conclusion | 83 |
| 4 | La modélisation des sections efficaces de réaction | 85 |
| 4.1 | Les mécanismes de réaction et les modèles qui les décrivent | 86 |
| 4.2 | L'enchaînement des modèles dans TALYS | 91 |
| 4.2.1 | Le Modèle Optique | 91 |
| 4.2.2 | Les réactions Directes | 93 |
| 4.2.3 | Les réactions de Pré-équilibre | 94 |
| 4.2.4 | Le Noyau Composé | 98 |
| 4.2.5 | La Densité de Niveaux | 99 |
| 4.2.6 | La Fission induite | 102 |
| 4.2.7 | Coefficient de transmission γ et capture radiative | 104 |
| 4.3 | Modélisation de sections efficaces de ^{233}U | 104 |
| 4.3.1 | La paramétrisation de TALYS | 104 |
| 4.3.2 | Les sections efficaces totales et partielles | 106 |
| 4.4 | Modélisation de sections efficaces de ^{238}U | 110 |
| 4.4.1 | La paramétrisation de TALYS | 111 |
| 4.4.2 | Les sections efficaces totales et partielles | 112 |
| 4.5 | Conclusion | 117 |
| 5 | Évaluation des incertitudes des sections efficaces de ^{238}U | 119 |
| 5.1 | Introduction | 119 |
| 5.2 | CONRAD | 123 |
| 5.3 | Méthodologie de l'évaluation des données nucléaires | 124 |
| 5.3.1 | L'inférence Bayésienne | 124 |
| 5.3.2 | Les méthodes de marginalisation des données expérimentales | 126 |
| 5.3.3 | Conclusion intermédiaire | 132 |
| 5.4 | Propagation des incertitudes aux sections efficaces et validation des méthodes de marginalisation | 133 |
| 5.4.1 | Le prior et l'ajustement des paramètres | 135 |
| 5.4.2 | Comparaison des différentes méthodes de marginalisation des données expérimentales | 136 |
| 5.5 | Discussions | 141 |
| 5.6 | Sensibilités des sections efficaces de réaction aux OMP et β_λ | 144 |
| 5.7 | Conclusion | 147 |
| | Conclusion | 149 |

| | | |
|----------|--|------------|
| A | Etude de faisabilité de l'expérience ^{239}Pu | 153 |
| A.1 | Introduction | 153 |
| A.1.1 | Méthodologie | 153 |
| A.1.2 | Comparaison avec les résultats obtenus par Bernstein | 159 |
| A.2 | Résultat | 161 |
| A.3 | Les sections efficaces de réactions $(n, xn\gamma)$ Bernstein <i>et al.</i> | 164 |
| B | Les sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ | 167 |
| B.1 | Identification des transitions | 167 |
| B.2 | Tableaux de valeurs des sections efficaces | 170 |
| C | Paramétrisation du Modèle Optique | 173 |
| C.1 | OMP pour ^{233}U | 173 |
| C.2 | OMP pour ^{238}U | 175 |
| D | Références EXFOR des données expérimentales des sections efficaces de réactions pour le noyau $d^{238}\text{U}$. | 179 |
| E | Impact de la marginalisation sur les sections efficaces de réactions pour le noyau $d^{238}\text{U}$ | 183 |
| F | Ma thèse en 180 secondes | 187 |
| | Bibliographie | 189 |

Table des figures

| | | |
|-----|--|----|
| 1.1 | Évolution de la consommation énergétique mondiale en EJ (ExaJoule), par source d'énergie, de 1965 jusqu'en 2021 | 6 |
| 1.2 | Probabilité d'émission des produits de fission, pour une réaction de fission induite par neutron sur un noyau de ^{239}Pu pour une énergie incidente neutron $E_n = 14$ MeV, tracée en fonction de la masse A du PF et son numéro atomique Z pour la base données JENDL-4.0. | 10 |
| 1.3 | Fonctionnement d'un réacteur nucléaire de type REP. | 11 |
| 1.4 | Schémas de fonctionnement des 6 concepts de réacteurs sélectionnés par le GIF. | 14 |
| 1.5 | Concentration en matériaux fissiles dans le combustible C pour les cycles Th-U (en trait plein) et U-Pu (trait pointillé) en fonction de l'énergie du neutron incident. | 16 |
| 1.6 | Comparaison des dernières évaluations de la diffusion inélastique du neutron sur le noyau d' ^{233}U disponibles depuis la plateforme NNDC. | 19 |
| 1.7 | Comparaison entre les évaluations ENDF/B-VIII.0, JEFF-3.3 et les données expérimentales existantes pour les sections efficaces de réactions (n, n') et $(n, 2n)$ pour l' ^{233}U (à gauche) et le ^{239}Pu (à droite) pour une énergie neutron comprise entre l'énergie du premier état excité du noyau considéré et 20 MeV. | 21 |
| 1.8 | Comparaison des sections efficaces de réaction (n, f) , (n, n') et $(n, 2n)$ pour l' ^{233}U (à gauche) et le ^{239}Pu (à droite), pour une énergie neutron comprise entre l'énergie du premier état excité du noyau considéré et 20 MeV. Données de JEFF-3.3. | 22 |
| 2.1 | Illustration du ralentissement des neutrons par diffusions inélastiques sur les cinq premiers états excités du noyau d' ^{233}U | 27 |
| 2.2 | Chaîne de décroissance de l'Uranium 232. | 28 |
| 2.3 | Schéma de principe de la méthode de la spectroscopie γ -prompte. | 30 |
| 2.4 | Vue aérienne de l'installation GELINA de l'EC-JRC Geel. | 32 |
| 2.5 | Flux de neutrons produit par GELINA mesuré auprès de GRAPhEME, installé dans la station de temps de vol FP16-30 m située à 30 m de la cible primaire. | 34 |
| 2.6 | Schéma du dispositif expérimental GRAPhEME installé auprès de GELINA. | 35 |

| | | |
|------|---|----|
| 2.7 | Diagramme bi-dimensionnel traçant le nombre de produits de fission enregistré N_{PF} en fonction de leur temps d'émission et de leur énergie. La zone verte correspond aux alpha émis lors de la désintégration des noyaux du dépôt d' ^{235}U de la chambre à fission, la zone rouge correspond aux événements de photo-fission de l' ^{235}U par le flash- γ et la zone bleue correspond aux produits de fission induits par les réactions de fission induites par neutron sur l' ^{235}U | 36 |
| 2.8 | Diagramme bi-dimensionnel représentant la distribution des γ enregistrés en fonction de leur temps d'émission et de leur énergie. Figure obtenue avec une cible d' ^{233}U | 39 |
| 2.9 | Diagramme bi-dimensionnel traçant le nombre d'événements γ enregistrés N_γ en fonction de leur temps d'émission et de leur énergie, centré sur une plage d'énergie γ comprise entre 281 et 351 keV. Sont identifiées par une flèche blanche les transitions de radioactivité, en encadré vert une transition d'un produit de fission et en encadré rouge des transitions d'intérêts ^{233}U ($n, n'\gamma$). | 41 |
| 2.10 | Projection en temps (a) et en énergie (b) du diagramme bi-dimensionnel tracé sur la Figure 2.8. On reconnaît en (a) le flash- γ , juste après $t = 0$. S'ensuit ensuite la "bosse" des événements induits pas les neutrons. | 42 |
| 2.11 | Portion du spectre en énergie γ , $E_\gamma \in [260, 383]$ keV. (a) : $E_n \in [1, 1, 3]$ MeV, (b) : $E_n \in [4, 5]$ MeV, (c) : fenêtre de radioactivité, avant le flash- γ | 43 |
| 2.12 | Détermination du taux d'empilement des données $\tau_{pile-up}^{Bleu}$ du détecteur Bleu. | 45 |
| 2.13 | Ajustement quadratique du fond sur un extrait de spectre (en rouge) autour d'une zone d'intérêt. Les points bleus correspondent aux zones de fond utilisées pour l'ajustement quadratique (courbe tracée en bleu). | 47 |
| 2.14 | Illustration de la méthode d'ajustement des données de <i>gf3</i> | 48 |
| 2.15 | Étude de la convergence des résultats de <i>Resimulateur</i> pour la valeur centrale de la section efficace de la diffusion inélastique de l' ^{238}U , pour la transition $E_\gamma = 159.018$ keV (a) et de son incertitude (b). Pour chaque valeur de $\mathcal{N} \in [1, 10^4]$, 20 résultats sont tracés (points bleus), la valeur finale retenue correspond à la ligne rouge. Sur le tracé (a), on montre également l'incertitude finale obtenue. | 52 |
| 2.16 | Comparaison des sections efficaces et de leurs incertitudes obtenues avec les méthodes déterministe et semi-Monte-Carlo pour les transitions à $E_\gamma = 311,9$ keV (a) et $E_\gamma = 340,477$ keV (b). | 53 |
| 3.1 | (a) : Face avant du détecteur HPGe segmenté; (b) : cartes des pixels du détecteur HPGe segmenté. Les pixels coloriés en vert sont ceux dont les données ont pu être exploitées et en rouge, ceux dont les données ont été écartées. | 60 |

| | | |
|------|--|----|
| 3.2 | Mesure de la position du canal du flash- γ en fonction de la semaine d'acquisition, illustrant l'instabilité de l'acquisition des données durant la campagne de mesure. (a) : position du flash- γ pour les 4 détecteurs Gris, Vert, Bleu et Rouge sur l'ensemble de l'acquisition. (b) : position du flash- γ pour les détecteurs Gris et Bleu uniquement, zoomée sur la dernière période de mesure. | 60 |
| 3.3 | Spectre en temps, centré sur le flash- γ pour le détecteur Vert avant (en rouge) et après (en noir) l'alignement en temps. | 61 |
| 3.4 | Étude de la résolution en énergie pour les 36 pixels du détecteur HPGe segmenté. Pour les 2 transitions à 59,54 keV et 463,04 keV, cette grandeur ainsi que l'incertitude de l'ajustement sont tracées pour les trois lots de données sélectionnées en fonction des pixels. La croix rouge représente la valeur moyenne de cette résolution en énergie pour tous les pixels et pour ces trois lots de données. La croix grise donne la valeur de la résolution en énergie correspondant à la somme des pixels. | 63 |
| 3.5 | Illustration de la déformation des pics γ pour les détecteurs planaires classiques. Pics de la transition à 463,06 keV obtenu avec les détecteurs classiques Gris, Vert, Bleu, Rouge et Violet, comparé avec le pic obtenu avec le détecteur segmenté. | 64 |
| 3.6 | Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 292.4 et 318.7 keV. | 65 |
| 3.7 | Photos de la cible d' ^{233}U dans son support. (a) : face avant ; (b) : face arrière. | 67 |
| 3.8 | Portion du spectre en énergie provenant du détecteur HPGe segmenté. | 69 |
| 3.9 | Portion du spectre en énergie provenant du détecteur HPGe Gris. | 70 |
| 3.10 | Taux d'empilement des données en fonction du détecteur considéré τ^{det} et en fonction du temps. | 71 |
| 3.11 | Spectre obtenu après soustraction de la composante de radioactivité pour l'ensemble de la fenêtre (n, n') <i>i.e.</i> 135 canaux pour le détecteur HPGe segmenté. | 72 |
| 3.12 | Extrait du schéma de niveaux du noyau d' ^{233}U pour une énergie de niveau $E_l < 416$ keV. | 73 |
| 3.13 | Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ expérimentales pour l'ensemble des transitions γ observées. | 74 |
| 3.14 | Rapport des sections efficaces $inel_{(n, n') + fission} / inel_{(n, n')}$ en fonction de l'énergie du neutron incident pour le noyau d' ^{233}U | 75 |
| 3.15 | Histogramme de la distribution des masses obtenues avec les 36 pixels pour les 5 transitions γ citées dans le Tableau 3.4. La distribution obtenue ici ne tient pas compte des incertitudes des masses obtenues mais simplement de leur valeur. | 77 |
| 3.16 | Masse de la cible pour chaque transition de radioactivité en fonction du pixel considéré. | 78 |
| 3.17 | Schéma de principe de l'intensité γ | 78 |

| | | |
|------|--|-----|
| 3.18 | Rapport des intensités γ obtenues de manière expérimentale (en rouge), la valeur moyenne de ce rapport (en bleu) pour les niveaux à $E_l = 301.94$ keV comparée à la valeur renseignée dans ENSDF (en vert). | 79 |
| 3.19 | Rapport des intensités γ obtenues de manière expérimentale (en rouge), la valeur moyenne de ce rapport (en bleu) pour les niveaux à $E_l = 340.478$ keV (b) comparée à la valeur renseignée dans ENSDF (en vert). | 80 |
| 3.20 | Extrait du schéma du niveau pour la transition à $E_\gamma = 261.4$ keV, provenant du niveau à $E_l = 301.94$ keV et les sections efficaces expérimentales et calculée (en pointillé) à partir du rapport d'embranchement fourni dans la base de données ENSDF et de la connaissance de la transition provenant du même niveau, $E_\gamma = 301.9$ keV. | 81 |
| 3.21 | Extrait du schéma du niveau pour la transition à $E_\gamma = 261.6$ keV, provenant du niveau à $E_l = 353.78$ keV et les sections efficaces expérimentales et calculée (en pointillé) à partir du rapport d'embranchement fourni dans la base de données ENSDF et de la connaissance de la transition provenant du même niveau, $E_\gamma = 313.3$ keV. | 81 |
| 3.22 | Sections efficaces expérimentales et calculées (en pointillé) à partir des rapports d'embranchements fourni dans la base de données ENSDF et de la connaissance des transitions provenant du même niveau pour la transitions mesurée à $E_\gamma = 260.6(9)$ keV. | 82 |
| 4.1 | Évaluation JEFF-3.3 de la section efficace totale $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ pour une énergie comprise entre $10 \mu\text{eV}$ et 20MeV | 87 |
| 4.2 | Représentation schématique du spectre en énergie d'une particule émise en fonction du mécanisme de réaction impliqué. | 88 |
| 4.3 | Schéma de principe des réactions nucléaires induites par neutron. | 89 |
| 4.4 | Représentation schématique de l'enchaînement des mécanismes de réaction dans le code de réaction nucléaire TALYS. | 91 |
| 4.5 | Les sections efficaces de réaction (n, n') , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ pour le noyau d' ^{238}U avec et sans la prise en compte du mécanisme de Pré-équilibre. | 95 |
| 4.6 | Schéma de principe des réactions de Pré-équilibre. | 96 |
| 4.7 | La distribution en spin pour un neutron incident de 10MeV sur un noyau d' ^{238}U et une énergie d'excitation cédée au noyau résiduel de 5MeV | 98 |
| 4.8 | Courbe des niveaux cumulés de classe I du noyau d' ^{238}U . En rouge sont tracés les niveaux expérimentaux et en noir pointillé les niveaux calculés à partir de la densité de niveaux. La ligne bleu donne la limite du schéma de niveau complet avec les spin/parité J^π renseignés et la ligne verte correspond au schéma de niveau complet sans information complète sur les J^π | 101 |
| 4.9 | Représentation schématique d'une double barrière de fission. | 103 |

| | | |
|------|--|-----|
| 4.10 | Comparaison des sections efficaces ^{233}U (n, tot), (n, n), (n, γ), (n, f) et (n, n') obtenues avec la version locale de TALYS-1.95 avec les évaluations ENDF/B-VIII, JEFF-3.3 et les données expérimentales disponibles dans EXFOR. | 107 |
| 4.11 | Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions γ de la bande 3. En noir les points expérimentaux obtenus lors de ce travail de thèse et en bleu les résultats du calcul TALYS-1.95C. | 108 |
| 4.12 | Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions γ de la bande 4. En noir les points expérimentaux obtenus lors de ce travail de thèse et en bleu les résultats du calcul TALYS-1.95C. | 109 |
| 4.13 | Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions γ de la bande 5. En noir les points expérimentaux obtenus lors de ce travail de thèse et en bleu les résultats du calcul TALYS-1.95C. | 110 |
| 4.14 | Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions γ hors bande. En noir les points expérimentaux obtenus lors de ce travail de thèse et en bleu les résultats du calcul TALYS-1.95C. | 110 |
| 4.15 | Comparaison des sections efficaces ^{238}U (n, tot), (n, n), (n, γ), (n, f), (n, n') et (n, 2n) obtenues avec la version locale de TALYS-1.95C avec les évaluations ENDF/B-VIII, JEFF-3.3 et les données expérimentales disponibles dans EXFOR. | 113 |
| 4.16 | Comparaison des sections efficaces expérimentales $^{238}\text{U}(n, n'\gamma)$ et les données expérimentales disponibles dans EXFOR avec celles obtenues avec la version locale de TALYS-1.95C pour les transitions de la bande fondamentale. | 114 |
| 4.17 | Comparaison des sections efficaces expérimentales $^{238}\text{U}(n, n'\gamma)$ et les données expérimentales disponibles dans EXFOR avec celles obtenues avec la version locale de TALYS-1.95C pour des transitions en dehors de la bande fondamentale. | 115 |
| 4.18 | Section efficace de diffusion inélastique $^{238}\text{U}(n, n')$ obtenue avec le calcul initial de G. Noguere avec la valeur par défaut de $\sigma_{cut-off} = 0.24$ (en vert pointillé) et avec le calcul TALYS-1.95C avec $\sigma_{cut-off} = 0.06$ (en bleu). | 116 |
| 5.1 | Comparaison des données expérimentales de la section efficace de diffusion inélastique sur le noyau d' ^{238}U avec les bases de données évaluées dans leur version la plus récente. | 120 |
| 5.2 | Longueur de migration neutronique pour trois types de réacteurs. | 122 |
| 5.3 | Énergie de renvoi des neutrons en fonction de leur énergie incidente. | 123 |
| 5.4 | Résultat de la recherche du nombre optimal de paramètres avec CONRAD. Le nombre final de OMP à ajuster est ainsi fixé à 8. | 135 |
| 5.5 | Calcul de la section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ avant et après ajustement des paramètres de modèle. Le résultat du calcul est la ligne bleue et le bandeau tracé autour représente l'incertitude initiale (à gauche) et ajustée (à droite) obtenue pour la section efficace. En bas de chacun des graphiques est tracée l'incertitude relative $\Delta\sigma/\sigma$ | 136 |

| | | |
|------|--|-----|
| 5.6 | Résultats de la marginalisation des données expérimentales dans l'ajustement et la propagation des incertitudes pour la section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ obtenus avec les méthodes BMC et MAT. | 137 |
| 5.7 | Résultats de la marginalisation des données expérimentales dans l'ajustement et la propagation des incertitudes pour la section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ obtenus avec les méthodes LOCAL et GLOBAL. | 138 |
| 5.8 | Résultats de la marginalisation des données expérimentales dans l'ajustement et la propagation des incertitudes pour la section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ obtenus avec la méthode SIMPLE. | 139 |
| 5.9 | Matrices de corrélation des paramètres de modèle et de nuisance après marginalisation pour, de gauche à droite, les méthodes BMC, MAT et SIMPLE. | 141 |
| 5.10 | Matrices de corrélation des paramètres de modèle et de nuisance après ajustement mais avant marginalisation obtenue, de gauche à droite, avec la méthode MAT la méthode SIMPLE. | 142 |
| 5.11 | Distribution des écarts calcul/mesure pour les différentes méthodes de marginalisation MAT, BMC et SIMPLE. La figure $\text{SIMPLE}_{\text{Norm}}$ correspond à la méthode SIMPLE, avec la prise en compte des facteurs de normalisation. | 143 |
| 5.12 | Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction (n, n) aux paramètres $(\text{OMP}, \beta_\lambda)$ et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation. | 145 |
| 5.13 | Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction (n, γ) aux paramètres $(\text{OMP}, \beta_\lambda)$ et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation. | 145 |
| 5.14 | Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction (n, f) aux paramètres $(\text{OMP}, \beta_\lambda)$ et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation. | 146 |
| 5.15 | Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction (n, n') aux paramètres $(\text{OMP}, \beta_\lambda)$ et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation. | 146 |
| 5.16 | Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction $(n, 2n)$ aux paramètres $(\text{OMP}, \beta_\lambda)$ et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation. | 147 |
| 5.17 | Résultat de la propagation des incertitudes des OMP et β_λ à la section efficace de diffusion inélastique $^{238}\text{U}(n, n')$ | 148 |
| A.1 | Sections efficaces, évaluées et expérimentales, des réactions $^{239}\text{Pu}(n, n')$ et $(n, 2n)$ et Sections efficaces évaluées (ENDF et JEFF) des différentes voies de réactions possibles sur ^{239}Pu , (n, f) , (n, n') et $(n, 2n)$, entre 0 and 20 MeV. | 154 |
| A.2 | Méthodologie utilisée pour résumer toutes les informations provenant des différentes sources de pollution des pics d'intérêts. | 157 |
| A.3 | Probabilité de production des produits de fission pour une réaction de fission induite par neutrons sur du ^{239}Pu , pour une énergie incidente $E_n = 500$ keV (en noir) et pour $E'_n = 14$ MeV (en rouge). | 158 |

| | | |
|-----|---|-----|
| A.4 | Simulation des γ prompts de fission donnée par le code FIFRELIN (en bleu), comparé aux positions en énergie des transitions d'intérêt pour les réactions $^{239}\text{Pu}(n, n')$ (en rouge) et pour les réactions $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ (en vert). La hauteur des transitions représente leur intensité relative. Pour les transtions d'intérêt, seule leur position dans le spectre est donnée. Figure obtenue avec un calcul FIFRELIN réalisé par O. Litaize. | 159 |
| A.5 | Comparaison des flux de neutrons entre plusieurs installations. | 161 |
| B.1 | Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 251.5 et 274.9 keV. | 167 |
| B.2 | Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 272.5 et 295.4 keV. | 168 |
| B.3 | Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 335.6 et 352.9 keV. | 168 |
| B.4 | Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 355.7 et 384.4 keV. | 169 |
| B.5 | Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 398.8 et 418.9 keV. | 169 |
| E.1 | Comparaison des valeurs centrales des sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, n)$, (n, γ) , (n, f) , (n, n') , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ avant et après marginalisation pour la méthode BMC . Pour chaque réaction, on donne, en haut les valeurs centrales des sections efficaces du calcul <i>a priori</i> (points bleus) et après marginalisation des données expérimentales de la section efficace totale (ligne rouge). En bas, on trace l'écart relatif entre les deux courbes avant et après marginalisation. | 184 |
| E.2 | Comparaison des valeurs centrales des sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, n)$, (n, γ) , (n, f) , (n, n') , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ avant et après marginalisation pour la méthode MAT . Pour chaque réaction, on donne, en haut les valeurs centrales des sections efficaces du calcul <i>a priori</i> (points bleus) et après marginalisation des données expérimentales de la section efficace totale (ligne rouge). En bas, on trace l'écart relatif entre les deux courbes avant et après marginalisation. | 185 |
| E.3 | Comparaison des valeurs centrales des sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, n)$, (n, γ) , (n, f) , (n, n') , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ avant et après marginalisation pour la méthode SIMPLE . Pour chaque réaction, on donne, en haut les valeurs centrales des sections efficaces du calcul <i>a priori</i> (points bleus) et après marginalisation des données expérimentales de la section efficace totale (ligne rouge). En bas, on trace l'écart relatif entre les deux courbes avant et après marginalisation. | 186 |

Liste des tableaux

| | | |
|-----|---|-----|
| 1.1 | Composition isotopique de l'Uranium naturel et enrichi. | 11 |
| 1.2 | Tableau récapitulatif des différents réacteurs de Génération IV retenus par le GIF. | 13 |
| 1.3 | Les dernières versions des bases de données évaluées disponibles utilisées dans ce travail depuis NNDC. | 18 |
| 1.4 | Tableau récapitulatif des besoins en termes d'incertitudes de l'évaluation de la section efficace de diffusion inélastique de neutrons sur le noyau d' ²³⁸ U, en fonction des types de réacteurs nucléaires étudiés. | 20 |
| 2.1 | Caractéristiques du dépôt d'Uranium-235 de la chambre à fission de GRAPhEME. | 35 |
| 2.2 | Caractéristiques des six détecteurs HPGe de GRAPhEME. | 40 |
| 2.3 | Correspondances $t_\gamma(ch) \leftrightarrow E_n(MeV)$ déterminées et utilisées lors de l'analyse des données. | 42 |
| 2.4 | Paramètres de la quadrature de Gauss pour $n = 2$ | 50 |
| 3.1 | Lots de données constitués pour l'étude des réactions $(n, xn\gamma)$ de l' ²³³ U. À chaque lot est associé les détecteurs auxquels ils correspondent et le temps d'acquisition correspondant. | 59 |
| 3.2 | Résolutions en énergie des détecteurs obtenues pour la campagne de mesure de l' ²³³ U. Cette grandeur est donnée pour trois énergies γ : 59,54 keV, 463,04 keV et 1014,6 keV. Ces valeurs correspondent aux paramètres de l'ajustement du pic avec une courbe gaussienne. Les résolutions en énergie sont données en keV. | 63 |
| 3.3 | Tableau récapitulatif des transitions γ issues de réactions de diffusion inélastique sur le noyau d' ²³³ U. | 66 |
| 3.4 | Liste des transitions γ du ²²⁹ Th utilisées pour le calcul de la masse réelle d' ²³³ U. Pour chacune d'elles sont renseignées leur énergie, leur intensité et les incertitudes associées. | 67 |
| 3.5 | Tableau récapitulatif de la détermination expérimentale des intensités γ | 80 |
| 4.1 | Tableau des paramètres de densité de niveaux et de barrières de fission suite à l'ajustement réalisé avec TALYS-1.95C, pour les sections efficaces du noyau d' ²³³ U. Pour chaque isotope impliqué dans le calcul, <i>i.e.</i> les noyaux ²³⁴ U, ²³³ U et ²³² U, les paramètres de densité de niveaux a , les hauteurs V_i et largeurs ω_i des barrières de fission sont donnés. | 106 |

| | | |
|-----|---|-----|
| 4.2 | Tableau comparatif entre les données de <i>RIPL-3</i> et l'ajustement réalisé avec la version locale de TALYS-1.95C. Pour chaque isotope impliqué dans le calcul, <i>i.e.</i> les noyaux ^{239}U , ^{238}U , ^{237}U , ^{236}U , ^{238}Pa et ^{235}U , les paramètres de densité de niveaux a , les hauteurs V_i et largeurs ω_i des barrières de fission sont donnés. | 111 |
| 5.1 | Tableau récapitulatif des propriétés, avantages et inconvénients des méthodes de marginalisation de données présentées et utilisées dans ce travail de thèse. | 132 |
| 5.2 | Tableau récapitulatif des données expérimentales de section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ utilisées pour tester les différentes méthodes de marginalisation implémentées dans CONRAD. | 133 |
| 5.3 | Valeurs et incertitudes des facteurs de normalisation \mathcal{N} pris pour le travail d'évaluation. | 134 |
| 5.4 | Résultats des ajustements et propagations des incertitudes pour les méthodes BMC, MAT, SIMPLE, LOCAL et GLOBAL de marginalisation. | 140 |
| A.1 | Ensemble des transitions γ provenant de la réaction $^{239}\text{Pu}(n, n')$ que l'on pourraient observer sur le spectre γ | 155 |
| A.2 | Ensemble des transitions γ provenant de la réaction $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ que l'on pourraient observer sur le spectre γ | 156 |
| A.3 | Composition isotopique de la cible utilisée par Bernstein <i>et al.</i> au LANSCE/WNR lors de ses campagnes de mesure comparée à celles des cibles fabriquées par l'EC-JRC Geel. | 160 |
| A.4 | Résultats obtenus pour la sélection des transitions d'intérêt pour le ^{239}Pu . Les cases en vert représentent les transitions retenues, les cases en orange sont des transitions dont la section efficace a été extraite par Bernstein <i>et al.</i> mais ces dernières sont polluées par d'autres transitions. Ces dernières sont possiblement acceptables mais des précautions supplémentaires doivent être prises. Enfin, les cases en rouge représentent les transitions γ dont on ne pourra pas extraire la section efficace car trop polluées, d'après cette étude. | 162 |
| B.1 | Tableau de valeurs de sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions à $E_\gamma = 261.4$ keV, $E_\gamma = 280.58$ keV et $E_\gamma = 288.33$ keV. | 171 |
| B.2 | Tableau de valeurs de sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions à $E_\gamma = 298.8$ keV, $E_\gamma = 300.128$ keV et $E_\gamma = 301.99$ keV. | 171 |
| B.3 | Tableau de valeurs de sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions à $E_\gamma = 305.4$ keV, $E_\gamma = 311.901$ keV, $E_\gamma = 313.34$ keV et $E_\gamma = 340.477$ keV. | 172 |
| B.4 | Tableau de valeurs de sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions à $E_\gamma = 375.407$ keV et $E_\gamma = 415.764$ keV. | 172 |
| C.1 | Table des valeurs des OMP issus de <i>RIPL-3</i> dans le cas de l' ^{233}U | 175 |
| C.2 | Table des valeurs des OMP issus de <i>RIPL-3</i> dans le cas de l' ^{238}U | 177 |

| | | |
|-----|--|-----|
| D.1 | Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(\text{n, tot})$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1. | 179 |
| D.2 | Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(\text{n, n})$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1. | 179 |
| D.3 | Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(\text{n, } \gamma)$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1. | 180 |
| D.4 | Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(\text{n, f})$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1. | 181 |
| D.5 | Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(\text{n, n}')$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1. | 181 |
| D.6 | Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(\text{n, 2n})$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1. | 182 |

Introduction générale

Dans le contexte du développement des réacteurs nucléaires de Génération IV, mais aussi en soutien au parc actuel, il y a aujourd'hui un besoin d'amélioration des données nucléaires. Par définition, l'ensemble des observables de physique nécessaires à la description de l'évolution des neutrons dans la matière constituent les données nucléaires. On s'intéresse ici en particulier aux cycles surgénérateurs innovants Thorium/Uranium ($^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$) et Uranium/Plutonium ($^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$). L'avantage de ces cycles est double. D'une part, les noyaux de ^{232}Th et de ^{238}U sont très abondants sur Terre. D'autre part, à la bonne énergie neutron incidente, ils produisent par capture radiative et décroissances β^- successives les noyaux de ^{233}U et de ^{239}Pu qui sont fissiles et peuvent donc être utilisés dans les réacteurs comme combustible. Cependant, ces noyaux souffrent d'un manque de données nucléaires précises, en particulier pour les sections efficaces de diffusion inélastique ou de réactions (n, xn). On peut prendre pour exemple l' ^{233}U , pour lequel il n'y a, à ce jour, aucune donnée expérimentale de section efficace de diffusion inélastique pour contraindre les modèles, expliquant les différences significatives observées entre les différentes bases de données évaluées. Pourtant, ces réactions jouent un rôle majeur dans le fonctionnement d'un cœur de réacteur. En effet, la diffusion inélastique est responsable du ralentissement des neutrons de haute énergie dans le cœur et les réactions (n, xn) introduisent de nouveaux isotopes au sein du réacteur, ce qui peut poser des problèmes de sûreté nucléaire et de radioprotection. On peut citer par exemple la réaction $^{233}\text{U}(n, 2n)^{232}\text{U}$ qui produit, en fin de chaîne de décroissance, un rayon γ très énergétique. Cette problématique liée au manque de données nucléaires n'est pas nouvelle puisque, pour le parc actuel et les futurs réacteurs, la section efficace inélastique de l' ^{238}U présente aujourd'hui des incertitudes trop élevées pour les besoins industriels.

Ce travail de thèse a pour but d'apporter sa contribution afin de répondre à la problématique suivante : comment améliorer les bases de données nucléaires ?

Dans ce but, mon travail consiste à produire des données nucléaires, qu'elles soient expérimentales ou évaluées (nous reviendrons sur ces notions au cours de ce manuscrit). Cette thèse est le fruit de la collaboration EEDIN (Étude Expérimentale de la Diffusion Inélastique du Neutron). EEDIN regroupe des chercheurs de deux centres de recherches, le CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique) d'une part, et le CEA (Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives) d'autre part, répartis sur trois laboratoires :

- L'IPHC - Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien - Strasbourg, CNRS [1] ;
- Le LEPh - Laboratoire d'Études de Physique - CEA/DES Cadarache [2] ;
- Le SPN - Service de Physique Nucléaire - CEA/DAM Bruyères-le-Châtel [3].

Chacune des équipes, dans le cadre de cette collaboration, travaille dans l'objectif de produire des données nucléaires. Cette diversité et cette complémentarité se reflètent dans mon projet de recherche. Dans un premier temps, je vais produire des données nucléaires expérimentales, plus précisément des sections efficaces des réactions (n, xn γ) pour les noyaux de ^{233}U et de ^{239}Pu , en travaillant avec l'équipe DNR de l'IPHC. Dans un second

temps, mon travail consistera à apporter des éléments pour une nouvelle évaluation de la section efficace de diffusion inélastique des neutrons (n, n') pour le noyau d' ^{238}U , au sein du LEPH, en étroite collaboration avec le SPN.

Dans ce manuscrit, je présente le fruit de mes recherches, en exposant les problématiques que j'ai pu rencontrer, les solutions que j'ai apportées, et enfin, les résultats que j'ai obtenus.

Le chapitre 1 de ce manuscrit sera consacré au contexte dans lequel mon travail et mon sujet de thèse s'inscrivent, aux principes de fonctionnement d'un réacteur nucléaire et aux différentes bases de données existantes. Nous conclurons ce chapitre en présentant les problématiques liées aux actinides de haute activité étudiés dans ce travail de thèse.

Nous nous intéresserons dans le chapitre 2 aux réactions induites par neutrons (n, xn). Nous verrons le rôle qu'elles jouent et les conséquences qu'elles engendrent dans un cœur de réacteur. Nous exposerons les différentes méthodes expérimentales liées aux mesures de ces réactions. En particulier, nous expliciterons comment obtenir une section efficace partielle ($n, xn\gamma$). Nous présenterons également en détail le dispositif expérimental GRA-PhEME qui a été utilisé pour la prise des données analysées dans le cadre de cette thèse. Nous présenterons enfin dans son principe la méthodologie de l'analyse des données, notamment comment, à partir des spectres γ bruts, obtenir une section efficace ($n, xn\gamma$).

Le chapitre 3 sera dédié au travail relatif à l' ^{233}U et aux spécificités de l'analyse de données que nous avons adaptée pour ce noyau. Il y sera exposé une description de la cible utilisée pour cette prise de données et une présentation de la méthode d'acquisition des données avec les cartes TNT. Puis, la méthodologie de l'analyse de données qui a été menée, les problématiques rencontrées lors de celle-ci et les réponses qui y ont été apportées seront exposées. Pour clore ce chapitre, les résultats obtenus suite à cette analyse de données seront montrés et les hypothèses faites lors ce travail seront discutées.

Le chapitre 4 concernera la modélisation des sections efficaces de réaction, en particulier dans le domaine énergétique du continuum. Les modèles de physique nucléaire utilisés pour décrire les différents mécanismes de réaction impliqués dans l'interaction d'un neutron incident avec un noyau cible seront présentés. Nous verrons notamment la prise en compte de nouveaux modèles, concernant la description du mécanisme de pré-équilibre. Nous illustrerons ce chapitre avec les résultats des calculs réalisés dans le cadre de cette thèse pour les noyaux d' ^{233}U et d' ^{238}U . Dans le premier cas, nous discuterons des différences calculs/mesures observées avec les sections efficaces obtenues dans le chapitre 3. Dans le second cas, nous présenterons le travail qui servira de base à la partie évaluation de la thèse.

Le chapitre 5 sera dédié au travail de l'évaluation des incertitudes et des sensibilités de la section efficace (n, n') sur le noyau d' ^{238}U . Nous présenterons la méthodologie liée à ce travail d'évaluation ainsi que les outils numériques qui ont été mis à profit pour réaliser

cette étude, notamment le code CONRAD, développé par le CEA de Cadarache.

Enfin, nous concluons ce manuscrit et mettrons en avant les perspectives envisagées à la suite de ce travail de thèse.

En annexe de ce manuscrit, nous donnerons une étude préliminaire menée en amont de la prochaine campagne expérimentale auprès de GRAPhEME concernant la mesure de sections efficaces ($n, xn\gamma$) sur le noyau de ^{239}Pu (annexe A), les identifications et les tableaux de valeurs des sections efficaces obtenues (annexe B), les paramétrisations du modèle optique pour les besoins de la modélisation des sections efficaces présentées dans le chapitre 4 (annexe C), les références des données expérimentales des sections efficaces de réactions EXFOR tracées dans le Chapitre 4 pour le noyau d' ^{238}U (annexe D) et l'impact de la marginalisation vu au Chapitre 5 sur les sections efficaces de réactions pour le noyau d' ^{238}U (annexe E). Pour conclure ce manuscrit, nous exposerons le travail réalisé lors de la participation à l'édition 2021 du concours national *Ma thèse en 180 secondes*.

CHAPITRE 1

Contexte général

Sommaire

| | | |
|------------|---|-----------|
| 1.1 | Le contexte énergétique actuel | 5 |
| 1.2 | Les réacteurs de Génération IV | 9 |
| 1.2.1 | La fission nucléaire | 9 |
| 1.2.2 | Fonctionnement d'un réacteur nucléaire de type REP | 10 |
| 1.2.3 | Les différentes filières de Génération IV | 13 |
| 1.2.4 | Les cycles surgénérateurs | 15 |
| 1.3 | Les bases de Données Nucléaires | 16 |
| 1.3.1 | La base de données expérimentales EXFOR | 16 |
| 1.3.2 | Les bases de données évaluées | 17 |
| 1.3.3 | Amélioration des bases de données nucléaires | 18 |
| 1.4 | Les réactions induites par neutrons sur les actinides de très haute activité | 20 |

Les romantiques aimeraient peut-être penser qu'ils sont faits de poussières d'étoiles. Les cyniques préféreraient sans doute parler de déchets nucléaires. Nous pourrions même aller plus loin que l'écrivain Simon SINGH, qui esquissait ces mots en 2005 [4]. Nous sommes tous les enfants des plus gigantesques réacteurs nucléaires de l'Univers. S'allumant et s'éteignant au cours des 13,7 milliards d'années que précède le Big Bang, ils ont produit tous les "déchets nucléaires" qui ont façonnés l'Univers tel que nous le connaissons. A n'en pas douter, ces "déchets" sont à l'origine de la vie.

Tout comme les premiers hommes ont cherché à maîtriser le feu pendant notre pré-histoire, l'homme moderne compte bien dompter le feu venu des étoiles. Aujourd'hui avec la fission nucléaire et demain avec la fusion, l'énergie nucléaire a et aura son rôle à jouer dans l'histoire de l'humanité.

1.1 Le contexte énergétique actuel

Durant ces dernières décennies, la qualité de vie dans les pays dits "développés" a considérablement augmenté (nourriture, information, production industrielle, médecine, informatique, nouvelles technologies) et avec elle, la quantité d'énergie consommée. Au mépris de certaines conséquences (appauvrissement des sols, changements climatiques, pollution, épuisement des ressources naturelles et extinctions d'espèces), peu connues ou peu prises au sérieux jusqu'à présent, cette course effrénée ne semble pas vouloir

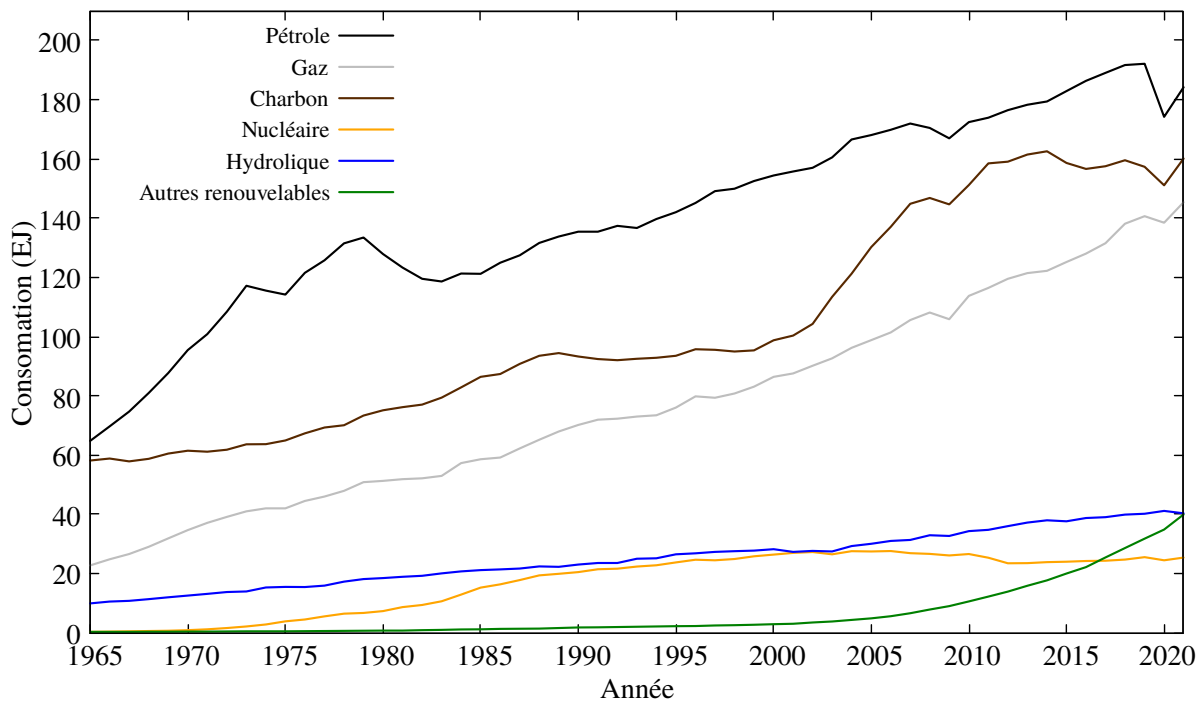


FIGURE 1.1 – Évolution de la consommation énergétique mondiale en EJ (ExaJoule), par source d'énergie, de 1965 jusqu'en 2021, [5].

s'arrêter. En outre, de plus en plus de pays "en développement" veulent légitimement augmenter leur niveau et qualité de vie. Ainsi, entre 1970 et 2010, la consommation énergétique mondiale a été multipliée par 2.5, toute source d'énergie confondue. Dans ce contexte, politiciens, scientifiques et plus globalement notre société, sont confrontés à un dilemme. D'une part, les besoins énergétiques de l'humanité croissent d'année en année et d'autre part, le réchauffement climatique et, de manière plus générale, les enjeux environnementaux, suscitent de plus en plus d'inquiétudes.

La Figure 1.1 illustre bien cette escalade des besoins énergétiques au niveau mondial. Elle montre la consommation énergétique totale dans le monde entre 1965 et 2021, pour différentes sources d'énergie. On remarque que les énergies fossiles (pétrole, charbon et gaz) sont largement prépondérantes par rapport aux autres sources d'énergie, notamment les énergies renouvelables. Pourtant, elles sont en partie responsables du réchauffement climatique. On désigne les ressources fossiles comme étant les réserves d'énergie que l'homme exploite et qui ne se régénèrent pas, ou si c'est le cas, sur une échelle de temps bien plus longue que celle de leur exploitation [6]. Pour le pétrole, le gaz ou le charbon, on parle d'un renouvellement à l'échelle géologique, soit plusieurs dizaines de millions d'années. Par exemple, les filons les plus anciens de charbon datent de près de 300 millions d'années [7]. Ces ressources sont issues de la décomposition lente de matières organiques et minérales, enfouies puis transformées par les aléas géologiques. L'exploitation et l'utilisation en masse de ces ressources fossiles datent de la révolution industrielle en Europe et débutent avec le charbon, à la deuxième moitié du XVIII^{ème} siècle. Aujourd'hui, soit

moins de 300 ans plus tard, les différentes études menées sur l'utilisation de ces ressources prévoient en moyenne leur épuisement d'ici un siècle. Par opposition aux énergies fossiles, on désigne par renouvelables les énergies qui se renouvellent sur la même échelle de temps que leur consommation. On ne parle pas de source inépuisable d'énergie (même le Soleil finira par s'éteindre d'ici quelques milliards d'années), mais plutôt d'un stock de ressources disponibles au-delà de la durée de la civilisation humaine [6]. Ces types d'énergie ont des origines diverses : le Soleil, le vent, la géothermie ou les courants marins et fluviaux. Bien que prometteuses, les différentes énergies renouvelables ne sont que peu exploitées à l'heure actuelle, car elles dépendent des conditions climatiques, géographiques et démographiques dans lesquelles elles sont utilisées. A titre d'exemple, l'Islande produit la quasi-totalité de son énergie via des canaux renouvelables (70% hydroélectrique et 30% géothermie) [8]. Il est cependant important de noter que la population Islandaise n'est que de 356 991 individus (en 2019) et que l'activité souterraine de l'île (volcanique notamment) est très favorable à l'exploitation de cette source d'énergie. Si l'on considère le cas de l'exploitation et la recherche sur l'énergie solaire par des panneaux photovoltaïques, qui nécessite beaucoup d'ensoleillement et/ou de grandes surfaces, les États-Unis d'Amérique et l'Espagne en sont les principaux acteurs. Dans le cas de l'énergie hydraulique, la chaîne des Alpes présente sur le territoire français offre la possibilité de construire de nombreux barrages hydroélectriques. Ainsi, la France compte environ 2300 installations hydroélectriques, qui contribuent à 10.1% de la production d'électricité sur le territoire [9]. À toutes ces considérations géographiques s'ajoute un argument économique. En effet, les technologies associées aux énergies renouvelables sont loin d'être aussi rentables que celles associées aux énergies fossiles (coût très élevé en R&D pour un rendement parfois faible. Dans le cas des panneaux solaires photovoltaïques par exemple, ce rendement est de l'ordre de 15% [10]). Paradoxalement, les installations productrices d'énergies renouvelables posent de vrais problèmes écologiques et peuvent être source de nuisances pour les populations locales. On peut citer l'exemple des panneaux solaires en fin de vie qu'on ne sait pas recycler à ce jour. On peut également citer le cas des barrages hydroélectriques qui modifient localement la biodiversité ou nécessitent le déplacement de population, (comme c'est le cas du projet du barrage des Trois-Gorges en Chine [11]) avec la création de lacs artificiels.

Parmi toutes ces sources d'énergie, quid du nucléaire ? Bien que répondant aux critères d'une énergie fossile (quantité disponible limitée sans pouvoir en renouveler le stock), l'origine du combustible nucléaire n'est pas terrestre et est bien plus ancienne que le charbon, le gaz, ou le pétrole. Le sujet est encore à l'étude, mais l'hypothèse privilégiée aujourd'hui de son origine est la suivante : les atomes comme l'Uranium, principal composant du combustible nucléaire, seraient fabriqués lors de collisions d'étoiles à neutrons. En effet, nous savons que l'Hydrogène et une partie de l'Hélium présents dans l'Univers ont été fabriqués pendant la genèse de celui-ci et que tous les éléments du tableau périodique jusqu'au Fer (hormis l'Hydrogène) sont fabriqués dans les étoiles. Au-delà du Fer, il faut des événements cosmiques cataclysmiques (explosion de supernovæ et fusion d'étoiles à neutron, entre autres) pour produire tous les autres éléments naturels, dont l'Uranium et le Thorium. En particulier, ces derniers sont étudiés et/ou utilisés comme combustible nucléaire et sont tous deux très abondants sur Terre.

Aujourd'hui, au rythme de la production et de la consommation actuelle, on estime que les réserves d'Uranium pourront durer environ 100 ans, soit 2 fois moins longtemps que les réserves d'énergie fossiles (charbon, gaz et pétrole), [12]. Cette estimation est basée sur une utilisation des réacteurs de 2^{ème} et 3^{ème} génération. Mais avec l'arrivée prochaine des réacteurs nucléaires de quatrième génération (Gen. IV) et notamment, l'utilisation des cycles surgénérateurs, on estime que les réserves de combustible nucléaire (Thorium, Uranium, Plutonium) seront utilisables sur des milliers d'années, auxquels s'ajoute également l'Uranium contenu dans l'eau de mer (environ 1 μg d'Uranium par litre d'eau) qui n'est pas exploité à ce jour. Avec ces perspectives, la transition énergétique pourrait s'effectuer sereinement. Enfin, l'énergie nucléaire peut être considérée comme une énergie "verte"¹, puisque les centrales nucléaires n'émettent pas de gaz à effet de serre. Bien entendu, il ne s'agit pas non plus d'une source d'énergie miracle et la gestion des déchets nucléaires, le rendement assez faible des centrales nucléaires actuelles, ainsi que tout le domaine de la sûreté nucléaire sont des enjeux majeurs, souvent controversés et perfectibles.

Cependant, malgré sa mauvaise réputation, l'énergie nucléaire pourrait être une alternative aux énergies fossiles, émettrices importantes de gaz à effet de serre, actuellement utilisées en majorité dans le monde. La société prend de plus en plus conscience des problématiques liées à l'environnement et une volonté de se libérer des énergies fossiles voit peu à peu le jour. A l'échelle internationale, cette prise de conscience "officielle" de la part des états concernant la lutte contre les changements climatiques ne s'est opérée que récemment. Il me semble pertinent d'en rappeler ci-après les principaux événements marquants :

- Création du Programme des Nations Unies pour l'environnement (UNEP), organe de l'Organisation des Nations Unies (ONU), lors du premier Sommet de la Terre en 1972, dont la mission est "d'offrir un leadership et d'encourager les partenariats dans la prise en charge de l'environnement en étant exemplaire, en informant et en permettant aux nations et aux peuples d'améliorer leur qualité de vie sans compromettre celle des générations futures" [13].
- Adoption de la Convention-cadre des Nations Unies sur les changements climatiques (CCNUCC), lors du Sommet de la Terre de 1992. Elle est la "première tentative, dans le cadre de l'ONU, de mieux cerner ce qu'est le réchauffement climatique et comment y remédier" [14]. En 2018, 197 pays l'ont ratifiée.
- Signature du Protocole de Kyoto, qui vient s'ajouter à la CCNUCC, en 1998. Avec cet accord, les pays industrialisés s'engagent à réduire leur émission de gaz à effet de serre de 5% [15, 16].
- Adoption de l'Accord de Paris lors de la Conférence de Paris de 2015 sur les changements climatiques (COP21). Cet accord "engage tous les pays du monde à réduire leurs émissions de gaz à effet de serre et à maintenir le réchauffement sous la barre des 2°C d'ici à 2100" [16].

N'étant pas émettrice de gaz à effet de serre, l'énergie nucléaire pourrait permettre

1. Une énergie propre, ou énergie verte, est une source d'énergie dont l'exploitation ne produit pas ou des quantités négligeables de polluants.

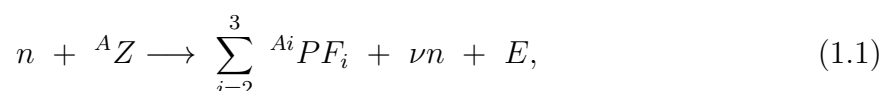
l'accomplissement de ces objectifs. Cependant, le parc nucléaire mondial est vieillissant et il faut développer de nouveaux réacteurs nucléaires. C'est donc au cœur de la stratégie du développement de l'énergie nucléaire qu'interviennent les réacteurs nucléaires de quatrième génération (GEN. IV).

1.2 Les réacteurs de Génération IV

Dans cette section, nous allons présenter le principe de fonctionnement d'un réacteur nucléaire. Après avoir décrit le phénomène de la fission nucléaire, nous définirons ce qu'est une filière de réacteur nucléaire et qu'elles sont celles qui sont utilisées ou à l'étude. Enfin, nous présenterons les différents cycles du combustible nucléaire, notamment les cycles dits *surgénérateurs* qui concernent en particulier les réacteurs Gen. IV.

1.2.1 La fission nucléaire

La production d'énergie dans un cœur de réacteur se base sur la réaction de fission nucléaire induite par neutron et décrite par l'équation 1.1.



avec $i = 2$ pour la fission binaire et $i = 3$ pour la fission ternaire. A gauche de cette équation, n désigne le neutron incident et AZ , le noyau cible. A droite de cette même équation, les ${}^{A_i}PF_i$ désignent les *Produit de Fission*, νn les neutrons de fission (ν désignant leur nombre) et E l'énergie libérée (sous forme d'énergie cinétique et de rayonnement). L'énergie libérée, environ 200 MeV/fission [17], lors de cette réaction est principalement présente sous forme d'énergie cinétique des neutrons et des produits de fission. Pour une réaction de fission, par exemple $n + {}^{235}\text{U}$, la nature des PF produits peut changer en fonction de l'énergie incidente des neutrons. La Figure 1.2 montre la répartition en termes de probabilité des produits de fission (on appelle généralement cette quantité un rendement de fission) émis lors d'une réaction de fission induite par un neutron incident de 14 MeV sur un noyau de ${}^{239}\text{Pu}$. Il s'agit dans ce cas de rendements de fission indépendants.

On remarque que ces produits peuvent être très différents d'une réaction de fission à une autre. À la suite de ce type de réaction nucléaire, des neutrons sont également émis. Leur nombre varie en fonction de la nature du noyau cible (2.498 en moyenne pour l' ${}^{233}\text{U}$, 2.439 pour l' ${}^{235}\text{U}$ et 2.874 pour le ${}^{239}\text{Pu}$ [17])². Ces neutrons secondaires peuvent induire à leur tour de nouvelles réactions de fission. Cet ensemble de réactions nucléaires successives est appelé réaction en chaîne. En moyenne, lors de la fission d'un noyau d' ${}^{235}\text{U}$, c'est donc 2 à 3 neutrons secondaires qui sont émis. Outre ces particules, une grande quantité d'énergie est libérée à chaque réaction de fission. La fission induite et la réaction en chaîne sont à la base du concept d'un réacteur nucléaire, quel que soit son type.

2. Données de l'évaluation JEF-2.2, ν_{total} pour une fission induite par un neutron thermique.

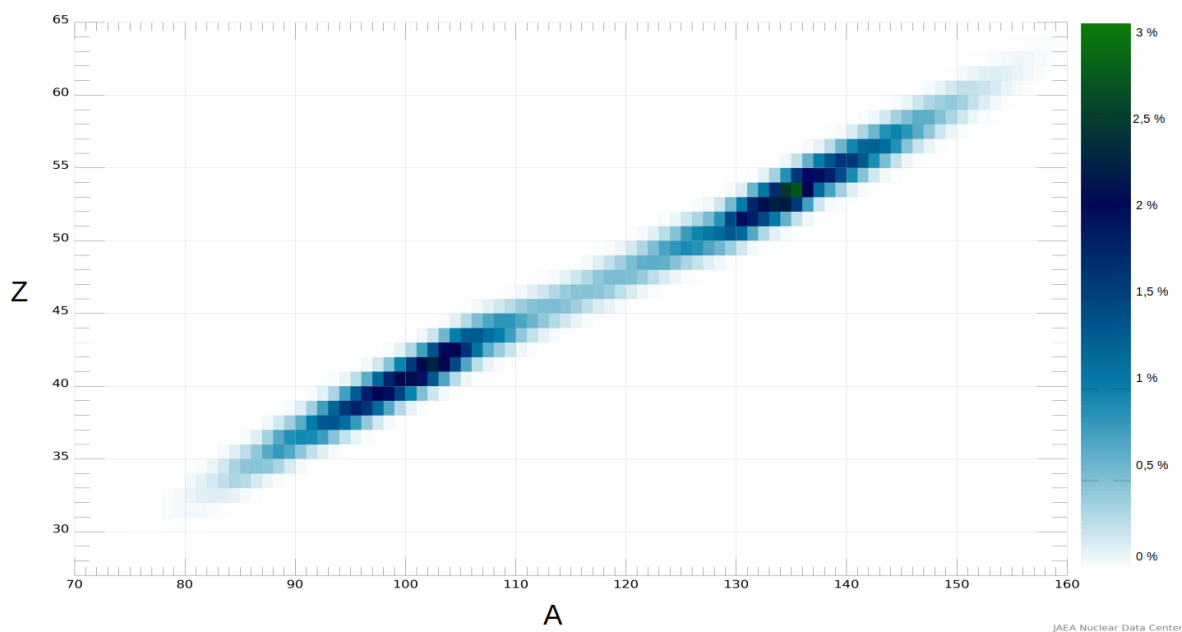


FIGURE 1.2 – Probabilité d'émission des produits de fission, pour une réaction de fission induite par neutron sur un noyau de ^{239}Pu pour une énergie incidente neutron $E_n = 14$ MeV, tracée en fonction de la masse A du PF et son numéro atomique Z pour la base données JENDL-4.0 [18].

Dans ce qui suit, le principe de fonctionnement d'un réacteur nucléaire de type REP sera présenté.

1.2.2 Fonctionnement d'un réacteur nucléaire de type REP

Aujourd'hui, la France (leader mondial dans la production d'énergie nucléaire), a fait le choix des réacteurs nucléaires de type REP (*Réacteurs à Eau Pressurisée*) pour son parc. Son principe de fonctionnement est le suivant : on retrouve dans le cœur du réacteur les assemblages combustibles, contenant notamment la matière fissile et le fluide caloporteur (dans le REP, de l'eau à 150 bar) circulant dans le circuit primaire. L'énergie libérée par les réactions de fission chauffe l'eau du circuit primaire et circule jusqu'au générateur de vapeur. Un échange de chaleur s'opère alors entre l'eau à 150 bar du circuit primaire et l'eau à 70 bar du circuit secondaire, tous deux indépendants. L'eau du circuit secondaire se transforme alors en vapeur et cette dernière actionne une turbine. Cette turbine, couplée à un générateur, transforme cette énergie thermique en énergie électrique. La partie "réacteur" d'une centrale nucléaire est illustrée par la Figure 1.3.

Le combustible est assemblé sous forme de "craçons", ordonnés en assemblages. Dans les réacteurs nucléaires du parc français, les combustibles utilisés sont les combustibles UOx (Uranium Oxide) et MOx (Mixed Plutonium/Uranium Oxides). Le premier est composé d'Uranium enrichi, fabriqué à partir d'Uranium naturel et le second est issu du recyclage du combustible UOx usé, mélangeant de l'Uranium appauvri et du Plutonium.

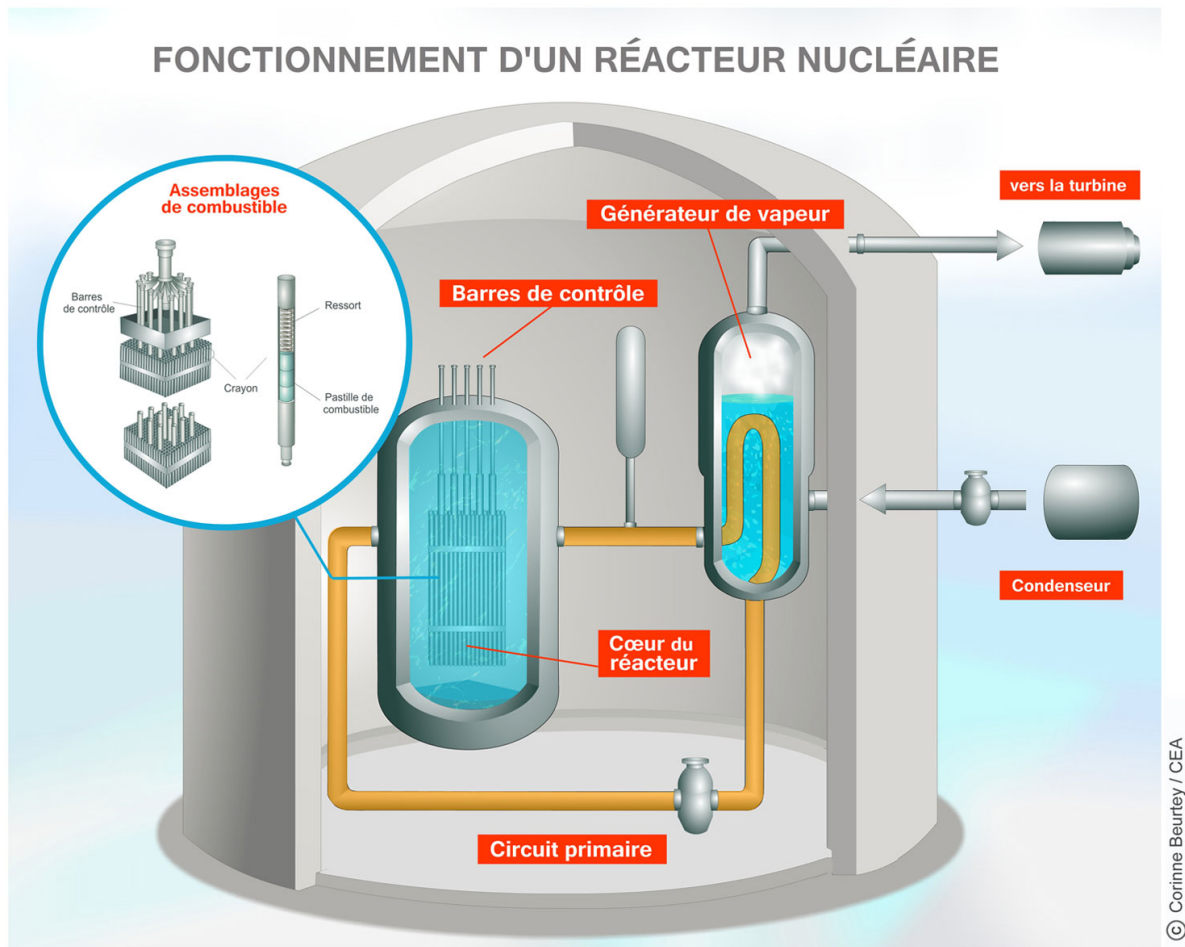


FIGURE 1.3 – Fonctionnement d'un réacteur nucléaire de type REP. Source CEA [19].

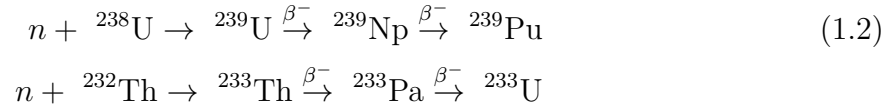
Les processus d'enrichissement de l'Uranium et de fabrication du MOx ne seront pas détaillés ici. Simplement, on rappelle les différentes compositions isotopiques de ces deux matériaux dans le tableau 1.1.

TABLEAU 1.1 – Composition isotopique de l'Uranium naturel et enrichi.

| Isotope | Propriété du noyau | Composition isotopique | |
|------------------|--------------------|------------------------|----------------------|
| | | Uranium naturel [20] | Uranium enrichi [21] |
| ^{234}U | Fertile | 0.0056 % | ~ 0.06 % |
| ^{235}U | Fissile | 0.71 % | [3, 5] % |
| ^{238}U | Fertile | 99.28 % | ~ 95 % |

Pour rappel, on appelle matière fissile un noyau (ou matière) pouvant subir la fission par absorption de neutrons, quelle que soit son énergie incidente [22]. A contrario, on parle de noyau (ou matière) fertile lorsque celui-ci ne fissionne qu'à partir d'une énergie

neutron seuil. On les appelle ainsi car ils sont souvent associés à la formation de matière fissile via capture radiative et décroissance β^- successives :



Pour le fonctionnement des réacteurs nucléaires français, la concentration d' ${}^{235}\text{U}$ dans le combustible doit être entre 3 et 5% (voir Tableau 1.1). On parle alors de combustible à Uranium enrichi à 3%, par exemple. Les neutrons interagissent avec le combustible et induisent la fission des noyaux d' ${}^{235}\text{U}$. Lors de cette réaction, une grande quantité d'énergie est libérée et des particules secondaires sont émises. Parmi ces particules, on retrouve les neutrons dits "de fission" qui contribuent à la réaction en chaîne. Chaque neutron peut, entre autre, induire une réaction de fission, qui va produire à son tour 2 à 3 neutrons. Le nombre de ces réactions croît alors très rapidement et la réaction en chaîne, si elle n'est pas contrôlée, peut s'emballer. L'équilibre (ou le déséquilibre) de cette réaction est régi par son facteur de multiplication k . Il s'agit du rapport entre la production et la perte (absorption, fuite, etc.) des neutrons lors de la réaction en chaîne. À l'équilibre, $k = 1$, ce qui signifie que pour une réaction de fission, un neutron secondaire seulement va induire une nouvelle fission. Cette configuration du réacteur, dite *critique*, est la configuration souhaitée lors du fonctionnement normal de celui-ci. Lorsque $k > 1$, une réaction de fission en induit plusieurs autres. Dans ce cas, le réacteur est dans une configuration dite *sur-critique*. Elle peut être utilisée pour augmenter de façon transitoire la puissance du réacteur, notamment pendant son démarrage. Il est important de noter que, dans cette configuration, le nombre de neutrons produits peut diverger très rapidement, pouvant entraîner un emballement de la réaction en chaîne. Enfin, lorsque $k < 1$, on diminue le nombre de réactions de fission dans le cœur du réacteur et se produit alors l'évanescence de la réaction en chaîne. Dans cette configuration, le réacteur est dit *sous-critique*. C'est notamment le cas lors de l'arrêt de celui-ci que cette configuration est recherchée. Ainsi, entre le démarrage et l'arrêt d'un réacteur, ce facteur de multiplication doit être surveillé et ajusté en fonction de la configuration recherchée. Dans les faits, ce n'est pas directement à ce paramètre qu'un opérateur aura accès mais à la variation de la réactivité du réacteur $\Delta\rho = (k - 1)/k$, exprimée en pcm (pour cent mille). Pour ce faire, des barres de contrôle sont utilisées (voir Figure 1.3). Ces barres amovibles, faites de matériaux pouvant facilement absorber les neutrons, sont plongées dans le cœur du réacteur afin de pouvoir ajuster en temps réel la réactivité du cœur. En faisant varier leurs profondeurs dans le cœur du réacteur, on absorbe plus ou moins les neutrons. Une fois la réaction en chaîne amorcée et contrôlée, l'énergie libérée lors de la fission nucléaire chauffe le fluide caloporteur (voir Figure 1.3).

Nous avons pris ici pour exemple un réacteur de type REP mais le principe de base de fonctionnement d'un réacteur nucléaire (actionner une turbine couplée à un générateur pour produire de l'énergie) reste le même pour d'autres filières. En effet, il existe différentes technologies, techniques, matériaux, caloporteurs, etc. qui peuvent être utilisés. C'est pourquoi, dans le cadre de la recherche liée aux réacteurs de 4^{ème} génération, plusieurs systèmes différents sont à l'étude.

1.2.3 Les différentes filières de Génération IV

Afin de coordonner les recherches autour du développement des réacteurs du futur, le GIF, *Generation IV International Forum*, a été créé en 2001. Cette organisation de coopération internationale, comporte 13 pays, dont la France, ainsi que l'Union Européenne, à travers Euratom et la Communauté Européenne de l'énergie atomique. Elle a pour but de "développer les recherches nécessaires pour tester la faisabilité et les performances des systèmes nucléaires de quatrième génération et à les rendre disponibles pour un déploiement industriel d'ici 2030", [23].

Parmi tous les concepts de réacteur qui ont été soumis au comité d'expert de ce forum, 6 systèmes ont été sélectionnés pour leur intérêt. Ainsi, les efforts de recherches et de développement coordonnés par le GIF sont axés sur ces concepts de réacteurs en particulier.

Ces 6 systèmes sont les suivants : *Very High Temperature Reactor - Réacteur à très haute température (VHTR)*, *Sodium-cooled Fast Reactor - Réacteur à neutrons rapides à caloporteur sodium (SFR)*, *SuperCritical Water-cooled Reactor - Réacteur à eau super-critique (SCWR)*, *Gas-cooled Fast Reactor - Réacteur nucléaire rapide à caloporteur gaz (GFR)*, *Lead-cooled Fast Reactor - Réacteur nucléaire rapide à caloporteur plomb (LFR)* et *Molten Salt Reactor - Réacteur à sel fondus (MSR)*. Le Tableau 1.2 dresse un récapitulatif des caractéristiques de ces différents concepts de réacteurs et les schémas de principe de fonctionnement de ces différents réacteurs sont présentés en Figure 1.4.

TABLEAU 1.2 – Tableau récapitulatif des différents réacteurs de Génération IV retenus par le GIF [23].

| Système | Spectre neutron | Liquide de refroidissement | Température en sortie (en °C) | Cycle combustible | Taille (en MWe) |
|---------|----------------------|------------------------------|-------------------------------|-------------------|--|
| VHTR | Thermique | Helium <i>He</i> | [900 - 1000] | Ouvert | [250 - 300] |
| SFR | Rapide | Sodium <i>Na</i> | [500 - 550] | Fermé | [50 - 150] [300 - 1500] [600 - 1500] |
| SCWR | Thermique/ Rapide | Eau <i>H₂O</i> | [510 - 625] | Ouvert/ Fermé | [300 - 700] [1000 - 15000] |
| GFR | Rapide | Helium <i>He</i> | 850 | Fermé | 1200 |
| LFR | Rapide | Plomb <i>Pb</i> | [480 - 570] | Fermé | [20 - 180] [300 - 1200] [600 - 1000] |
| MSR | Thermique /Rapide | Sels de Fluorure | [700 - 800] | Fermé | 1000 |

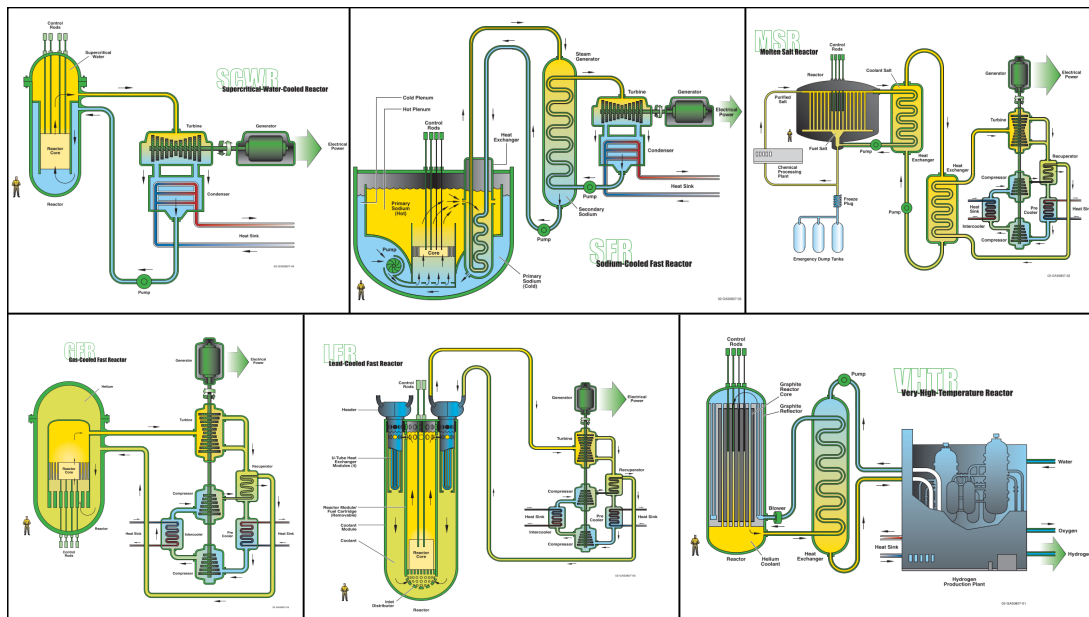


FIGURE 1.4 – Schémas de fonctionnement des 6 concepts de réacteurs sélectionnés par le GIF, [24].

Il semble important d'apporter quelques précisions au Tableau 1.2, notamment sur deux points en particulier : les spectres neutrons et les cycles combustibles.

D'une part, on distingue les spectres neutrons en fonction de l'énergie cinétique de ces derniers [17,25]. On parle de neutrons *thermiques* lorsque leur énergie cinétique est faible : $E_n \in [0.025, 0.4]$ eV. La conséquence de cette faible énergie cinétique est l'équilibre thermique entre ces neutrons et les noyaux que composent le milieu modérateur. A contrario, on parlera de neutrons *rapides* lorsque leur énergie sera plus grande : $E_n \in [0.2, 10]$ MeV. Notamment, les neutrons émis lors d'une réaction de fission ont une énergie cinétique de l'ordre du MeV. Ainsi, dans les systèmes à neutrons thermiques, il est nécessaire d'introduire des modérateurs pour ralentir les neutrons de fission et ainsi entretenir la réaction en chaîne. En revanche, dans les réacteurs à neutrons rapides, les neutrons de fission ont déjà la bonne énergie pour le fonctionnement du réacteur et n'ont donc pas besoin d'être ralentis. Ainsi, si l'on prend l'exemple de la version *rapide* du SCWR, aucun matériau modérateur n'est ajouté pour ralentir les neutrons [24].

D'autre part, on différencie les cycles combustibles *ouverts* des cycles *fermés*. Contrairement au cycle *ouvert*, le cycle *fermé* permet la revalorisation du combustible usagé. Il consiste à extraire l'Uranium et le Plutonium du combustible utilisé pour être recyclés dans de nouveaux assemblages de combustible. Il permet aussi la transmutation des déchets, qu'il s'agisse des produits de fission ou des actinides mineurs, produisant ainsi de nouveaux noyaux à durée de vie plus courte et réduire ainsi l'impact des déchets nucléaires sur le long terme. Enfin, les produits de fission et les actinides mineurs qui n'ont pas pu être transmutés, considérés comme des déchets ultimes, sont vitrifiés et stockés [26].

L'un des cas particuliers du cycle dit "fermé" est le cycle surgénérateur, notamment

utilisé dans les réacteurs à sels fondus (MSR) ou les réacteurs à spectre neutron rapide.

1.2.4 Les cycles surgénérateurs

L'intérêt des cycles surgénérateurs réside dans la conversion de matériaux fertiles en matériaux fissiles dans le cœur du réacteur. En théorie, l'ensemble du Thorium et de l'Uranium naturel peut être utilisé pour la production d'énergie. Ainsi, dans l'optique d'un développement des réacteurs nucléaires de prochaine génération, il paraît intéressant de trouver un combustible qui tirerait partie des noyaux fertiles.

En effet, on peut noter que les isotopes suivants, le ^{232}Th et l' ^{238}U , sont tous deux très abondants sur Terre, mais sont des noyaux fertiles. En revanche, l' ^{233}U et le ^{239}Pu , des noyaux artificiels obtenus par capture neutronique, suivie de décroissances β^- , sur le ^{232}Th et l' ^{238}U , sont fissiles (voir eq. (1.2)).

Enfin, dans le cas des réacteurs à neutrons rapides, la section efficace de capture neutronique de ces noyaux fertiles $\sigma(n, \gamma)_{fertile}$ ainsi que la section efficace de fission des noyaux fissiles $\sigma(n, f)_{fissile}$ sont favorables dans cette gamme d'énergie pour ces deux cycles. Pour s'en convaincre, on peut tracer la concentration en matériaux fissiles dans le combustible C en fonction de l'énergie neutron, définie comme suit dans [27] :

$$C = \frac{N_{fissile}}{N_{fertile} + N_{fissile}} = \frac{\sigma(n, \gamma)_{fertile}}{\sigma(n, \gamma)_{fertile} + \sigma(n, \gamma)_{fissile} + \sigma(n, f)_{fissile}}, \quad (1.3)$$

où $N_{fissile}$ (resp. $N_{fertile}$) désigne le nombre de noyaux fissiles (resp. fertiles) dans le combustible. Si on trace cette quantité pour les deux cycles Th-U et U-Pu en fonction de l'énergie incidente des neutrons, on obtient la Figure 1.5. Sur cette Figure, $C_{Th/U}$ est tracée en trait plein et $C_{U/Pu}$ est tracé en trait pointillé. On trace également en bleu (resp. en rouge) l'allure du spectre neutron thermique (resp. rapide).

Il est donc possible de simultanément convertir les noyaux fertiles et produire de l'énergie par réaction de fission dans le réacteur. On remarque que la situation la plus favorable pour les deux cycles est bien la zone en énergie des neutrons rapides. Dans le cas du cycle Th-U, la capture et la fission sont également assez favorables pour un spectre de neutrons thermiques. Il peut donc être utilisé dans deux configurations de réacteurs. Finalement, on peut utiliser la quasi-totalité du combustible nucléaire disponible dans le cœur du réacteur, ce qui augmente considérablement la disponibilité de ces ressources et résout le problème de l'épuisement à court terme des ressources naturelles. On parle alors des cycles surgénérateurs *Thorium-Uranium* et *Uranium-Plutonium*.

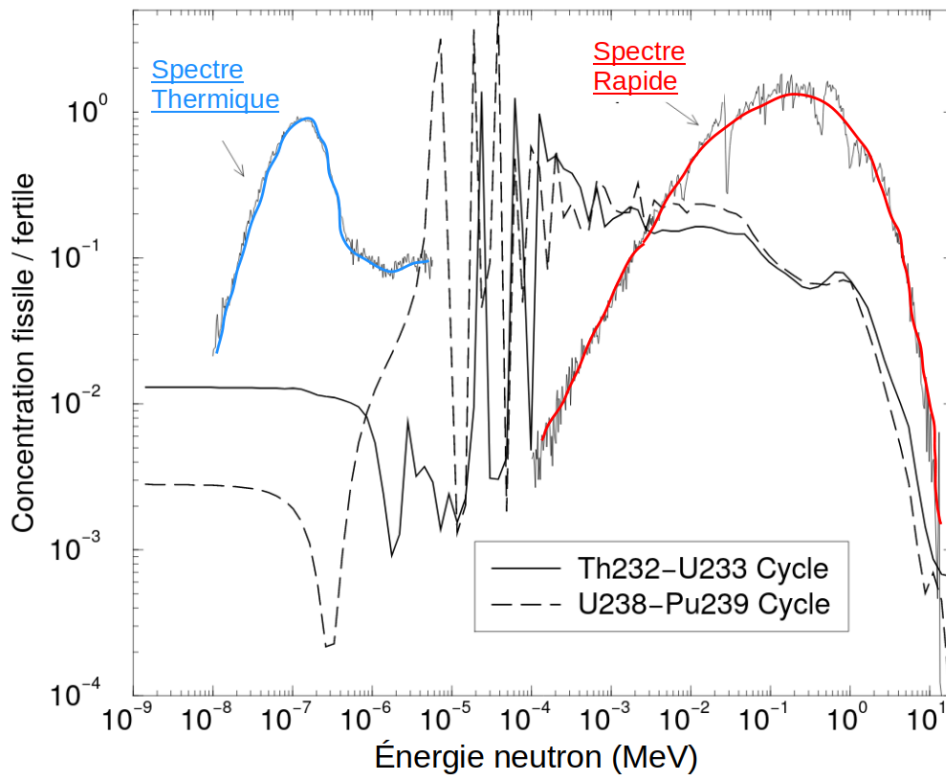


FIGURE 1.5 – Concentration C pour les cycles Th-U (en trait plein) et U-Pu (trait pointillé) en fonction de l'énergie du neutron incident. Les courbes bleues et rouges correspondent aux profils des spectres neutrons thermique et rapide. Figure reprise de [27].

1.3 Les bases de Données Nucléaires

Afin d'étudier ces réacteurs de 4^{ème} génération, des simulations neutroniques dépendant des données nucléaires sont réalisées. Ces calculs ont pour paramètres d'entrée des données nucléaires, réparties dans différentes bases de données. Avant toute chose, il paraît important de débiter cette section en distinguant deux types de base de données : les bases de données expérimentales, comme EXFOR [28] et les bases de données évaluées, comme JEFF [29], ENDF [30], ou encore JENDL [31]. Ces deux types de bases de données sont composées de données nucléaires, les plus précises possible, issues de mesures expérimentales et de résultats de calculs. Elles sont optimisées pour, d'une part utiliser au mieux les connaissances les plus récentes et d'autre part, être exploitables numériquement. Elles sont construites par l'ensemble de la communauté scientifique et régulièrement alimentées des derniers résultats disponibles, qu'ils soient expérimentaux ou théoriques.

1.3.1 La base de données expérimentales EXFOR

L'idée d'une base de données nucléaires expérimentales internationale unique a vu le jour en 1967, [32]. A cette époque, il existe 4 grands centres de données :

- le centre Étasunien et Canadien, situé au Brookhaven National Laboratory à New-

- York ;
- le centre Européen occidental et Japonais, situé au Nuclear Energy Agency (NEA) Databank à Paris ;
 - le centre Asiatique, Européen oriental, Latino-Américain, Africain, Australien et Océanique, situé à l'International Atomic Energy Agency, à Vienne ;
 - le centre Soviétique, situé à l'Institute of Physics and Power Engineering (IPPE), à Obninsk.

Chaque centre de données utilisait sa propre nomenclature et les échanges entre ces différents centres étaient difficiles. La volonté de mettre en commun toutes ces ressources a été initiée par l'IAEA-NDS (International Atomic Energy Agency - Nuclear Data Section) qui organise, en 1966, la première rencontre annuelle des acteurs de ces 4 grands centres. Rapidement, il est discuté de la problématique liée aux différents formats utilisés selon les centres et les pays. Un format commun est alors proposé afin de faciliter les échanges des données. Un consensus est trouvé en 1969, où chaque centre adopterait un format d'échange, appelé *EXFOR - EXchange FORmat*. Il faudra attendre encore un an, en 1970, pour sa mise en place effective. 50 ans plus tard, EXFOR est l'une des plus grande base de données nucléaires expérimentales internationale. C'est elle qui a été la plus utilisée dans ce travail. Elle contient des données numériques et leurs références bibliographiques d'environ 24480 expériences de physique nucléaire, s'échelonnant de 1942 (plus ancienne donnée d'EXFOR) à nos jours. De plus, avec l'avènement d'Internet, EXFOR a également évolué en une plate-forme numérique, regroupant toutes ces données. L'ensemble des quantités de physique nucléaire compilées dans EXFOR, pour des réactions induites par neutron, proton, particule α et photon est référencée dans [28].

Ces données expérimentales sont essentielles pour contraindre les résultats des calculs théoriques. En effet, ces derniers se basent sur des modèles qui, par nature, sont limités dans la description des phénomènes de physique nucléaire. En effet, les noyaux tels que l'Uranium ou le Thorium souffrent de la non-résolution du problème à N-corps et les décrire de manière exacte (structure nucléaire, densité de niveaux, etc...) représente un véritable défi. C'est pourquoi les données expérimentales sont si importantes. Elles sont utilisées, en complément des codes de calculs de réactions nucléaires, afin de produire des données évaluées et a fortiori, des bases de données évaluées.

1.3.2 Les bases de données évaluées

Pour rappel, l'ensemble des observables de physique nécessaires à la description de l'évolution des neutrons dans la matière constituent les données nucléaires. Une donnée nucléaire évaluée est la meilleure prédiction possible d'une grandeur ou observable physique (une section efficace de réaction, un rendement en masse, un nombre de neutrons émis par réaction de fission, un spectre), construite à partir, de résultats expérimentaux d'une part et de prédictions théoriques d'autre part [33]. Ces données évaluées sont utilisées comme paramètres d'entrée des codes de simulation neutroniques des cœurs de réacteurs nucléaires.

Les bases de données qui les regroupent sont également construites par la communauté

scientifique et notamment, par les évaluateurs. Si, de manière générale, on distingue les physiciens expérimentateurs des physiciens théoriciens, les évaluateurs constituent le pont entre ces deux communautés. Le travail d'évaluation des données, les étapes qui le compose et outils développés pour le mener à bien seront présentés dans le chapitre 5.

Reflétant la diversité des codes de réaction nucléaire qui existe, il existe plusieurs bases de données évaluées. Il est important de mentionner que chacune d'entre elles est mise à jour régulièrement et que plusieurs versions de ces bases de données existent (et co-existent). Si l'on prend l'exemple de la base de données Étasunienne ENDF/B (Evaluated Nuclear Data File), sa dernière version, ENDF/B-VIII.0 date de 2018, mais ses versions antérieures sont toujours disponibles. Le Tableau 1.3 liste l'ensemble des bases données évaluées qui ont été utilisées dans ce travail. Elles sont accessibles, entre autres, depuis la plateforme NNDC (National Nuclear Data Center), basée au *Brookhaven National Laboratory*, qui collecte et donne accès à un grand nombre d'informations concernant les données nucléaires et en particulier, regroupe les informations connues des noyaux atomiques qui composent la carte des nucléides (structure, décroissance, schémas de niveau, etc...).

TABLEAU 1.3 – Les dernières versions des bases de données évaluées disponibles utilisées dans ce travail depuis NNDC [34].

| Base de données évaluées | Zone géographique | Date de lancement |
|--------------------------|-----------------------|-------------------|
| ENDF/B-VIII.0 | États-Unis d'Amérique | 2018 |
| JEFF-3.3 | Europe | 2017 |
| JENDL-4.0u+ | Japon | 2016 |
| CENDL-3.1 | Chine | 2009 |
| ROSFOND | Russie | 2010 |

Bien qu'il puisse exister des similitudes entre ces bases de données évaluées, elles peuvent présenter des différences. Pour illustrer ce dernier point, la Figure 1.6 compare les dernières évaluations disponibles depuis la plateforme NNDC de la diffusion inélastique du neutron sur le noyau d' ^{233}U . On peut remarquer qu'il y a une grande différence entre ces évaluations, que ce soit dans la forme des courbes ou dans leurs amplitudes. On remarque également que l'évaluation de la base de données JENDL-4.0 est tracée en ligne pointillée car elle est identique à l'évaluation de la base de données évaluées ENDF/B-VIII.0.

À ces 5 bases de données évaluées mentionnées auparavant vient s'ajouter une sixième plus récente, TENDL (Talys-based Evaluated Nuclear Data Library) [35]. Elle s'appuie sur les résultats de calculs du code de réaction nucléaire TALYS (voir chapitre 4).

1.3.3 Amélioration des bases de données nucléaires

Comme mentionné précédemment, les données nucléaires évaluées sont utilisées comme paramètres d'entrée pour les codes de simulation neutroniques des cœurs de réacteurs. Aussi, dans le cadre du développement des réacteurs nucléaires de 4^{ème} génération, des données évaluées précises sont requises, dépendant des besoins. En effet, comme nous

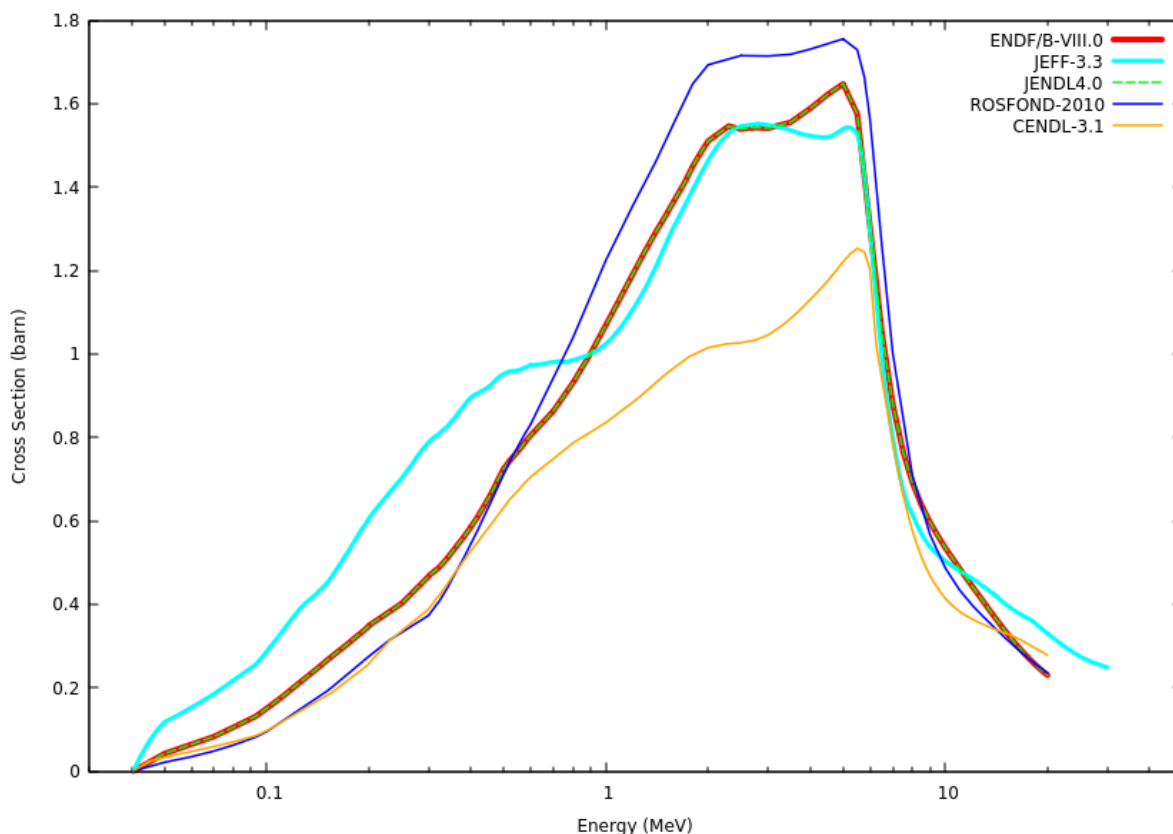


FIGURE 1.6 – Comparaison des dernières évaluations de la diffusion inélastique du neutron sur le noyau d' ^{233}U disponibles sur NNDC [34].

avons pu le voir ci-avant, de grandes différences peuvent exister entre plusieurs données évaluées pour une même observable. Or, le développement de ces réacteurs et de manière plus générale, les simulations, ne devraient pas dépendre d'une base de données en particulier. Au-delà de la recherche fondamentale, un cahier des charges très strict doit être respecté lors de la conception de ces réacteurs et les simulations requièrent un maximum de précision. Afin d'identifier et de définir les besoins en données nucléaires, la communauté scientifique, en partenariat avec les partenaires industriels, a créé le WPEC (Working Party on International Nuclear Data Evaluation Cooperation) au sein de la NEA (Nuclear Energy Agency) [36]. Différents sous-groupe du WPEC ont été créés afin de pouvoir répondre à ces besoins [37]. Parmi eux, on retrouve le *Sous-groupe C - Priority request list* qui a été chargé de créer et de maintenir à jour la HPRL (High Priority Request List) [38–40]. Cette liste, mise à jour régulièrement en fonction des besoins qui évoluent, a pour rôle de guider les recherches en matière de production de données évaluées, que ce soit en termes d'expérience, ou bien de théorie. Chaque entrée de cette liste est répartie selon son importance : les requêtes hautement prioritaires, les requêtes générales et les requêtes spécifiques. Il y a, à ce jour, 110 requêtes identifiées dans la HPRL, pour des noyaux très divers : $Z \in [1, 96]$, $A \in [1, 244]$, ainsi que pour tout type de réaction induite par neutron, (n, n) , (n, n') , (n, f) , (n, γ) , etc. ou observables de physique (rendement en

TABLEAU 1.4 – Tableau récapitulatif des besoins en termes d’incertitudes de l’évaluation de la section efficace de diffusion inélastique de neutrons sur le noyau d’ ^{238}U , en fonction des types de réacteurs nucléaires étudiés [42–48]. (ABTR : Advanced Breeder Test Reactor, & EFR : European Fast Reactor).

| Gamme en énergie neutron (MeV) | Incertitudes initiales et requises (%) [41] | | | | | |
|--------------------------------|---|------|-----|-----|-----|-----|
| | Initiale | ABTR | SFR | EFR | GFR | LFR |
| [6.07, 19.6] | 29 | 12 | | | 7 | |
| [2.23, 6.07] | 20 | 3 | 5 | 4 | 2 | 3 |
| [1.35, 2.23] | 21 | 4 | 5 | 4 | 2 | 2 |
| [0.498, 135] | 12 | 7 | 6 | 5 | 2 | 2 |
| [0.067, 0.183] | 11 | 7 | | 9 | 7 | 4 |

masse par exemple).

Dans le cadre de cette thèse, une partie du travail de recherche est consacrée à l’une des requêtes formulée par le *Sous-groupe 26 - Uncertainty and Target Accuracy Assessment for Innovative Systems Using Recent Covariance Data Evaluations*, dont la mission est d’estimer les besoins en termes de précision et d’incertitudes liées aux données nucléaires pour les réacteurs innovants. Leur rapport [41] désigne notamment la section efficace de diffusion inélastique de neutrons sur le noyau d’ ^{238}U . Le Tableau 1.4 fait état de l’incertitude actuelle de cette donnée et la compare aux incertitudes requises selon le type de concept de réacteur étudié.

Ainsi, pour cette section efficace, on remarque que les incertitudes attendues sont inférieures, voire très inférieures dans certains cas, à celles existantes actuellement. Pour répondre à ces besoins, plusieurs voies d’amélioration sont possibles : réaliser des expériences avec des résultats plus précis ou bien travailler sur les codes de réactions nucléaires et les modèles qui y sont implémentés afin de mieux refléter par le calcul la réalité physique.

1.4 Les réactions induites par neutrons sur les actinides de très haute activité

Comme nous l’avons vu dans la section précédente, certains noyaux ou réactions souffrent d’un manque de données évaluées précises. Dans le cas des noyaux d’intérêt que nous étudions expérimentalement dans ce travail de thèse, l’ ^{233}U et le ^{239}Pu , les origines de ces manques de données sont diverses. Pour illustrer ce propos, la Figure 1.7 compare les sections efficaces de réactions (n, n') et $(n, 2n)$ pour l’ ^{233}U et le ^{239}Pu , contenues dans les bases de données ENDF/B-VIII et JEFF-3.3. On trace également sur cette figure, lorsqu’elles sont disponibles, les différentes données expérimentales.

On peut alors remarquer que, pour ces deux noyaux, les deux évaluations présentent des différences pour chacune de ces réactions, conséquence du manque de données expérimentales disponibles pour ces noyaux et pour ces réactions. Si l’on considère la réaction

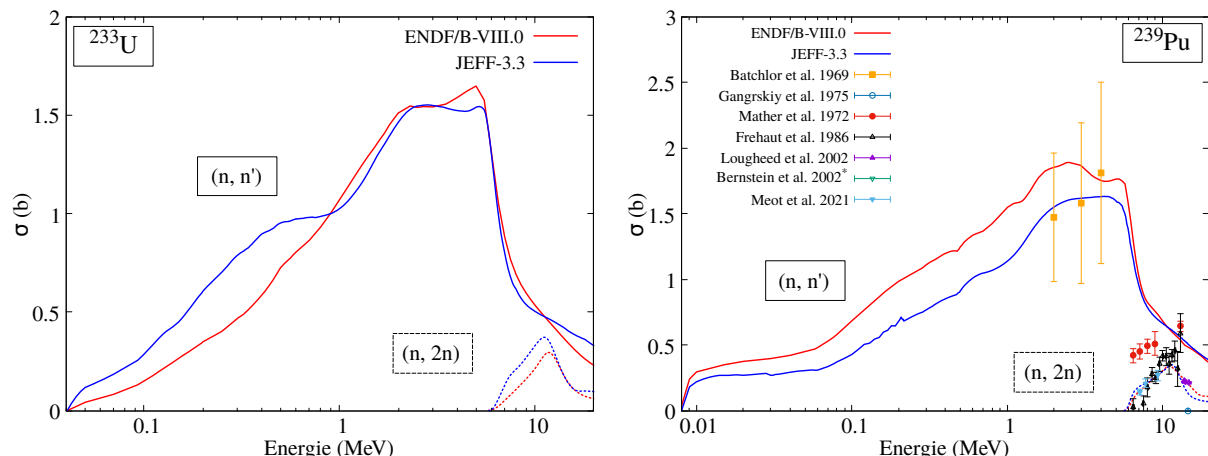


FIGURE 1.7 – Comparaison entre les évaluations ENDF/B-VIII.0, JEFF-3.3 et les données expérimentales existantes pour les sections efficaces de réactions (n, n') et $(n, 2n)$ pour l' ^{233}U (à gauche) et le ^{239}Pu (à droite) pour une énergie neutron comprise entre l'énergie du premier état excité du noyau considéré et 20 MeV.

$^{239}\text{Pu}(n, 2n)^{238}\text{Pu}$, pour laquelle les deux bases de données sont le plus en accord, on peut noter qu'il existe plusieurs lots de données expérimentales pour celle-ci. Quatre campagnes de mesures ont été réalisées entre 1972 et 2002 ce qui permet de bien contraindre les modèles et ainsi permettre de réaliser des évaluations plus précises. En revanche, il n'existe aucune donnée expérimentale pour les réactions (n, n') et $(n, 2n)$ pour le noyau d' ^{233}U et seulement une seule campagne de mesure pour la diffusion inélastique sur le noyau de ^{239}Pu , datant de 1972, avec une grande incertitude sur ses valeurs.

Ce manque de données nucléaires précises est lié, entre autres, à la difficulté de réaliser ce type d'expérience. Tout d'abord, d'un point de vue radiologique, ces deux noyaux sont très radioactifs. En effet, leur activité massique est très élevée : $A_m^{233\text{U}} = 3.57 \times 10^8 \text{ Bq.g}^{-1}$ et $A_m^{239\text{Pu}} = 2.30 \times 10^9 \text{ Bq.g}^{-1}$. En terme de radioprotection, les campagnes de mesures liées à ces noyaux peuvent poser beaucoup de problèmes et nécessitent des installations spécifiques (blindage) et/ou des procédures expérimentales particulières (fabrication et manipulation des cibles).

Par ailleurs, la fabrication de ces cibles représente une véritable prouesse technique. Le niveau de pureté attendu, ainsi que la quantité de matière nécessaire pour pouvoir mener à bien les campagnes de mesure sont parfois très contraignantes. Nous mentionnerons en particulier le processus de fabrication des cibles d' ^{233}U et de ^{239}Pu utilisées pour ce travail de thèse dans le chapitre 3 et dans l'annexe A.

De plus, les mesures liées aux réactions induites par neutrons sont, par nature, difficiles à réaliser puisque les neutrons n'interagissent pas électromagnétiquement. Ils ne sont donc pas sujets à l'interaction coulombienne. La seule interaction qu'ils subissent est l'interaction forte qui possède une portée très faible, de l'ordre de $\sim 10^{-15} \text{ m}$ [49]. Afin de pouvoir détecter les neutrons émis à la suite de ce type de réaction nucléaire, différents types de détecteurs peuvent être utilisés, dépendant de l'énergie de ces neutrons. Pour les neutrons rapides, dont l'énergie est de l'ordre du MeV, on utilisera généralement des

scintillateurs organiques. En effet, un neutron se propageant dans un milieu fortement hydrogéné peut interagir par diffusion élastique n-p sur les protons formant les noyaux de l'Hydrogène. Avec cette énergie cinétique acquise, les protons sont diffusés et ionisent le milieu [50]. Les excitations et désexcitations qui en découlent, émises sous forme de rayonnement γ , sont captées et associées à des événements neutrons. Pour des neutrons plus lents, comme les neutrons thermiques, dont l'énergie est de l'ordre de la dizaine de meV, on favorisera les détecteurs mettant à profit les réactions de capture neutronique (n, γ) ou (n, α) . Ces scintillateurs seront généralement composés d' ^3He , de ^6Li ou de ^{10}B , dont la section efficace de capture est très importante [49]. Il faut cependant noter ici que tous ces détecteurs se basent sur un principe de détection indirecte des neutrons.

Ensuite, bien que certains types de détecteurs de neutrons soient efficaces, un dernier obstacle vient s'ajouter à ceux cités précédemment, la nature fissile de ces noyaux. Pour rappel, un noyau est dit fissile lorsque la réaction de fission induite par neutron n'a pas de seuil en énergie. Autrement dit, la fission induite de ces noyaux est possible, quelle que soit l'énergie du neutron incident. Or, comme le montre la Figure 1.8, la section efficace de réaction de fission (n, f) pour les noyaux d' ^{233}U et de ^{239}Pu est toujours supérieure à celle de diffusion inélastique ou celle de réaction $(n, 2n)$.

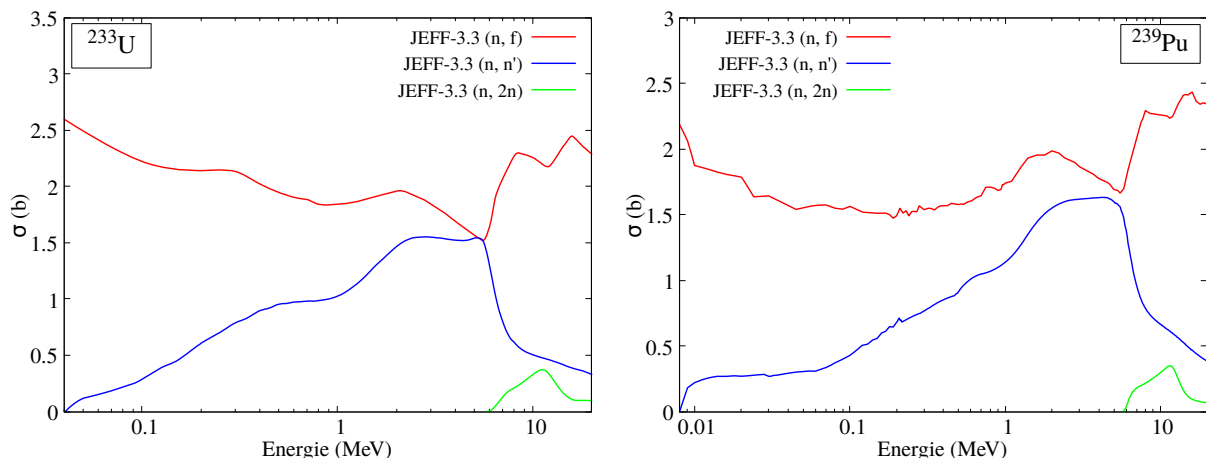


FIGURE 1.8 – Comparaison des sections efficaces de réaction (n, f) , (n, n') et $(n, 2n)$ pour l' ^{233}U (à gauche) et le ^{239}Pu (à droite), pour une énergie neutron comprise entre l'énergie du premier état excité du noyau considéré et 20 MeV. Données de JEFF-3.3.

La conséquence directe de cette section efficace de fission élevée est l'émission de neutrons de fission émis sur un large spectre en énergie suite à cette réaction. Il est alors difficile de discriminer les neutrons de fission d'une part et les neutrons provenant des réactions (n, xn) d'autre part.

Enfin, le manque de précision de ces différentes évaluations ne trouve pas seulement son origine dans les contraintes expérimentales. Le manque de connaissance lié à la structure nucléaire de ces noyaux et la limitation des modèles utilisés dans les codes de réaction nucléaire pour les décrire jouent également un rôle important dans ce manque de données nucléaires précises.

Après cette partie introductive, nous allons nous intéresser dans ce qui suit à l'étude expérimentale des réactions induites par neutrons (n, xn). Le but de ce chapitre sera de présenter le dispositif expérimental GRAPhEME utilisé pour les mesures de sections efficaces de réaction ($n, xn\gamma$).

Les réactions (n, xn)

Sommaire

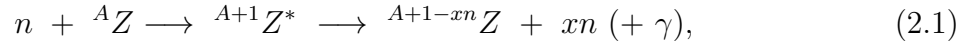
| | | |
|------------|---|-----------|
| 2.1 | Rôle des réactions (n, xn) dans le cycle électronucléaire | 26 |
| 2.2 | Les méthodes expérimentales liées aux mesures de section efficace de réactions (n, xn) | 28 |
| 2.2.1 | Mesures directes et indirectes | 28 |
| 2.2.2 | La spectroscopie γ -prompte | 29 |
| 2.2.3 | Le temps de vol | 30 |
| 2.3 | GRAPhEME auprès de GELINA | 31 |
| 2.3.1 | GELINA | 32 |
| 2.3.2 | GRAPhEME | 33 |
| 2.3.3 | Méthodologie expérimentale | 40 |
| 2.4 | Resimulateur | 50 |
| 2.4.1 | Configuration | 51 |
| 2.4.2 | Convergence | 52 |
| 2.4.3 | Validation du code | 53 |
| 2.5 | Conclusion | 54 |

Nous l'avons vu dans le chapitre 1, le développement des réacteurs nucléaires nécessite, entre autres, des simulations neutroniques précises de leur cœur. Pour pouvoir mener celles-ci à bien, il nous faut connaître le plus précisément possible l'ensemble des paramètres et variables, notamment les données nucléaires, utilisés lors de ces simulations, mais aussi la composition du combustible ou la géométrie du cœur. Cela implique donc de décrire, avec un maximum de précision, les phénomènes physiques qui interviennent dans le cœur et qui influent sur la population neutronique. Les principales réactions se produisant dans le cœur sont les suivantes :

- la fission nucléaire induite par neutron (n, f). Ces réactions sont responsables de la production d'énergie, ainsi que de l'entretien de la réaction en chaîne, produisant des neutrons de fission (2 à 3 neutrons en moyenne pour la fission de l' ^{235}U) ;
- la capture radiative (n, γ). Contrairement aux réactions de fission, les captures neutroniques font diminuer le nombre de neutrons dans le cœur ;
- l'émission de particules chargées légères (n, pcl). Le neutron est capturé par un noyau, qui se désexcite en émettant une particule chargée (proton, deuton, triton ou alpha). Tout comme la capture radiative, ce type de réaction fait diminuer le nombre de neutrons dans le cœur ;

- la diffusion élastique (n, n) : Neutre en termes de population neutronique, ces réactions ralentissent néanmoins les neutrons dans certains cas particulier. En effet, la diffusion élastique des neutrons sur les matériaux légers du cœur du réacteur a un fort impact sur leur ralentissement. Comme mentionné dans le chapitre 1, il s'agit du principe de modération du cœur du réacteur.

Une cinquième famille de réactions vient s'ajouter à cette liste, les réactions (n, xn), dont la formule générale est explicitée dans l'équation 2.1.



où x est un entier ≥ 1 . Si $x = 1$, on parle alors de diffusion inélastique (n, n'). Dans ce cas, cette réaction est neutre vis-à-vis de la population neutronique. En revanche, si $x > 1$, ce type de réaction participe également au bilan neutronique. Un autre aspect est à prendre en compte lorsque l'on parle d'économie des neutrons : les effets de spectres. En effet, les sections efficaces et le flux neutronique dépendent tous deux de l'énergie incidente des neutrons. Aussi, dans un réacteur de type REP à neutrons thermiques, un neutron thermique a plus de poids qu'un neutron rapide [51].

Ces réactions (n, xn) participent donc à l'évolution de la population neutronique que ce soit par rapport au nombre de neutrons ou à leur distribution en énergie. Pour la gamme en énergie neutron d'un réacteur à spectre thermique ou rapide, on s'intéressera principalement aux réactions (n, n') et (n, 2n).

2.1 Rôle des réactions (n, xn) dans le cycle électro-nucléaire

Contrairement aux diffusions élastiques, dans le cas d'une interaction avec un noyau lourd (typiquement un actinide), les neutrons qui interagissent de manière inélastique avec un noyau cèdent une partie de leur énergie à celui-ci sous forme d'énergie d'excitation. Si cette énergie cédée est inférieure à l'énergie de séparation de neutron S_n du noyau, la seule voie possible de désexcitation du noyau est l'émission de rayonnement γ . Il s'agit d'une diffusion inélastique (n, n'), aboutissant au ralentissement du neutron incident, illustré sur la Figure 2.1. Pour différents états d'excitations d'un noyau (d' ${}^{233}\text{U}$ par exemple), le rapport des énergies incidentes et finales d'un neutron avant et après une diffusion inélastique $\frac{E_f}{E_i}$, en fonction de son énergie incidente est obtenu grâce aux équations de cinématique non relativiste suivantes [17] :

$$\begin{cases} \left. \frac{E_f}{E_i} \right|_{elas} = \frac{A^2+1+2A \cos(\theta_{elas}^{CM})}{(A+1)^2}, \\ \left. \frac{E_f}{E_i} \right|_{inel} = \frac{\gamma^2+1+2\gamma \cos(\theta_{inel}^{CM})}{(A+1)^2}, \quad \gamma = A\sqrt{1 - \frac{(A+1)}{A} \cdot \frac{Q_{inel}}{E_i}}, \end{cases} \quad (2.2)$$

où A est ici le rapport $M_{AZ}/(M_{AZ} + M_n)$, exprimé en unité de masse atomique. La masse du neutron étant ~ 1 , A est proche de la masse du noyau cible. $\cos(\theta_{elas/inel}^{CM})$ est le cosinus de l'angle auquel le neutron est diffusé dans le référentiel du centre de masse, et

Q_{inel} est l'énergie d'excitation cédée au noyau. Enfin, A étant grand (233 dans notre cas), les termes non quadratiques peuvent être négligés et on peut alors tracer le rapport $\frac{E_f}{E_i}$ sur la Figure 2.1.

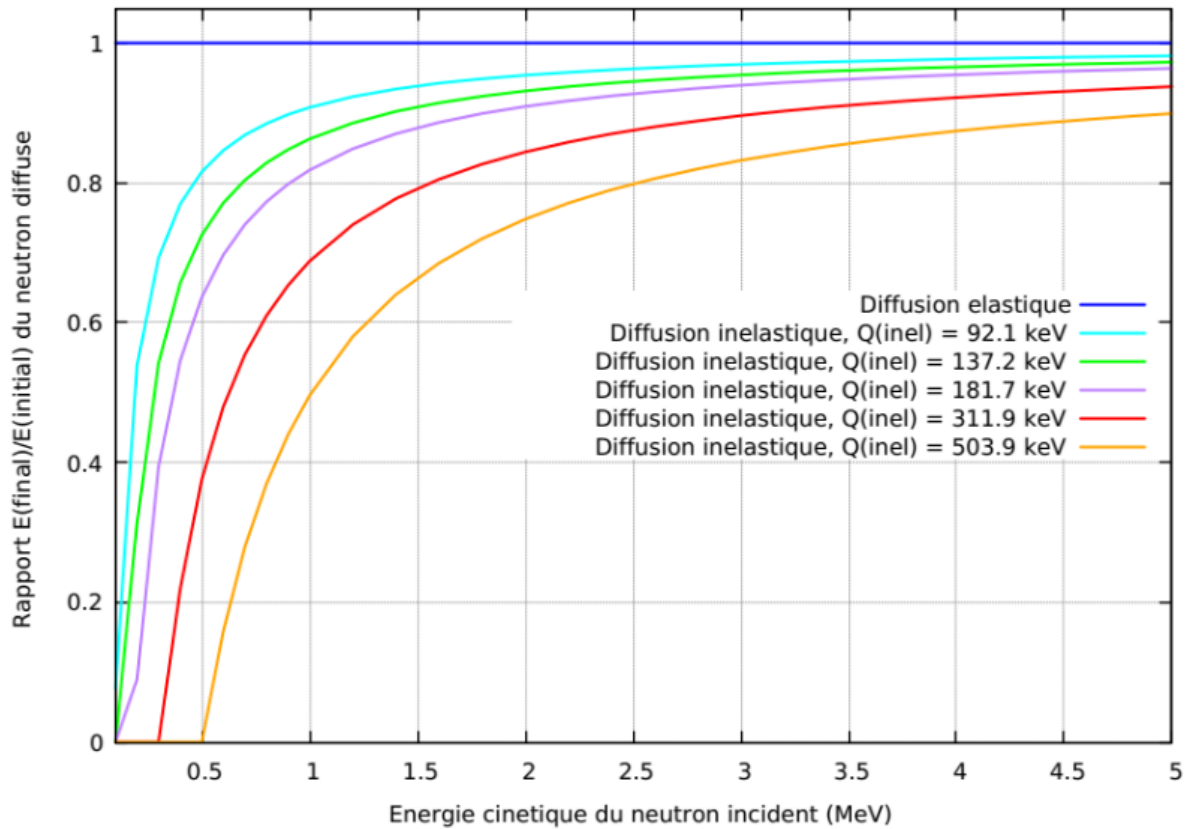


FIGURE 2.1 – Illustration du ralentissement des neutrons par diffusions inélastiques sur les cinq premiers états excités du noyau d' ^{233}U . Figure inspirée de [33].

La deuxième conséquence majeure des réactions (n, xn) est l'introduction de nouvelles espèces dans les cœurs de réacteurs. En effet, si l'énergie d'excitation cédée par le neutron au noyau est supérieure à l'énergie de séparation de neutron S_n , ce dernier peut se désexciter en émettant un neutron. On parle alors de réaction (n, 2n). Nous pouvons généraliser ce phénomène de la manière suivante : si l'énergie transmise à un noyau est supérieure à son énergie de séparation S_{xn} , il peut se stabiliser en émettant x neutrons, accompagnés de rayonnement γ . Toutes ces nouvelles espèces (isotopes produits par réaction (n, xn) mais aussi leur descendance éventuelle) doivent être, bien entendu, prises en compte dans les simulations. D'une part, ces noyaux interagissent également avec les neutrons du cœur et produisent différentes réactions induites par ces neutrons : diffusions élastique et inélastique, (n, xn), fission, etc... D'autre part, la population de nouveaux noyaux évolue selon leur chaîne de décroissance radioactive respective, ce qui contribue au spectre γ de radioactivité présent dans le réacteur. Cela peut éventuellement poser des problèmes de radioprotection si toutes ces émissions ne sont pas prises en compte lors de la conception des réacteurs nucléaires.

Pour illustrer ce dernier aspect, nous pouvons prendre l'exemple de la réaction suivante : $^{233}\text{U}(n, 2n)^{232}\text{U}$.

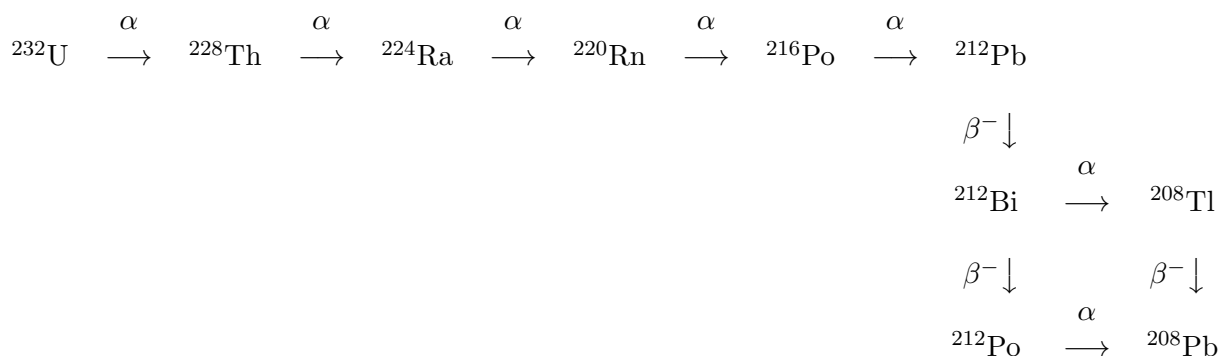


FIGURE 2.2 – Chaîne de décroissance de l'Uranium 232 [52].

La Figure 2.2 montre la chaîne de décroissance de l' ^{232}U . Ce noyau est donc produit par réaction (n, 2n) sur l' ^{233}U dans le cycle Th-U. En fin de chaîne de décroissance, on retrouve le ^{208}Tl qui, lorsqu'il décroît, produit un noyau de ^{208}Pb dans un état excité. Pour revenir à son état fondamental, ce dernier produit un γ très énergétique de $E_\gamma = 2,614$ MeV, ce qui peut avoir de graves conséquences en terme de radioprotection si la production de celui-ci n'est pas bien connue, en particulier si elle est négligée.

C'est pour ces trois principales conséquences (modification du nombre de neutrons et de leur énergie, introduction de nouveaux isotopes) que les réactions (n, xn) jouent un rôle majeur dans les cœurs de réacteurs et qu'il est important de bien les caractériser.

On peut noter que cette problématique n'est pas seulement liée aux combustibles innovants. Si l'on prend le cas du noyau ^{238}U , largement présent dans les REP, le manque de connaissance en matière de données nucléaires est une problématique constatée par les industriels. En particulier, la diffusion inélastique de neutron sur ce noyau induit des effets non négligeables dans les cœurs de réacteur [53]. Ces problématiques liées au cas de l' ^{238}U seront présentées et discutées de façon plus précise au chapitre 5.

2.2 Les méthodes expérimentales liées aux mesures de section efficace de réactions (n, xn)

On peut se demander comment les étudier expérimentalement. Il existe à ce jour plusieurs méthodes que l'on peut classer en deux catégories : les mesures directes, qui consistent à détecter des neutrons, et les mesures indirectes, où l'on préférera détecter des particules secondaires, comme les γ par exemple.

2.2.1 Mesures directes et indirectes

Parmi les mesures liées aux réactions (n, xn), on peut citer 3 méthodes. La première, la plus directe, consiste à irradier une cible avec un faisceau de neutrons, et à détecter

directement les neutrons diffusés après une réaction (n, xn) [54]. Cette méthode permet de recueillir directement l'information recherchée, mais présente quelques inconvénients non négligeables. Tout d'abord, par nature, les neutrons n'interagissent pas de manière électromagnétique. Il est donc difficile de mesurer leur énergie, ainsi que leur cinématique avec suffisamment de précision. De plus, dans le cadre des mesures sur des actinides, notamment des noyaux fissiles, comme l' ^{233}U , il est très difficile de faire la différence entre un neutron produit par réaction de fission ou par réaction (n, xn).

La seconde, est la méthode dite d'*activation* [55]. Une cible est irradiée avec un faisceau de neutrons mono-énergétiques qui permet la création d'un noyau composé. Ce noyau composé, généralement instable, va décroître en émettant jusqu'à plusieurs types de particules, comme des α , des β , des γ ou encore des neutrons. Dans cette méthode, ce noyau composé nouvellement formé est étudié hors-ligne. Tout comme la technique expérimentale précédente, on peut obtenir directement la section efficace totale (n, xn). Cependant, cette méthode nécessite un temps de demi-vie du noyau composé compatible avec la durée de la mesure hors ligne. En effet, si ce dernier à une durée de vie trop courte, sa décroissance sera trop rapide pour permettre une mesure hors-ligne. Au contraire, si ce noyau composé a une très grande demi-vie, la mesure va nécessiter un très grand temps d'acquisition. Cette méthode, qui donne accès à la section efficace totale, ne peut être utilisée que pour un nombre limité de noyaux. Une telle méthode a, par exemple, été utilisée pour mesurer la section efficace de réaction (n, 2n) sur le ^{239}Pu [56]. Elle a cependant fait l'objet d'une adaptation puisque les noyaux composés résultant de ^{239}Pu et ^{238}Pu ont été séparés chimiquement afin de mesurer uniquement la section efficace (n, 2n) hors ligne.

Aussi, pour les mesures des réactions (n, xn) sur noyaux très radioactifs, la troisième méthode expérimentale de la spectroscopie γ -prompte, détaillée ci-après, est plus indiquée.

2.2.2 La spectroscopie γ -prompte

Il a donc été choisi par l'équipe DNR (Données Nucléaires pour les Réacteurs) une méthode expérimentale indirecte pour ces mesures de section efficace (n, xn), la *spectroscopie γ -prompte*. Cette dernière ne nous permet pas d'obtenir directement des sections efficaces totales (n, xn), mais des sections efficaces différentielles (n, xn γ). La Figure 2.3 montre le schéma de principe de cette méthode, en prenant comme exemple une réaction de diffusion inélastique. Un neutron incident, d'énergie E_n interagit de manière inélastique avec un noyau d' ^{233}U , lui cédant une partie de son énergie. Ce noyau d' ^{233}U est alors dans un état excité. Pour revenir à son état fondamental, il peut émettre des rayons γ . Les énergies de ces γ sont spécifiques à chaque noyau et identifiables grâce aux données de structure nucléaire des noyaux. Ainsi, si l'on observe un rayon γ dont l'énergie est mesurée à 311,9 keV par exemple, il s'agira d'une transition d'intérêt de diffusion inélastique. En effet, ce rayonnement est émis d'un niveau de l' ^{233}U à 311,9 keV et conduit au niveau fondamental du noyau. En revanche, si un γ est mesuré avec une énergie de 47,57 keV, on pourra l'identifier comme étant une transition d'intérêt entre le premier état excité et l'état fondamental du noyau d' ^{232}U et ainsi identifier une réaction (n, 2n).

Comme toutes les méthodes expérimentales, la spectroscopie γ -prompte présente des

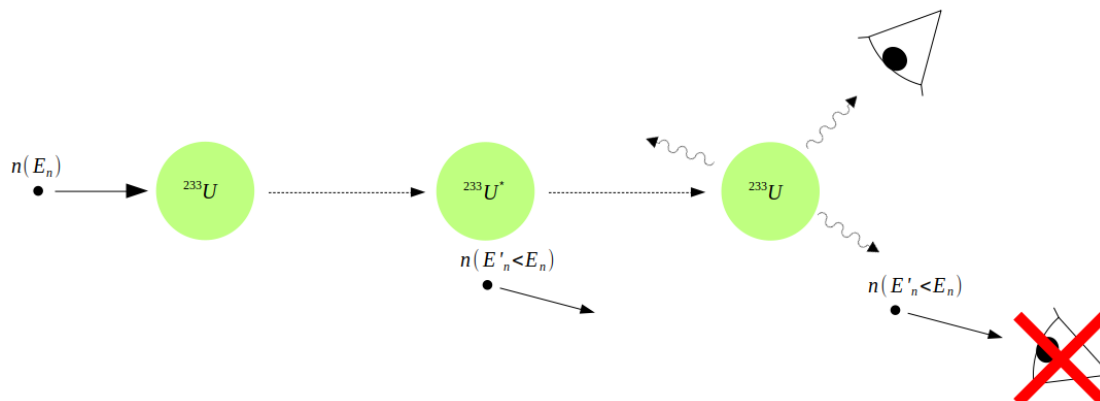


FIGURE 2.3 – Schéma de principe de la méthode de la spectroscopie γ -prompte.

limites. D'une part, elle repose sur notre connaissance de la structure nucléaire qui, notamment pour les actinides que nous étudions, n'est pas toujours précise. D'autre part, puisque nous travaillons avec des cibles radioactives, nous sommes sensibles à l'ensemble des γ émis par la cible, notamment ceux provenant de la radioactivité. De plus, dans le cas des noyaux fissiles, nous sommes également sensibles aux γ émis par les produits de fissions. Par conséquent, un travail préliminaire d'identification de l'ensemble des transitions du spectre observé est nécessaire, justifiant l'utilisation de détecteurs Germanium à haute résolution en énergie dans le dispositif expérimental présenté ultérieurement. En revanche, l'avantage de cette méthode réside dans le fait qu'elle peut être combinée à la méthode du temps de vol, et donc être utilisée auprès de faisceaux de neutrons blancs.

2.2.3 Le temps de vol

Par opposition à un faisceau de neutrons mono-énergétiques, qui permet de réaliser des mesures à des énergies spécifiques, un faisceau pulsé de neutrons dits "blancs" offre la possibilité de faire des mesures sur un large spectre en énergie en une seule prise de données. Les sections efficaces de réaction dépendent de l'énergie des neutrons incidents, il est donc nécessaire de pouvoir mesurer cette énergie, ce que permettent les installations de temps de vol. On peut citer par exemple, n_TOF - *neutron Time Of Flight*, au CERN [57], WNR - *Weapons Research facility*, au Los Alamos Neutron Science Center [58], plus récemment NFS - *Neutron For Science*, au GANIL [59] ou encore $GELINA$ à l'EC-JRC, Geel [60], chacune présentant des caractéristiques différentes.

Cette méthode du temps de vol se base sur trois équations (eq. 2.3) : - La relation élémentaire entre le temps t , la distance d et la vitesse v , - l'équation de l'énergie cinétique E_k pour des particules non relativistes (en effet, l'énergie cinétique des neutrons est inférieure à leur masse m , *i.e.* ~ 1 GeV), et - le facteur de Lorentz γ :

$$v = \frac{d}{\Delta t}, \quad E_k = (\gamma - 1)mc^2, \quad \gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}}. \quad (2.3)$$

En remplaçant les termes v et γ dans l'expression de E_k , on obtient l'énergie cinétique en fonction de Δt :

$$E_k = \left(\frac{1}{\sqrt{1 - \frac{d^2}{\Delta t^2 \cdot c^2}}} - 1 \right) \times mc^2 \quad (2.4)$$

Conformément à l'équation 2.4, on peut alors déduire l'énergie des neutrons sans avoir à la mesurer, mais en les chronométrant. C'est pourquoi, dans les expériences de temps de vol, un temps de référence est utilisé pour pouvoir mesurer le temps de parcours des neutrons le long d'une ligne expérimentale de longueur connue.

Cette méthode du temps de vol est bien souvent combinée à la spectroscopie γ -prompte. L'efficacité de cette combinaison a été prouvée par plusieurs campagnes expérimentales depuis les années 70, notamment dans d'autres laboratoires. On peut citer par exemple la mesure de sections efficaces ($n, n'\gamma$) pour le noyau d' ^{238}U par Olsen et al. [61] et par Voss et al. [62] ou encore la mesure de la section efficace ($n, 2n$) sur le noyau de ^{239}Pu par Bernstein et al. [63]. L'équipe DNR a donc fait le choix de cette méthode expérimentale pour ces campagnes de mesures spécifiques aux actinides.

2.3 GRAPhEME auprès de GELINA

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, certains noyaux souffrent de manque de données nucléaires expérimentales. Pour répondre à ces besoins, l'équipe DNR de l'IPHC a développé le dispositif GRAPhEME (GeRmanium array for Actinides PrECise Measurements). Il est installé auprès du faisceau de neutrons blancs de l'installation GELINA. En 2005, à la genèse du projet, GRAPhEME était équipé d'un unique détecteur Germanium, d'une chambre à fission, et de deux cartes d'acquisition TNT [64]. Deux détecteurs Germanium seront ajoutés en 2006 et un quatrième viendra compléter le dispositif en 2009. Un blindage *Cu-Cd-Pb* est également installé afin de limiter l'impact du bruit de fond dans la zone de mesure. C'est à cette époque que débutent les premières campagnes expérimentales liées aux actinides. Ainsi, depuis 2009, GRAPhEME aura participé à de nombreuses prises de données de réaction ($n, xn\gamma$) pour les isotopes suivants :

- ^{235}U - [2009-2010] [65] ;
- ^{232}Th - [2009 ; 2010 ; 2013] [66] ;
- $^{nat,182,183,184,186}\text{W}$ - [2009-2014] [67] ;
- ^{238}U - [2010-2013] [68].

Enfin, la dernière amélioration de GRAPhEME a eu lieu en 2014, avec l'installation de deux autres détecteurs Germanium, un mono cristal, comme les précédents et un autre segmenté en 36 pixels, dont nous donnerons les caractéristiques ultérieurement. Enfin, c'est

également en 2014 que le système d'acquisition est changé pour TNT2 [64], développé par l'IPHC.

Avant de décrire plus en détail ce dispositif expérimental, nous allons présenter le faisceau de neutrons blancs produit par GELINA.

2.3.1 GELINA

GELINA (Geel Electron LINear Accelerator) est un dispositif expérimental, installé au centre de recherche de la commission européenne EC-JRC Geel, situé en Belgique. Cette installation, dédiée à la méthode du temps de vol, produit un faisceau de neutrons blancs, dont l'énergie est comprise entre un meV et une vingtaine de MeV [69]. La Figure 2.4 montre une vue aérienne de l'installation GELINA. Elle est composée d'un LINAC, un système de compression magnétique, une cible rotative d'Uranium appauvrie et de stations de temps de vol, situées entre 10 m et 400 m de la source de neutrons.

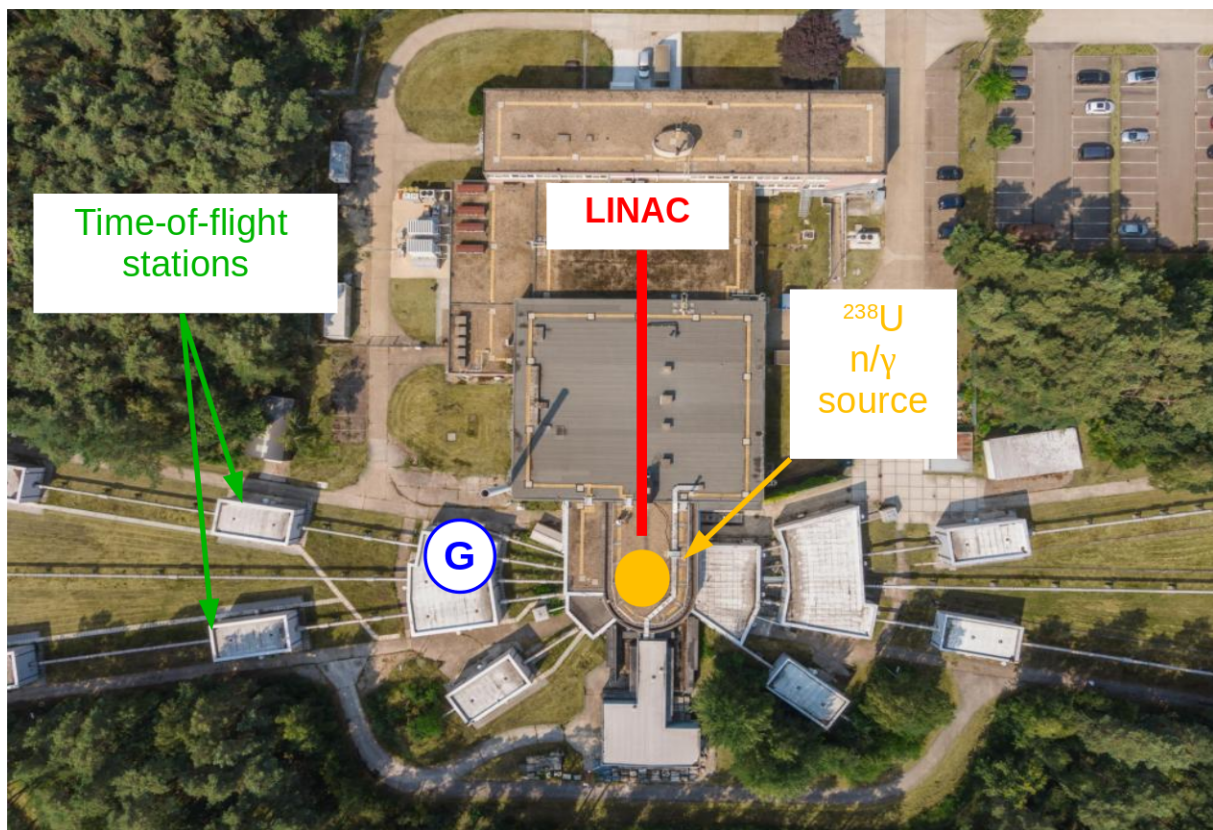


FIGURE 2.4 – Vue aérienne de l'installation GELINA de l'EC-JRC Geel [60].

Pour produire le faisceau de neutrons, le LINAC accélère des paquets d'électrons, produit par un canon à électron de type *Pierce* [70]. Les paquets d'électrons sont produits à une fréquence pouvant atteindre 800 Hz. A la sortie du LINAC, les électrons ont une énergie comprise entre 140 MeV pour les plus rapides et 70 MeV pour les plus lents au sein d'un même paquet. La résolution en temps de ce dernier est alors de 10 ns, pour un courant

d'environ 10 A. Avant d'interagir avec la cible d'Uranium appauvrie et afin d'améliorer la résolution en temps, les électrons traversent un système de compression magnétique à 360° [69]. Le parcours des électrons dans le compresseur dépend de l'énergie incidente de ces derniers. En effet, plus leur énergie est élevée, plus le rayon de courbure de leur trajectoire sera grand. Ainsi, les électrons les plus énergétiques sont retardés et le paquet d'électrons quitte le compresseur magnétique avec une résolution en temps de 1 ns et un courant de 100 A crête à crête.

Les paquets d'électrons compressés sont alors envoyés sur une cible rotative d'Uranium. Les électrons ultrarelativistes sont ralentis par interaction électromagnétique avec les noyaux composants cette cible et produisent ainsi un rayonnement de freinage (photon), également appelé *Bremsstrahlung*. L'énergie élevée des électrons permet l'émission de photons de freinage, dont la gamme d'énergie est très favorable aux réactions (γ, n) et (γ, f) sur l' ^{238}U , produisant $\sim 3,4 \times 10^{13} \text{ n.s}^{-1}$ [69]. Les neutrons et les γ ainsi produits par photo-fission de l'Uranium voyagent ensuite le long des différentes lignes expérimentales. Des collimateurs sont installés en amont des aires expérimentales afin de fixer le diamètre du faisceau, ainsi que des absorbeurs pour capturer les neutrons de très faibles énergies et ainsi prévenir le recouvrement des paquets de particules émises. Des modérateurs sont également présents dans le cas où l'on souhaite travailler avec un faisceau de neutrons lents, notamment pour des mesures de capture à long temps de vol. GELINA produit *in fine* un faisceau de neutrons pulsé, ainsi qu'un *flash- γ* . Ce dernier, émis au même instant que les neutrons, provient des rayonnements *Bremsstrahlung* qui n'ont pas interagi avec la cible primaire. Il est utilisé comme temps de référence pour les mesures de temps de vol.

Le flux de neutrons mesuré auprès de GRAPhEME, installé dans la station de temps de vol FP16-30 m (voir le **G** sur la Figure 2.4) située à 30 m de la cible primaire, est montré sur la Figure 2.5. Il est tracé pour l'ensemble du spectre en énergie neutron, ainsi que pour la zone où le flux est maximal, *i.e.* au voisinage de $E_n = 1 \text{ MeV}$. Le diamètre du faisceau de neutron est fixé à $\varnothing = 5,5 \text{ cm}$ au niveau de la cible de GRAPhEME.

On remarque sur cette Figure 2.5 une baisse du flux un peu avant $E_n = 0,5 \text{ MeV}$. Ce "trou" est dû à une résonance de la réaction $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$, le Bore étant utilisé comme modérateur pour arrêter les neutrons de plus basse énergie, *i.e.* pour $E_n < 10 \text{ keV}$.

Une fois l'installation GELINA décrite, le dispositif expérimental GRAPhEME sera présenté dans les paragraphes suivants. Les caractéristiques techniques des différents instruments et détecteurs qui le composent y seront détaillées.

2.3.2 GRAPhEME

Pour rappel, GRAPhEME est composé d'une chambre à fission, de 6 détecteurs Germanium de haute pureté (HPGe), dont un détecteur segmenté, d'un blindage *Cu-Cd-Pb*, ainsi que de 13 cartes d'acquisition TNT2. Un schéma du dispositif est donné sur la Figure 2.6. Les détecteurs sont placés aux "grands" angles, à savoir 110° et 150° , afin de ne pas être aveugler par le flash- γ .

Ce dispositif expérimental combine les deux méthodes de la spectroscopie γ -prompte

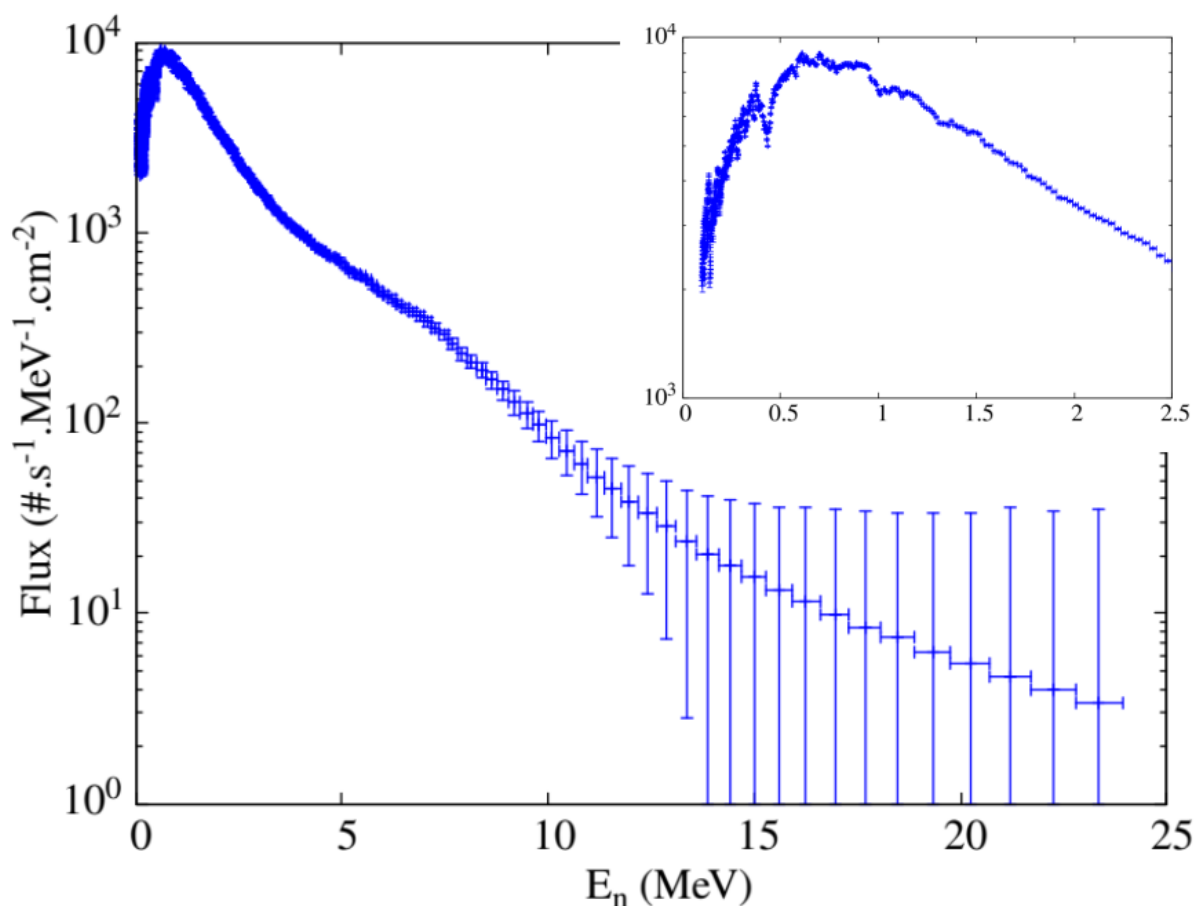


FIGURE 2.5 – Flux de neutrons produit par GELINA [69] mesuré auprès de GRAPhEME, installé dans la station de temps de vol FP16-30 m située à 30 m de la cible primaire, pour l'ensemble du spectre en énergie et zoomé sur la zone en énergie où le flux de neutrons est maximal.

et du temps de vol. Il permet ainsi de détecter les photons des désexcitations des noyaux d'intérêt suite à leur interaction avec les neutrons incidents. Ainsi, on mesure des sections efficaces partielles (n, xn γ). Lorsque le flash- γ et les neutrons sont émis par GELINA, un signal donnant le temps de référence T_0 est enregistré. Les particules se propagent alors le long des lignes expérimentales et, dans un premier temps, interagissent éventuellement avec la chambre à fission.

2.3.2.1 La Chambre à Fission et le calcul du flux neutronique

La chambre à fission permet de mesurer le flux de neutrons en fonction de leur énergie (voir Figure 2.5). Elle est composée d'un dépôt d' $^{235}\text{UF}_4$ sur une feuille d'une épaisseur de 20 μm en Aluminium et est remplie de gaz P10 (90% Argon et 10% Méthane) à pression atmosphérique et est placée à 27.3 m de la cible primaire de GELINA. Les caractéristiques de ce dépôt sont données dans le Tableau 2.1.

Les neutrons et les photons du flash- γ traversent la chambre à fission et peuvent

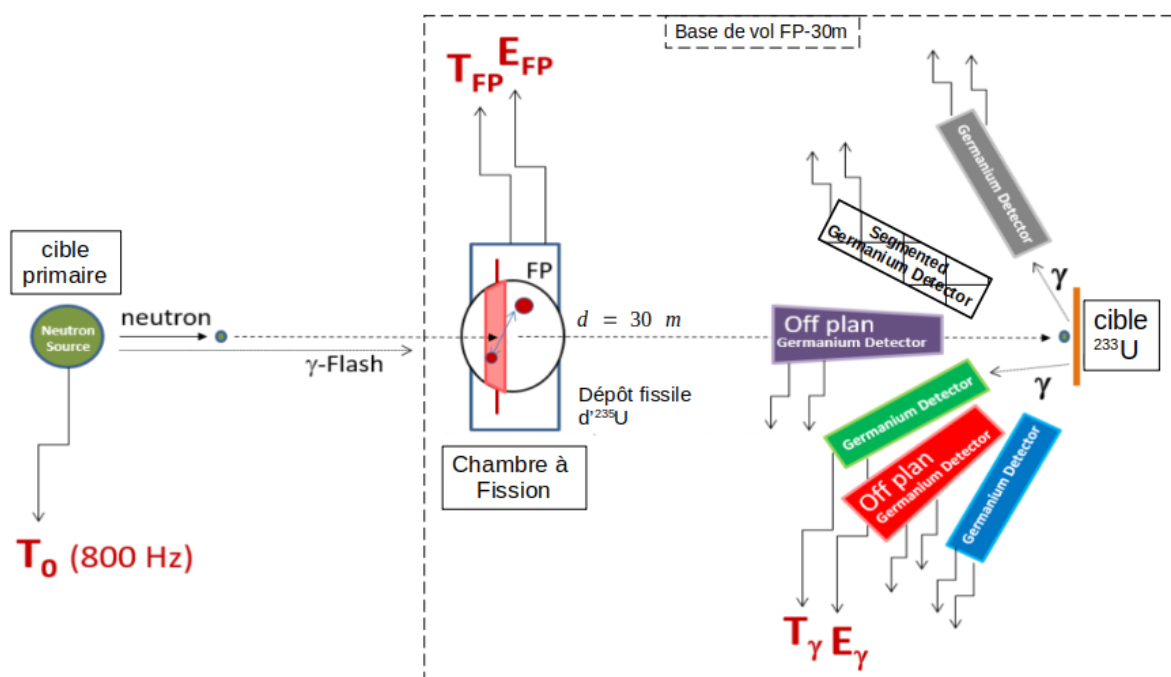


FIGURE 2.6 – Schéma du dispositif expérimental GRAPhEME installé auprès de GELINA.

TABLEAU 2.1 – Caractéristiques du dépôt d'Uranium-235 de la chambre à fission de GRAPhEME.

| | |
|-------------------------------|---|
| Composition | UF_4 |
| Méthode de préparation | évaporation sous vide |
| Distance à la cible primaire | 27,2601 m |
| Densité | $6,7 \text{ g.cm}^{-3}$ |
| Diamètre | 7,00 cm |
| Surface | $38,48 \text{ cm}^2$ |
| Épaisseur | 639,52 nm |
| Masse en Uranium | 12,46 mg |
| Densité de surface en Uranium | $8,2978 \pm 0,046 \times 10^{17} \text{ atomes.cm}^{-2}$ $323,757 \pm 1,740 \mu\text{g.cm}^{-2}$ |

induire les réactions de fission (n, f) et (γ, f) sur les noyaux du dépôt. Ces réactions engendrent des produits de fission (PF) qui se propagent alors dans la chambre. Ces particules secondaires perdent leur énergie via des interactions multiples avec les atomes qui composent le gaz, ionisant ainsi le milieu lors de leur passage. Les électrons ainsi créés sont accélérés vers une anode. Cette dernière est connectée à un préamplificateur qui génère le signal traité par une carte d'acquisition. De ce signal sont extraites deux informations : l'énergie cinétique des produits de fission et le temps auquel ils ont été émis par rapport à un temps de référence, noté T_0 . Ce dernier correspond à l'émission des

neutrons et du flash- γ par la cible primaire. Ces événements sont enregistrés et peuvent être représentés dans un diagramme bi-dimensionnel (voir Figure 2.7) $N_{PF}(t_{PF}, E_{PF})$ où t_{PF} , l'axe des abscisses, est le temps auquel ils ont été enregistrés et E_{PF} , l'axe des ordonnées, leur énergie cinétique.

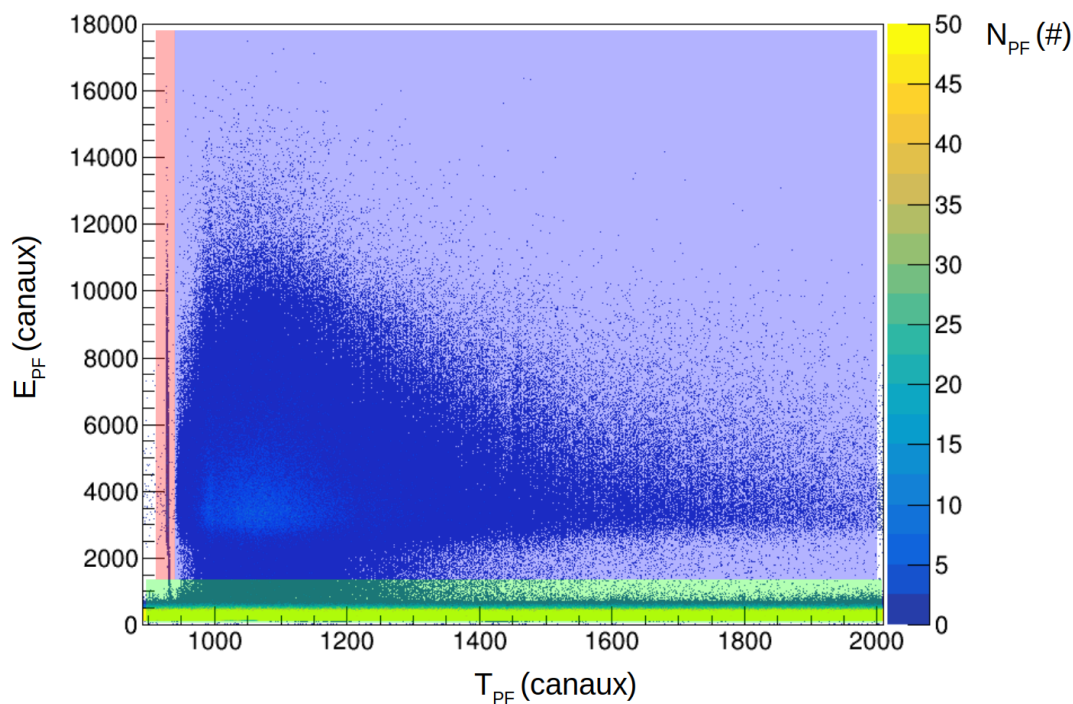


FIGURE 2.7 – Diagramme bi-dimensionnel traçant le nombre de produits de fission enregistré N_{PF} en fonction de leur temps d'émission et de leur énergie. La zone verte correspond aux alpha émis lors de la désintégration des noyaux du dépôt d' ^{235}U de la chambre à fission, la zone rouge correspond aux événements de photo-fission de l' ^{235}U par le flash- γ et la zone bleue correspond aux produits de fission induits par les réactions de fission induites par neutron sur l' ^{235}U .

Trois zones peuvent être identifiées sur la Figure 2.7. En bas, une bande horizontale d'événements, s'étalant en temps sur l'ensemble du diagramme, à gauche, un trait fin d'événements, au niveau du canal 940 et enfin une "tâche" d'événements assez diffuse, occupant le reste du diagramme. La première zone, identifiée en vert sur cette figure, correspond au signal généré par les particules α de désintégration des noyaux du dépôt d' ^{235}U . En effet, ce noyau est radioactif, son activité massique est de $A_m^{235\text{U}} = 1,60 \times 10^5 \text{ Bq.g}^{-1}$ [71] et sa voie de décroissance est l'émission de noyaux α : $^{235}\text{U} \rightarrow \alpha + ^{231}\text{Th}$. Ces particules, doublement chargées positivement, sont émises avec une énergie cinétique faible, mais suffisante pour ioniser le gaz P10 présent dans la chambre à fission. Puisque le phénomène de radioactivité est continu, isotrope et non corrélé en temps au faisceau de neutrons, ces événements sont enregistrés, quel que soit le temps de la mesure. La deuxième zone de ce diagramme, identifiée en rouge, correspond aux événements induits par le flash- γ . En effet, la section efficace de photo-fission de l' ^{235}U $\sigma(\gamma, f)$ n'est pas nulle et certains

produits de fission sont émis lors du passage de ces photons dans la chambre à fission. Puisque les rayons γ se propagent toujours à vitesse constante, *i.e.* la célérité de la lumière dans le milieu considéré, quelle que soit leur énergie, tous les produits de fission émis par ce type de réaction sont émis en même temps. C'est pourquoi on voit un trait très fin, d'une largeur de quelques canaux seulement, correspondant aux fissions induites par le flash- γ . Enfin, la troisième et dernière zone de ce diagramme bi-dimensionnel identifiée en bleu correspond aux produits de fission, émis suite aux réactions de fission induites par neutrons sur les noyaux d' ^{235}U . Ces neutrons produits dans la gamme d'énergie suivante : $E_n \in [0,01, 20]$ MeV arrivent après le flash- γ , et s'étalent en temps. Ainsi, les événements liés aux produits de fission induits par les neutrons les plus à gauche de cette zone correspondent aux neutrons les plus rapides *i.e.* les plus énergétiques. Inversement, les événements liés aux produits de fission les plus à droite de cette zone correspondent aux produits de fission émis par les neutrons les plus lents *i.e.* les moins énergétiques. Enfin, grâce au formalisme du temps de vol vu précédemment (voir eq. 2.4), et avec le signal T_0 , on peut exprimer l'énergie des neutrons en fonction du temps d'enregistrement des produits de fission $E_n = E_n(\Delta t_{FC} = t_{PF} - T_0)$. Comme le processus de fission est très rapide en comparaison de la résolution en temps de la chambre à fission ($\tau_{fission} \sim 10^{-20}$ s « $\tau_{resol} \sim 10^{-9}$ s) et que les produits de fission sont émis avec une énergie cinétique de l'ordre de la dizaine, voir la centaine de MeV, le temps entre la formation du produit de fission, son ionisation du gaz de la chambre à fission, et l'émission du signal est négligé.

Comme mentionné précédemment, la chambre à fission permet de calculer le flux de neutrons en fonction de l'énergie de ces derniers. En effet, la section efficace de fission de l' ^{235}U $\sigma_{f,^{235}\text{U}}$ est considérée comme un standard de la physique nucléaire, pour une énergie de neutron incident $E_n = 0.0253$ eV $E_n \in [0.15, 200]$ MeV [72, 73]. Cela signifie que cette donnée est une référence, avec une incertitude associée très faible. Pour cette analyse de données, cette section efficace de fission a été prise depuis la base de données ENDF/B-VIII, pour une énergie neutron comprise entre 15 keV et 30 MeV, avec une incertitude relative comprise entre 1,3 et 2,0 %. Connaissant donc cette section efficace, ainsi que le nombre de noyaux d' ^{235}U par unité de surface sur le dépôt $N_{235\text{U}}$, on peut exprimer le nombre de neutrons incidents en fonction de leur énergie :

$$N_n(E_n) = \frac{N_{PF}^{det}(E_n)}{\sigma_{f,^{235}\text{U}} \times N_{235\text{U}}}, \quad (2.5)$$

avec N_{PF}^{det} le nombre de produits de fission détectés par la chambre à fission.

Une autre caractéristique de la chambre à fission, utilisée plus tard dans le calcul de la section efficace (n, xn γ) est son efficacité. En effet, Il faut mentionner que le nombre de produits de fission détectés diffère du nombre de produits de fission émis. Certains d'entre eux ne quittent pas le dépôt à cause de diffusions multiples ou ne déposent pas toute leur énergie dans la chambre à fission. Ces corrections à prendre en compte déterminent l'efficacité de la chambre à fission, noté ε_{FC} . La détermination de l'efficacité de la chambre à fission fait l'objet du travail de thèse de J-C. Thiry [74] et a été estimée par des simulations GEANT4 [75] comparées à des séries de mesures d'étalonnages menées au Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) à Braunschweig, en Allemagne. Elle prend

en compte une optimisation de la configuration de la chambre à fission, le seuil en énergie appliqué pour séparer particules α et les produits de fission et enfin les produits de fission qui n'ont pas traversé la feuille d'Uranium. L'efficacité obtenue a ainsi été estimée à $\varepsilon_{FC} = 94,4 \pm 2,1 \%$. Le nombre de neutrons incidents $N_n(E_n)$ doit donc être corrigé de cette efficacité afin de remonter au nombre de neutrons incidents détectés.

Enfin, le diamètre du faisceau de neutrons produit par GELINA vaut 5.5 cm alors que le diamètre de la cible d' ^{233}U vaut 3 cm, cette dernière étant centrée vis-à-vis du faisceau de neutrons. Par conséquent, il faut également corriger le nombre de neutrons détectés par le rapport des deux surfaces S_{cible} et $S_{faisceau}$, avec $S_i = \pi r_i^2$, pour obtenir le nombre de neutron détectés qui peuvent interagir avec la cible, noté dans ce qui suit $N_n^{Det}(E_n)$.

Notons que pour les besoins de notre analyse de données et pour étendre le nombre de points pour le flux de neutrons, une interpolation linéaire de $\sigma_{f,^{235}\text{U}}(E_n)$ a été réalisée.

Les neutrons et les γ du flash qui n'ont pas interagi avec la chambre à fission, continuent de se propager le long de la ligne expérimentale jusqu'à atteindre la cible d'intérêt, autour de laquelle sont positionnés les détecteurs Germanium.

2.3.2.2 Les Détecteurs Germanium

Les neutrons et le flash- γ peuvent alors interagir avec la cible d'intérêt et provoquer bon nombre de réactions (fission, capture neutronique, (n, xn), ou encore diffusion élastique et inélastique). Comme mentionné précédemment, c'est le rayonnement γ secondaire, issu de ces réactions qui est détecté. Lorsqu'un γ est émis, il peut atteindre un des détecteurs HPGe, y déposer son énergie et le signal résultant de cette interaction est analysé. De façon similaire à la chambre à fission, deux signaux sont enregistrés, le temps d'émission de ces rayons γ , t_γ et leur énergie, E_γ et un diagramme bi-dimensionnel est tracé pour chaque détecteur. Il donne le nombre d'événements γ enregistrés en fonction de t_γ et de E_γ . La Figure 2.8 montre le diagramme bi-dimensionnel calibré obtenu pour 28 pixels du détecteur HPGe segmenté.

Dans ce diagramme, on observe les événements caractéristiques induits par le flash- γ autour de $t_\gamma = 0 \mu\text{s}$. On remarque des lignes horizontales, débutant avant le flash et continuant sur l'ensemble du diagramme. Il s'agit des événements induits par la radioactivité. Pour rappel, l' ^{233}U est radioactif et décroît par désintégration α et β^- successives jusqu'au noyau stable de ^{209}Bi . Chaque noyau ainsi produit l'est dans un état excité et se stabilise par émission de rayonnements γ , captés par les détecteurs. Enfin, les événements induits par neutrons sont identifiables puisqu'ils commencent après le flash- γ .

Les détecteurs HPGe étant placés à quelques centimètres de la cible, on suppose de nouveau que le temps d'interaction des neutrons incidents avec les noyaux de la cible d'une part et que le temps de propagation de rayons- γ de la cible aux détecteurs d'autre part sont négligeables. On fait donc l'hypothèse que $t_\gamma = t_n$. On obtient alors $\Delta t_{Det} = t_n - T_0$, où T_0 est, pour rappel, le temps d'émission des neutrons et du flash- γ de la cible primaire. Δt_{Det} peut être également relié à l'énergie des neutrons incidents grâce au formalisme du temps de vol (voir eq. 2.4.)

Un diagramme bi-dimensionnel est obtenu pour chaque détecteur. Les caractéristiques

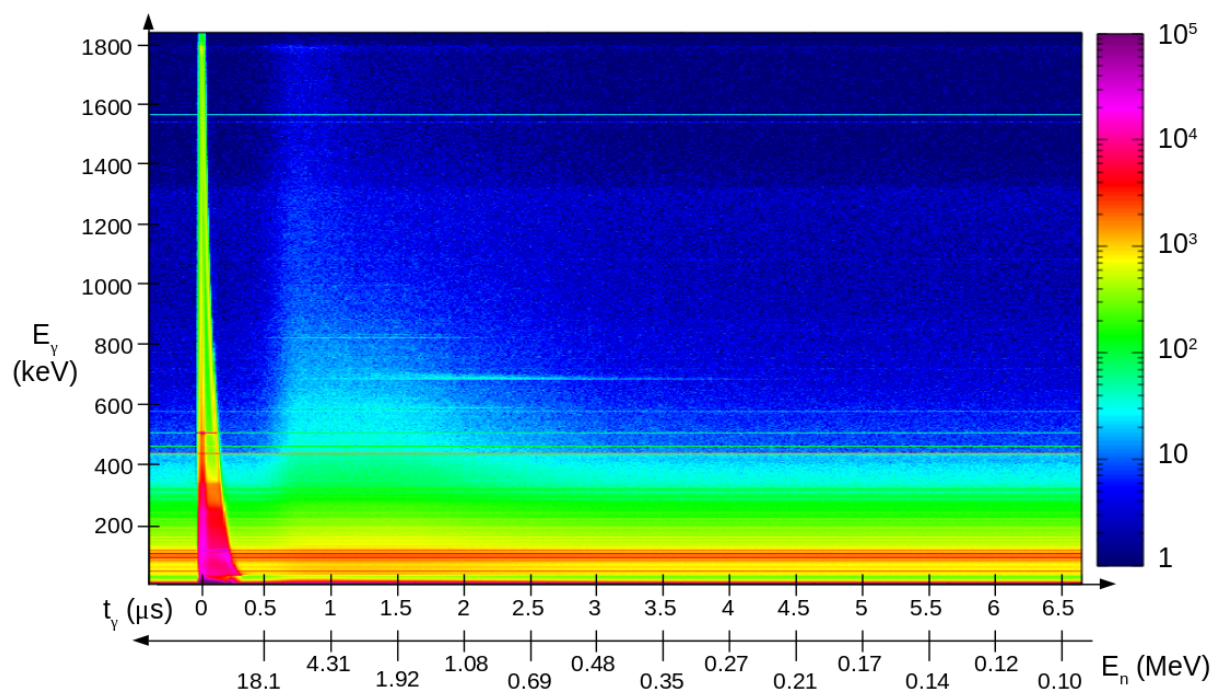


FIGURE 2.8 – Diagramme bi-dimensionnel représentant la distribution des γ enregistrés en fonction de leur temps d'émission et de leur énergie. Figure obtenue avec une cible d' ^{233}U .

de ces derniers sont données dans le Tableau 2.2. Afin de les différencier, des noms de couleur leur ont été attribués.

2.3.2.3 L'efficacité des détecteurs

Tout comme pour la chambre à fission, l'efficacité de chaque détecteur est calculée avec des simulations MCNPX. Elle est basée sur des mesures d'étalonnages avec une source bien connue d'Europium-152 et avec la cible d'Uranium-233. Une première série de simulations, utilisant une source ponctuelle d' ^{152}Eu permet de déterminer la géométrie de chaque cristal et d'identifier les zones mortes du détecteur. Une seconde série de simulation en source étendue (pour simuler l'extension spatiale du faisceau) est faite pour définir la géométrie générale et spatiale du dispositif expérimental dans son ensemble. De plus, une comparaison des efficacités expérimentale et simulée est réalisée avec la source ponctuelle, puis une source étendue. Le but de cette étape est de fixer le rapport $\varepsilon^{DET}(exp.)/\varepsilon^{DET}(simu.)$ à 1 pour les transitions de ce noyau de $E_\gamma = 39$ keV à $E_\gamma = 1408$ keV. Enfin, une dernière étape consiste à modéliser la cible d' ^{233}U d'après les données de l'EC-JRC Geel avec MCNP. Cette simulation, considérant l'oxydation de la cible, est réalisée sur le diamètre du faisceau et permet de déterminer l'efficacité expérimentale $\varepsilon^{DET}(exp.)$ pour chaque transition d'intérêt, l'absorption des rayons γ dans la cible étant pris en compte. Ainsi, l'efficacité ε^{Det} obtenue combine l'efficacité intrinsèque du détecteur et son efficacité géométrique.

2.3.2.4 La résolution en énergie des détecteurs

Ces détecteurs ont également une résolution en énergie qui leur est propre. Cette grandeur correspond à la capacité d'un détecteur à pouvoir séparer deux transitions γ d'énergie différente. Ainsi, plus la résolution en énergie est bonne, plus le détecteur pourra discriminer des transitions γ d'énergie proche. Pour la déterminer, on mesure la *largeur* des transitions γ présentes sur le spectre en énergie. Cette résolution n'est pas une grandeur fixe, elle varie en fonction de l'énergie γ . Elle est donnée par le constructeur, dans des conditions expérimentales optimales, mais elle est susceptible de changer selon les conditions expérimentales.

TABLEAU 2.2 – Caractéristiques des six détecteurs HPGe de GRAPhEME.

| | Gris | Vert | Rouge | Bleu | Violet | Segmenté |
|--|-------|-------|-------|-------|--------|----------|
| épaisseur (mm) | 30 | 20 | 27,5 | 19,6 | 19,9 | 20 |
| Diamètre (mm) | 59 | 35,5 | 59 | 36 | 35,9 | 54 × 54 |
| Distance de la cible (cm) | 16,51 | 14,07 | 21,2 | 12,51 | 24,76 | 19,48 |
| Résolution en énergie (keV) (donnée constructeur à 122 keV) | 0,70 | 0,58 | 0,8 | 0,60 | 0,58 | 0,7 |

2.3.3 Méthodologie expérimentale

Maintenant que le dispositif GRAPhEME a été présenté, nous allons décrire dans cette partie la méthodologie expérimentale. Nous expliciterons comment obtenir une section efficace (n, xn γ) à partir des données brutes. Pour ce manuscrit, nous avons fait le choix de parler ultérieurement du système d'acquisition des données. En effet, pour les deux noyaux étudiés, ce système n'est pas le même. Nous les décrivons donc dans les chapitres dédiés à l'analyse de données de l' ^{233}U (chapitre 3) et à la préparation de la campagne expérimentale prévue pour le ^{239}Pu (annexe A). Nous décrivons également dans ces chapitres les spécificités de la méthodologie utilisée pour l'analyse des données.

Nous resterons donc dans un cas très général, commun à l'ensemble des campagnes expérimentales sur les différents noyaux étudiés par le passé avec GRAPhEME : ^{232}Th , ^{238}U , etc.

2.3.3.1 Lecture des diagrammes bi-dimensionnels

Les données contenues dans les diagrammes bi-dimensionnels sont traitées grâce au logiciel d'analyse de données ROOT, développé par le CERN [76].

L'identification de toutes les transitions γ est la première étape de l'analyse de données. Ces rayons γ peuvent avoir des origines diverses :

- radioactivité ;
- produits de fission ;
- induit par diffusion des neutrons sur le blindage ;
- induit par diffusion des neutrons sur les cristaux Ge ;
- transitions d'intérêts des noyaux étudiés.

Pour réaliser cette identification, on utilise généralement les données du détecteur offrant la meilleure résolution en énergie. Dans ce cas, on considère les spectres obtenus avec le détecteur HPGe segmenté.

La Figure 2.9 montre un zoom du diagramme bi-dimensionnel montré sur la Figure 2.8 dans une zone d'intérêt où l'on peut voir distinctement des transitions de radioactivité, des transitions d'intérêts (en rouge), ainsi que des transitions provenant de produits de fission (en vert).

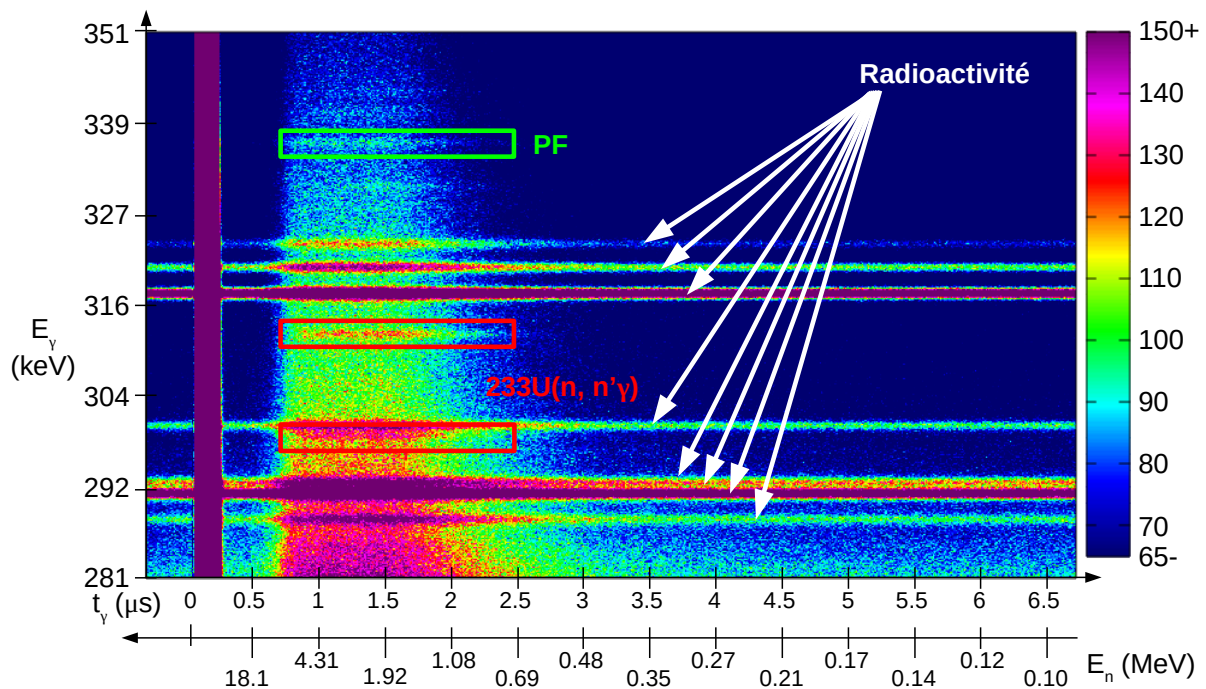


FIGURE 2.9 – Diagramme bi-dimensionnel traçant le nombre d'événements γ enregistrés N_γ en fonction de leur temps d'émission et de leur énergie, centré sur une plage d'énergie γ comprise entre 281 et 351 keV. Sont identifiées par une flèche blanche les transitions de radioactivité, en encadré vert une transition d'un produit de fission et en encadré rouge des transitions d'intérêts $^{233}\text{U} (n, n'\gamma)$.

De ces diagrammes 2D, des spectres en temps et en énergie peuvent être tracés par projection sur l'axe des abscisses (t) ou des ordonnées (E). La Figure 2.10 montre ces projections obtenues à partir du diagramme bi-dimensionnel tracé sur la Figure 2.8.

La Figure 2.10a présente un spectre en temps. Le pic, large de quelques canaux, centré au canal 940 correspond au flash- γ et la bosse qui suit d'une largeur d'environ 450 canaux correspond aux événements induits par neutrons. On voit également que ce flash- γ s'élargit jusqu'au canal 975. Bien que chaque pixel du détecteur segmenté soit considéré

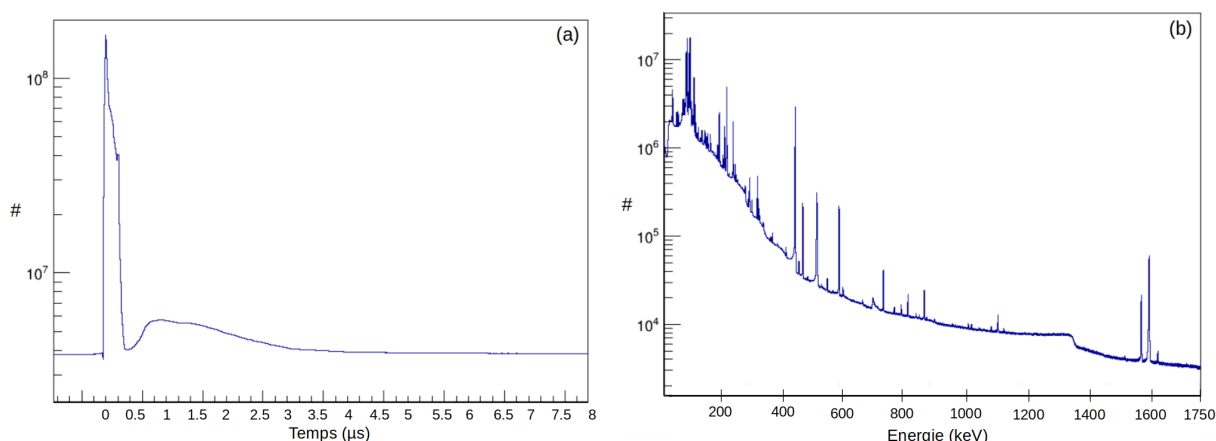


FIGURE 2.10 – Projection en temps (a) et en énergie (b) du diagramme bi-dimensionnel tracé sur la Figure 2.8. On reconnaît en (a) le flash- γ , juste après $t = 0$. S'ensuit ensuite la "bosse" des événements induits pas les neutrons.

indépendant des autres, l'intensité du flash- γ est telle que les pixels captent ce signal provenant de leur voisin. Cet effet n'est en revanche pas observé sur les spectres en temps obtenus avec les détecteurs planaires classiques. Cependant, le signal n'est pas parfaitement gaussien pour autant et s'étale à haute énergie neutrons. La Figure 2.10b présente quant à lui un spectre en énergie, projeté sur toute la gamme en temps du diagramme bi-dimensionnel. Il regroupe tous les événements γ .

2.3.3.2 Constitution des spectres en énergie

Puisque l'on peut relier t_γ à E_n grâce au formalisme du temps de vol, on peut découper la bosse des événements neutrons de la Figure 2.10a en différentes fenêtres en temps. Le Tableau 2.3 donne la correspondance $t_\gamma(ch) \leftrightarrow E_n(MeV)$.

TABLEAU 2.3 – Correspondances $t_\gamma(ch) \leftrightarrow E_n(MeV)$ déterminées et utilisées lors de l'analyse des données.

| t_γ (ch) | E_n (MeV) | t_γ (ch) | E_n (MeV) | t_γ (ch) | E_n (MeV) |
|-----------------|-------------|-----------------|-------------|-----------------|-------------|
| 3012 | 0,01 | 1589 | 0,1 | 1139 | 1 |
| 2402 | 0,02 | 1396 | 0,2 | 1078 | 2 |
| 2132 | 0,03 | 1311 | 0,3 | 1051 | 3 |
| 1971 | 0,04 | 1260 | 0,4 | 1035 | 4 |
| 1861 | 0,05 | 1225 | 0,5 | 1024 | 5 |
| 1780 | 0,06 | 1199 | 0,6 | 1016 | 6 |
| 1717 | 0,07 | 1179 | 0,7 | 1010 | 7 |
| 1666 | 0,08 | 1163 | 0,8 | 1004 | 8 |
| 1624 | 0,09 | 1150 | 0,9 | 1000 | 9 |
| | | | | 997 | 10 |

Ainsi, si l'on veut par exemple obtenir un spectre en énergie, pour une énergie incidente des neutrons comprise entre 200 keV et 5 MeV, le diagramme 2D est projeté uniquement entre les canaux 1024 et 1396.

Selon la statistique des transitions d'intérêt et le nombre de points en énergie où l'on souhaite calculer la section efficace, les tailles des fenêtres en temps pourront être optimisées.

Pour illustrer la différence entre deux spectres en énergie γ pour deux fenêtres en temps, la Figure 2.11 montre une portion de ce spectre, centré sur une transition d'intérêt de l' ^{233}U à $E_\gamma = 311,9$ keV. A gauche est tracé un spectre pour $E_n \in [1, 1,3]$ MeV, à droite pour $E_n \in [4, 5]$ MeV et au centre, pour une fenêtre de radioactivité, *i.e.* avant le flash- γ . Dans ce dernier cas, on remarque que la transition d'intérêt est absente du spectre. En effet, aucun neutron n'a encore atteint la cible et donc, aucune diffusion inélastique n'est possible.

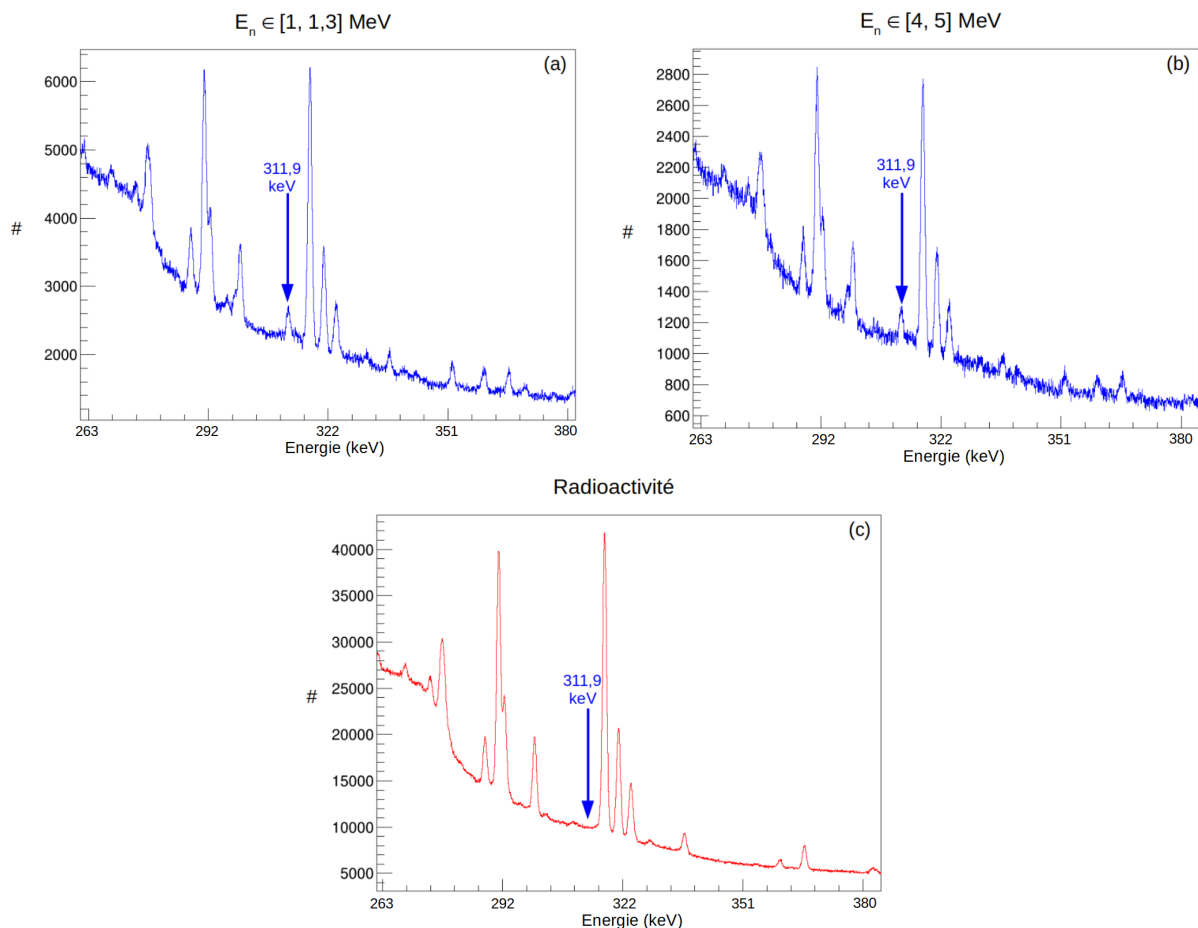


FIGURE 2.11 – Portion du spectre en énergie γ , $E_\gamma \in [260, 383]$ keV. (a) : $E_n \in [1, 1,3]$ MeV, (b) : $E_n \in [4, 5]$ MeV, (c) : fenêtre de radioactivité, avant le flash- γ .

2.3.3.3 Détermination du taux d'empilement des données

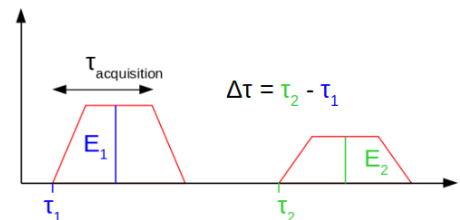
Comme mentionné plus tôt, le fort taux de comptage des détecteurs dû principalement à l'activité de la cible induit plusieurs effets à prendre en compte, notamment l'empilement des données, ou *pile-up*. Ce taux d'empilement des données est caractéristique du système d'acquisition du dispositif expérimental. A l'image de la résolution en énergie d'un détecteur, il reflète la capacité de l'acquisition à séparer ou distinguer deux événements différents dans le temps.

Une fois les fenêtres en temps constituées, il faut en déterminer le taux d'empilement moyen. Celui-ci variant au cours du temps, il faut le calculer pour chacune d'entre elles. En effet, ce taux d'empilement des données varie avec le taux de comptage des détecteurs. On comprend alors que dans une fenêtre de radioactivité, le *pile-up* est plus faible que dans un fenêtre en temps d'événements induis par neutron, événements qui s'ajoutent à ceux de la radioactivité.

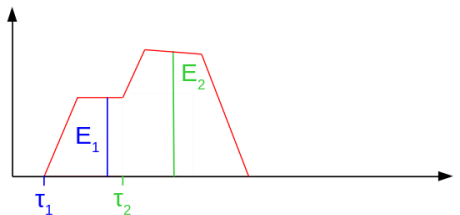
Supposons que deux rayons γ entrent dans un détecteur dans un intervalle de temps Δt , défini par $\Delta t = \tau_2 - \tau_1$, où τ_1 (resp. τ_2) est le temps de détection du rayon γ 1 (resp. le temps de détection du rayon γ 2). Le système d'acquisition prend un certain temps pour mettre en forme et analyser le signal résultant de ces deux événements. On notera ce temps caractéristique $\tau_{acq.}$. Pour GRAPHEME, ce temps est de $4 \mu s$ (détection du signal, mise en forme trapézoïdale du signal, et détermination de son temps et de son énergie, voir chapitre 3).

Trois cas de figures se distinguent :

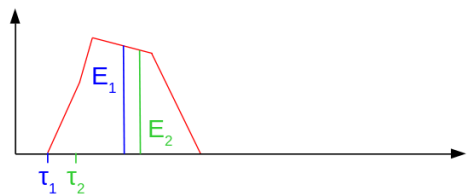
Cas où $\Delta t > \tau_{acq.}$: Les deux signaux sont correctement construits et la détermination de leur énergie peut se faire. Dans ce cas, aucun des deux événements n'est étiqueté *pile-up*.



Cas où $\Delta t \sim \tau_{acq.}$: Le deuxième signal arrive avant la fin de la construction du premier, mais après la détermination de son énergie. Ainsi, le premier événement est correctement déterminé, tandis que le second, empilé sur le premier, est étiqueté *pile-up*.



Cas où $\Delta t < \tau_{acq.}$: Le deuxième signal arrive alors même que la détermination de l'énergie du premier n'a pas pu se faire. Ni l'un ni l'autre des signaux n'a pu être correctement analysé, et les deux événements sont étiquetés *pile-up*.



Pour prendre cet effet en compte, il faut estimer ce taux d'empilement de données $\tau_{pile-up}^{Det}$, propre à chaque détecteur, en fonction de l'énergie incidente des neutrons. Pour

cela, on calcule le rapport du nombre d'événements étiquetés pile-up sur le nombre total d'événements enregistrés. Ainsi, on obtient :

$$\tau_{pile-up}^{Det} = \frac{N_{no-pile-up}}{N_{pile-up} + N_{no-pile-up}}. \quad (2.6)$$

La Figure 2.12 illustre la détermination du taux d'empilement des données pour le détecteur Bleu.

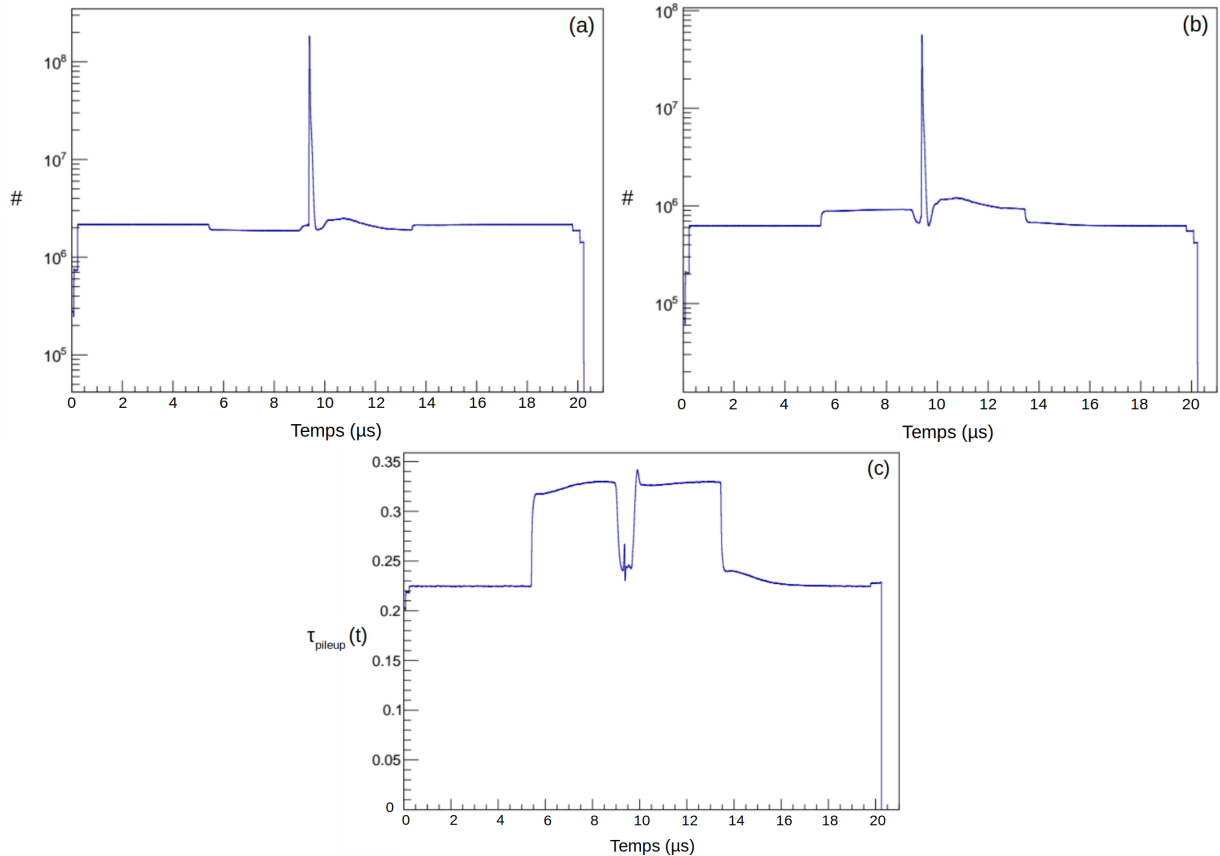


FIGURE 2.12 – Détermination du taux d'empilement des données $\tau_{pile-up}^{Bleu}$ du détecteur Bleu. (a) : spectre temps des événements non empilés, (b) : spectre temps des événements empilés et (c) : taux d'empilement des données $\tau_{pile-up}^{Bleu}$.

Le graphique 2.12a montre le spectre d'événements non empilés, le graphique 2.12b montre le spectre des événements empilés. Quant au graphique 2.12c, il trace le taux de pile-up $\tau_{pile-up}^{Det}$ en fonction du temps. On remarque que le nombre d'événements empilés est déjà non nul avant le flash- γ . En effet, la forte radioactivité de l'échantillon induit déjà de l'empilement de données. Puis, sur une plage en temps de 8 μs (4 μs de part et d'autre du flash- γ), on voit les événements empilés sous faisceau. Comme mentionné précédemment, la limite de discrimination de deux événements par le système d'acquisition est de 4 μs . Sous faisceau, le taux de comptage est plus important, d'où l'augmentation (respectivement la diminution) des événements empilés sur la Figure 2.12b (respectivement des

événements non empilés sur la Figure 2.12a). Cette valeur n'est pas constante, contrairement à la radioactivité. En effet, le flux de neutron n'est pas constant, et la montée du taux d'empilement (Figure 2.12c) correspond à la variation du nombre d'événements induits par neutrons. On observe une chute du taux d'empilement autour du flash- γ . En effet, le nombre d'événements enregistrés est tel que l'acquisition est saturée. Enfin, on voit un pic au au temps $t = 10 \mu\text{s}$. Ce pic correspond à la reprise de l'acquisition des données. Précédemment, on mentionnait le fait que le flash- γ n'est pas parfaitement gaussien mais s'étalait à haute énergie neutron. Ce pic reflète donc la somme des événements induits par neutrons et des événements provenant de la fin de la distribution du flash- γ , d'où un taux d'empilement plus élevé.

Dans le cas des mesures auprès d'actinides très radioactifs, ce taux d'empilement des données varie donc au cours du temps et doit être calculé pour les différentes fenêtres en temps considérées. Ce n'est en revanche pas le cas pour d'autres noyaux. Si l'on considère le travail de thèse d'E. Party sur l'étude des réactions (n, xn) auprès du ^{232}Th [77], les taux d'empilement qu'il a obtenus sont constants en fonction du temps, et sont globalement plus faibles que dans le cas de l' ^{233}U . A titre de comparaison, on a ici en moyenne $\langle \tau_{pile-up, 233U}^{Bleu} \rangle \sim 0,33$ et $\langle \tau_{pile-up, 232Th}^{Bleu} \rangle \sim 0,16$ dans le cas de la mesure du ^{232}Th . Ce taux d'empilement dépend également du taux de comptage du détecteur et semble évoluer avec le volume de détection, tout comme la résolution en énergie. En effet, le compteur ayant le plus gros cristal HPGe présente la moins bonne résolution en énergie mais présente également le plus haut taux d'empilement $\langle \tau_{pile-up, 233U}^{Gris} \rangle \sim 0,48$. Au contraire, le détecteur HPGe segmenté présente le moins d'empilement de données : $\langle \tau_{pile-up, 233U}^{Segmente} \rangle \sim 0,03$.

Une fois que toutes les fenêtres en temps sont sélectionnées, et le taux d'empilement des données pour chacune d'entre elles obtenu, on utilise de nouveau le logiciel ROOT pour enregistrer chacun de ces spectres, notamment au format ascii. Le logiciel d'analyse de données *gf3* [78], spécialement développé pour la spectroscopie γ avec des détecteurs Germanium, est ensuite utilisé pour déterminer le nombre de coups des transitions γ .

2.3.3.4 Extraction du nombre de coups dans les pics d'intérêts

Pour chacun des spectres obtenus, et pour chacune des transitions d'intérêt, on sélectionne une zone autour de celle-ci afin de réaliser un ajustement des données. Chaque pic est ajusté par une courbe gaussienne de valeur centrale x_0 , de largeur σ et de hauteur h . Un fond quadratique peut également être pris en compte, de paramètres A , B_x et C_{x^2} . Ces derniers peuvent éventuellement être fixés par l'utilisateur afin de contraindre l'ajustement. Aussi, on fixera généralement la largeur des pics γ . Cette largeur de pic est le reflet de la résolution en énergie du détecteur. Bien que cette dernière dépende de l'énergie γ , elle peut être supposée constante sur une faible gamme en énergie. Dans la grande majorité des cas, on a également fixé les valeurs des paramètres A , B_x et C_{x^2} afin de faciliter l'ajustement des données. Ils sont obtenus après avoir sélectionné des zones sans transitions γ en amont et en aval de la zone d'intérêt et en les reliant avec un ajustement quadratique. La Figure 2.13 montre cet ajustement du fond avec un extrait de spectre

obtenu pour le détecteur Segmenté.

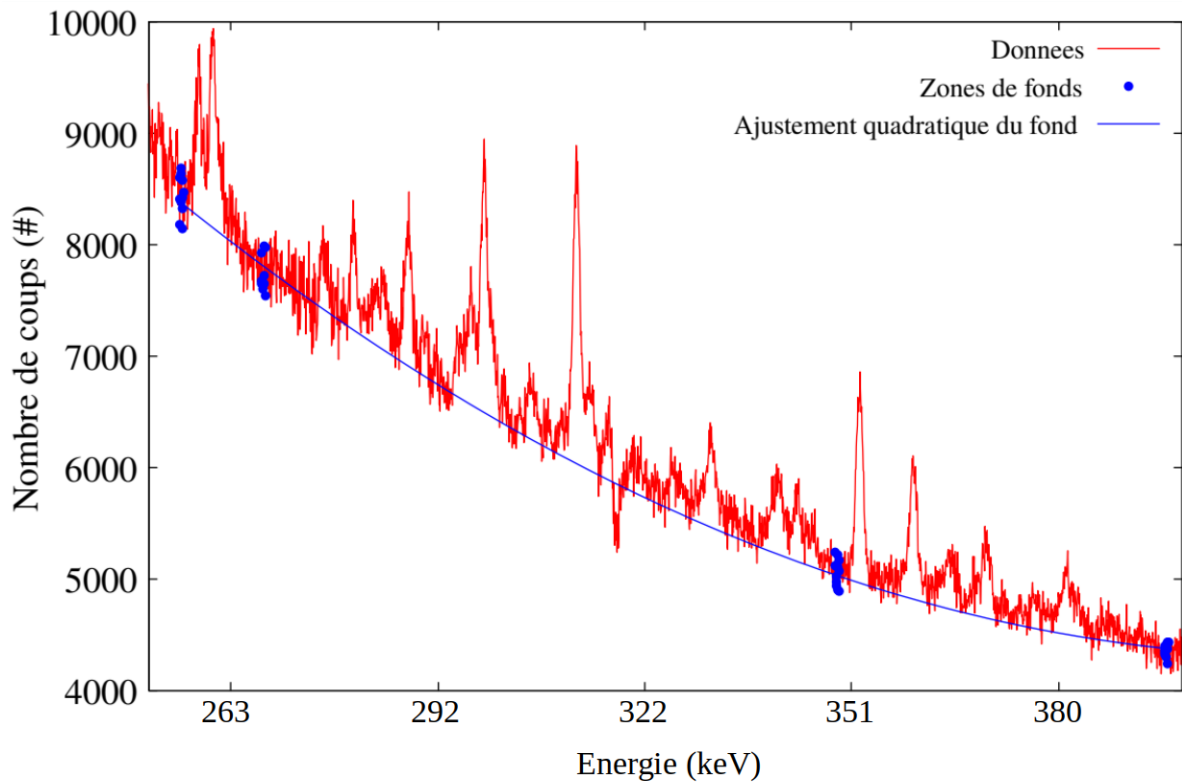


FIGURE 2.13 – Ajustement quadratique du fond sur un extrait de spectre (en rouge) autour d’une zone d’intérêt. Les points bleus correspondent aux zones de fond utilisées pour l’ajustement quadratique (courbe tracée en bleu).

Les paramètres A , B_x et C_{x^2} de cette courbe sont alors extraits, et utilisés dans le logiciel *gf3*.

Enfin, le travail d’identification de toutes les transitions permet de fixer la position x_0 des pics. Lorsque l’ajustement est réalisé, le logiciel *gf3* retourne les valeurs des paramètres de ce dernier, avec leurs incertitudes associées, ainsi qu’une donnée supplémentaire : l’aire sous le pic, correspondant au nombre de coups N_γ dans la transition.

La Figure 2.14 met en image l’ajustement des données d’une portion de spectre réalisé avec le logiciel *gf3*. Comme précédemment, la portion de spectre est tracée en rouge et l’ajustement réalisé est tracé en noir. Dans cet exemple, les paramètres x_0 et σ de chaque transition γ , ainsi que les paramètres de fond A , B_x et C_{x^2} ont été fixés et la hauteur h des pics a été ajustée. La partie inférieure de la Figure 2.14, dans l’encart noir, est une vérification renvoyée par le logiciel *gf3*. Il s’agit de la soustraction du spectre et de l’ajustement réalisé par *gf3* (*i.e.* pics + fond).

Cette opération d’extraction du nombre de coups est ainsi répétée pour l’ensemble des transitions d’intérêt et pour toutes les fenêtres en temps qui ont été réalisées. On obtient donc, par transition, un nombre d’événements détectés par fenêtre en énergie neutron $N_\gamma^{det}(E_n)$.

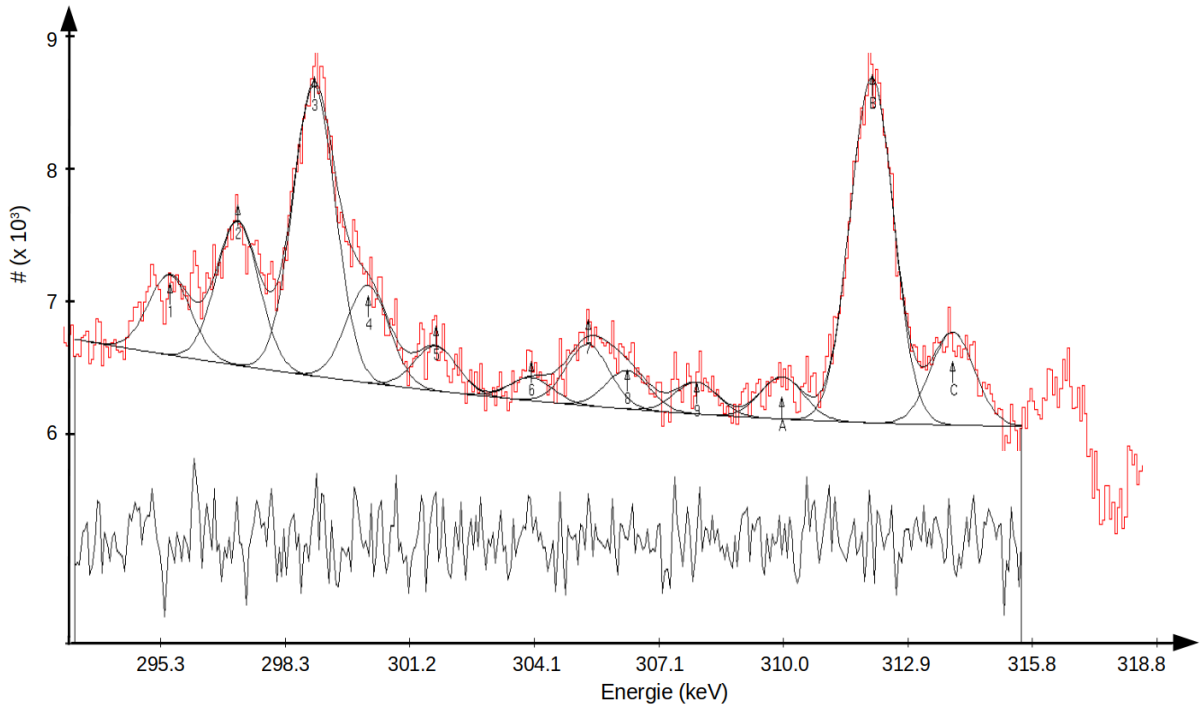


FIGURE 2.14 – Illustration de la méthode d’ajustement des données de *gf3*. 12 transitions γ ont été ajustées dans cette zone. Les paramètres x_0 et σ de chaque transition γ , ainsi que les paramètres de fond A , B_x et C_{x^2} ont été fixés

2.3.3.5 Détermination du nombre de noyaux dans la cible

Un autre paramètre crucial, souvent source de grande incertitude dans le calcul de la section efficace, doit être précisément déterminé : le nombre de noyaux de la cible considérée N_{cible} . Il faut donc s’assurer que la cible avec laquelle on fait l’expérience est bien caractérisée. Bien que le laboratoire qui la fabrique donne ses propriétés (pureté, masse, densité), il ne faut pas oublier que les noyaux qui les composent sont radioactifs. Cela implique certains noyaux se désintègrent au cours du temps. Ainsi, si la masse de la cible peut rester constante, le nombre de noyaux d’intérêts qui la compose peut varier. Pour pouvoir quantifier ce nombre exact au moment de la mesure, en s’affranchissant de sa masse, des mesures de radioactivité hors faisceau sont réalisées.

Pour illustrer cette méthode, un exemple est pris avec le noyau d’ ^{233}U . Ce noyau décroît avec émission de particules α et produit un noyau de ^{229}Th . Avec les données de structure de décroissance radioactive qui sont renseignées dans ENSDF [34], notamment les énergies et les intensités γ de ces transitions, on peut déduire le nombre de noyaux qui se sont désintégrés. Enfin, connaissant le temps de demi-vie $\tau_{1/2}$ de ce noyau et avec la loi de décroissance radioactive, la masse de la cible et donc le nombre de noyaux cible N_{cible} par unité de surface sont déduits par la formule suivante :

$$N_{cible} = \frac{N_{\gamma}^{rad}}{\varepsilon_{\gamma}^{Det} (1 - \tau_{pile-up}^{Det})} \times \tau_{\frac{1}{2}} \times \frac{1}{\ln(2)} \times \frac{1}{t_{mesure} \times I_{\gamma} \times \pi r_{cible}^2}, \quad (2.7)$$

où N_γ^{rad} est le nombre de coups dans la transition de radioactivité considérée, ε_γ^{Det} est l'efficacité du détecteur pour l'énergie associée à cette transition, $\tau_{pile-up}^{Det}$ est le taux d'empilement des données, $\tau_{\frac{1}{2}}$ est le temps de demi-vie du noyau, t_{mesure} est le temps d'acquisition des données, I_γ est l'intensité de la transition γ considérée et r_{cible} le rayon de la cible. On peut ainsi, pour chaque détecteur et pour chaque transition de radioactivité, obtenir une valeur de la masse de la cible et donc le nombre de noyaux cibles d'intérêt.

2.3.3.6 Calcul de la section efficace différentielle (n, xn γ)

Pour rappel, on a extrait des données les informations suivantes : $N_\gamma^{Det}(E_n)$ [#], N_{cible} [#·cm⁻²], $N_n^{Det}(E_n)$ [#] et $\tau_{pile-up}^{Det}$, donnant accès à la section efficace différentielle $\frac{d\sigma}{d\Omega}(E_n, \theta)$, pour une transition γ à une énergie de neutron incident donnée E_n et à un angle θ donné, dont la formule est donnée dans l'équation 2.8 (voir [79]).

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(E_n, \theta) = \frac{1}{4\pi} \times \frac{N_\gamma^{Det}(E_n)}{N_{cible} \times N_n^{Det}(E_n)} \times \frac{\varepsilon_{FC}}{\varepsilon_\gamma^{Det} \times (1 - \alpha_{air}) \times (1 - \tau_{pile-up}^{Det})} \quad [\text{b}\cdot\text{sr}^{-1}]. \quad (2.8)$$

Dans l'équation 2.8, tous les paramètres ont été décrits précédemment, à l'exception de α_{air} . Il s'agit d'un facteur correctif correspondant à l'absorption des neutrons dans l'air. En effet, si les neutrons se propagent dans le vide jusqu'à la chambre à fission, ce n'est plus le cas entre celle-ci et la cible. Se propageant alors dans l'air, certains neutrons sont diffusés et n'atteignent pas la cible d'intérêt. Une correction doit alors être appliquée pour estimer cette perte. Cette valeur a été obtenue avec des simulations MCNPX lors de précédentes campagnes de mesures [74] et vaut 1.8%.

2.3.3.7 Calcul de la section efficace totale

A partir des sections efficaces différentielles, et en prenant en compte la distribution angulaire de l'émission γ , on peut obtenir la section efficace totale (n, xn γ). N'ayant pas un dispositif couvrant l'ensemble de l'angle solide autour de la cible, les détecteurs sont placés à des angles bien spécifiques qui permettent l'intégration de la distribution angulaire.

L'expression générale pour une section efficace différentielle issue d'une réaction (n, xn γ), dans le cas d'une géométrie à symétrie cylindrique (ce qui est bien le cas pour ce type d'expérience) et pour une transition entre états de spin et de parité bien définis, est donnée comme une somme finie de polynômes de Legendre d'ordre pair [80–82] :

$$\frac{d\sigma(\theta_\gamma)}{d\Omega_\gamma} = \frac{\sigma}{4\pi} \sum_{k=0}^{[J_l]} c_{2k} P_{2k}(\cos\theta_\gamma), \quad (2.9)$$

où $[J_l]$ correspond au spin de l'état initial l qui décroît en émettant le rayonnement γ , θ_γ est l'angle entre la direction d'émission du rayon γ et la direction du faisceau et c_{2k} sont des coefficients pondérateurs. Cette section efficace différentielle peut alors être intégrée par la méthode de la quadrature de Gauss, utilisable dans le cas de polynôme de Legendre

de degré pair. Elle permet d'exprimer l'intégrale de la section efficace différentielle sur tout l'angle solide comme une somme finie pondérée. On obtient donc, pour un nombre n de détecteurs, la formule de la section efficace suivante :

$$\sigma = 2\pi \int \frac{d\sigma}{d\Omega}(x)dx = 2\pi \sum_i^n \omega_i \frac{d\sigma}{d\Omega}(x_i). \quad (2.10)$$

Dans la formule 2.10, les $x_i = \cos\theta_i$ ainsi que les coefficients ω_i dépendent du choix de n . Pour les mesures réalisées avec GRAPhEME, on a choisi de travailler avec des couples de détecteurs, *i.e.* $n = 2$. Les valeurs des angles θ_i ainsi que les poids ω_i , dans le cas où $n = 2$ sont donnés dans le Tableau 2.4.

TABLEAU 2.4 – Paramètres de la quadrature de Gauss pour $n = 2$.

| i | x_i | ω_i | θ_i° |
|---|-------|------------|------------------|
| 1 | 0,861 | 0,3479 | 31 150 |
| 2 | 0,340 | 0,6521 | 70 110 |

Enfin, la distribution angulaire des transitions γ étudiées étant symétrique, on place les détecteurs aux angles arrières, à savoir 110° et 150° par rapport à la direction du faisceau. Cela permet d'une part de ne pas les aveugler par la rétrodiffusion du flash- γ par l'échantillon et de les protéger des neutrons émis vers l'avant d'autre part. Finalement, on obtient la formule de la section efficace intégrée que nous utiliserons par la suite :

$$\sigma = 4\pi \left[w_1(= 0,3479) \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta_1 = 150^\circ) + w_2(= 0,6521) \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta_2 = 110^\circ) \right]. \quad (2.11)$$

2.4 Resimulateur

Pour les précédentes campagnes de mesure [65–68] menées auprès de GRAPhEME, la section efficace ainsi que son incertitude étaient calculées de manière déterministe, avec l'équation de calcul des incertitudes bien connue :

$$y(x_n) \pm \Delta y(x_n), \quad \Delta y(x_n) = \sqrt{\sum_i^n \left(\frac{\partial y}{\partial x_i} \right)^2 \times (\Delta x_i)^2}. \quad (2.12)$$

Cette méthode de calcul possède certains avantages, comme un temps de calcul rapide et sa facilité à être implémentée dans un code d'analyse. Cependant, réaliser ce calcul cache une hypothèse : toutes les variables x_i dont dépend la fonction y sont indépendantes, ce qui signifie qu'il n'y a pas de corrélation entre elles, ni de covariance. Si au premier ordre, cette hypothèse est correcte, les précédents résultats obtenus avec GRAPhEME en ont montré les limites [83]. E. Party dans son travail de thèse [77] a pris en compte ces covariances et les a codées manuellement.

C'est pourquoi, afin de raffiner les résultats, l'idée a germé d'une détermination statistique par méthode *Monte-Carlo* de la section efficace. En effet, une telle méthode nous

donne facilement accès aux matrices de corrélation et de covariance. G. Henning a donc implémenté dans l'analyse de données cette autre méthode de calcul de la section efficace et de son incertitude pour l'analyse des données du Tungstène [67, 83]. Dans cette méthode, chaque paramètre de la section efficace est varié aléatoirement selon une distribution gaussienne. De plus, cette méthode permet de prendre en compte la résolution en temps. Autrement dit, elle considère la variation des paramètres de conversion $\Delta t_\gamma \leftrightarrow E_n$. A chaque itération, un spectre en temps est obtenu et on en extrait le nombre de coups dans les pics d'intérêt.

Ainsi, une section efficace est calculée à chaque itération, et l'incertitude de cette dernière est donnée par l'écart type de la distribution obtenue. Les résultats sont plus réalistes que ceux obtenus par une méthode déterministe comme nous le verrons dans ce qui suit. Cependant, cette méthode repose intégralement sur le logiciel ROOT, notamment pour l'extraction du nombre de coups. Dans le cas de l' ^{233}U , l'utilisation de celui-ci est incompatible avec l'analyse de données réalisée. Comme mentionné précédemment, c'est le logiciel *gf3* qui a été utilisé pour l'extraction du nombre de coups. Aussi, une automatisation des ajustements n'est pas possible avec ce logiciel, ils doivent être fait un par un. Cependant, la méthode Monte-Carlo reste préférable à une méthode déterministe. C'est pourquoi un outil semi Monte-Carlo a été développé, appelé *Resimulateur*, afin de calculer la section efficace. Il a été codé en *Python* [84], ce qui permet d'utiliser toutes les bibliothèques existantes, notamment *numpy* [85] et *matplotlib* [86], particulièrement utilisées pour les calculs et le rendu graphique. Ainsi, les matrices de corrélations et de covariances n'ont pas eu à être implémentées manuellement dans un programme d'analyse.

Le principe de *Resimulateur* est donc le suivant : on réalise \mathcal{N} tirages aléatoires gaussiens des paramètres x_i de la section efficace, à savoir N_{cible} , α_{air} , ε_{FC} , N_n^{Det} , N_γ^{Det} , $\tau_{pile-up}^{Det}$ et ε_γ^{Det} . L'écart type de cette gaussienne est fixé et correspond à l'incertitude Δx_i associé à chaque paramètre.

Chaque tirage donne un jeu de paramètres et une valeur de section efficace est calculée à partir de chacun d'entre eux.

2.4.1 Configuration

Un fichier d'entrée est écrit pour chaque transition. Il renseigne sur le nombre d'itérations \mathcal{N} , le nombre de noyaux dans la cible N_{cible} , le facteur correctif dû à l'absorption des neutrons dans l'air α_{air} , l'efficacité de la chambre à fission ε_{FC} et l'efficacité de détection pour l'énergie de la transition γ considérée $\varepsilon_{det}(E_\gamma)$ pour chaque détecteur. Pour les différentes fenêtres en temps, des fichiers contenant les données $N_\gamma^{det}(E_n)$, $N_N^{det}(E_n)$ et $\tau_{pile-up}^{Det}(E_n)$ sont lus. Tous les paramètres cités précédemment sont donnés avec leur incertitude. Les fichiers de nombre de coups, de flux et d'empilement ont tous le format suivant : E_n , $x(E_n)$, ΔE_n , et $\Delta x(E_n)$. Enfin, on donne la valeur des coefficients ω_{110° et ω_{150° de la quadrature de Gauss, ainsi que l'ensemble des combinaisons de détecteurs possibles.

Pour un nombre d'itération suffisamment grand, d'après la loi des grands nombre, la distribution de la section efficace ainsi calculée suit une distribution gaussienne. On réalise

alors un ajustement de l'histogramme de section efficace obtenu et les paramètres de cet ajustement sont extraits : la valeur centrale de cette gaussienne est associée à la valeur de la section efficace $\sigma(E_n)$ et l'écart type donne l'incertitude de la section efficace $\Delta\sigma(E_n)$.

2.4.2 Convergence

S'agissant d'un calcul statistique, il faut en vérifier la convergence. Pour cela, la valeur centrale et l'écart type de la gaussienne obtenues sont calculées successivement, en fonction du nombre d'itérations $N_{\text{iterations}}$ (\mathcal{N}). Afin de valider ces calculs, nous avons comparé les résultats obtenus pour une section efficace de la diffusion inélastique de l' ^{238}U , pour la transition $E_\gamma = 159.018$ keV [68]. La Figure 2.15 montre les résultats de cette étude de convergence.

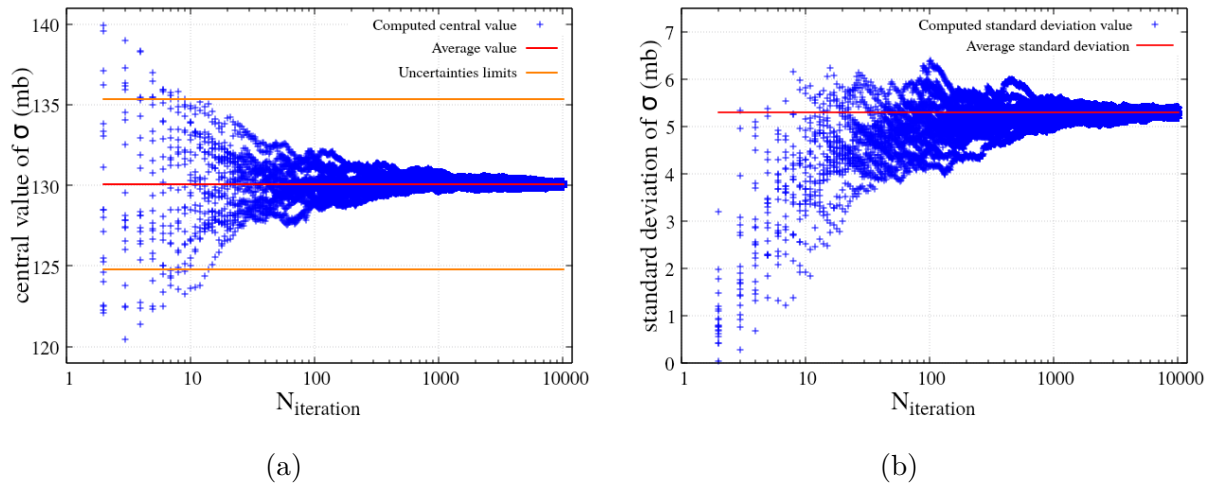


FIGURE 2.15 – Étude de la convergence des résultats de *Resimulateur* pour la valeur centrale de la section efficace de la diffusion inélastique de l' ^{238}U , pour la transition $E_\gamma = 159.018$ keV (a) et de son incertitude (b). Pour chaque valeur de $\mathcal{N} \in [1, 10^4]$, 20 résultats sont tracés (points bleus), la valeur finale retenue correspond à la ligne rouge. Sur le tracé (a), on montre également l'incertitude finale obtenue.

Pour $\mathcal{N} \in [2, 10^4]$, 20 calculs de *Resimulateur* ont été réalisés. A chaque calcul, on obtient un histogramme dont on extrait les valeurs de σ et $\Delta\sigma$. A la fin des 20 calculs, on a donc 20 valeurs de σ et $\Delta\sigma$ pour 1 valeur de \mathcal{N} . On répète l'opération en faisant varier \mathcal{N} . *In fine*, on peut étudier la convergence du calcul en reportant les 20 sections efficaces et incertitudes obtenues pour chaque valeur de \mathcal{N} sur un graphique. Les valeurs centrales (Figure 2.15a) et incertitudes (Figure 2.15b) obtenues sont représentées par les points bleus. Si pour des petites valeurs de \mathcal{N} , les résultats obtenus sont très éparés, ils convergent pour de plus grandes. Pour la valeur centrale, le calcul converge vers la valeur centrale après $\mathcal{N} \sim 10^3$. Bien que quelques variations subsistent, elles sont très inférieures aux limites de l'incertitude finale (représentées par les lignes rouges). Concernant ces dernières, les résultats convergent un peu plus lentement que précédemment. Les variations des résultats

n'évoluent plus significativement au-delà de $\mathcal{N} \sim 5 \times 10^3$. Cette dernière valeur de \mathcal{N} sera donc choisie comme valeur de référence. Le critère de convergence étant définie par l'utilisateur, et afin d'avoir une certaine marge et au prix d'un peu plus de temps de calcul ($t_{\text{calcul}} < 2h$), il a été décidé que pour les transitions de l' ^{233}U , le nombre d'itérations serait tout de même pris supérieur à cette valeur de référence. Ainsi, on prendra $\mathcal{N} \sim 10^4$.

2.4.3 Validation du code

Puisque le code converge correctement, il s'agit maintenant de valider ou non les résultats obtenus avec la méthode semi Monte-Carlo. Pour ce faire, ces résultats seront comparés avec les calculs déterministes. Nous illustrerons notre propos avec deux transitions γ de l' ^{233}U , à savoir $E_\gamma = 311,9 \text{ keV}$ et $E_\gamma = 340,477 \text{ keV}$ [87], tracées sur la Figure 2.16. En effet, ces deux transitions sont représentatives de l'ensemble des douze transitions car leur section efficace ne présente pas la même forme et elles couvrent bien les différents ordres de grandeur des sections efficaces obtenues.

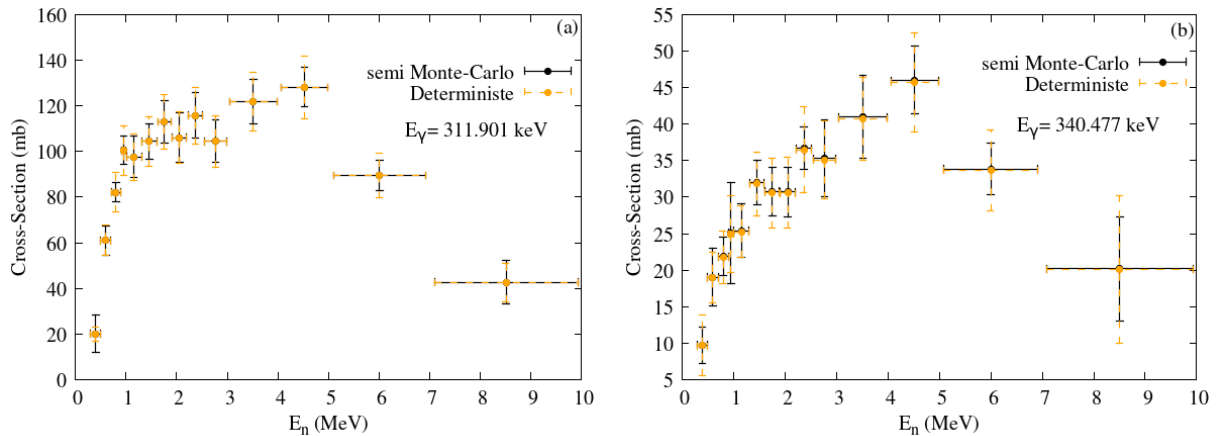


FIGURE 2.16 – Comparaison des sections efficaces et de leurs incertitudes obtenues avec les méthodes déterministe et semi-Monte-Carlo pour les transitions à $E_\gamma = 311,9 \text{ keV}$ (a) et $E_\gamma = 340,477 \text{ keV}$ (b).

Tout d'abord, on remarque que les valeurs centrales des sections efficaces sont quasiment identiques, quelle que soit la méthode utilisée. En effet, la variation de cette valeur $\frac{\langle \sigma_{sMC} - \sigma_{det.} \rangle}{\sigma_{det.}}$ est d'environ 0,2 %, ce qui est très inférieur aux incertitudes. Par conséquent, on peut affirmer que les méthodes déterministe et semi Monte-Carlo donne les mêmes valeurs de section efficaces, quelle que soit la transition observée. Cela nous permet donc de valider les calculs de *resimulateur*. La différence entre ces deux méthodes va donc se faire sur l'incertitude de la section efficace. De façon similaire, en étudiant la variation de l'incertitude $\frac{\langle \Delta\sigma_{sMC} - \Delta\sigma_{det.} \rangle}{\Delta\sigma_{det.}}$, on obtient une variation de l'incertitude de la section efficace entre 20 % et 30 % selon la statistique des transitions. De manière générale, l'incertitude est mieux décrite avec la méthode semi Monte-Carlo. En effet, prendre simplement la valeur moyenne des incertitudes obtenues pour chaque couple de détecteur

peut ne pas être très fidèle à la réalité physique. Pour illustrer ce propos, considérons le premier point non nul, entre 300 et 500 keV, des Figure 2.16a et Figure 2.16b. Dans le premier cas, on remarque que $\Delta\sigma_{sMC} > \Delta\sigma_{det.}$. En effet, ce point se trouve dans la zone de montée de la section efficace, où une petite variation en énergie fait grandement varier la section efficace. Cet effet n'étant pas pris en compte dans le calcul déterministe, on peut s'attendre à une sous estimation de l'incertitude pour ce point. Cette variation rapide de $\sigma(E_n)$ dans cette zone est en revanche mieux prise en compte dans le calcul de *resimulateur*. On observe par conséquent une augmentation de l'incertitude. De manière générale, on aura donc $\Delta\sigma_{resimulateur} > \Delta\sigma_{deterministe}$ pour les points dont la section efficace varie rapidement en fonction de l'énergie des neutrons incidents. Pourtant, ce n'est pas systématiquement le cas. Si on considère ce même point entre 300 et 500 keV pour la transition γ à 340,477 keV, sur la Figure 2.16b, on voit que la situation s'inverse. Cela est dû au manque de statistique de la transition. En effet, une des valeurs de $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ est très faible par rapport aux autres et dans le calcul déterministe, cette valeur fait augmenter drastiquement l'incertitude. Si on reprend la formule de cette incertitude (voir eq. (2.12)), on peut, dans ce cas-ci (problème linéaire) la réécrire de la façon suivante :

$$\Delta y(x_n) = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{y(x_n)}{x_i}\right)^2} \times \Delta x_i^2. \quad (2.13)$$

On voit immédiatement dans la formule 2.13 que si la valeur d'un paramètre x_i tend vers zéro, l'incertitude finale $\Delta y(x_n)$ croît très rapidement. Cela peut par exemple être le cas pour le nombre de coup d'une transition très peu intense.

L'outil *Resimulateur* permet donc de combiner un calcul statistique de la section efficace et de son incertitude avec l'utilisation du logiciel *gf3*. Ainsi, les incertitudes sont décrites de manière plus réaliste surtout pour les transitions de faible statistique. De plus, les bibliothèques *Python* permettent l'accès direct aux matrices de corrélation et de covariance.

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons pu appréhender l'impact des réactions (n, xn) dans un cœur de réacteur et combien il est important de bien les connaître. Les écarts significatifs que l'on peut observer dans les bases de données évaluées, en partie expliqués par le manque de données nucléaires expérimentales pour les contraindre, ne sont aujourd'hui plus compatibles avec le degré de précision attendu dans le cadre du développement des réacteurs du futur. Dans ce contexte, le dispositif expérimental GRAPhEME permet de répondre à ces besoins en termes de données nucléaires expérimentales précises. Combinant les méthodes du temps de vol et de la spectroscopie γ -prompte, il a d'ores et déjà permis de produire des sections efficaces (n, xn γ) pour les noyaux de ^{nat,182,183,184,186}W [67], ²³²Th [66, 77] et ^{235,238}U [65, 68].

La méthodologie de l'analyse des données exposée dans ce chapitre permet de comprendre comment extraire des sections efficaces de réactions (n, xn γ) à partir des données de GRAPhEME. Tout d'abord, une identification rigoureuse de l'ensemble des transitions

γ du spectre est requise. Dans un second temps, on constitue des spectres en temps et en énergie avec le logiciel ROOT et on calcule le taux d'empilement des données pour chacune des fenêtres en temps. Puis avec *gf3*, on extrait le nombre de coups des transitions d'intérêt. À partir de ces données, les sections efficaces partielles ($n, n_{x\gamma}$) sont obtenues. Enfin, le développement de l'outil *Resimulateur*, motivé par les résultats qu'offrent les calculs Monte-Carlo de la section efficace, permet de combiner l'analyse des données et un calcul statistique. Cette méthodologie, à l'exception du calcul semi Monte-Carlo de la section efficace, a été utilisée pour toutes les analyses de données des noyaux citées précédemment. Or, pour la première fois, la cible placée devant GRAPhEME, composée d' ^{233}U , est une cible très radioactive. Les conséquences de cette activité et l'adaptation nécessaire de la méthodologie de l'analyse de données seront présentées dans le chapitre suivant.

CHAPITRE 3

L'Uranium-233

Sommaire

| | | |
|------------|---|-----------|
| 3.1 | Introduction | 57 |
| 3.2 | L'acquisition des données avec TNT | 58 |
| 3.3 | L'alignement des données | 59 |
| 3.4 | Caractérisation expérimentale des détecteurs | 62 |
| 3.5 | Identification des transitions γ | 64 |
| 3.6 | La cible d'^{233}U | 66 |
| 3.7 | Méthodologie d'extraction du nombre de coups | 68 |
| 3.7.1 | Constitution des spectres en énergie à analyser | 68 |
| 3.7.2 | L'ajustement des données | 71 |
| 3.8 | Résultats et discussions | 72 |
| 3.8.1 | Les sections efficaces $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ | 73 |
| 3.8.2 | Discussion | 73 |
| 3.8.3 | Des sections efficaces aux intensités γ | 77 |
| 3.9 | Conclusion | 83 |

3.1 Introduction

Comme il l'a été mentionné en introduction de ce manuscrit, on s'intéresse, dans le cadre de la collaboration autour de GRAPhEME, aux noyaux des cycles de combustibles innovants surgénérateurs, à savoir les noyaux de ^{232}Th , ^{233}U , ^{238}U et ^{239}Pu . Les noyaux de ^{232}Th et d' ^{238}U de ces cycles ont fait l'objet de campagnes expérimentales précédentes car moins contraignantes, ces isotopes étant, entre autre, peu radioactifs et fertiles. L'analyse des données Thorium a été menée par Eliot Party dans le cadre de son travail de thèse et les sections efficaces de 81 transitions $(n, n'\gamma)$, 11 transitions $(n, 2n\gamma)$ et 7 transitions $(n, 3n\gamma)$ ont pu être déterminées [77]. La campagne expérimentale liée au noyau d' ^{238}U a également permis d'extraire des sections efficaces partielles $(n, xn\gamma)$ et dont les résultats ont été récemment publiés [68]. GRAPhEME était alors composé de 4 détecteurs HPGe planaires classiques. Cependant, les noyaux fissiles des cycles surgénérateurs, c'est-à-dire l' ^{233}U et le ^{239}Pu sont très radioactifs. Cela implique notamment un taux de comptage sensiblement plus élevé que dans le cas des noyaux précédents. Par taux de comptage, on parle ici d'un grand nombre de transitions γ issues de la radioactivité, ce qui induit de

nombreuses et intenses raies γ vues par les détecteurs HPGe. Pour rendre cette mesure possible, des améliorations ont été apportées à GRAPhEME. Aussi, deux détecteurs HPGe supplémentaires ont été ajoutés au dispositif expérimental et dont les caractéristiques seront données dans ce qui suit.

Ce chapitre est donc consacré à l'analyse des données de l' ^{233}U . Si le chapitre précédent décrivait de manière générale la méthodologie liée à l'analyse de données, celui-ci se focalise sur les spécificités de l'analyse des données pour ce noyau en particulier. C'est pourquoi, nous présenterons tout d'abord le système d'acquisition de données TNT [88]. Ensuite, les caractéristiques de la cible avec laquelle nous avons travaillé seront données. Puis, nous entrerons dans le détail de l'analyse de données. Les problématiques rencontrées lors de ce travail ainsi que les réponses apportées seront exposées. Enfin, nous présenterons les résultats obtenus lors cette analyse. Ils seront en revanche confrontés aux prédictions théoriques du code de réaction nucléaire TALYS [89] dans le chapitre 4.

3.2 L'acquisition des données avec TNT

La description détaillée du système d'acquisition TNT est d'ores et déjà explicitée dans trois travaux de thèse. Les thèses de S. Lukic [90], H. Karam [91] et J-C. Thiry [92] décrivent en détail leur méthode de fonctionnement. Aussi, nous ne décrivons que les principales caractéristiques de cette acquisition dans ce manuscrit. Pour rappel, 13 cartes TNT2 (donc 52 voies d'analyse) ont été utilisées pour la campagne expérimentale dédiée à la mesure de l' ^{233}U , une pour la chambre à fission et un détecteur HPGe, une pour les détecteurs HPGe classiques de GRAPhEME et onze pour les 36 pixels du détecteur HPGe segmenté. En effet, ces cartes comportent 4 voies d'acquisition des signaux, avec une fréquence d'échantillonnage de 100 MHz. Lorsque qu'un rayon γ interagit avec le cristal semi-conducteur d'un détecteur HPGe, il dépose tout ou partie de son énergie et crée des paires électrons-trous. La haute tension appliquée au cristal met en mouvement ces électrons, créant ainsi un signal dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie déposée. Ce dernier est alors amplifié, lu et les informations temps et énergie sont déterminées par les cartes. L'énergie correspondante est calculée avec la méthode des trapèzes de *Jordanov* [93]. La hauteur du signal trapézoïdal est alors proportionnelle à l'énergie de la particule incidente. Le temps quant à lui est déterminé par la méthode du CFD (Constant Fraction Discriminator). La constitution des trapèzes n'est pas instantanée et prend 4 μs à être réalisée. Si deux signaux arrivent avec un intervalle de temps inférieur à cette période, les données peuvent alors être empilées (voir chapitre 2).

De plus, l'enregistrement des données ne se fait pas en continu. En effet, les paquets de neutrons sont émis à un intervalle de 1250 μs . Or, d'après l'équation (2.3), l'énergie des neutrons est liée à leur vitesse. Aussi, dans le cas des réactions à seuil ($n, n\gamma$), une énergie minimale est requise. Dans le cas du noyau d' ^{233}U , le premier seuil correspond au 1^{er} état excité du noyau au dessus de son état fondamental, à savoir $E_{\text{excitation}} = 40,351$ keV [87], soit la réaction ($n, n'\gamma_{E_\gamma=40,351}$). Cela représente un temps de vol neutron de l'ordre de 10 μs . Il s'agit donc de sélectionner uniquement les neutrons induisant des

événements d’intérêt. Avec le très fort taux de comptage lié à l’expérience avec l’ ^{233}U , la fenêtre d’acquisition choisie est optimale pour inclure tous les événements d’intérêt tout en limitant au maximum la contribution de la radioactivité. Ainsi, la durée d’acquisition a été fixée à 20 μs autour du flash- γ .

3.3 L’alignement des données

La campagne de mesure de l’ ^{233}U a débuté en 2014 et a pris fin en 2017, pour un total de 56 semaines de prise de données, correspondant à 4794 heures d’acquisition. Les longues périodes d’acquisition comme celle-ci requièrent un travail préliminaire minutieux de vérification de la stabilité des données enregistrées. Il a été notamment constaté le dysfonctionnement de certaines cartes. On peut noter par exemple des problèmes de synchronisation entre les cartes sur cette très longue période. Au final, trois lots de données ont été constitués à partir des 6 détecteurs de GRAPhEME. Le Tableau 3.1 donne pour chacun des lots les détecteurs et les temps d’acquisition associés.

TABLEAU 3.1 – Lots de données constitués pour l’étude des réactions (n, xn γ) de l’ ^{233}U . À chaque lot est associé les détecteurs auxquels ils correspondent et le temps d’acquisition correspondant.

| lot | Détecteurs | Temps d’acquisition (h) |
|-----|------------------------------|-------------------------|
| 1 | Gris - Vert - Rouge - Violet | 4519 |
| 2 | Bleu | 3865 |
| 3 | Segmenté | 3823 |

Ainsi, nous avons pu utiliser entre 80 % et 94 % des données, selon les détecteurs, pour cette campagne expérimentale.

De plus, nous n’avons pas pu utiliser l’ensemble des données du détecteur Germanium segmenté. En effet, les données provenant de 2 cartes d’acquisition du détecteur HPGe segmenté ont dû être retirées¹. Ainsi, les données collectées de 28 des 36 pixels ont pu être exploitées. La Figure 3.1 montre une photo de la face avant du détecteur HPGe segmenté 3.1a ainsi qu’une carte des pixels dont les données ont pu être utilisées (en vert) ou non (en rouge) 3.1b.

Une fois la sélection des lots de données effectuée, il faut vérifier la stabilité des données concernant le temps et l’énergie des événements. La Figure 3.2 illustre cette instabilité du temps en traçant la position en canal du flash- γ en fonction de la semaine de mesure pour les détecteurs d’une carte.

On distingue sur la Figure 3.2a trois zones bien distinctes pour les 4 détecteurs Gris, Vert, Bleu et Rouge. Les "sauts" de la position du flash γ correspondent à des interventions sur le dispositif expérimental (changement d’un câble par exemple). Mais si l’on regarde

1. Pour ces cartes, seul le signal T_0 a été enregistré. Cela est dû à un problème de démarrage des cartes, dont l’origine n’a pas pu être déterminée.

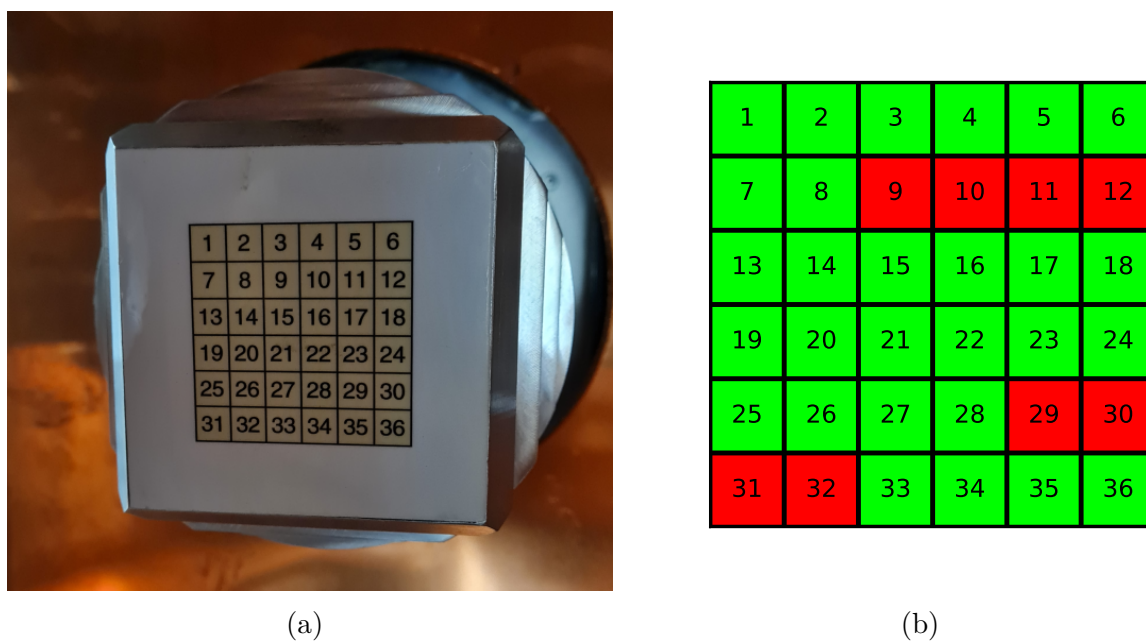


FIGURE 3.1 – (a) : Face avant du détecteur HPGe segmenté; (b) : cartes des pixels du détecteur HPGe segmenté. Les pixels coloriés en vert sont ceux dont les données ont pu être exploitées et en rouge, ceux dont les données ont été écartées.

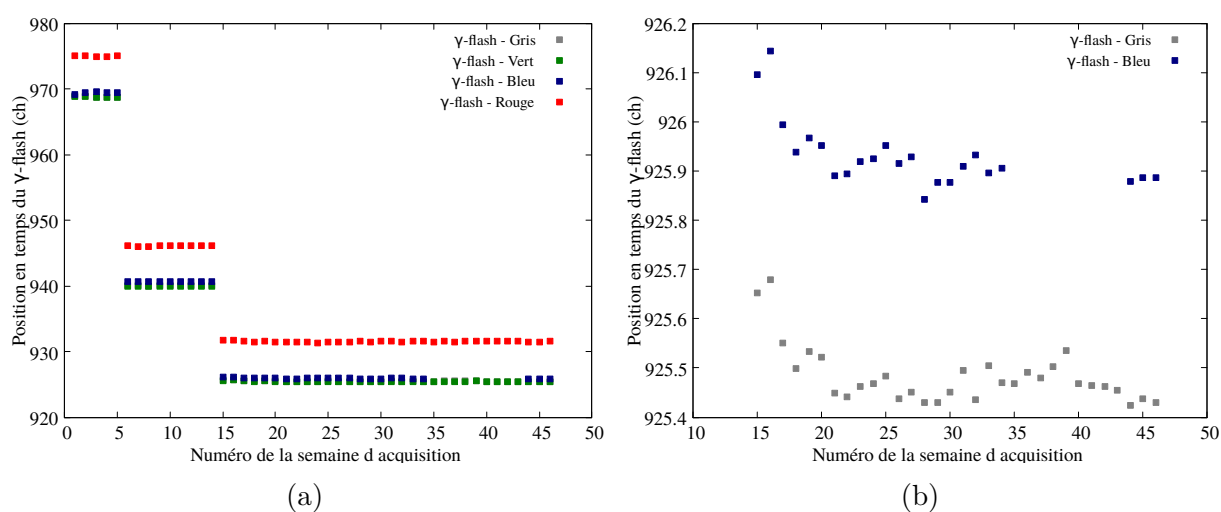


FIGURE 3.2 – Mesure de la position du canal du flash- γ en fonction de la semaine d'acquisition, illustrant l'instabilité de l'acquisition des données durant la campagne de mesure. (a) : position du flash- γ pour les 4 détecteurs Gris, Vert, Bleu et Rouge sur l'ensemble de l'acquisition. (b) : position du flash- γ pour les détecteurs Gris et Bleu uniquement, zoomée sur la dernière période de mesure.

plus en détail ce graphique sur la troisième zone par exemple, on obtient la Figure 3.2b, tracée pour les détecteurs Gris et Bleu. On remarque que, même si l'opérateur n'intervient pas sur le dispositif expérimental, des instabilités sont présentes et doivent être corrigées.

En effet, pour pouvoir analyser les données provenant de ces lots, il faut pouvoir les sommer et donc procéder à un ré-alignement des données en temps. La Figure 3.3 montre un extrait du spectre en temps, centré sur le flash- γ pour le détecteur Vert tracé avant et après l'alignement des données en temps. On reconnaît les trois zones de la figure 3.2a sur la courbe rouge.

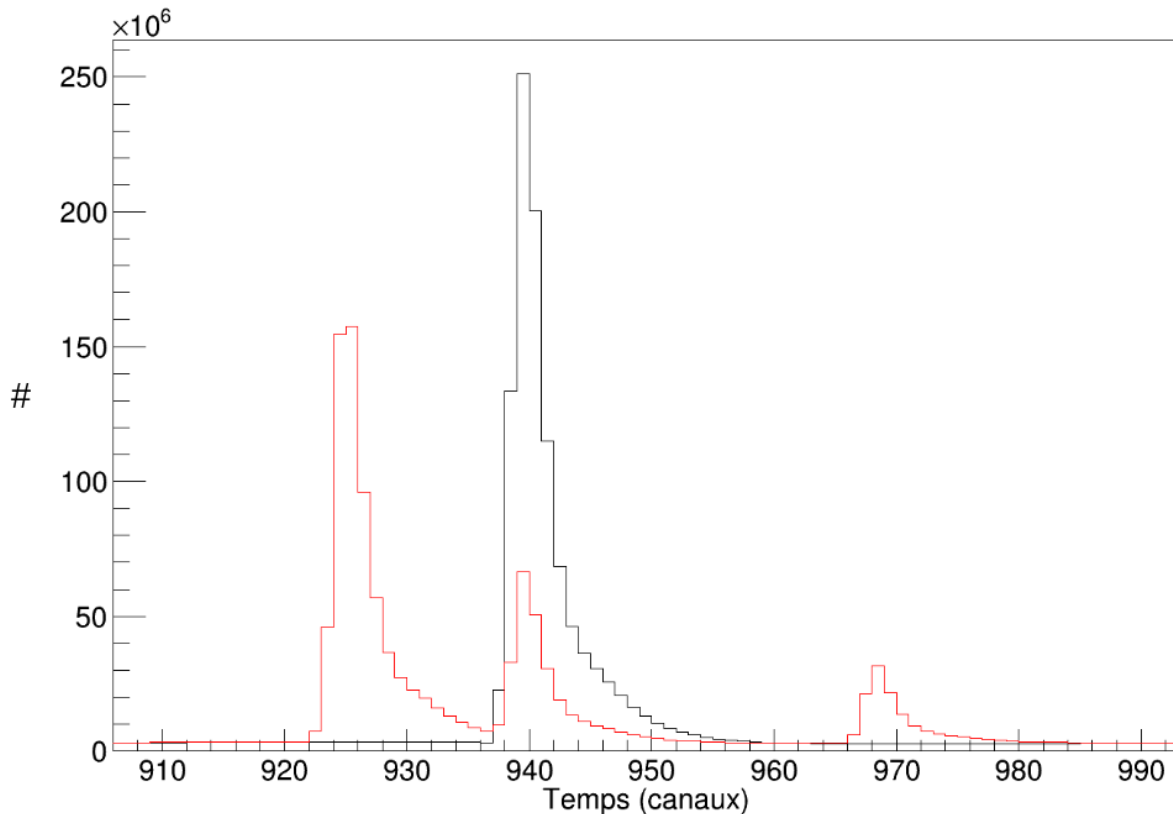


FIGURE 3.3 – Spectre en temps, centré sur le flash- γ pour le détecteur Vert avant (en rouge) et après (en noir) l'alignement en temps.

Ce travail d'alignement en temps, *i.e.* une translation en temps de la position du flash- γ , est effectué pour tous les détecteurs planaires et pour les pixels du détecteur segmenté.

Un travail similaire doit être réalisé pour les spectres en énergie. La différence avec l'étape précédente réside dans le fait qu'il y a également un ajustement en gain à réaliser. Ainsi, pour aligner les données, il faut appliquer une transformation linéaire aux différents spectres. Pour ce faire, trois transitions γ ont été sélectionnées : une transition à 59,54 keV, une autre à 463,04 keV et une dernière à 1014,6 keV. Pour tous les détecteurs et pixels et pour chaque semaine retenue lors de la constitution des lots de données, la position en canal de ces trois transitions a été extraite par un ajustement gaussien de ces dernières. Connaissant l'énergie en keV de ces transitions, on a alors un étalonnage linéaire du spectre et on peut l'étalonner en énergie. Pour des raisons de commodité, les nouvelles positions de ces trois transitions ont été fixées à un canal identique pour tous les spectres.

À la fin de cette optimisation des données, on obtient donc 6 diagrammes bi-dimensionnels alignés en temps et en énergie, desquels on peut extraire un spectre en temps et un spectre en énergie.

3.4 Caractérisation expérimentale des détecteurs

La grande nouveauté de cette campagne expérimentale réside dans le fait que la cible est très radioactive, ce qui implique un taux de comptage très élevé et inédit pour GRA-PhEME. Cela influe sur le taux d'empilement des données et sur la résolution en énergie des détecteurs. En effet, les résolutions données dans le Tableau 2.2 sont issues de conditions expérimentales optimales choisies par le constructeur. Une étude de la résolution en énergie a donc été réalisée en amont de l'analyse des données.

Pour réaliser cette étude, les mêmes trois transitions γ que pour l'alignement de données ont été choisies, à savoir pour rappel 59,54 keV, 463,04 keV et 1014,6 keV. Elles ont été sélectionnées car elles couvrent différentes gammes en énergie du spectre γ et sont suffisamment isolées pour pouvoir être ajuster facilement. Ces trois transitions sont donc ajustées par des courbes gaussiennes et la largeur de ces pics donne la résolution en énergie. Les analyses de données précédentes [77, 91, 92] ont montré que l'alignement et la somme des données pour les détecteurs planaires classiques ne dégradent pas la résolution en énergie. Elle a donc été extraite pour ces détecteurs depuis le spectre sommé en énergie. Toutefois, il a fallu s'en assurer pour le détecteur HPGe segmenté. C'est pourquoi une étude plus fine a été réalisée pour ce dernier. Trois lots de données correspondant à trois différentes semaines d'acquisition réparties sur l'ensemble de la campagne expérimentale, commun aux 36 pixels, ont été sélectionnés. Les résolutions en énergie pour les transitions γ à 59,54 keV et 463,04 keV ont été extraites pour chacun d'eux à l'aide du logiciel *ROOT*. La valeur moyenne de ces résolutions en énergie (croix rouge sur la Figure 3.4) a été ensuite comparée à la résolution en énergie en utilisant le spectre obtenu par sommation des spectres des 36 pixels (losange gris sur la Figure 3.4). Si l'on remarque que l'incertitude de l'ajustement de cette dernière résolution est très inférieure à celle de la valeur moyenne (plus de statistique dans le spectre sommé que dans les spectres provenant d'une semaine seulement), les valeurs des résolutions en énergie à 59,54 keV et à 463,04 keV sont très proches, avec un écart inférieur à 1%.

De cette étude, nous concluons que le fait de sommer et d'aligner ces données pour obtenir un spectre en énergie unique pour le détecteur segmenté ne dégrade pas la résolution en énergie des pixels pris individuellement. C'est pourquoi cette dernière, pour la transition γ à 1014,6 keV, a été directement extraite à partir du spectre total.

Pour conclure sur la résolution en énergie, le Tableau 3.2 donne les résolutions en énergie pour tous les détecteurs utilisés dans le cadre de cette campagne expérimentale.

Cette étude de la résolution a également mis en lumière une problématique liée au fort taux de comptage : la déformation des pics sur les détecteurs planaires classiques, illustrée sur la Figure 3.5.

Si pour le détecteur segmenté le pic de la transition γ est bien gaussien, ce n'est pas

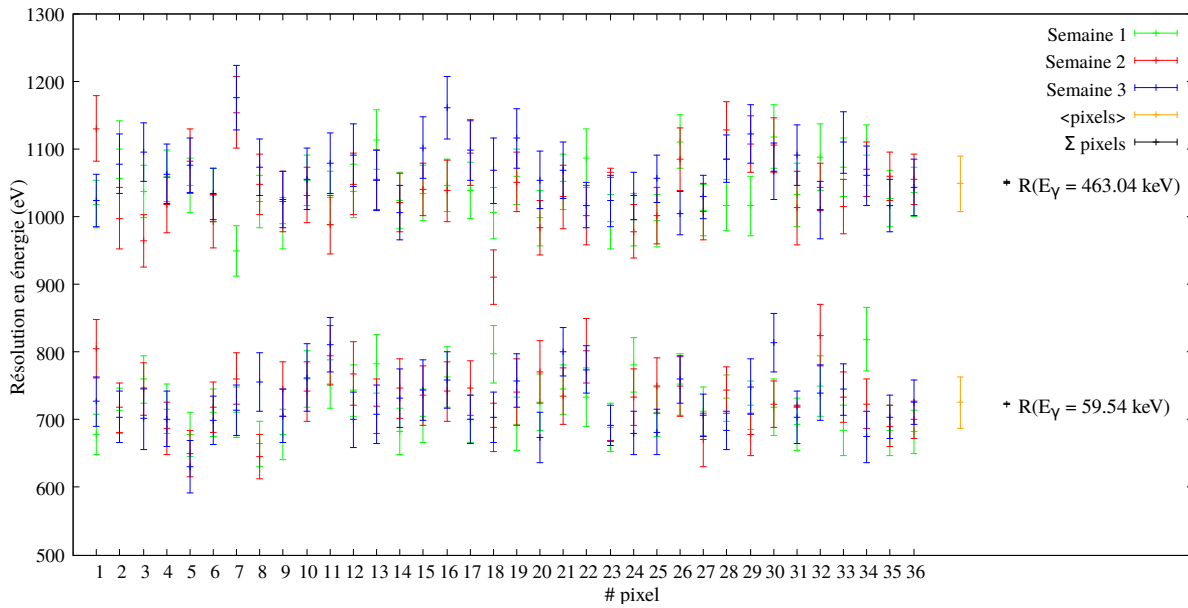


FIGURE 3.4 – Étude de la résolution en énergie pour les 36 pixels du détecteur HPGe segmenté. Pour les 2 transitions à 59,54 keV et 463,04 keV, cette grandeur ainsi que l'incertitude de l'ajustement sont tracées pour les trois lots de données sélectionnées en fonction des pixels. La croix rouge représente la valeur moyenne de cette résolution en énergie pour tous les pixels et pour ces trois lots de données. La croix grise donne la valeur de la résolution en énergie correspondant à la somme des pixels.

TABLEAU 3.2 – Résolutions en énergie des détecteurs obtenues pour la campagne de mesure de l' ^{233}U . Cette grandeur est donnée pour trois énergies γ : 59,54 keV, 463,04 keV et 1014,6 keV. Ces valeurs correspondent aux paramètres de l'ajustement du pic avec une courbe gaussienne. Les résolutions en énergie sont données en keV.

| Détecteur | $R(E_\gamma = 59,54 \text{ keV})$ | $R(E_\gamma = 463,04 \text{ keV})$ | $R(E_\gamma = 1014,6 \text{ keV})$ |
|-----------|-----------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|
| Gris | 1,98 | 2,05 | 2,24 |
| Vert | 1,31 | 1,67 | 1,96 |
| Bleu | 1,33 | 1,76 | 2,22 |
| Rouge | 1,54 | 1,71 | 1,97 |
| Violet | 0,85 | 1,35 | 1,61 |
| Segmenté | 0,72 | 1,05 | 1,32 |

le cas pour celui obtenu avec les autres détecteurs. Sur ces derniers, les pics s'étalent sur la droite *i.e.* à haute énergie. Nous avons identifié deux propriétés de cette déformation. Premièrement, comme on peut le voir sur la Figure 3.5, elle varie en fonction du détecteur (cela est sans doute lié à la taille du cristal Ge). Deuxièmement, elle semble varier avec le taux de comptage. En effet, dans une fenêtre de radioactivité, les pics sont moins déformés que dans une fenêtre en énergie cumulant radioactivité et neutrons incidents. Ainsi, les résolutions en énergie présentées dans le Tableau 3.2 sont données avec un ajustement

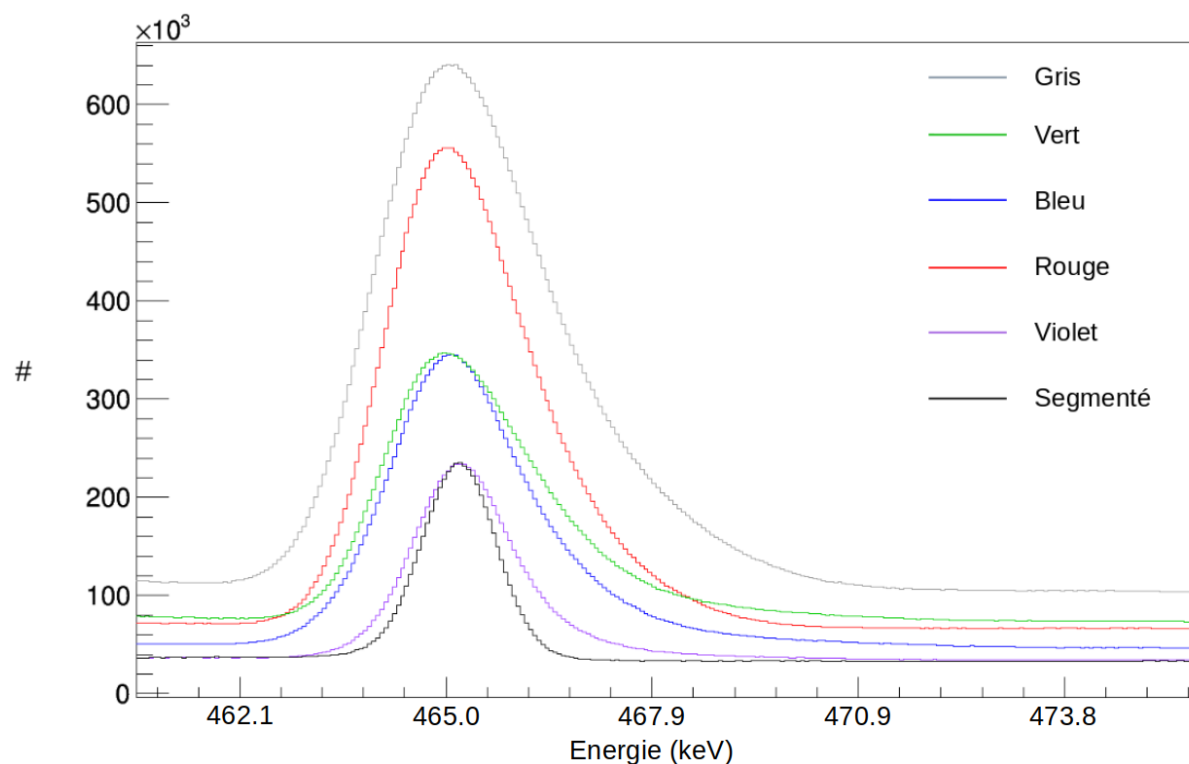


FIGURE 3.5 – Illustration de la déformation des pics γ pour les détecteurs planaires classiques. Pics de la transition à 463,06 keV obtenu avec les détecteurs classiques Gris, Vert, Bleu, Rouge et Violet, comparé avec le pic obtenu avec le détecteur segmenté.

gaussien des données prenant en compte uniquement la montée et le maximum du pic. Afin de prendre en compte cette déformation, nous avons essayé d'ajuster les transitions avec la somme d'une courbe gaussienne avec des fonctions exponentielles, sans résultats concluants. Nous verrons par suite que pour répondre à cette problématique, nous avons décidé de soustraire la composante de radioactivité des spectres.

Cette impossibilité de pouvoir réaliser correctement l'ajustement des données avec une courbe gaussienne a plusieurs conséquences qui seront détaillées au fur et à mesure que les méthodes d'analyse de données seront présentées.

3.5 Identification des transitions γ

La très bonne résolution en énergie offerte par le détecteur HPGe segmenté a été un atout nécessaire lors de cette analyse de données. Au total, ce sont 390 transitions γ qui ont été identifiées grâce à la base de données ENSDF [34]. Parmi elles, on retrouve des transitions provenant de la radioactivité de la cible, de la désexcitation des produits de fission émis après les réactions $^{233}\text{U}(n, f)$, des rayons X provenant du blindage, de la diffusion inélastique de neutrons avec les noyaux composant le dispositif expérimental (cuivre, Cadmium, Plomb, Germanium, Aluminium, Téflon) et les transitions d'intérêt $^{233}\text{U}(n, xn\gamma)$. Bien que cette expérience ait été motivée en premier lieu par l'étude de

la réaction $(n, 2n)$ sur le noyau d' ^{233}U pour des raisons de radioprotection (pour rappel, émission d'un rayon γ très énergétique en fin de chaîne de décroissance radioactive de l' ^{232}U formé lors de cette réaction [34]), aucune section efficace $(n, 2n\gamma)$ n'a pu être obtenue. En effet, les transitions d'intérêt pour cette réaction ont, pour la plupart, la même énergie que des transitions issues de produits de fission ou de radioactivité qui, dans ces deux cas, sont plus intenses. De plus, malgré la soustraction du "bruit de fond" qui est opérée lors de l'extraction du nombre de coup des transitions d'intérêt, leur faible statistique fait qu'elle ne sont pas visibles.

In fine, ce sont 12 transitions $(n, n'\gamma)$ d'intérêt qui ont été identifiées. La Figure 3.6 montre une portion de spectre γ du détecteur segmenté (somme des 28 pixels) dans une zone en énergie comportant plusieurs transitions de l' ^{233}U , pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV. Le spectre est tracé en rouge, l'ajustement en noir et donne pour chaque transition γ identifiée son énergie, son identification et l'intégrale sous le pic ainsi que l'incertitude associée. Les énergies et identification données proviennent de la base de données ENSDF [87]. Les transitions issues de produits de fission sont tracées en bleu, les transitions issues du dispositif expérimental sont tracées en orange et les transitions d'intérêt $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ sont tracées en rouge.

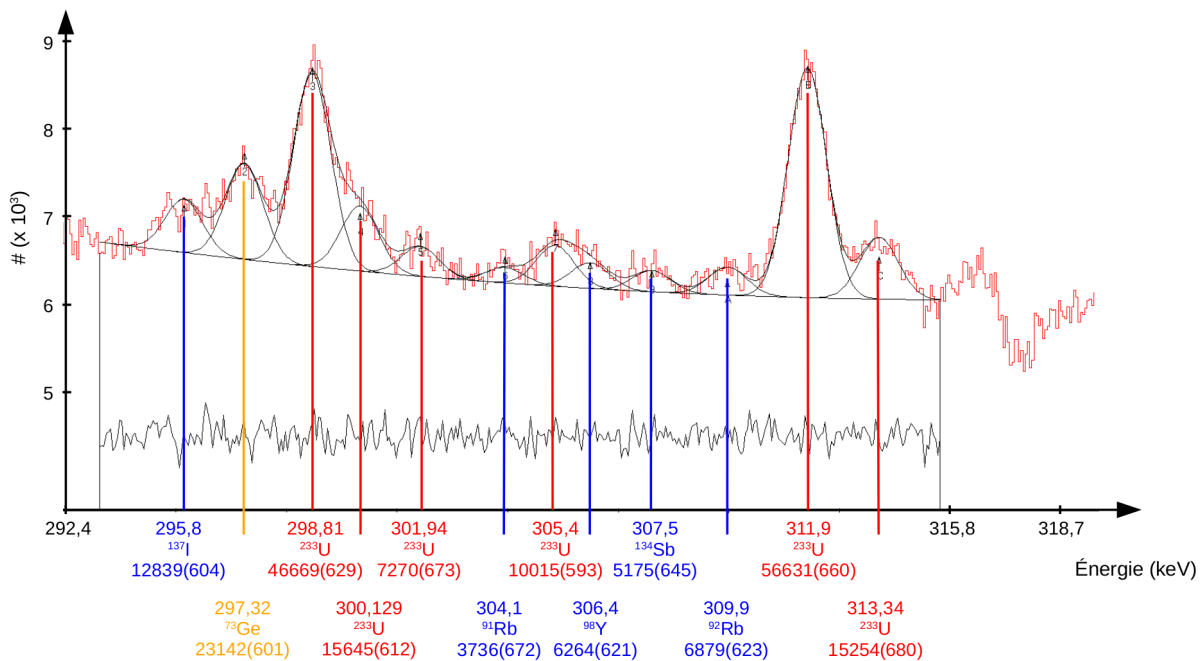


FIGURE 3.6 – Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 292.4 et 318.7 keV. Les transitions issues de produits de fission sont tracées en bleu, les transitions issues du dispositif expérimental sont tracées en orange et les transitions d'intérêt $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ sont tracées en rouge.

Les autres spectres contenant les ajustement de l'ensemble des transitions d'intérêt identifiées sont donnés dans l'annexe B.

Les informations liées à l'ensemble des transitions de l' ^{233}U sont renseignées dans le Tableau 3.3.

TABLEAU 3.3 – Tableau récapitulatif des transitions γ issues de réactions de diffusion inélastique sur le noyau d' ^{233}U . Pour chacune d'elles, on donne son énergie, les énergies et spin/parité des niveaux dont elle provient (état initial) et qu'elle alimente (état final), son intensité γ et sa multipolarité. Les incertitudes des énergies des transitions et des niveaux sont données entre parenthèses. L'incertitude des énergies des transitions mesurées correspond à la résolution en énergie du détecteur HPGe segmenté à cette énergie. Les autres données proviennent de [87].

| E_γ (keV) Mesurée | E_γ (keV) Données de [87] | État initial | | État final | | I_γ | M_γ |
|-----------------------------|-------------------------------------|---------------------|--------------|---------------------|-------------|-----------------|------------|
| | | J^π (\hbar) | E_i (keV) | J^π (\hbar) | E_f (keV) | | |
| 260.6 (9) | 261.4 (2) | $(\frac{5}{2}^-)$ | 301.94 (9) | $\frac{7}{2}^+$ | 40.351 (7) | 100 | / |
| 280.5 (9) | 280.58 (5) | $\frac{7}{2}^-$ | 320.77 (5) | $\frac{7}{2}^+$ | 40.351 (7) | 100 ± 12 | / |
| 288.2 (9) | 288.33 (10) | $(\frac{7}{2}^+)$ | 380.38 (8) | $\frac{9}{2}^+$ | 92.15 (4) | 100 ± 10 | / |
| 298.9 (9) | 298.81 (2) | $(\frac{5}{2}^-)$ | 298.815 (10) | $\frac{5}{2}^+$ | 0.0 | 100.0 ± 2.5 | / |
| 300.2 (9) | 300.128 (10) | $\frac{5}{2}^+$ | 340.378 (6) | $\frac{7}{2}^+$ | 40.351 (7) | 100.0 ± 1.0 | M1+E2 |
| 301.8 (9) | 301.99 (10) | $(\frac{5}{2}^-)$ | 301.94 (9) | $\frac{5}{2}^+$ | 0.0 | 67 | / |
| 305.4 (9) | 305.4 (2) | $\frac{3}{2}^+$ | 397.55 (21) | $\frac{9}{2}^+$ | 92.15 (4) | 100 | / |
| 312.0 (9) | 311.901 (10) | $\frac{3}{2}^+$ | 311.906 (6) | $\frac{5}{2}^+$ | 0.0 | 100.0 ± 1.0 | M1+E2 |
| 313.9 (9) | 313.34 (20) | $\frac{9}{2}^-$ | 353.78 (12) | $\frac{7}{2}^+$ | 40.351 (7) | 100 ± 6 | / |
| 340.8 (9) | 340.477 (10) | $\frac{5}{2}^+$ | 340.378 (6) | $\frac{5}{2}^+$ | 0.0 | 67.9 ± 0.7 | M1+E2 |
| 376.9 (9) | 375.407 (10) | $\frac{3}{2}^+$ | 415.761 (7) | $\frac{7}{2}^+$ | 40.351 (7) | 39.1 ± 0.4 | E2 |
| 415.4 (9) | 415.764 (10) | $\frac{3}{2}^+$ | 415.761 (7) | $\frac{5}{2}^+$ | 0.0 | 100.0 ± 1.1 | M1+E2 |

3.6 La cible d' ^{233}U

L'identification de l'ensemble des transitions γ a permis une caractérisation plus approfondie de la cible d' ^{233}U utilisée pour cette campagne expérimentale. Cette cible vient du SCK-CEN (Studie Centrum voor Kernenergie) de Mol, en Belgique [94]. Elle se présente sous la forme d'une pastille métallique qui a été découpée par poinçonnage à l'EC-JRC Geel. Ce disque possède un diamètre de 30 mm et une épaisseur de 640 μm , pour une masse totale de 8.1936 g (données du SCK-CEN). Cette plaque est stockée dans un conteneur étanche à l'air. La pastille y a été insérée sous une hotte spécifique avec un appareillage dédié. La Figure 3.7 présente les photos des faces avant et arrière de ce support dans lequel se trouve la cible d' ^{233}U .

Comme il l'a été montré dans le chapitre 2 (voir eq. 2.7), on peut déterminer la masse en ^{233}U (*i.e.* le nombre de noyaux de la cible) à l'aide des transitions γ provenant de la radioactivité. Ainsi, 5 rayons γ provenant du noyau de ^{229}Th ont été sélectionnés pour le calcul de la masse en ^{233}U de la cible. Les énergies de ces 5 transitions, avec leur intensité γ respective, sont données dans le Tableau 3.4.

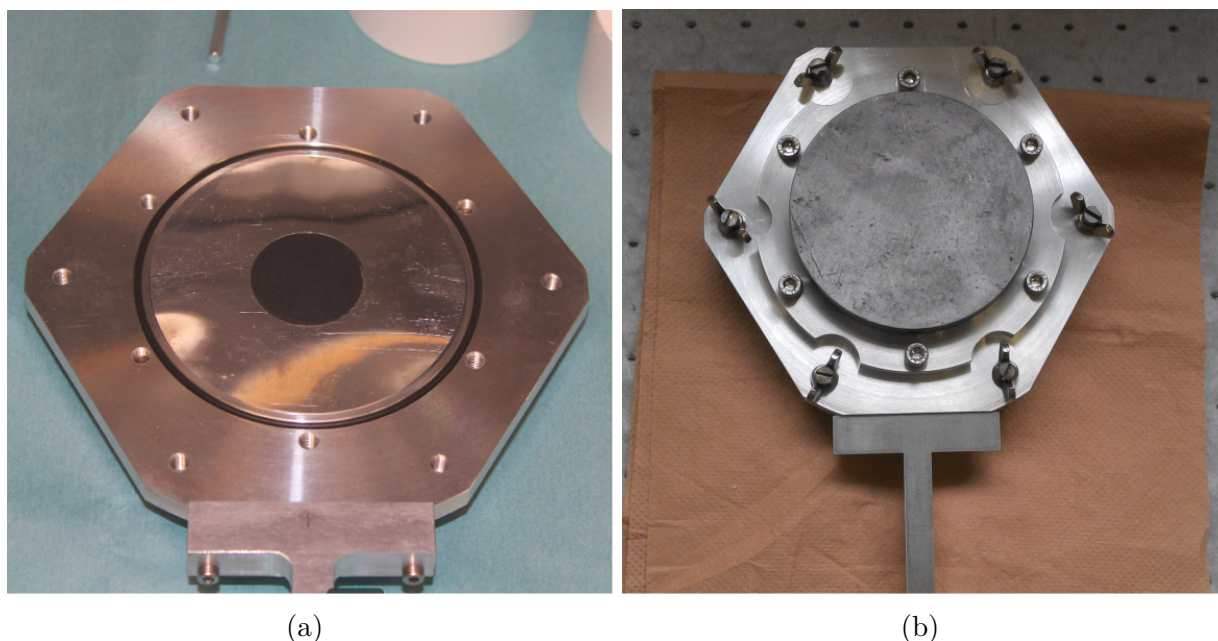


FIGURE 3.7 – Photos de la cible d' ^{233}U dans son support. (a) : face avant ; (b) : face arrière.

TABLEAU 3.4 – Liste des transitions γ du ^{229}Th utilisées pour le calcul de la masse réelle d' ^{233}U . Pour chacune d'elles sont renseignées leur énergie, leur intensité et les incertitudes associées. Données provenant de [95].

| Énergie (keV) | I_γ | ΔI_γ |
|---------------|------------|-------------------|
| 245.350 (1) | 0.00357 | 0.00018 |
| 317.169 (2) | 0.00710 | 0.0004 |
| 320.547 (1) | 0.00278 | 0.00014 |
| 336.63 (1) | 0.00058 | 0.00003 |
| 365.820 (3) | 0.00077 | 0.00004 |

En raison de la déformation des pics obtenus avec les détecteurs planaires classiques, l'extraction du nombre de coups n'a été faite que pour les pixels du détecteur segmenté. Cependant, puisque les γ de la radioactivité sont émis de manière continue et isotrope, la masse obtenue est indépendante de l'angle auquel est placé le détecteur. Une masse a donc été extraite pour tous les pixels et pour toutes les transitions γ citées dans le Tableau 3.4. La masse est ici calculé pour les 36 pixels. On obtient alors 36 (pixels) \times 5 (transitions) valeurs de $m \pm \Delta m$. En admettant que chacun des pixels peut être considéré comme une détecteur indépendant, on a alors un échantillon de $N = 180$ variables aléatoires de masse indépendante m_i , chacune d'elle entachée d'une incertitude σ_{m_i} . La valeur moyenne $\langle m \rangle$ et l'incertitude associée $\langle \sigma_m \rangle$ d'une telle quantité peut alors s'exprimer comme

définit par l'équation (3.1) :

$$\langle m \rangle = \frac{\sum_i^N (m_i / \sigma_{m_i}^2)}{\sum_i^N (1 / \sigma_{m_i}^2)}, \quad \langle \sigma_m \rangle = \frac{1}{\sqrt{\sum_i^N (1 / \sigma_{m_i}^2)}}. \quad (3.1)$$

En toute rigueur, les masses obtenues pour chacun des détecteurs ne sont pas strictement indépendantes car tous les coups détectés proviennent de la même cible. On corrigera donc l'incertitude de la masse moyenne en prenant en compte l'écart-type de la moyenne $\sigma_{\langle m \rangle} = \sqrt{\frac{1}{N-1} (m_i - \langle m \rangle)^2}$. On aura alors $\Delta m = \sqrt{(\langle \sigma_m \rangle)^2 + (\sigma_{\langle m \rangle})^2}$.

On obtient finalement pour la masse de la cible d' ^{233}U , ainsi que le nombre d'atomes qui la compose par unité de surface les données suivantes :

$$m_{233\text{U}} = 7,85(5) \text{ g}, \quad N_{233\text{U}} = 2.87(1) \times 10^{21} \text{ noyaux.cm}^{-2}. \quad (3.2)$$

3.7 Méthodologie d'extraction du nombre de coups

Le fort taux de comptage et l'empilement élevé des données ont représenté la plus grande difficulté de cette analyse de données. En effet, même corrigées de l'effet d'empilement introduit dans le chapitre précédent, les pics des transitions γ des détecteurs HPGe classiques sont déformés. C'est pourquoi une méthodologie spécifique à l'étude des transitions d'intérêt de l' ^{233}U a été mise en place, elle est décrite dans les paragraphes suivants.

3.7.1 Constitution des spectres en énergie à analyser

La Figure 3.8 illustre la difficulté de l'extraction du nombre de coups. En effet, les transitions du spectre en énergie γ sont très nombreuses même dans les zones d'intérêt. Elle montre un extrait du spectre en énergie $E_\gamma \in [268, 343] \text{ keV}$, dans une fenêtre en temps correspondant à $E_n \in [0.1, 10] \text{ MeV}$. Ce spectre est obtenu avec le détecteur HPGe segmenté. Ont été identifiés dans cette zone 28 raies de radioactivité (en noir), 7 rayons γ provenant de produits de fission (en bleu), un front *compton* d'une transition γ très intense à 440 keV (en orange) et 6 transitions issues de la diffusion inélastique du neutron sur l' ^{233}U (en rouge).

Il semble important de préciser ici que ce spectre a été obtenu avec le détecteur HPGe segmenté qui offre une très bonne résolution en énergie et des pics non déformés. Si on trace la même portion de spectre avec le détecteur Gris par exemple, on obtient alors la Figure 3.9.

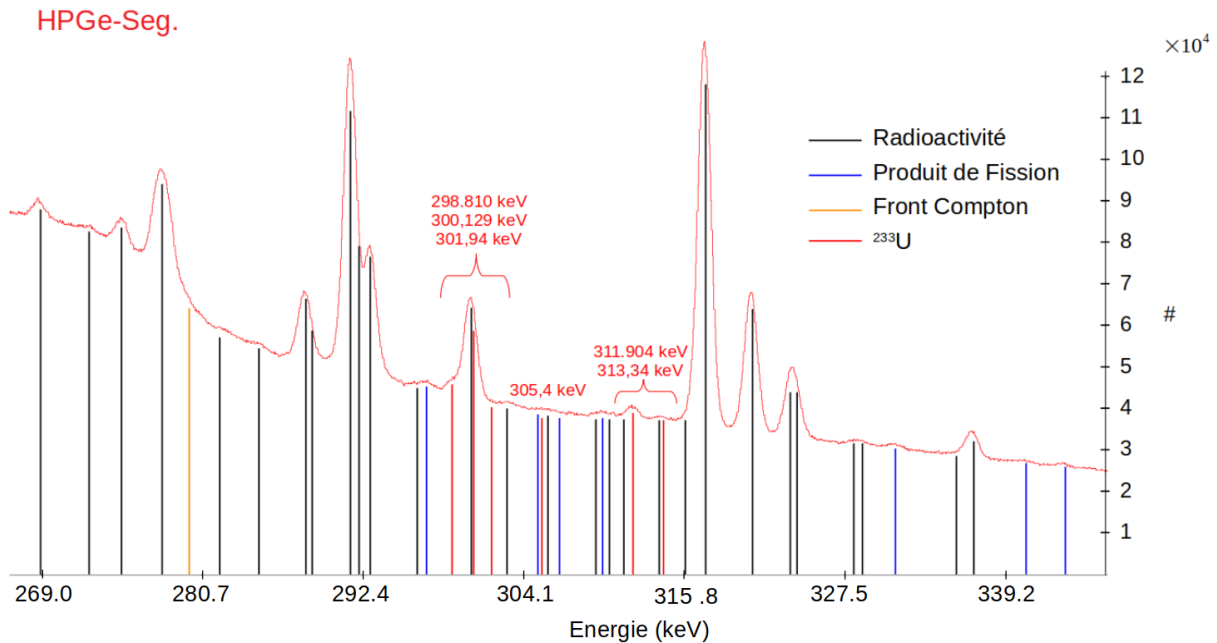


FIGURE 3.8 – Portion du spectre en énergie provenant du détecteur HPGe segmenté. Ce spectre est tracé pour $E_\gamma \in [268, 343]$ keV dans une fenêtre en temps correspondant à $E_n \in [0.1, 10]$ MeV. Sont identifiées ici 28 raies de radioactivité (en noir), 7 rayons γ provenant de produits de fission (en bleu), un front *compton* d'une transition γ très intense à 440 keV (en orange) et 6 transitions issues de la diffusion inélastique du neutron sur l' ^{233}U (en rouge).

On remarque alors qu'il est très difficile d'identifier les transitions γ d'une part, et de réaliser un ajustement gaussien des données d'autre part, à cause de leur déformation. Pour rappel, cet effet (étalement des pics vers les hautes énergies) est observé pour tous les détecteurs planaires monocristal de GRAPhEME.

C'est pourquoi, nous avons décidé de soustraire à ces spectres la contribution de la radioactivité. Avec cette opération, les raies de la radioactivité sont, en théorie, retirées du spectre et seules les transitions provenant des produits de fission et les transitions d'intérêt sont visibles (nous verrons par la suite que ce n'est pas aussi trivial). Cependant, pour pouvoir mener à bien cette soustraction, il faut avoir une bonne connaissance du taux d'empilement des données. En effet, ce taux d'empilement varie en fonction de la fenêtre en temps considérée (voir Figure 2.12). Il est notamment plus faible en dehors de la fenêtre d'acquisition des événements neutrons, à savoir une fenêtre de $8 \mu\text{s}$ centrée sur le flash- γ . On calcule donc ce taux d'empilement pour chacun des détecteurs et les résultats obtenus sont tracés sur la Figure 3.10.

On projette le diagramme bi-dimensionnel pour différentes fenêtres en temps dans l'intervalle [997, 1589] canaux (*i.e.* [0.1, 10] MeV). Chaque spectre ainsi obtenu correspond à une certaine largeur en temps. On projette également des spectres dans la fenêtre de radioactivité et de largeur identique à ceux dans la fenêtre de la diffusion inélastique. On

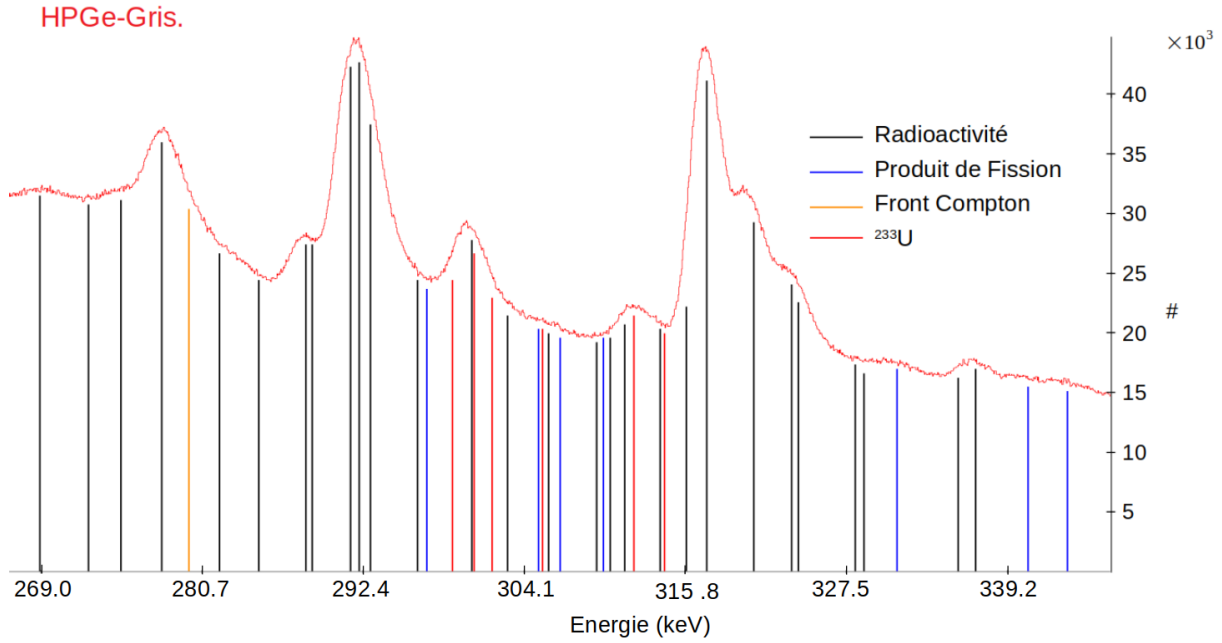


FIGURE 3.9 – Portion du spectre en énergie provenant du détecteur HPGe Gris. Comme pour la Figure 3.8, le spectre est tracé pour $E_\gamma \in [268, 343]$ keV dans une fenêtre en temps correspondant à $E_n \in [0, 1, 10]$ MeV. Sont identifiées ici 28 raies de radioactivité (en noir), 7 rayons γ provenant de produits de fission (en bleu), un front *compton* d'une transition γ très intense à 440 keV (en orange) et 6 transitions issues de la diffusion inélastique du neutron sur l' ^{233}U (en rouge).

extrait à partir du calcul du taux d'empilement, pour chacun des spectres, la valeur de τ^{det} pour chacune des fenêtres en temps, provenant de la radioactivité et de la fenêtre de la diffusion inélastique. On fait alors l'hypothèse que ce taux d'empilement est constant sur la largeur de la fenêtre en temps (hypothèse tout à fait légitime compte-tenu de la variation de τ^{det} dans un intervalle réduit). Pour chacun des détecteurs, on construit un tableau dont les entrées sont les suivantes : taille de la fenêtre en temps (i.e. intervalle en énergie neutron), $\tau_{(n,n')}^{det}$ et τ_{rad}^{det} . A partir de ces informations, on trace enfin les spectres fin que l'on analyse, en prenant en compte la différence de taux d'empilement.

$$\text{spectre}_{fin} = \text{spectre}_{(n,n')} - \frac{(1 - \tau_{(n,n')}^{det})}{(1 - \tau_{rad}^{det})} \times \text{spectre}_{rad}, \quad (3.3)$$

où $\text{spectre}_{(n,n')}$ est le spectre dans la fenêtre inélastique, spectre_{rad} le spectre dans la fenêtre de radioactivité. Le résultat de cette procédure est montré sur la Figure 3.11 pour le détecteur HPGe segmenté et pour toute la fenêtre en énergie (n, n'), i.e. 135 canaux.

On reconnaît les transitions en bleu et rouge, identiques à celles des Figures 3.8 et 3.9. On remarque également l'émergence de nouvelles transitions γ qui n'avaient pas été vues jusqu'alors (en vert). En outre, on observe un pic positif puis négatif, identifié à l'aide d'une ellipse noire. Il s'agit vraisemblablement de la réminiscence d'une raie

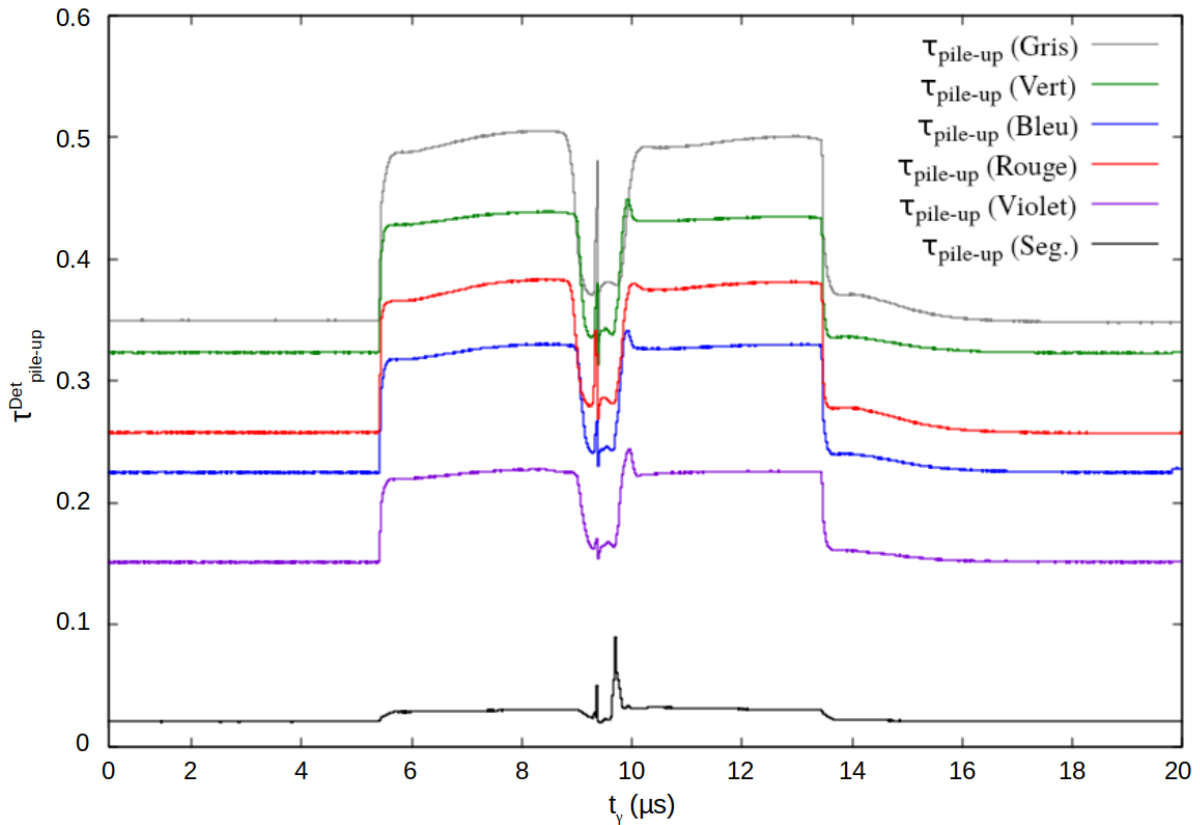


FIGURE 3.10 – Taux d'empilement des données en fonction du détecteur considéré τ^{det} et en fonction du temps.

de radioactivité très intense. C'est, une fois de plus, une conséquence du fort taux de comptage de l'acquisition. On rappelle également que la déformation des pics varie avec le taux d'empilement. Aussi, plus la fenêtre en énergie neutron considérée est large (*i.e.* l'hypothèse du taux d'empilement constant sur la fenêtre de plus en plus discutable), plus cette forme est ample. Il s'agit donc de trouver le meilleur compromis entre une statistique suffisamment importante pour permettre l'extraction du nombre de coup dans la transition et limiter au mieux l'amplitude de ces artefacts.

Une fois ces spectres en énergie corrigés de la radioactivité obtenus, on peut procéder à l'ajustement des données.

3.7.2 L'ajustement des données

La méthodologie de l'ajustement des données ne diffère pas de ce qui a été décrit dans le chapitre 2, aussi cette dernière ne sera pas explicitée de nouveau ici.

Pour résumer, si l'on reprend l'équation 2.8, on obtient :

- $N_{\gamma}^{det}(E_n)$ par intégration des pics d'intérêt ;
- $N_n^{det}(E_n)$ par interpolation linéaire du flux de neutrons ;
- N_{cible} par calcul de la masse exacte en ^{233}U dans la cible ;

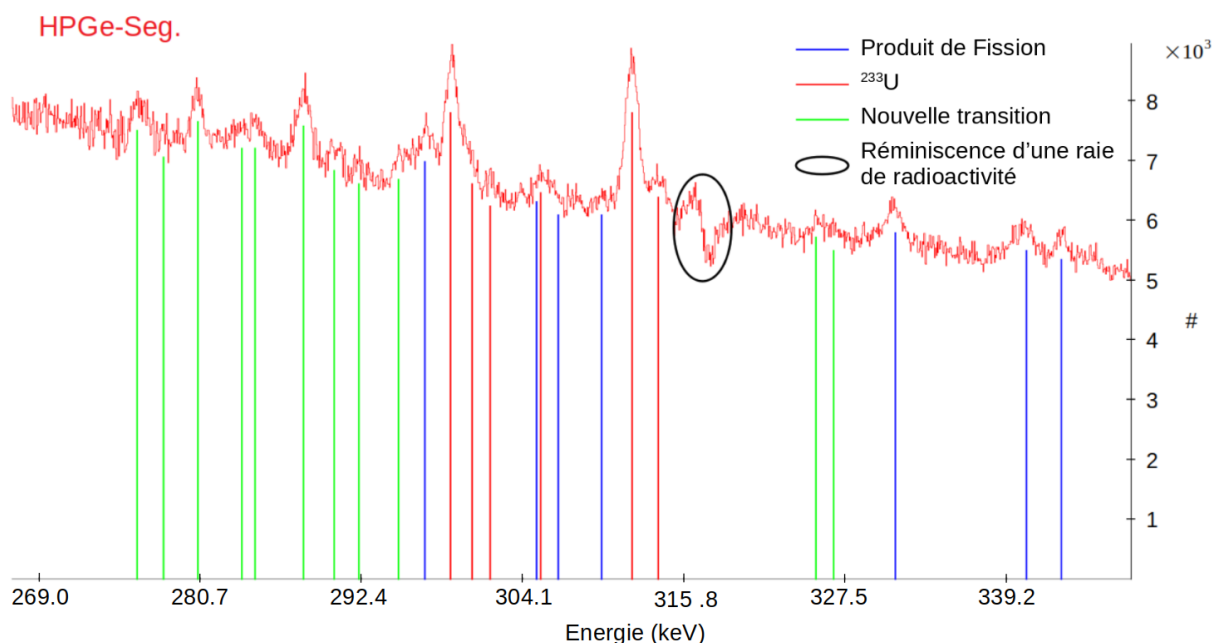


FIGURE 3.11 – Spectre obtenu après soustraction de la composante de radioactivité pour l’ensemble de la fenêtre (n, n') *i.e.* 135 canaux pour le détecteur HPGe segmenté. En bleu et rouge les transitions des produits de fission et $(n, n'\gamma)$, identiques à celles des Figures 3.8 et 3.9, en vert de nouvelles transitions γ et entourée en noir, la réminiscence d’une raie de radioactivité très intense.

- ε_{FC} via des mesure faite au PTB par J.C. Thiry [74] ;
- ε_{det} par simulation MCNP ;
- $\tau_{pile-up}^{det}$ par correction des événements empilés.

On peut donc calculer la section efficace différentielle et finale pour les transitions présentées dans le Tableau 3.3 avec l’outil *resimulateur* présenté dans le chapitre précédent.

3.8 Résultats et discussions

Pour rappel, ce travail d’analyse de données a permis d’identifier 12 transitions issues des réactions $(n, n'\gamma)$ pour le noyau d’ ^{233}U , pour lesquelles la section efficace a pu être extraite (voir 3.3). Les résultats obtenus sont inédits puisqu’il n’existe à ce jour aucune donnée expérimentale de section efficace de réaction $(n, n'\gamma)$ pour ce noyau. Nous comparerons nos résultats à différentes prédictions théoriques et nous nous appuyerons sur le code de réaction nucléaire TALYS [89]. Sans données expérimentales pour contraindre les modèles, il s’agira également de discuter des prédictions obtenues. En effet, elles dépendent de la justesse des modèles théoriques, ainsi que de la connaissance des noyaux étudiés. Or, en ce qui concerne le noyau d’ ^{233}U , il y a encore beaucoup d’inconnues. Les modèles sous-jacents ayant permis la modélisation de ces données seront décrits dans le chapitre 4.

3.8.1 Les sections efficaces $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$

La Figure 3.12 montre un extrait du schéma de niveaux du noyau d' ^{233}U , pour une énergie de niveau $E_l < 416$ keV. Chaque niveau est renseigné avec son énergie en keV et son spin-parité J^π . Lorsqu'elles sont entre parenthèses, les valeurs de J^π ne sont pas données de manière exacte mais basées sur de *faibles* arguments [96]. Les flèches en bleu sont toutes les transitions γ possibles renseignées dans la base de données ENSDF [34]. Les flèches en rouge sont celles qui ont été observées et dont la section efficace a pu être extraite.

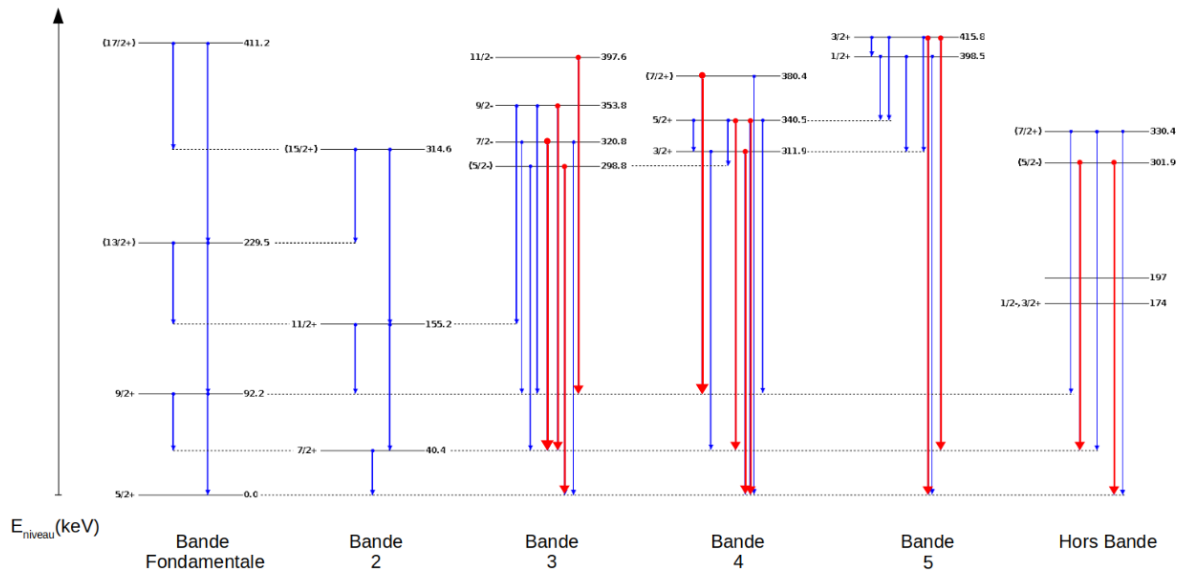


FIGURE 3.12 – Extrait du schéma de niveaux du noyau d' ^{233}U pour une énergie de niveau $E_l < 416$ keV. Chaque niveau est renseigné avec son énergie en keV et son spin-parité J^π lorsque celui-ci est connu. Lorsqu'elles sont entre parenthèses, les valeurs de J^π ne sont pas données exactes mais basées sur de *faibles* arguments [96]. Les flèches en bleu sont toutes les transitions γ possibles renseignées dans [87] et celles en rouge sont celles qui ont été observées dans ce travail et dont la section efficace a pu être extraite.

Pour chacune des sections efficaces obtenues et présentées sur la Figure 3.13, on donne le spin/parité J^π du niveau initial et du niveau final, l'énergie du niveau initial E_l et l'énergie de la transition γ E_γ .

Les tableaux contenant les valeurs des sections efficaces de chaque transition, ainsi que leur incertitude associée sont donnés dans l'annexe B.

3.8.2 Discussion

Dans cette partie, nous discuterons principalement des hypothèses faites lors de l'analyse de données, de leur pertinence, mais aussi des sections efficaces expérimentales obtenues. La discussion des résultats au regard des prédictions théoriques du code de réactions nucléaires TALYS-1.95 se fera dans le chapitre 4.

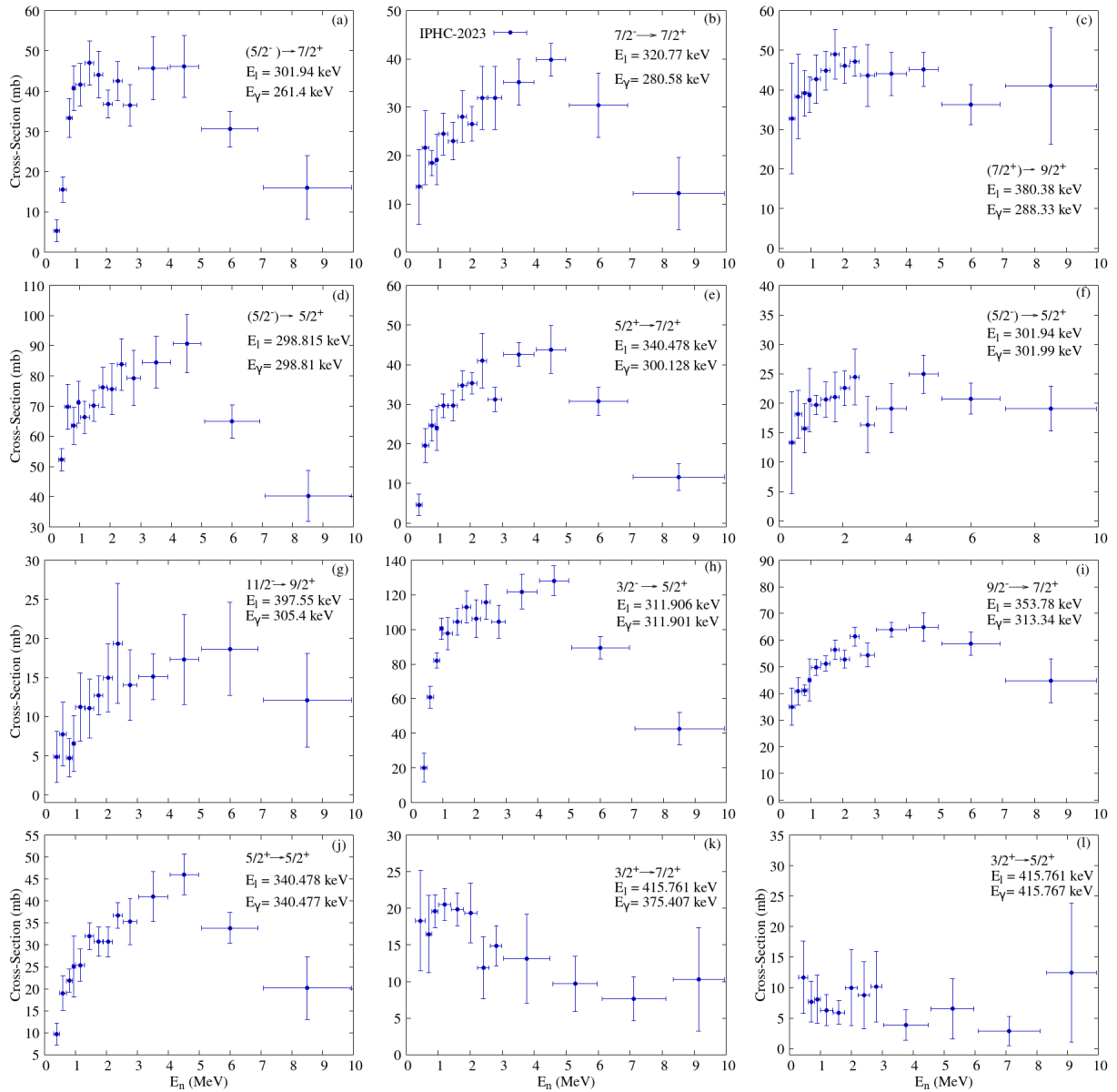


FIGURE 3.13 – Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ expérimentales pour l'ensemble des transitions γ observées.

On a vu que la cible utilisée pour cette campagne expérimentale faisait $640\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. On peut alors raisonnablement se questionner sur la présence de diffusions multiples au sein de la cible. En effet, il est tout à fait possible qu'un neutron émis après une diffusion inélastique interagisse de nouveau avec un autre noyau de la cible. Ce neutron compterait alors deux fois et on surestimerait la section efficace de diffusion inélastique pour la transition dans laquelle il laisserait le noyau excité. Des simulations, utilisant les sections efficaces de la base de données JEFF-3.3 ont montré que la part de neutrons provenant de diffusion multiple était négligeable (environ 0.4%).

En revanche, on peut s'interroger sur les neutrons de fission et les réactions qu'ils

engendrent dans la cible. En effet, 2.55 neutrons sont émis par réaction de fission. Ces neutrons peuvent eux aussi induire des réactions avec des noyaux de la cible. Si dans le cas l' ^{238}U , cet effet s'était avéré négligeable, la section efficace de fission étant inférieure à la section efficace de diffusion inélastique, ce n'est pas le cas pour le noyau fissile d' ^{233}U . Dans ce qui suit, on notera n_G les neutrons produits par GELINA et n_f les neutrons produits par fission. Pour estimer n_f , la section efficace de fission $^{233}\text{U}(n, f)$ de JEFF-3.3 a été considérée. On peut alors tracer le rapport des sections efficaces $inel_{(n, n') + fission} / inel_{(n, n')}$, où $inel_{(n, n') + fission}$ est la contribution à la section efficace de diffusion inélastique des neutrons de GELINA ainsi que des neutrons et fission de l' ^{233}U et où $inel_{(n, n')}$ est la contribution à la section efficace de diffusion inélastique des neutrons de GELINA uniquement. On obtient alors la Figure 3.14.

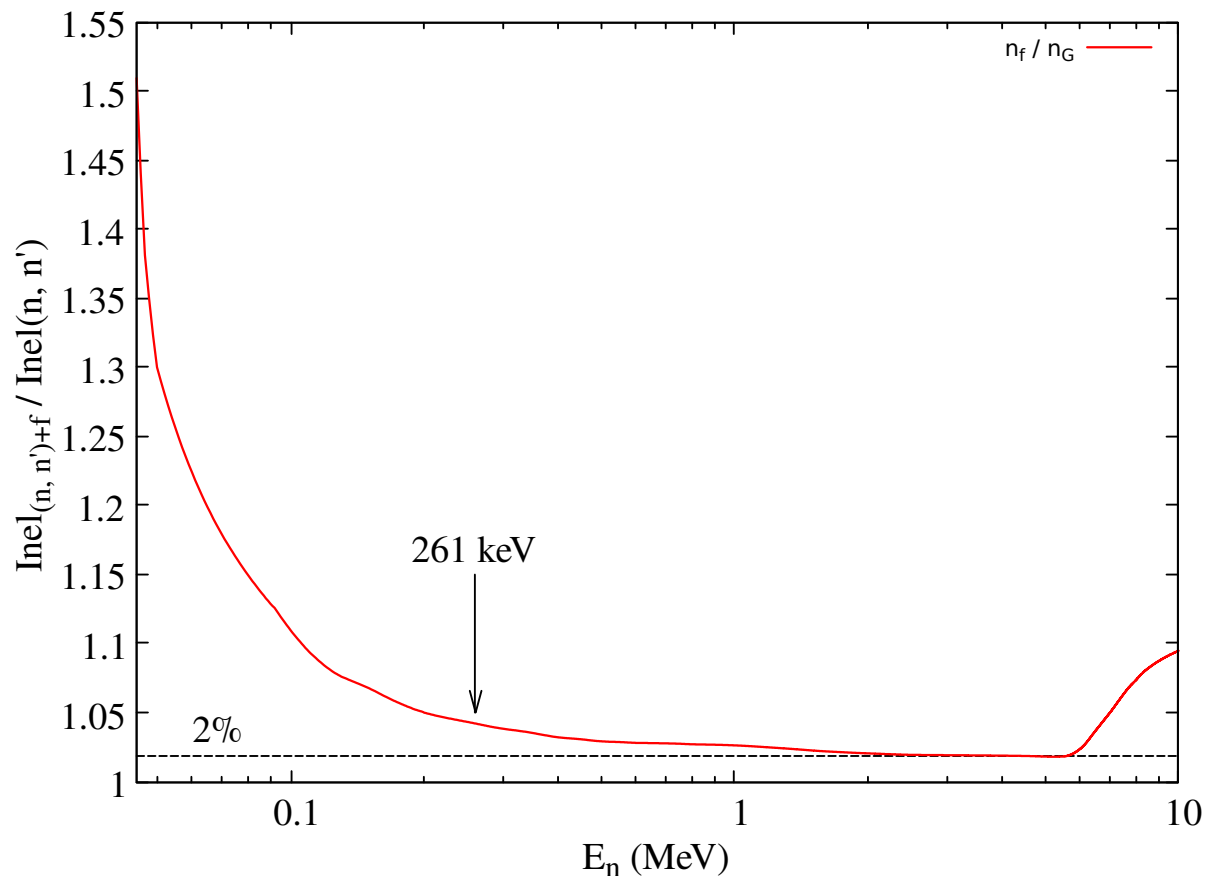


FIGURE 3.14 – Rapport des sections efficaces $inel_{(n, n') + fission} / inel_{(n, n')}$ en fonction de l'énergie du neutron incident pour le noyau d' ^{233}U . La valeur minimum de ce rapport est donnée à environ 2%. On place également le premier seuil des transitions observée.

A l'ouverture de voie de diffusion inélastique, ce rapport vaut 1.5. Cela signifie que les neutrons de fission augmente de +50% la diffusion inélastique. La prise en compte ou non des neutrons de fission a donc un effet tout sauf négligeable. Avec l'énergie neutron qui augmente, il diminue rapidement et on voit qu'à l'énergie minimum des transitions que

nous avons observées, ce rapport vaut 4%. Il diminue encore pour atteindre 2% jusqu'à environ 6 MeV. A cette énergie, la voie de réaction de la fission de seconde chance s'ouvre, augmentant la section efficace de fission du noyau, d'où l'augmentation de ce rapport, jusqu'à valoir 9% à 10 MeV. Cet effet, bien que présent, n'a pas été pris en compte dans le calcul des sections efficaces. D'une part parce que l'incertitude des sections efficaces vient principalement de la statistique des transitions et est plus grande que cet effet. D'autre part, ce résultat est de nature qualitative et nécessiterait une étude plus approfondie. Typiquement, si l'on choisit la section efficace de fission de la base de données ENDF/B-VIII.0, le rapport $inel_{(n, n')+fission}/inel_{(n, n')}$ à 261 keV passe de 4% à 2%.

On a vu également, lors du calcul de la masse de la cible, que les masses m_i étaient supposées indépendantes dans l'hypothèse que les détecteurs soient également considérés comme tels. Nous pourrions cependant discuter de la corrélation des intensités des transitions γ considérées. Dans le fichier *Nuclear Data sheet for A=229* [97] où sont données les informations des transitions γ du ^{229}Th , les intensités I_γ sont données avec leur incertitude mais sont normalisées par rapport à l'intensité mesurée par [98,99] de la transition à 208.179 keV, avec $I_\gamma(208 \text{ keV}) = 0.00229(3)\%$. Les incertitudes fournies dans le Tableau 3.4 sont alors le produit de deux incertitudes : l'incertitude du facteur de normalisation et l'incertitude relative de la transition que nous pouvons déduire. On peut alors montrer que l'incertitude du facteur de normalisation est faible par rapport aux incertitudes relatives et ne contribue que très peu à l'incertitude finale. On admettra donc que ces transitions sont indépendantes et que le calcul de l'incertitude de la masse de la cible est justifié.

De plus, si l'on trace la distribution obtenue pour les 180 masses sur la Figure 3.15, on remarque que cette dernière n'est pas tout à fait gaussienne :

Cela pourrait être dû à la corrélation sur les intensités γ . Une autre piste est la corrélation entre les pixels du détecteur. Enfin, si l'on trace les valeurs des masses obtenues pour chacun des pixels, on s'aperçoit que la distribution obtenue n'est pas droite mais est creusée au centre, indiquant un effet de bord pour les pixels périphériques (voir Figure 3.16).

Si l'on s'intéresse à présent à la forme des sections efficaces obtenues, on peut remarquer que 3 sections efficaces expérimentales augmentent de nouveau à haute énergie neutron. Il s'agit des transitions γ à $E_\gamma = 288.33 \text{ keV}$ (Figure 3.13c), $E_\gamma = 375.407 \text{ keV}$ (Figure 3.13k) et $E_\gamma = 415.767 \text{ keV}$ (Figure 3.13l). Dans les deux derniers cas, la très faible statistique des transitions, corroborée par une très faible amplitude prédite par TALYS-1.95, se reflète dans l'amplitude de leurs sections efficaces expérimentales $\sigma(E_n) < 15 \text{ mb}$, $\forall E_n$. Il s'agit vraisemblablement d'une pollution de la transition γ par une autre, provenant d'un produit de fission. Dans le premier cas, il pourrait s'agir d'une transition γ du ^{135}I ou du ^{141}Cs . Dans le deuxième cas, des transitions γ du ^{132}Te et du ^{142}Cs sont très proches en énergie de la transition γ d'intérêt. Enfin, dans le troisième et dernier cas, des transitions γ du ^{137}Xe et du ^{142}Cs pourraient être responsables de la pollution de cette transition d'intérêt.

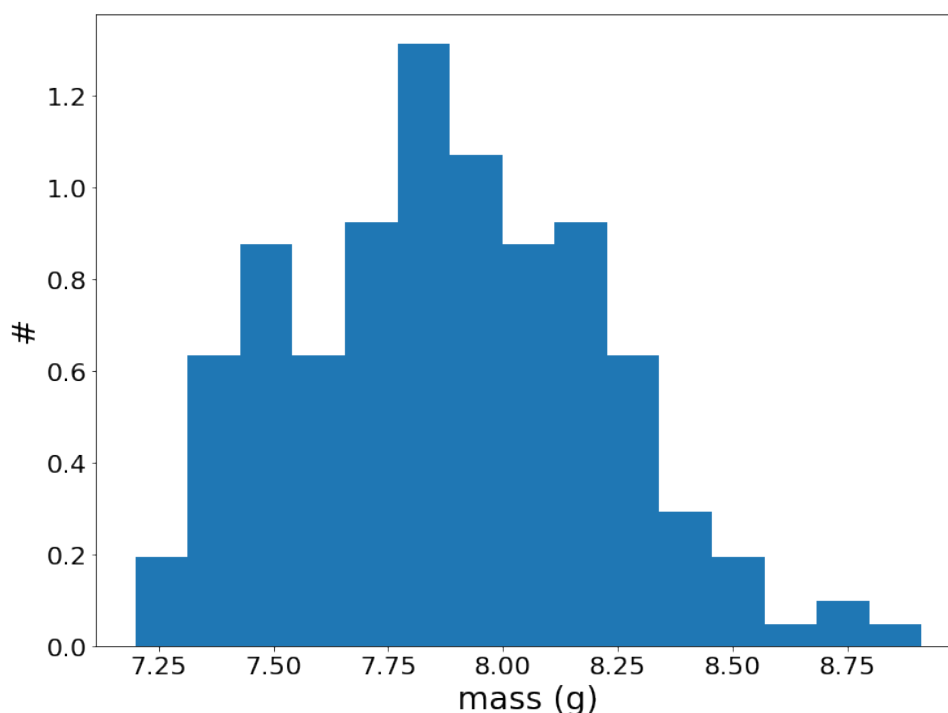


FIGURE 3.15 – Histogramme de la distribution des masses obtenues avec les 36 pixels pour les 5 transitions γ citées dans le Tableau 3.4. La distribution obtenue ici ne tient pas compte des incertitudes des masses obtenues mais simplement de leur valeur.

3.8.3 Des sections efficaces aux intensités γ

3.8.3.1 Cas général

On peut remarquer que, sur l'extrait du schéma de niveau de l' ^{233}U présenté en Figure 3.12, certaines transitions γ proviennent d'un même niveau. Un noyau excité dans un niveau l peut se désexciter selon plusieurs voies possibles. A chacune des voies de décroissance est associée une probabilité. C'est ce que l'on appelle l'intensité d'une transition γ , noté I_γ (voir Figure 3.17). Elles peuvent être données en valeur absolue ou en valeur relative. Dans ce dernier cas, la transition γ la plus probable (*i.e.* la plus intense) d'un niveau d'énergie d'excitation à un niveau d'énergie inférieure est fixée à 100, et les autres sont exprimées comme le rapport des intensités γ absolues et de la transitions γ la plus intense.

On comprend alors que section efficace ($n, n'\gamma$) et intensité γ sont intimement liées, puisque toutes deux sont le reflet d'une probabilité d'émission d'une transition γ . En effet, on peut montrer que le rapport des intensités γ est égal au rapport des sections efficaces $\sigma(n, n'\gamma)$.

Pour les intensités γ obtenues expérimentalement, nous pouvons comparer directement leur valeur relatives avec celles renseignées dans la base de données ENSDF. Il faut cependant noter que nous n'avons pu extraire que deux intensités γ relatives. En effet, comme nous l'avons mentionné plus tôt, les transitions γ à $E_\gamma = 375.407$ keV et $E_\gamma = 415.767$

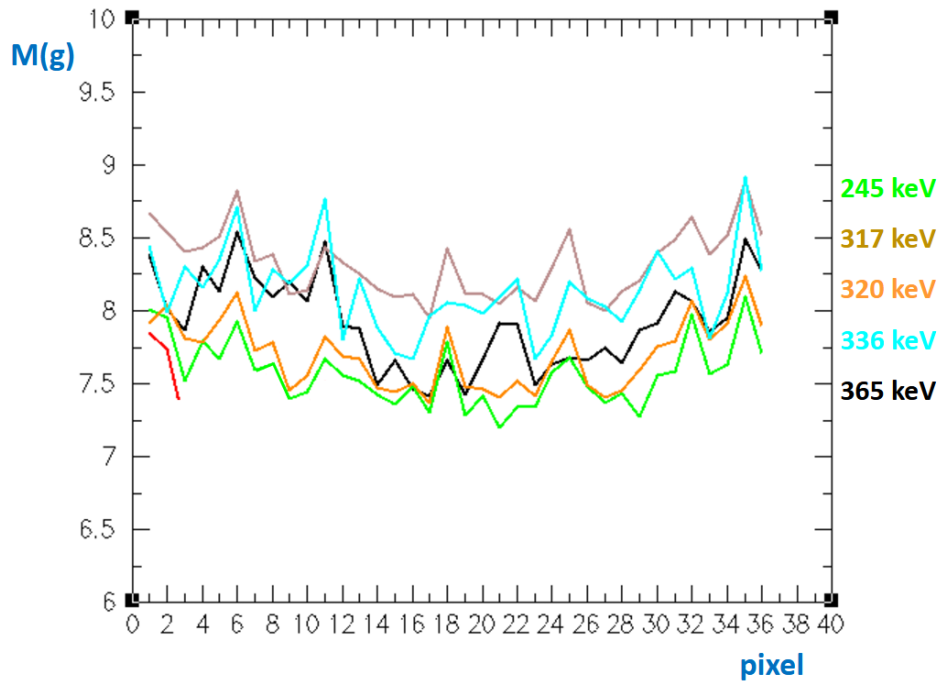


FIGURE 3.16 – Masse de la cible pour chaque transition de radioactivité en fonction du pixel considéré.

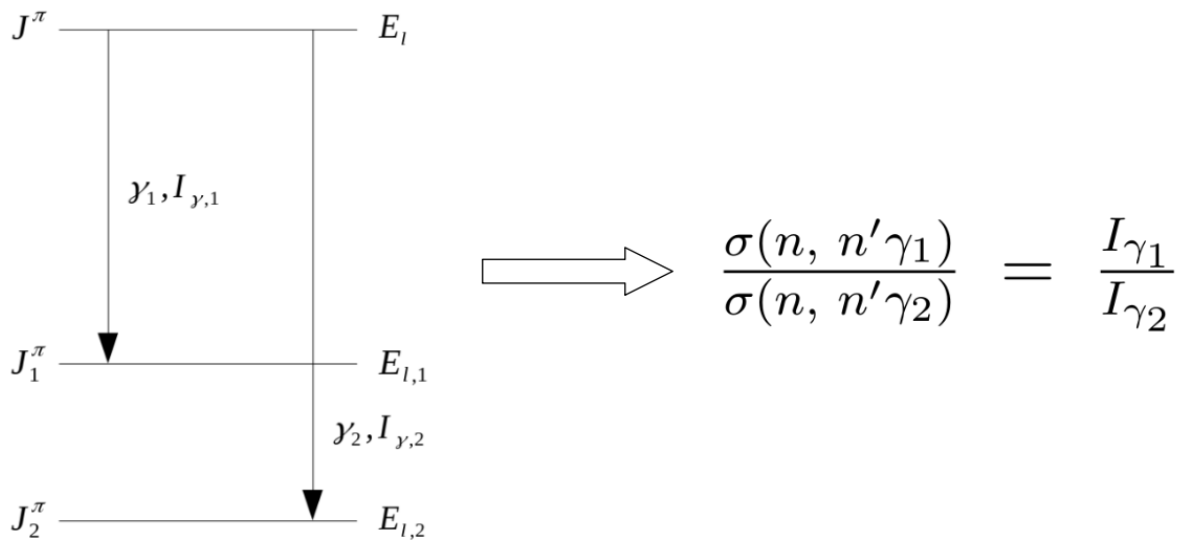


FIGURE 3.17 – Schéma de principe de l'intensité γ .

keV ont une très faible statistique d'une part et sont très probablement polluées par une transition γ d'un produit de fission d'autre part. Nous n'avons donc extrait les I_γ relatives que pour les niveaux à $E_l = 301.94$ keV et $E_l = 340.478$ keV.

Les Figures 3.18 et 3.19 illustrent les intensités γ obtenues de manière expérimentale et comparent nos résultats avec les données de ENSDF.

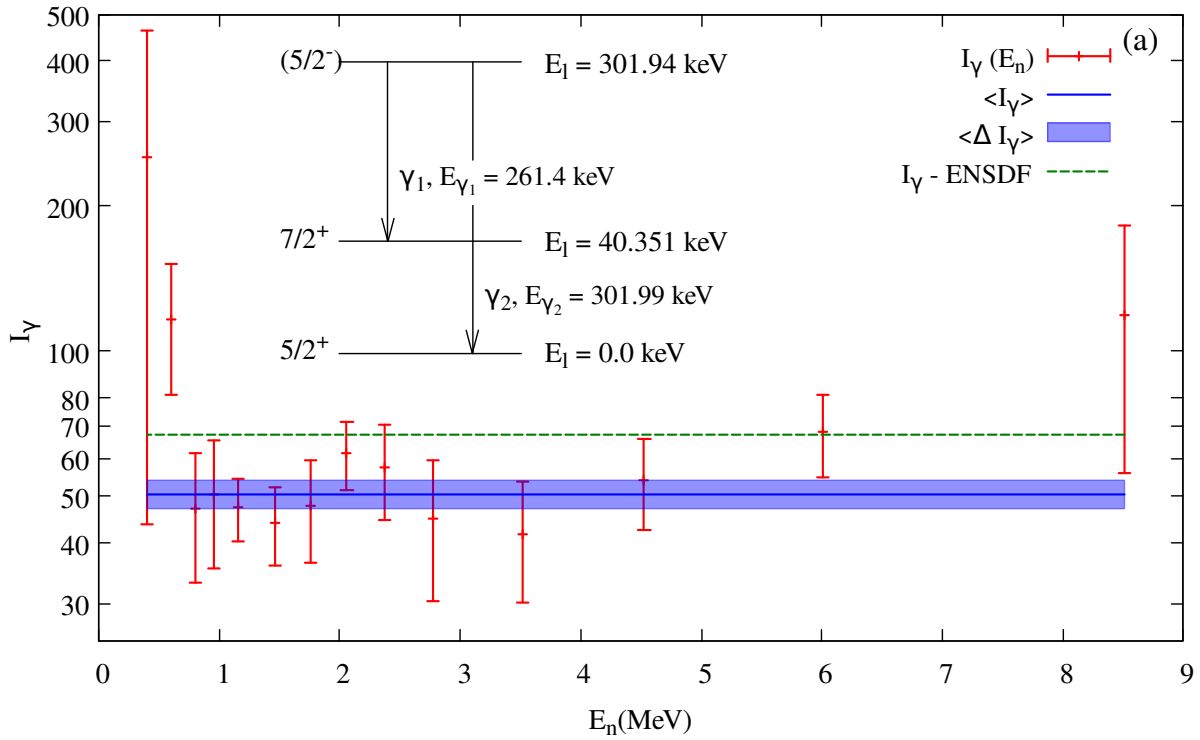


FIGURE 3.18 – Rapport des intensités γ obtenues de manière expérimentale (en rouge), la valeur moyenne de ce rapport (en bleu) pour les niveaux à $E_l = 301.94$ keV comparée à la valeur renseignée dans ENSDF (en vert).

Il est à noter que les I_γ expérimentales sont données avec leur valeur moyenne. En effet, cette grandeur de structure nucléaire est indépendante de l'énergie d'un quelconque projectile. Aussi, il est plus pertinent de comparer aux bases de données existantes une valeur expérimentale moyenne, noté ici $\langle I_\gamma \rangle$, tracée en bleu sur les Figures 3.18 et 3.19. Notons que les valeurs expérimentales extrêmes ont été exclues. On voit que dans les deux cas, les I_γ expérimentales sont en désaccord avec les I_γ de ENSDF, malgré les grandes incertitudes obtenues. Les résultats, ainsi que les informations de structure des niveaux (énergie, spin et parité des niveaux initiaux et finaux) sont donnés dans le Tableau 3.5.

3.8.3.2 Cas de la transitions à $E_\gamma = 261$ keV

Dans le tableau 3.3, on voit que la transitions mesurée à 260.6(9) keV correspond à la transition à 261.4(2) keV, provenant du niveau à 301.94(9) keV, $(\frac{5}{2}^-)$, et dont le niveau fils est à 40.351(7), $\frac{7}{2}^+$, avec une intensité relative de 100. Or, il existe une autre transition de ^{233}U , d'énergie très proche, à $E_\gamma = 261.6$ keV, provenant du niveau $E_l = 353.78$ keV, $\frac{9}{2}^-$, même niveau que la transition à $E_\gamma = 313.3$ keV. Cette identification avait dans un premier temps été écartée car l'intensité relative de la transition n'était pas de 100. Afin de

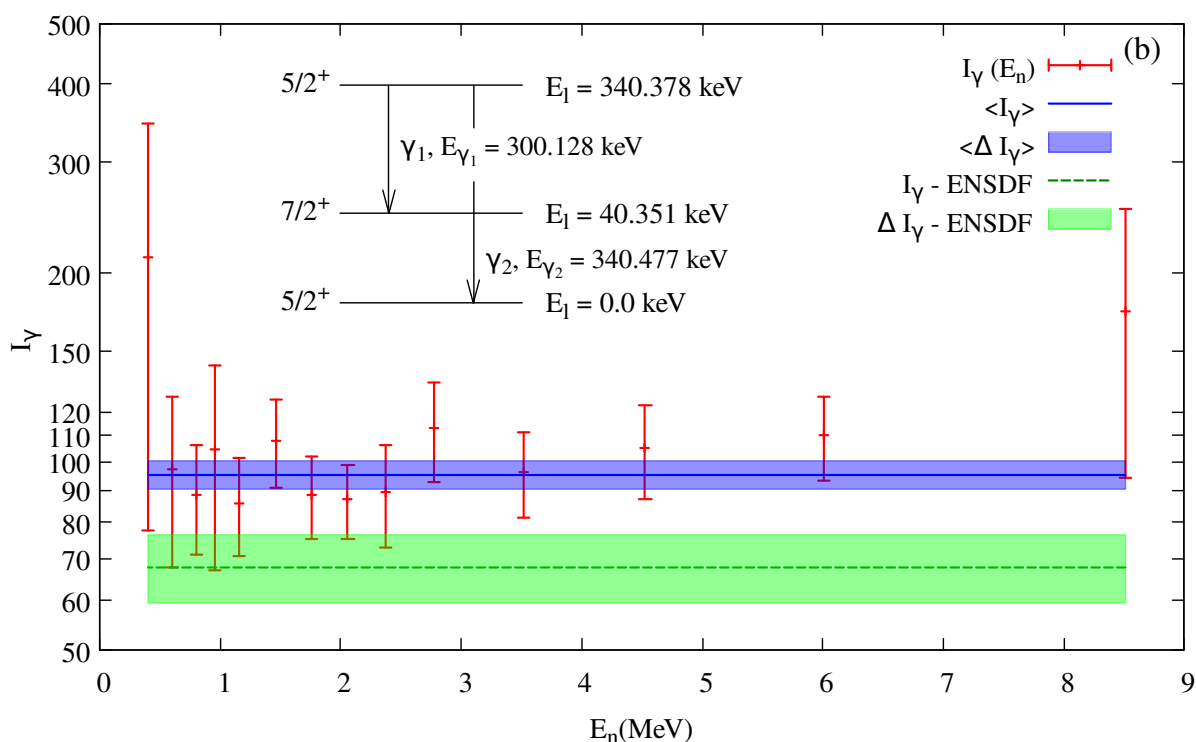


FIGURE 3.19 – Rapport des intensités γ obtenues de manière expérimentale (en rouge), la valeur moyenne de ce rapport (en bleu) pour les niveaux à $E_l = 340.478$ keV (b) comparée à la valeur renseignée dans ENSDF (en vert).

TABLEAU 3.5 – Tableau récapitulatif de la détermination expérimentale des intensités γ . Est renseigné pour chaque niveau son énergie $E_{i,l}$, son spin/parité J_i^π , l'énergie des rayons γ par lesquels il peut décroître E_γ et les énergies $E_{f,l}$ et spin/parité J_f^π des niveaux finaux associés. Les intensités γ sont données en valeur relative. On compare les résultats expérimentaux I_γ (Exp.) aux intensités γ provenant de ENSDF I_γ (ENSDF).

| Initial state | | Final states | | | I_γ | |
|-----------------|------------------------------|------------------|-----------------|-----------------------|-------------------|--------------------|
| $E_{i,l}$ (keV) | J_i^π (\hbar) | E_γ (keV) | $E_{f,l}$ (keV) | J_f^π (\hbar) | I_γ (Exp.) | I_γ (ENSDF) |
| 301.94 | $\left(\frac{5^-}{2}\right)$ | 261.4 | 40.351 | $\frac{7^+}{2}$ | 100 | 100 |
| | | 301.99 | 0.0 | $\frac{5^+}{2}$ | 50.48 ± 3.34 | 67 |
| 340.478 | $\frac{5^+}{2}$ | 300.128 | 40.351 | $\frac{7^+}{2}$ | 100 | 100 |
| | | 340.477 | 0.0 | $\frac{5^+}{2}$ | 95.42 ± 4.92 | 67.9 ± 8.5 |
| 415.761 | $\frac{3^+}{2}$ | 375.407 | 40.351 | $\frac{7^+}{2}$ | / | 100 |
| | | 415.761 | 0.0 | $\frac{5^+}{2}$ | / | 39.1 ± 0.4 |

validé ou non cette hypothèse, nous avons utilisé le code de réaction nucléaire TALYS² afin

2. Les détails du calcul sont donnés dans le chapitre 4 de ce manuscrit.

de prédire, pour chacun des cas, quelle serait la forme et l'amplitude de la section efficace. Les Figures 3.20 et 3.21 donne l'extrait du schéma du niveau pour la transition associée et les sections efficaces expérimentales et calculée à partir du rapport d'embranchement fourni dans la base de données ENSDF et de la connaissance des transitions provenant du même niveau, respectivement $E_\gamma = 301.9$ keV et $E_\gamma = 313.3$ keV.

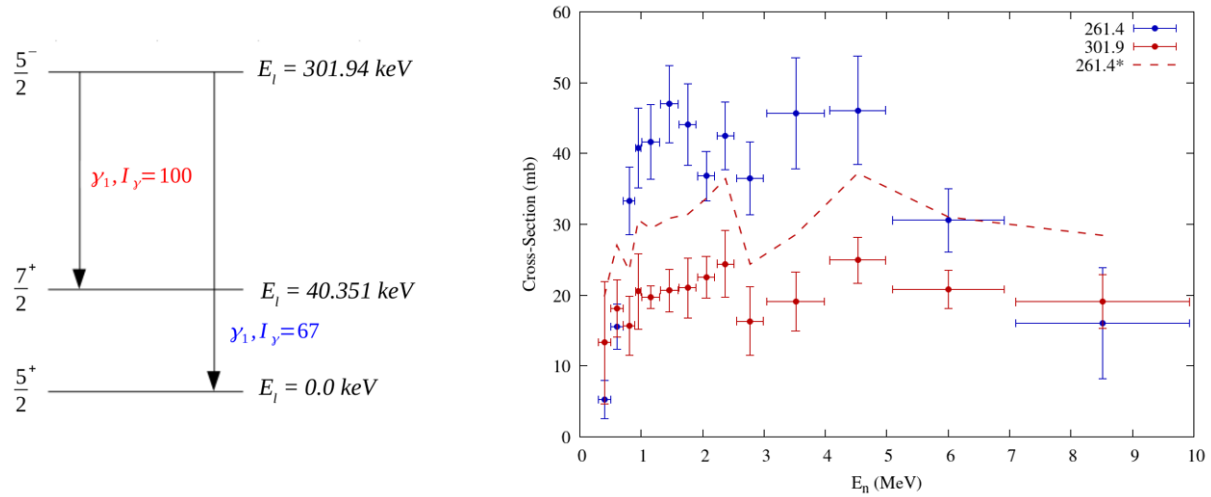


FIGURE 3.20 – Extrait du schéma du niveau pour la transition à $E_\gamma = 261.4$ keV, provenant du niveau à $E_l = 301.94$ keV et les sections efficaces expérimentales et calculée (en pointillé) à partir du rapport d'embranchement fourni dans la base de données ENSDF et de la connaissance de la transition provenant du même niveau, $E_\gamma = 301.9$ keV.

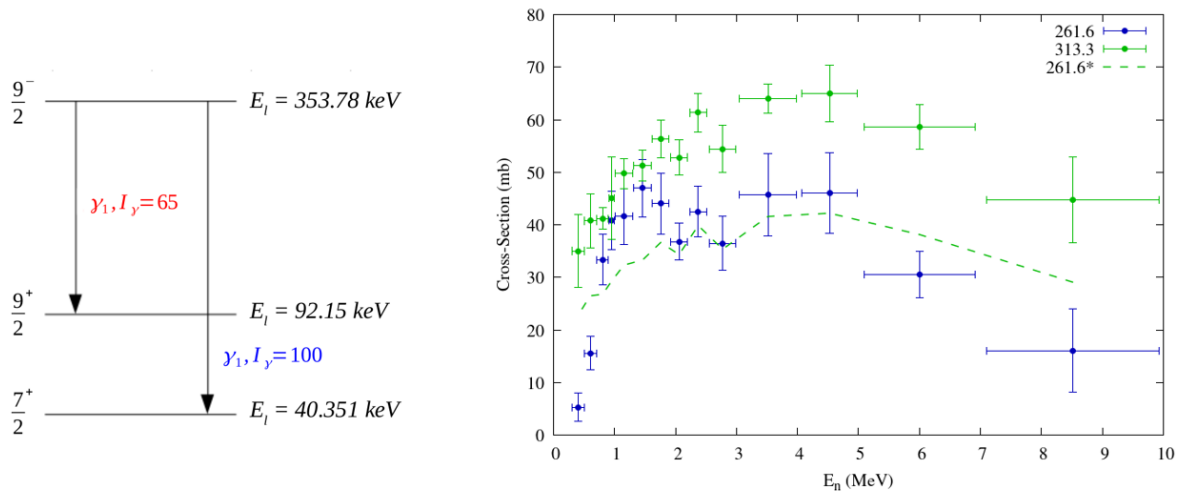


FIGURE 3.21 – Extrait du schéma du niveau pour la transition à $E_\gamma = 261.6$ keV, provenant du niveau à $E_l = 353.78$ keV et les sections efficaces expérimentales et calculée (en pointillé) à partir du rapport d'embranchement fourni dans la base de données ENSDF et de la connaissance de la transition provenant du même niveau, $E_\gamma = 313.3$ keV.

Dans les deux cas, on voit un désaccord notable entre la prédiction et la section efficace

obtenue expérimentalement. Dans le premier cas (Figure 3.20), la prédiction du code de réaction nucléaire surestime la section efficace alors que dans l'autre cas (Figure 3.21), elle est sous-estimée en-deçà de $E_n = 2$ MeV, en accord avec l'expérience jusqu'à $E_n = 5$ MeV et la surestime au-delà. Si on combine ces deux Figures et que l'on trace la somme des prédictions, on obtient alors la Figure 3.22.

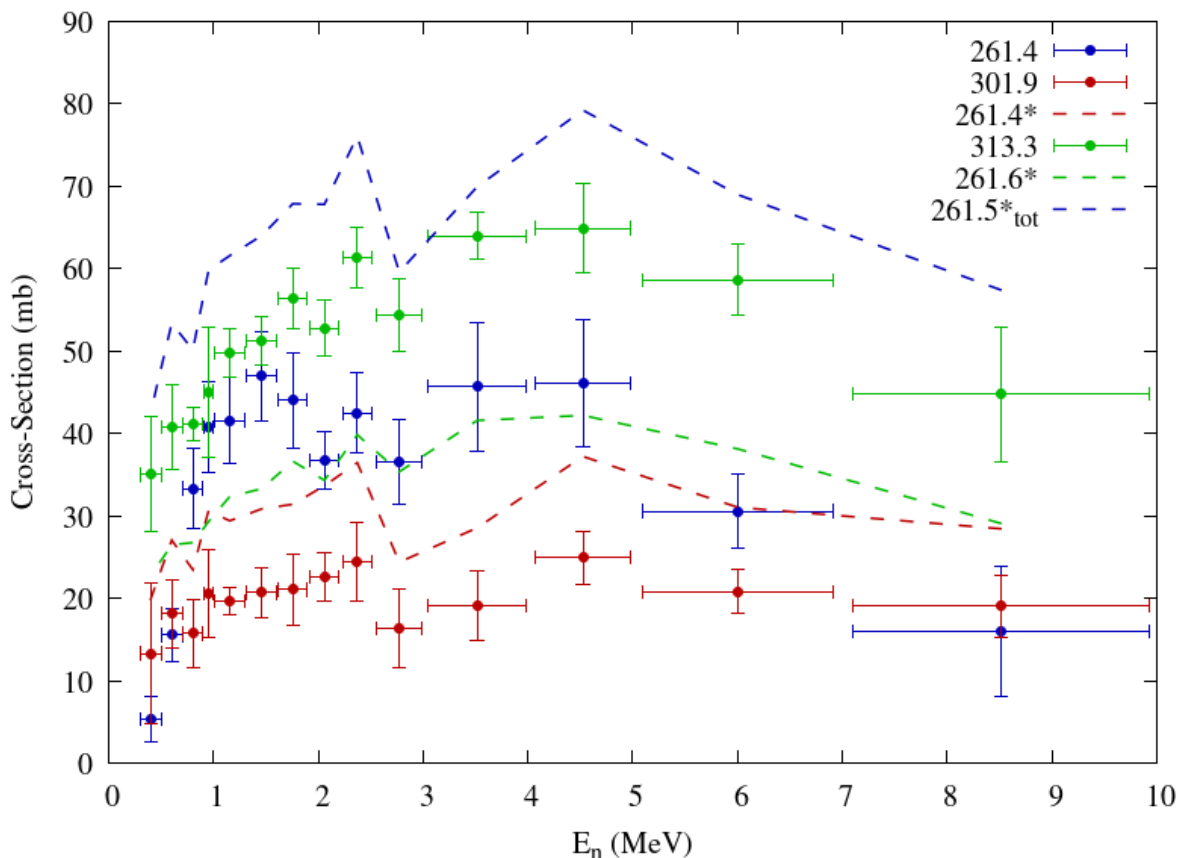


FIGURE 3.22 – Sections efficaces expérimentales et calculées (en pointillé) à partir des rapports d'embranchements fourni dans la base de données ENSDF et de la connaissance des transitions provenant du même niveau pour la transitions mesurée à $E_\gamma = 260.6(9)$ keV.

On voit alors que la section efficace ne correspond pas à la somme des sections efficaces prédites par le calcul de TALYS. En revanche, les deux courbes admettent la même forme, avec un creux de la section efficace pour $E_n = 2.8$ MeV, avec une montée plus abrupte pour la section efficace expérimentale. A ce stade de l'analyse et avec les données en notre possession, il ne sera pas possible de différencier ces deux transitions qui, vraisemblablement, ne contribue pas de la même manière au spectre γ .

3.9 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, nous pouvons faire plusieurs commentaires et constats. Nous avons vu que l'étude des réactions (n, xn) pour le noyau d' ^{233}U et, *de facto*, pour les actinides hautement radioactifs, était possible avec GRAPhEME. Pour cela, il a fallu adapter la méthodologie de l'analyse des données. Comme nous l'avons mentionné à plusieurs reprises, l'absence de données expérimentales concernant la diffusion inélastique de neutrons sur l' ^{233}U reflète, entre autres, la grande complexité dans la mise en œuvre d'une telle expérience. Le meilleur atout de GRAPhEME, dans le cadre de cette campagne expérimentale est le détecteur HPGe segmenté, sans lequel les résultats présentés dans ce manuscrit n'auraient pu être obtenus. Cependant, nous avons pour ainsi dire repoussé GRAPhEME dans ses retranchements. Le très fort taux de comptage a rendu compliqué l'extraction de données qui auparavant ne représentait pas une telle difficulté. De plus, il faut rappeler que la prise de données dans le cadre de cette expérience s'est étalée sur 3 ans, représentant presque 5000 heures de temps effectif. Malgré cela, aucune section efficace $(n, 2n\gamma)$ n'aura pu être extraite et les incertitudes des sections efficaces $(n, n'\gamma)$ obtenues sont parfois très importantes. De ce constat, on peut tirer deux conclusions.

Premièrement, un long temps de mesure est absolument nécessaire, surtout pour pouvoir tirer profit au maximum du détecteur segmenté. Ses 36 pixels offrent une excellente résolution en énergie mais elle se paye avec une efficacité par pixel bien inférieure à celles des détecteurs mono-cristallin. En vue d'améliorer ces résultats (extraire de nouvelles sections efficaces pour de nouvelles transitions d'intérêt ou réduire les incertitudes), il nous semble primordial d'augmenter la statistique des transitions d'intérêt et donc, le temps d'acquisition ainsi que sa stabilité.

Deuxièmement, la plus grande source d'incertitude des sections efficaces vient de l'extraction du nombre de coups des transitions d'intérêt des spectres provenant des détecteurs HPGe classiques. La déformation des pics dans les spectres γ et la pauvre résolution en énergie qu'ils offrent pour ce type d'expérience sont très contraignantes du point de vue de la méthodologie de l'analyse de données. Par conséquent, l'analyse des données obtenues avec ce type de détecteur est moins précise. De plus, plus le cristal de Germanium est gros dans le détecteur, moins les données sont qualitatives. Pourtant, ce sont justement ces derniers qui ont la plus grande efficacité de détection et de fait, le plus de statistique.

Dans un futur idéal pour GRAPhEME et dans le cadre de mesure sur des actinides de très haute activité, il faudrait donc remplacer tous les détecteurs classiques par des détecteurs segmentés et disposer d'un temps d'acquisition extrêmement long. De manière plus réaliste, une des pistes d'amélioration de GRAPhEME, dans le cadre de campagne expérimentale impliquant des actinides (et *a fortiori* des noyaux) très radioactifs, serait de considérer des détecteurs dont les cristaux sont suffisamment petits pour s'affranchir des problèmes cités auparavant.

Ce chapitre conclut la partie expérimentale de mon travail de thèse. Nous avons pu voir comment obtenir des sections efficaces de réaction $(n, xn\gamma)$, du détecteur à la donnée. Ces résultats feront l'objet d'une publication et alimenteront la base de données EXFOR.

La suite de ce manuscrit sera donc consacrée à la modélisation et l'évaluation de données nucléaires.

La modélisation des sections efficaces de réaction

Sommaire

| | | |
|------------|--|------------|
| 4.1 | Les mécanismes de réaction et les modèles qui les décrivent . . . | 86 |
| 4.2 | L'enchaînement des modèles dans TALYS | 91 |
| 4.2.1 | Le Modèle Optique | 91 |
| 4.2.2 | Les réactions Directes | 93 |
| 4.2.3 | Les réactions de Pré-équilibre | 94 |
| 4.2.4 | Le Noyau Composé | 98 |
| 4.2.5 | La Densité de Niveaux | 99 |
| 4.2.6 | La Fission induite | 102 |
| 4.2.7 | Coefficient de transmission γ et capture radiative | 104 |
| 4.3 | Modélisation de sections efficaces de ^{233}U | 104 |
| 4.3.1 | La paramétrisation de TALYS | 104 |
| 4.3.2 | Les sections efficaces totales et partielles | 106 |
| 4.4 | Modélisation de sections efficaces de ^{238}U | 110 |
| 4.4.1 | La paramétrisation de TALYS | 111 |
| 4.4.2 | Les sections efficaces totales et partielles | 112 |
| 4.5 | Conclusion | 117 |

Outre l'analyse de données, la modélisation des sections efficaces est au coeur de mon travail de thèse. De récents développements au CEA/DAM ont montré que de nouveaux modèles implémentés dans le code de réaction nucléaire TALYS [68] permettaient de mieux reproduire les sections efficaces de réaction (n , $n'\gamma$). Un aspect de mon travail a donc consisté à refaire une modélisation des sections efficaces pour le noyau d' ^{238}U en implémentant ces nouveautés dans une version locale (au CEA/DES) du code. De plus, un travail de modélisation des sections efficaces pour le noyau d' ^{233}U a été mené afin de pouvoir comparer les résultats obtenus et les prédictions théoriques.

La physique nucléaire théorique fait face à de nombreux défis. A commencer par la description du noyau atomique pour laquelle de nombreuses questions restent ouvertes. Le problème à N corps, que ce soit en physique nucléaire, mais aussi en astrophysique ou en chimie par exemple, demeure non résolu de manière exacte. D'une part, la puissance et le temps de calcul que requiert la résolution analytique de tels systèmes d'équations sont colossaux. D'autre part, les modèles qui les décrivent plus simplement ne sont pas

toujours suffisamment précis et de fortes hypothèses doivent être formulées. Des efforts restent donc à fournir afin d'améliorer ces modèles. A la description du noyau s'ajoute celle des mécanismes de réaction entre une particule incidente et un noyau cible. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, de nombreuses voies de réaction sont possibles (diffusion élastique et inélastique, fission, etc.) et chacune d'entre elles doit être décrite de telle sorte que les données expérimentales puissent être reproduites.

Ce chapitre a pour but de décrire les différents mécanismes de réaction impliqués dans l'interaction entre un neutron incident et un noyau cible. Nous nous intéresserons en particulier aux énergies incidentes comprises entre une dizaine de keV (proche du seuil inélastique) et une vingtaine de MeV, où la section efficace de diffusion inélastique devient négligeable devant les autres sections efficaces de réaction, typiquement (n, f) (dans le cas d'un noyau fissionnant), (n, 2n) et (n, 3n). Nous discuterons dans un deuxième temps des résultats obtenus avec le code de réaction nucléaire TALYS [89] pour les sections efficaces des noyaux d' ^{233}U et d' ^{238}U .

4.1 Les mécanismes de réaction et les modèles qui les décrivent

Comme il a été mentionné en introduction de ce chapitre, le fameux problème à N-corps ne peut, aujourd'hui, pas être résolu exactement, tant la puissance de calcul nécessaire pour le résoudre est colossale. Par ailleurs, la forme complète de l'interaction nucléaire n'est pas entièrement connue. De plus, les sections efficaces à modéliser couvrent plus d'une dizaine d'ordres de grandeur en énergie. La Figure 4.1, traçant l'évaluation JEFF-3.3 de la section efficace totale $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$, illustre bien la complexité inhérente à la description d'une grande plage en énergie. On remarque deux zones bien distinctes. La première, pour les faibles énergies neutron, présente des fluctuations piquées de la section efficace. C'est le domaine des résonances résolues ou RRR (Resolved Resonances Range). La seconde, plus lisse, est le domaine du continuum, où la notion de résonance n'est plus valide et où l'on doit considérer une section efficace moyenne. Lors du passage de l'une à l'autre zone est le domaine des résonances non résolues ou URR (Unresolved Resonances Range).

La limite entre ces deux zones est fixée par la capacité de pouvoir séparer deux résonances (sur le même principe que la résolution en énergie d'un détecteur). On remarque qu'avec l'augmentation de l'énergie, les résonances sont de plus en plus larges mais également de plus en plus proches les unes des autres. Pour une énergie au-delà d'une dizaine de keV, dans le cas des actinides, l'espacement moyen entre deux résonances $\langle D \rangle$ devient plus faible que leur largeur $\langle \Gamma \rangle$. C'est pourquoi on calcule une section efficace moyenne dans la zone du Continuum. Cependant, au sein de cette zone en énergie, plusieurs mécanismes de réaction, admettant différents temps caractéristiques, doivent être considérés. On classe généralement l'interaction particule-noyau en trois mécanismes de réaction : les réactions Directes (D), les réactions de Pré-équilibre (P) et des réactions de type Noyau-Composé (CN). La Figure 4.2, issue de la documentation de TALYS [89],

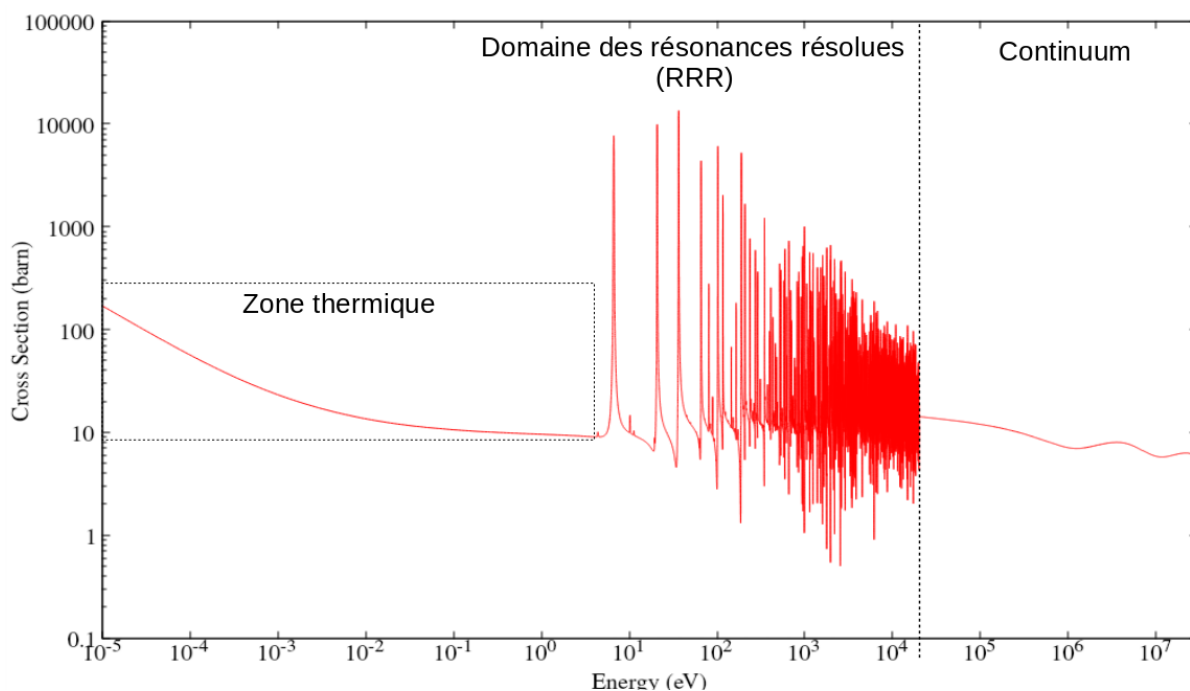


FIGURE 4.1 – Évaluation JEFF-3.3 de la section efficace totale $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ pour une énergie comprise entre $10 \mu\text{eV}$ et 20MeV .

donne une représentation schématique du spectre en énergie d'une particule émise à la suite d'une interaction avec un noyau. On distingue les trois zones correspondant aux mécanismes de réactions de type Noyau Composé (bosse à basse énergie), de Pré-équilibre (faible décroissance à mesure que E_{out} augmente) et enfin les réactions Directes (fines raies à haute énergie).

Chacun de ces mécanismes de réaction admet un temps d'interaction caractéristique τ . Pour les réactions Directes, la particule incidente n'interagit qu'une ou deux fois avec le noyau cible et l'énergie de renvoi de la particule secondaire est grande. On reconnaît d'ailleurs le pic élastique, lorsque $E_{in} = E_{out}$. Dans ce cas, le temps d'interaction est court, de l'ordre de $\tau_D \sim 10^{-22}$ sec. En ce qui concerne les réactions issues du mécanisme de Pré-équilibre, la particule incidente induit plusieurs interactions avec le noyau, tout en gardant un souvenir de la voie d'entrée. Ici aussi le temps caractéristique est court, on parle de $\tau_P \sim 10^{-21}$ sec. Enfin, en augmentant le nombre d'interactions neutron-nucléons, le système perd peu à peu la mémoire (direction incidente) de la voie d'entrée et un noyau composé est formé [100], admettant $A+1$ nucléons à l'équilibre thermodynamique. Bien entendu, les grandeurs telles que l'énergie, le spin, la parité et le nombre de particules sont conservées. Les temps caractéristiques sont alors, en comparaison des autres mécanismes, beaucoup plus longs, de l'ordre de $\tau_C \sim 10^{-16}$ sec. Une réaction sera donc décrite par un ou plusieurs de ces mécanismes.

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons aux réactions à seuil induites par neutron (n, xn) dont l'énergie minimum correspond à l'énergie du premier état excité du noyau. Pour les actinides étudiés dans cette thèse, ^{233}U , ^{238}U et ^{239}Pu , cela correspond à

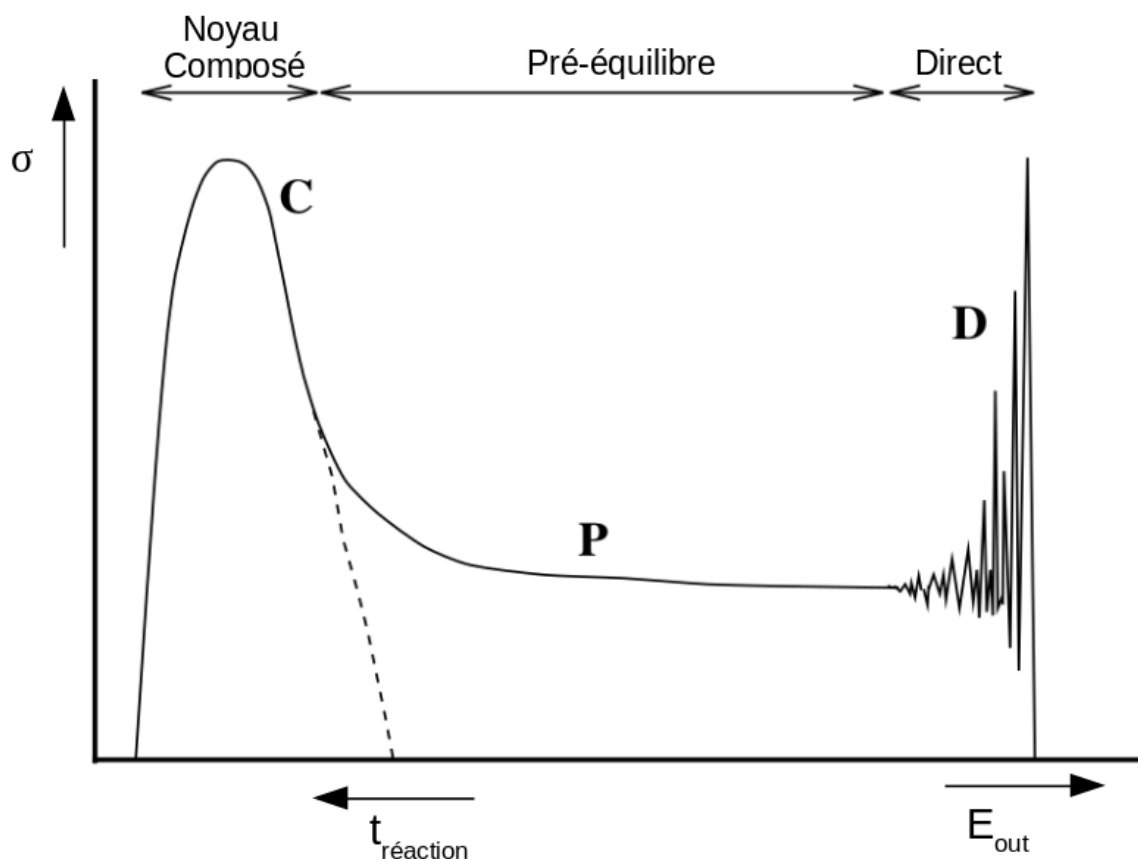


FIGURE 4.2 – Représentation schématique du spectre en énergie d’une particule émise en fonction du mécanisme de réaction impliqué. Figure issue de la documentation TALYS [89].

une énergie E_{L01} de l’ordre d’une dizaine de keV, soit d’ores et déjà dans le continuum. C’est pourquoi nous décrirons dans ce qui suit les mécanismes de réaction du continuum. Le traitement théorique des résonances résolues (RRR) et non résolues (URR) ne sera pas abordée ici. Nous renvoyons le lecteur aux travaux sur la matrice-**R** [101, 102].

Dans le continuum, la diffusion d’une particule incidente sur un noyau est généralement abordée par la définition d’un potentiel complexe de champ moyen à un corps simulant cette interaction, appelé potentiel optique. Les détails sur ce potentiel utiles dans le cadre de ce travail seront donnés dans la section 4.2.1. La connaissance de ce dernier permet notamment de calculer la section efficace totale induite par neutron, notée σ_{tot} et la section efficace de réaction, notée σ_{reac} . Elle sont liées par l’égalité suivante :

$$\sigma_{tot} = \sigma_{reac} + \sigma_{shape-el}, \quad (4.1)$$

où $\sigma_{shape-el}$ est la section efficace dite *shape élastique* (aussi appelée élastique directe). La section efficace totale σ_{tot} définit le flux à répartir dans les différentes voies de réactions. Dans l’enchaînement des modèles du code de réaction nucléaire TALYS, le calcul de

cette section efficace est la première étape. Dans un deuxième temps, les composantes directes des sections efficaces non-élastiques, de la diffusion inélastique σ_{D-inel} ainsi que des autres types de réactions énergétiquement ouvertes (échange de charge, pick-up, etc.) sont calculées.

Ensuite, l'enchaînement des modèles prend en compte les interactions de type Pré-équilibre. Enfin, la section efficace du Noyau Composé σ_{CN} est définie. Elle est issue de la soustraction des composantes Directe et Pré-équilibre de σ_{reac} .

$$\sigma_{CN} = \sigma_{reac} - \sigma_D - \sigma_P. \quad (4.2)$$

Le flux de section efficace du Noyau Composé est alors réparti en différentes voies de sortie, selon l'énergie du neutron incident et les voies de réactions accessibles (eq. 4.2). Dans ce qui suit, nous considérons une interaction entre un noyau cible ${}^A_{Z_C}X$ défini par un nombre de proton (*resp.* de neutron) Z_C (*resp.* N_C) et un neutron n d'énergie incidente E_n .

La Figure 4.3 montre une représentation schématique des voies de sortie possibles pour une telle réaction.

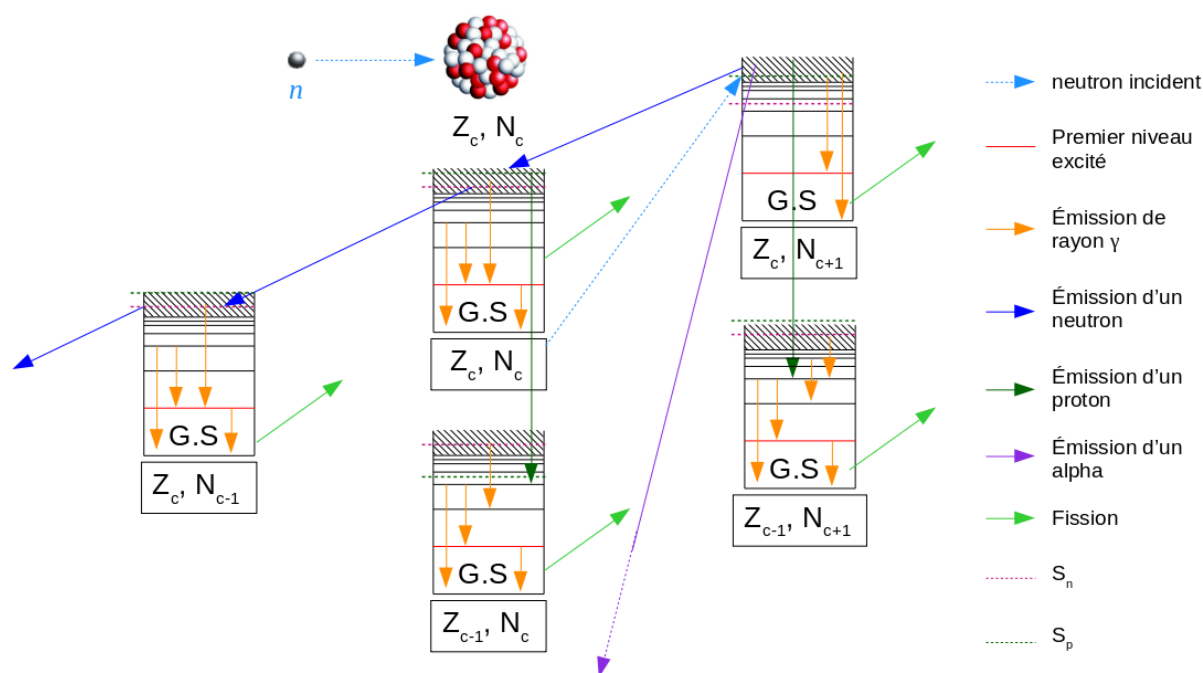


FIGURE 4.3 – Schéma de principe des réactions nucléaires induites par neutron. La flèche bleue pointillée correspond à la voie d'entrée et les flèches en trait plein représentent les différentes voies de sorties. Chaque noyau potentiellement formé est renseigné avec son Z et son N ainsi que son 1er état excité L_{01} et ses énergies de séparation proton S_p et neutron S_n . Les flèches orange représentent une émission γ , les bleues une émission de neutron n , les vertes foncées une émission de proton p et les vertes claires la fission. Figure inspirée de [89].

Bien entendu, la probabilité liée à telle ou telle voie de sortie dépend de l'énergie du

neutron incident et de fait, de l'énergie d'excitation gagnée par noyau cible E^* . On peut citer les cas d'intérêt suivants pour les noyaux d' ^{233}U , ^{238}U et ^{239}Pu :

- $E^* < E_{L01}$: l'énergie d'excitation du noyau cible est inférieure au seuil inélastique (typiquement en deçà d'une dizaine de keV). Les seules voies de sortie sont donc la diffusion élastique (n, n) et la capture radiative (n, γ). Dans le cas où le noyau cible est fissile (^{233}U et ^{239}Pu), la réaction de fission induite par neutron (n, f) est également accessible.
- $E^* \gtrsim E_{L01}$: l'énergie d'excitation du noyau cible est de l'ordre de celle de ses premiers niveaux excités (typiquement quelques dizaines à quelques centaines de keV pour un actinide). Outre les autres voies de réaction mentionnées précédemment toujours accessibles s'ajoute la diffusion inélastique (n, n'). La réaction (n, p) peut être également accessible si l'énergie d'excitation du noyau formé (Z_C, N_{C+1}) est supérieure à l'énergie de séparation de ce noyau.
- $E^* > S_{n,p}$: l'énergie d'excitation du noyau cible est supérieure à l'énergie de séparation neutron ou proton (typiquement de l'ordre du MeV). A ce stade le noyau a suffisamment d'énergie d'excitation pour émettre un neutron ou un proton supplémentaire (réaction (n, 2n) ou (n, np)). La réaction de fission (n, f) est également accessible aux noyaux fertiles dans cette gamme en énergie.
- $E^* \gg S_{n,p}$: au-delà d'une énergie d'excitation de l'ordre d'une dizaine de MeV, l'émission multiple de protons et/ou de neutrons (n, xnx'p) et les réactions de fission de chances multiples deviennent accessibles. Concernant ces dernières, il s'agit d'une réaction de fission après émission d'un proton ou d'un neutron. Elles sont notées (n, xnf).

Le code TALYS considère l'ensemble des mécanismes de réaction participant à l'interaction neutron-noyau et calcule l'ensemble des sections efficaces des voies de réactions. La Figure 4.4, inspirée de la documentation de TALYS, donne une représentation schématique de l'enchaînement des mécanismes de réaction dans le code.

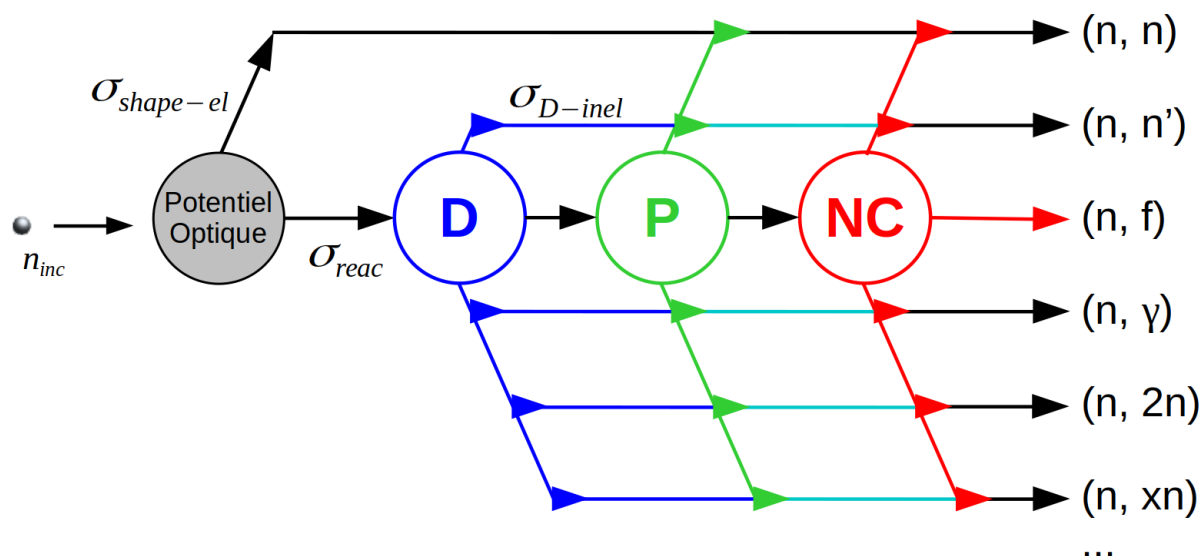


FIGURE 4.4 – Représentation schématique de l'enchaînement des mécanismes de réaction dans le code de réaction nucléaire TALYS. Figure inspirée de [89].

4.2 L'enchaînement des modèles dans TALYS

Dans ce qui suit, nous garderons cette structure et nous donnerons les grandes lignes des formalismes associés à chacun des mécanismes de réaction : modèle optique, réaction directe, mécanisme de Pré-équilibre, formation et désexcitation du noyau composé et les modèles nécessaires à la description de la fission.

4.2.1 Le Modèle Optique

Pour les hautes énergies neutrons ($E_n > 10$ keV), les calculs de sections efficaces sont basés sur la résolution de l'équation de Schrödinger 4.3 en utilisant un potentiel moyen complexe pour décrire l'interaction nucléaire entre un neutron incident et un noyau cible composé de A nucléons. Ce type de potentiel est appelé Potentiel Optique, par analogie aux phénomènes de diffusion ou d'absorption d'une onde lumineuse. On rappelle ici que le potentiel optique permet d'obtenir la section efficace totale (n, tot), la section efficace *shape elastique* (n, n_{shape}) et la section efficace de réaction (n, r). Il s'agit donc de résoudre l'équation suivante :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla^2 - \mathcal{V}(\vec{r}) - E \right] \Psi(\vec{r}) = 0, \quad (4.3)$$

avec μ la masse réduite du système, ∇^2 l'opérateur laplacien, \vec{r} les coordonnées du système, Ψ la fonction d'onde et \mathcal{V} le potentiel optique. Notons que l'on donne ici la forme locale du potentiel optique et de l'équation de diffusion associée (forme qui est utilisée dans ce travail). En toute généralité le potentiel est non-local et l'équation différentielle associée devient intégral-différentielle. En première approximation, on considère que le potentiel

est sphérique, ce qui permet de poser $\mathcal{V}(\vec{r}) = \mathcal{V}(r)$. Nous verrons dans ce qui suit qu'il est possible de prendre en compte la déformation du noyau. Finalement, le potentiel est calculé pour une énergie incidente donnée, ajoutant une dépendance énergétique à ce dernier. Ainsi, pour un noyau sphérique, $\mathcal{V}(r, E)$ est défini comme suit :

$$\begin{aligned} \mathcal{V}(r, E) = & -\mathcal{V}_V(r, E) - i\mathcal{W}_V(r, E) \\ & -\mathcal{V}_S(r, E) - i\mathcal{W}_S(r, E) \\ & + \mathcal{V}_{SO}(r, E) \cdot \vec{l} \cdot \vec{\sigma} + i\mathcal{W}_{SO}(r, E) \cdot \vec{l} \cdot \vec{\sigma}, \end{aligned} \quad (4.4)$$

avec \vec{l} le moment angulaire orbital et $\vec{\sigma}$ le spin. Dans l'équation 4.4, les parties réelles et imaginaires représentent respectivement la diffusion et l'absorption de la particule incidente avec le noyau cible. Dans ce potentiel \mathcal{V} , on retrouve les termes volumiques \mathcal{V}_V et \mathcal{W}_V , les termes surfaciques \mathcal{V}_S et \mathcal{W}_S et les termes spin-orbites \mathcal{V}_{SO} et \mathcal{W}_{SO} . En toute rigueur, il faudrait ajouter à ce potentiel un terme coulombien \mathcal{V}_C dans le cas des interactions avec des particules chargées. Pour voie d'entrée, puisque nous considérons ici une interaction induite par neutron, ce terme disparaît. En revanche, dans le cas d'une réaction (n, p) ou (n, α) en voie de sortie, sa contribution est non nulle. Il faut noter que, dans la construction d'un potentiel optique local phénoménologique, l'introduction d'un terme central réel de surface \mathcal{V}_S ne s'est pas révélé utile, alors que l'absorption de surface \mathcal{W}_S est primordiale dans la description de la diffusion. Ce terme n'est donc pas utilisé dans cette approche. Chacun des termes du potentiel optique admet une dépendance radiale et une dépendance énergétique qui peuvent être exprimées séparément. Ainsi, on exprimera les puits de potentiel V_V , W_V , W_S , V_{SO} et W_{SO} comme dépendants de l'énergie uniquement et on ajoutera une partie radiale f indépendante de l'énergie. On a alors :

$$\begin{aligned} \mathcal{V}_V(r, E) &= V_V(E) f(r, R_{V_V}, a_{V_V}), \\ \mathcal{W}_V(r, E) &= W_V(E) f(r, R_{W_V}, a_{W_V}), \\ \mathcal{W}_S(r, E) &= -4a_{W_S} W_S(E) \frac{d}{dr} f(r, R_{W_S}, a_{W_S}), \\ \mathcal{V}_{SO}(r, E) &= V_{SO}(E) \left(\frac{\hbar}{m_\pi c} \right)^2 \frac{1}{r} \frac{d}{dr} f(r, R_{V_{SO}}, a_{V_{SO}}), \\ \mathcal{W}_{SO}(r, E) &= W_{SO}(E) \left(\frac{\hbar}{m_\pi c} \right)^2 \frac{1}{r} \frac{d}{dr} f(r, R_{W_{SO}}, a_{W_{SO}}), \end{aligned} \quad (4.5)$$

avec m_π la masse moyenne des mésons. Le facteur de forme $f(r, R_i, a_i)$ est de type Wood-Saxon, défini par l'équation 4.6 :

$$f(r, R_i, a_i) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{r-R_i}{a_i}\right)}, \quad (4.6)$$

où $R_i = r_i A^{1/3}$ est le rayon géométrique, r_i le rayon réduit, A le numéro de masse atomique et a_i la diffusivité.

La justesse avec laquelle ce modèle peut reproduire les données expérimentales dépend de l'ajustement des paramètres de ce modèle optique (OMP). Il existe plusieurs paramétrisations du modèle optique. On peut citer par exemple les travaux B. Morillon et P. Romain, mentionné précédemment [103], A.J. Koning et J.P. Delaroche [104] ou encore E.S. Soukhovitskii [105]. Ils ne seront pas détaillés dans ce manuscrit ¹.

On mentionnera tout de même l'existence des potentiels dits "dispersifs" [106]. Dans ce formalisme, les parties réelles et imaginaires des composantes du potentiel sont reliées par une relation de dispersion. C'est ce type de potentiel qui a été utilisé dans le cas de la modélisation des sections efficaces de l'²³³U. Dans ce cas, on a alors :

$$V_i^{\text{dis}}(E) = V_i(E) + \Delta V_i(E), \text{ avec } \Delta V_i(E) = \frac{P}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{W_i(E')}{E' - E} dE', \quad (4.7)$$

où $i = \{V, S, SO\}$ et où P est la valeur principale de l'intégrale. Précisons alors que les potentiels de ce type, du fait des relations de dispersions liant les parties réelle et imaginaire des termes du potentiel, contiennent un terme réel central de surface [103].

Les paramétrisations du modèle optique qui ont été utilisées afin d'obtenir les sections efficaces qui seront présentées pour les noyaux d'²³³U et ²³⁸U seront données dans l'Annexe C.

Les OMP qui ont été utilisés pour l'ajustement des sections efficaces totales présentées dans ce manuscrit proviennent de la base de données *RIPL-3 (Reference Input Parameter Library)* [107]. Les équations présentées ci-dessus impliquent une hypothèse forte : le noyau cible est considéré sphérique. Or, on peut raisonnablement admettre que ce n'est pas le cas pour les actinides. Aussi la déformation du noyau doit être prise en compte, notamment pour prédire les réactions directes.

4.2.2 Les réactions Directes

Pour prendre en compte la déformation des noyaux, les rayons géométriques de ces derniers définis dans l'équation 4.6 sont corrigés. Ces corrections sont nécessaires pour la description des réactions directes entre le neutron incident et le noyau cible. Plusieurs modèles permettent de prendre en compte cette correction selon la nature du noyau cible et de sa déformation. Le cas qui nous intéresse ici est la prise en compte de couplages forts intervenant, pour les noyaux fortement déformés tels que les actinides, entre la voie élastique et les voies inélastiques associées aux niveaux d'excitation de basse énergie induits par la vibration et la rotation du noyau. On parle alors de modèles en *voies couplées*.

Pour décrire ces couplages, l'approche phénoménologique consiste à déformer le potentiel en introduisant une dépendance angulaire dans ses paramètres. Les amplitudes de ces déformations sont des paramètres ajustés sur les données de diffusion. Généralement, seuls les rayons sont déformés et l'expression $R_i = r_i A^{1/3}$ est modifiée. Cependant, certaines approches peuvent aussi déformer les diffusivités a_i . Deux types de déformation sont prises

1. On peut tout même faire remarquer que c'est la paramétrisation Koning-Delaroche qui est utilisée par défaut dans TALYS.

en compte : les déformations dynamiques, décrivant les vibrations du noyau autour de sa forme d'équilibre (sphérique ou déformé) et les déformations statiques, rendant possible les états de rotation.

Dans le cas simple de la rotation symétrique, le rayon du noyau s'exprime comme :

$$R_i = r_i A^{1/3} \left[1 + \sum_{\lambda=2,4,\dots} \beta_\lambda Y_\lambda^0(\Omega) \right]. \quad (4.8)$$

Les β_λ sont les coefficients de déformation multipolaire à l'ordre λ et les Y_λ^0 sont les fonctions harmoniques sphériques. En pratique, seuls les premiers ordres en λ sont considérés. En effet, les valeurs des paramètres de déformation diminuent avec l'ordre en λ . De plus, la sensibilité des sections efficaces à ces paramètres diminuent également avec λ (voir chapitre 5). Les coefficients β_λ sont ici considérés constants. Cette dernière expression décrit donc la déformation du noyau et du potentiel optique neutron-noyau associé. Les multipôles de ce potentiel décrivent alors les couplages entre les états de la bande de rotation construite sur l'état fondamental. Si l'on veut prendre en compte les vibrations de ce dernier, il faut alors considérer le modèle harmonique vibrationnel, où le noyau est supposé sphérique ou déformé dans son état fondamental. Ses états excités peuvent alors être vus comme des oscillations (ou vibrations) autour de sa position d'équilibre. On a donc une nouvelle expression pour le rayon du noyau, devenant :

$$R_i = r_i A^{1/3} \left[1 + \sum_{\lambda,\mu} \alpha_{\lambda,\mu} Y_\lambda^\mu(\Omega) \right], \quad (4.9)$$

où $\alpha_{\lambda,\mu}$ représente l'amplitude des vibrations associées à la multipolarité λ . Dans le code de réaction nucléaire TALYS, le nombre d'états couplés est un paramètre que l'utilisateur peut fixer. La résolution de l'équation de Schrödinger, prenant en compte ce nouveau rayon permet une meilleure représentation des composantes directes des sections efficaces élastique et inélastique.

Dans l'enchaînement des modèles dans le code TALYS, les réactions Directes sont les premières à être calculées. Une fois ces composantes calculées et pour des temps d'interaction plus long interviennent alors les réactions issues du mécanisme de Pré-équilibre.

4.2.3 Les réactions de Pré-équilibre

Les mécanismes direct et de type noyau composé ne peuvent, à eux seuls, décrire l'interaction entre un neutron incident et un noyau cible. Si l'on reprend la Figure 4.2, la contribution du noyau composé n'est pas suffisante pour couvrir toute la gamme en énergie (chute de la section efficace en pointillé). De plus, les processus Directs décrivent l'excitation des états discrets du noyau. Enfin, il a été montré que les distributions angulaires dans cette zone (entre le direct et le noyau composé) sont piquées vers l'avant [108], ce qui indique une direction privilégiée pour les particules secondaires et donc, une "mémoire de la voie d'entrée". Ce mécanisme de réaction, admettant certaines propriétés du mécanisme direct et du mécanisme du noyau composé est le Pré-équilibre. Avec cette remarque,

on comprend que ce mécanisme de réaction joue un rôle important dans la description des sections efficaces inélastiques. Si l'on trace les sections efficaces de réaction (n, n') , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ pour le noyau d' ^{238}U avec et sans la prise en compte du mécanisme de Pré-équilibre et pour une énergie de neutron incident $E_n \in [0, 30]$ MeV, on obtient la Figure 4.5.

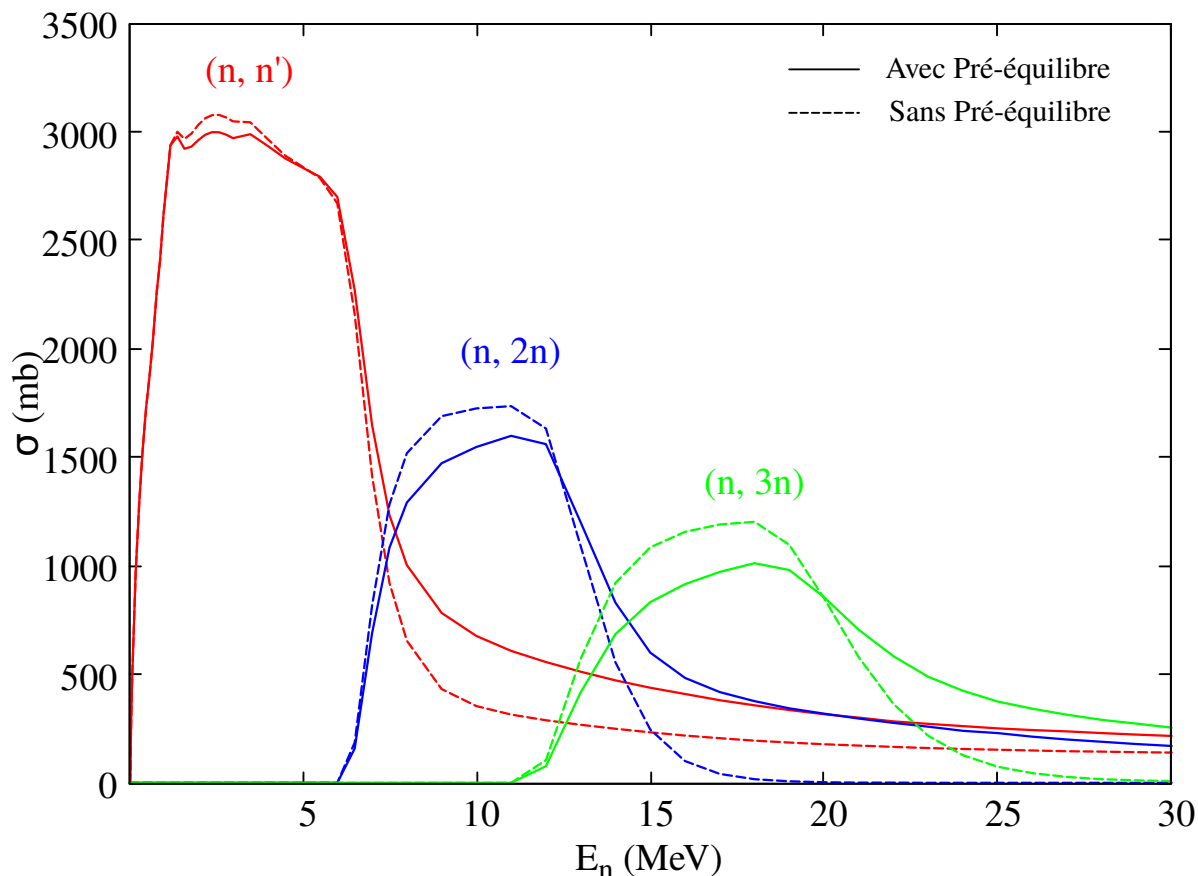


FIGURE 4.5 – Les sections efficaces de réaction (n, n') , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ pour le noyau d' ^{238}U avec et sans la prise en compte du mécanisme de Pré-équilibre.

Sur cette Figure, on voit que l'effet du Pré-équilibre commence à devenir non négligeable au-delà de 7 MeV, peu après l'ouverture de la voie $(n, 2n)$. On remarque que sans le Pré-équilibre, les sections efficaces de réaction $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ sont plus grandes à l'ouverture des voies, au détriment de la diffusion inélastique. À l'inverse, après le plateau, les sections efficaces chutent plus brutalement.

Nous allons à présent décrire le principe de ce mécanisme de réaction, illustré par la Figure 4.6. Un neutron incident au voisinage du noyau dans son état fondamental le perçoit comme un puits de potentiel, ayant pour énergie minimum l'énergie de Fermi E_F . La particule incidente peut alors interagir avec les nucléons périphériques du noyau (au niveau de la mer de Fermi) et créer des excitations successives de type particule/trou. Dans le cas extrême où il n'induit qu'une seule réaction, on retrouve le cas de la réaction directe.

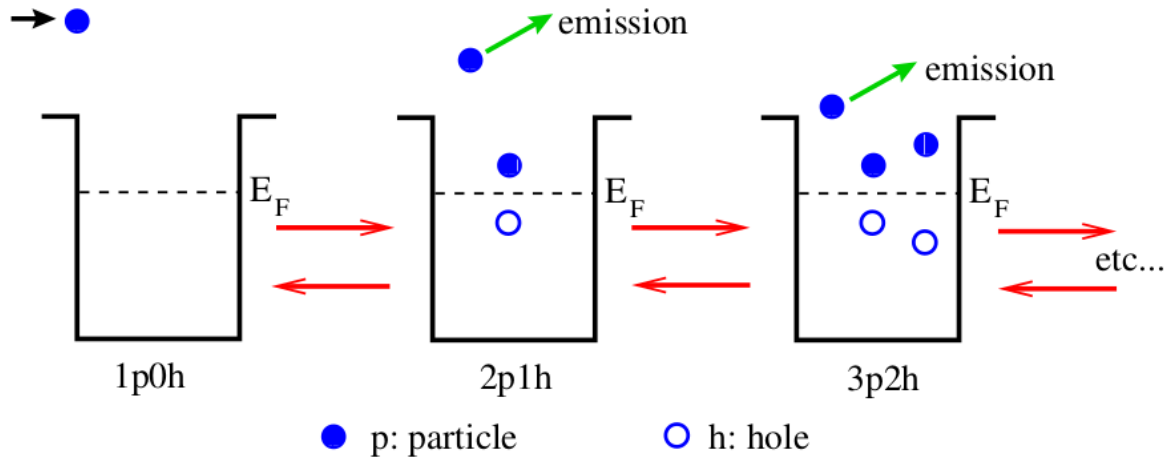


FIGURE 4.6 – Schéma de principe des réactions de Pré-équilibre. Figure reprise de la documentation TALYS [89].

A l'inverse, plus le neutron induit de réactions, plus il tend vers l'excitation de l'ensemble des nucléons du noyau jusqu'à être absorbé et former, de fait, un noyau composé. Nous n'allons pas détailler les différentes approches permettant de décrire ce mécanisme. Le code TALYS implémente l'approche semi-classique des excitons qui contient un certain nombre de paramètres préalablement ajustés (voir la documentation TALYS [89] et [109]).

On notera cependant que la composante de Pré-équilibre de la section efficace est liée à la section efficace de formation du noyau composé comme en témoigne l'équation (4.2). On pourra donc, dans le modèle des *excitons* implémenté dans TALYS, exprimer la section efficace différentielle de Pré-équilibre $\frac{d\sigma_k^P}{dE_k}$ de l'émission d'une particule k à une énergie E_k en fonction de τ_p , la durée de vie moyenne d'un état de type exciton, σ_{CN} , la section efficace de formation du noyau composé, W_k le taux d'émission de la particule k à l'énergie E_k et P , un facteur représentant la probabilité de ne pas émettre la particule incidente et créer une nouvelle configuration particule/trou comme :

$$\frac{d\sigma_k^P}{dE_k} = \sigma^{CN} \sum_{p_\pi} \sum_{p_\nu} W(p_\pi, h_\pi, p_\nu, h_\nu, E_k) \tau(p_\pi, h_\pi, p_\nu, h_\nu) P(p_\pi, h_\pi, p_\nu, h_\nu), \quad (4.10)$$

avec p_π et h_π (resp. p_ν et h_ν) les nombres de particules et de trous pour les protons (resp. pour les neutrons), définissant le nombre d'excitons $n = p_\pi + h_\pi + p_\nu + h_\nu$. Une des limitations de ce modèle réside dans le fait qu'après une réaction de Pré-équilibre, la distribution en spin du noyau composé n'est pas prédite et doit donc être calculée d'une autre manière. Par défaut dans TALYS, la distribution en spin du noyau composé est calculée à partir des états excités suite à une réaction de Pré-équilibre. Si on définit la densité d'état de Pré-équilibre ρ pour un nombre de particule et de trou p et h donné, un spin J et une énergie d'excitation E , on peut alors la décomposer en une partie indépendante du spin J et une partie indépendante en énergie comme suit :

$$\rho(p, h, J, E) = (2J + 1)R_n(J)\omega(p, h, E), \quad (4.11)$$

où la fonction $R_n(J)$ représente la distribution en spin des états dans le continuum et est donnée par la relation suivante :

$$R_n(J) = \frac{2J + 1}{\pi^{1/2}n^{3/2}\sigma^3} \exp \left[-\frac{\left(J + \frac{1}{2}\right)^2}{n\sigma^2} \right]. \quad (4.12)$$

Dans cette expression, n est le nombre d'exciton, J le spin et σ est le paramètre de *spin cut-off*, défini par :

$$\sigma^2 = 0.24nA^{2/3}, \quad (4.13)$$

où A est la masse du noyau et le facteur 0.24 un paramètre défini empiriquement [110], noté $\sigma_{cut-off}$ dans ce qui suit. Des développements plus récents dans le code TALYS réalisés au CEA-DAM permettent de décrire le mécanisme du Pré-équilibre avec une description quantique, à travers le formalisme de la QPRA (QuasiParticle Random phase Approximation) [111] et du modèle de convolution JLM (Jeukenne-Lejeune-Mahaux) [112, 113]. Dans ce formalisme, l'émission de la particule incidente est décrite par un processus direct. De fait, la conservation du moment angulaire permet de calculer explicitement le spin du noyau composé résiduel. Nous n'allons pas non plus décrire le formalisme de la QRPA dans ce manuscrit, mais nous allons tout de même comparer les distributions en spin obtenues avec les deux méthodes. La Figure 4.7, tirée de [68] montre les différentes distributions en spin du noyau résiduel après une émission de particule de type Pré-équilibre. L'énergie du neutron incident E_{in} et E_{out} l'énergie d'excitation cédée au noyau résiduel sont données à 10 et 5 MeV respectivement. Les courbes en pointillés rouges représentent la distribution en spin prédite par le modèle des excitons dans TALYS pour deux valeurs de paramètre de spin cut-off, la courbe noire représente cette quantité prédite avec le modèle microscopique de JLM/QRPA. La courbe en pointillée bleue est la distribution en spin microscopique utilisée dans un autre code de réaction nucléaire CoH [114] qui décrit les excitations de la cible avec des états à une particule-trou.

Tout d'abord, on peut remarquer que les deux modèles microscopiques sont plutôt en accord, avec une courbe de forme maxwellienne, piquée en $J \sim 3 \hbar$. Le modèle des excitons quant à lui, dans le cas du paramètre de spin cut-off par défaut dans TALYS ($\sigma_{cut-off} = 0.24$), prédit une distribution en spin très différente comparée aux modèles microscopiques, avec une courbe beaucoup plus étalée, et piquée en $J \sim 8 \hbar$. Afin de reproduire les distributions en spin des modèles microscopiques, le paramètre de spin cut-off a été ajusté. Ici, cet accord est obtenu pour $\sigma_{cut-off} = 0.04$. On peut vérifier que des tendances similaires sont observées pour différentes énergies de neutron incident. La réduction de ce paramètre de spin cut-off est nécessaire afin que les modèles des excitons et microscopique soient en accord concernant la distribution en spin du noyau composé après une réaction issue du mécanisme de Pré-équilibre. Cette nouvelle valeur

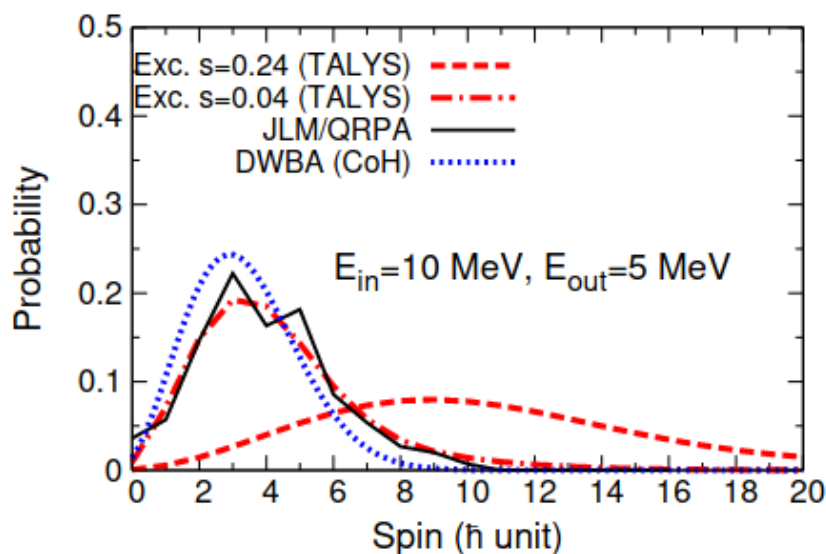


FIGURE 4.7 – La distribution en spin pour un neutron incident de 10 MeV sur un noyau d' ^{238}U et une énergie d'excitation cédée au noyau résiduel de 5 MeV. Figure reprise de [68].

n'est cependant pas unique et semble varier en fonction de l'énergie². Un modèle faisant évoluer ce paramètre lors du calcul est en cours d'implémentation dans la future version de TALYS. A la suite de l'émission de Pré-équilibre, le noyau est laissé dans un état excité. Le noyau résiduel vivra assez longtemps afin d'atteindre un équilibre thermodynamique. Ce système, appelé le noyau composé, pourra, après un temps très long par rapport aux précédents temps caractéristiques, décroître à son tour.

4.2.4 Le Noyau Composé

Le temps de formation du noyau composé est, pour rappel, beaucoup plus long que pour les autres mécanismes de réaction décrits jusqu'à présent, typiquement $\tau_{CN} \sim 10^{-16}$ s. Dans le cas de la formation du noyau composé, cette information est perdue. Il s'agit donc de décrire un processus de décroissance d'un noyau à l'équilibre vers son état fondamental. W. Hauser et H. Feshbach ont proposé en 1952 une théorie statistique décrivant un tel mécanisme [115]. Ils proposent ainsi une section efficace exprimée en fonction de coefficients de transmission T , décrivant la probabilité d'alimenter chacune des voies de réaction ouvertes. Ainsi, on a :

$$\sigma_{CN} = D \frac{\pi}{k^2} \sum_J g_J \frac{T_c^J(E_c) T_{c'}^J(E_{c'})}{\sum_{c''} T_{c''}^J(E_{c''})} W_{cc'}, \quad (4.14)$$

où k est le nombre d'onde de la particule incidente, g_J le facteur de spin, T les coefficients de transmission et $W_{cc'}$ est le "width fluctuation correction factor" ou facteur correctif de fluctuation de largeur de voie. Ce dernier prend en compte les propriétés statistiques des

2. M. Dupuis, communication personnelle

résonances [116]. Le facteur D est quant à lui un facteur de normalisation, défini comme suit :

$$D = \frac{\sigma_{reac} - \sigma_D - \sigma_P}{\sigma_{reac}}. \quad (4.15)$$

Pour rappeller, σ_{reac} est la section efficace de réaction et σ_D et σ_P sont les composantes directe et Pré-équilibre de σ_{reac} . Dans le même temps, TALYS détermine aussi les distributions angulaires des particules émises par le noyau composé. On peut noter que le terme de correction des fluctuations $W_{cc'}$ devient négligeable pour des énergies incidentes au delà de quelques MeV pour la diffusion de neutrons sur des actinides. Plusieurs modèles permettent de calculer $W_{cc'}$. Par défaut dans TALYS, c'est le modèle de *Moldauer* qui est utilisé. Une fois encore, pour plus de précisions, nous renvoyons le lecteur à la documentation de TALYS et à la publication de P.A. Moldauer [89, 117].

En plus des mécanismes de réaction décrits ci-dessus, il est nécessaire de décrire une quantité importante, la densité de niveaux, qui intervient dans les calculs de type Hauser-Feshbach pour la décroissance du noyau composé. Cette quantité est également utilisé dans le calcul de la section efficace de fission qui sera abordé ensuite. Les modèles pour les coefficients de transmissions T des différentes voies de réaction seront également présentés.

4.2.5 La Densité de Niveaux

Les états quantiques du noyau atomique sont caractérisés par leur énergie, spin et parité. A l'image des résonances montrées sur la Figure 4.1, il existe une largeur et un espacement des niveaux dans le schéma de niveau. Plus le système est excité, plus le nombre de niveaux accessibles augmente. Et tout comme la section efficace, à partir d'une certaine énergie, les niveaux se recouvrent et ne sont plus discernables. On parle alors d'états du "continuum". On prédit leur énergie et les nombres quantiques associés avec des modèles de densité de niveaux. Dans le cadre de cette thèse, la densité de niveaux a été calculée utilisant le modèle composite proposé par A. Gilbert et A.G.W. Cameron [118]. Dans ce formalisme, la densité de niveaux n'est pas modélisée de manière unique sur tout le domaine en énergie d'excitation considéré. Dans ce qui suit, on notera $\rho_M^{tot}(E_x)$ la densité de niveaux décrite par le modèle M et pour une énergie d'excitation E_x . Ce modèle composite fait appel au modèle de température constante (CTM) et au modèle du gaz de Fermi (FGM). Le passage d'un modèle à un autre est défini par une énergie de "matching" (ou énergie de passage) E_M , cette dernière étant un paramètre ajustable. On a donc :

$$\rho_M^{tot}(E_x) = \begin{cases} \rho_T^{tot}(E_x) & \text{si } E_x \leq E_M, \\ \rho_F^{tot}(E_x) & \text{si } E_x \geq E_M, \end{cases} \quad (4.16)$$

avec $M = T$ pour CTM et $M = F$ pour FGM. La condition que doit remplir ce modèle composite est bien entendu la continuité de la densité de niveaux, autrement dit $\rho_T^{tot}(E_M) = \rho_F^{tot}(E_M)$.

Le modèle de température constante CTM

Pour les énergies en-deçà de E_M , on utilise le modèle CTM, où la densité de niveaux totale admet une forme exponentielle. En effet, Si l'on trace la courbe des niveaux cumulés $N(E_x)$, on voit que l'on peut la reproduire avec une loi exponentielle de type :

$$N(E_x) = \exp\left(\frac{E_x - E_0}{T}\right). \quad (4.17)$$

Cette dernière expression est appelée la "constant temperature law" (loi de température constante). La température nucléaire T et E_0 sont des paramètres utilisés pour ajuster cette formule sur les niveaux discrets. Aussi, la densité de niveaux totale pour le modèle CTM s'exprime comme suit :

$$\rho_T^{tot}(E_x) = \frac{dN(E_x)}{dE_x} = \frac{1}{T} \exp\left(\frac{E_x - E_0}{T}\right). \quad (4.18)$$

Le modèle du gaz de Fermi FGM

Pour les énergies au-delà de E_M , on utilise le modèle FGM. Dans ce cas, les effets collectifs sont négligés et on considère que les niveaux sont equi-espacés. On définit ainsi une densité de niveaux FGM comme suit :

$$\rho_F^{tot}(E_x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \frac{\sqrt{\pi} \exp[2\sqrt{aU}]}{12 a^{1/4} U^{5/4}}. \quad (4.19)$$

Dans cette dernière expression, on définit U , l'énergie effective d'excitation, de la façon suivante :

$$U = E_x - \Delta, \quad \text{avec } \Delta = \chi \frac{12}{\sqrt{A}}, \quad \text{et } \chi = \begin{cases} 0 & \text{si noyau impair-impair,} \\ 1 & \text{si noyau pair-impair,} \\ 2 & \text{si noyau pair-pair,} \end{cases} \quad (4.20)$$

où Δ est l'énergie d'appariement et A la masse du noyau considéré. Dans l'expression de $\rho_F^{tot}(E_x)$, σ est le paramètre de spin cut-off. *Note bene* : bien qu'il porte le même nom, il ne s'agit pas du même spin cut-off que celui évoqué dans la partie 4.2.3. Celui-ci dépend de a et de U et peut s'exprimer phénoménologiquement comme suit :

$$\sigma^2(U) = 0.088757A^{5/3}\sqrt{aU}. \quad (4.21)$$

Dans les expressions 4.19 et 4.21, a est le paramètre de densité de niveaux. Il est spécifique à chaque noyau et sa valeur asymptotique (où les effets de couches sont négligeables, *i.e.* pour $E_x \rightarrow \infty$), est \tilde{a} . Le facteur 0.088757 vient de J.H. Jensen et J.M. Luttinger [119].

Les effets de couches prennent en compte l'organisation interne des nucléons dans le noyau. Dans TALYS, ces effets de couches sont portés par la grandeur δW . Ce dernier est obtenu en faisant la différence entre la masse expérimentale du noyau et sa masse prédite par le modèle de la goutte liquide. Finalement, on peut exprimer le paramètre de densité de niveaux a en fonction de U et δW selon la formule suivante :

$$a = \tilde{a} \left(1 + \delta W \frac{1 - \exp[-\gamma U]}{U} \right), \quad (4.22)$$

où γ est le paramètre d'amortissement. Ce dernier reflète la rapidité de la convergence de a vers \tilde{a} . La Figure 4.8 trace la densité de niveaux obtenue avec la méthode composite CTM+FGM.

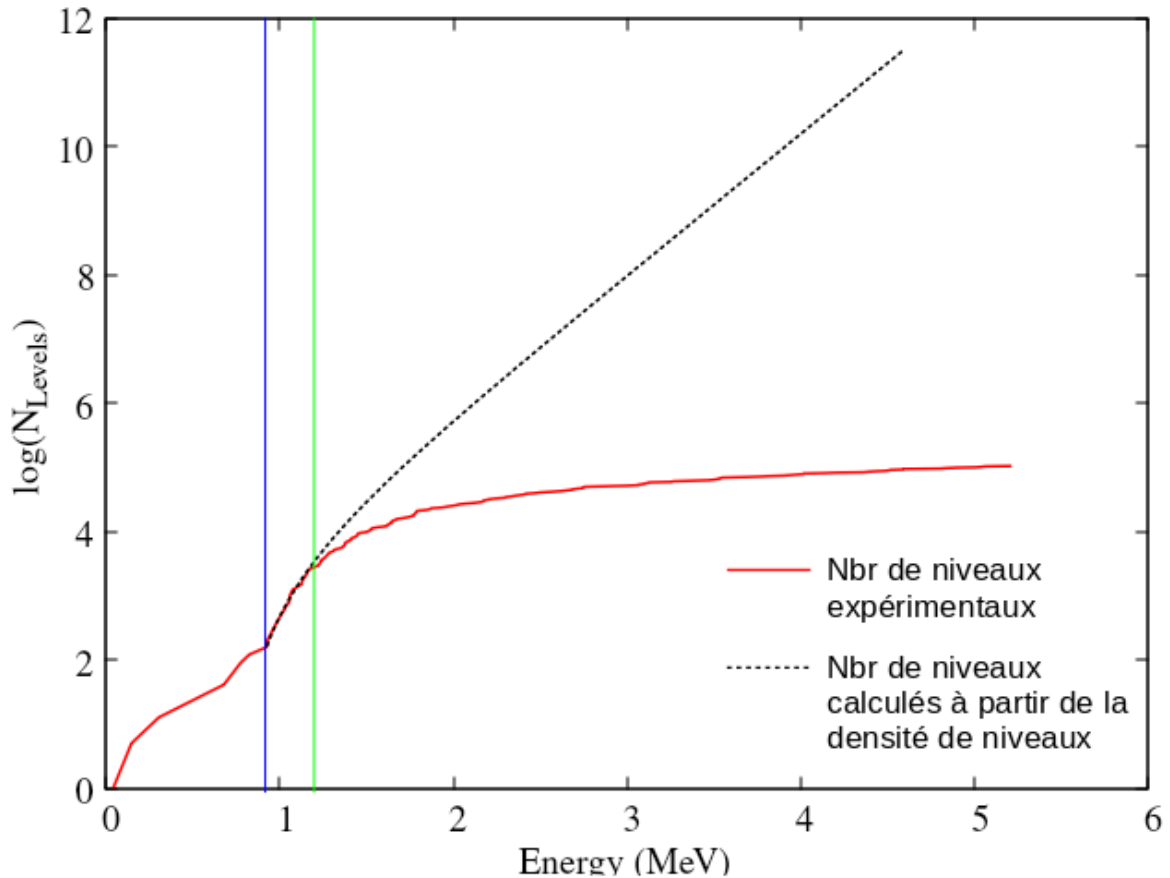


FIGURE 4.8 – Courbe des niveaux cumulés de classe I du noyau d'²³⁸U. En rouge sont tracés les niveaux expérimentaux et en noir pointillé les niveaux calculés à partir de la densité de niveaux. La ligne bleue donne la limite du schéma de niveau complet avec les spin/parité J^π renseignés et la ligne verte correspond au schéma de niveau complet sans information complète sur les J^π .

Outre les modèles CTM et FGM, il existe d'autres modèles qui permettent de calculer la densité de niveaux. On peut nommer le *Generalized Superfluid Model*, basé sur la théo-

rie de Bardeen, Cooper et Schrieffer [120], le *Back-shifted Fermi gas Model* (où l'énergie d'appariement Δ est traitée comme un paramètre ajustable) [121] ou encore, plus récemment, le *Global Microscopic Nuclear Level Densities* [122]. Ces trois modèles ne sont que mentionnés et n'ont pas été explorés dans le cadre de cette thèse.

Enfin, les modèles CTM et FGM ne prennent pas en compte les effets collectifs. Ils peuvent donc être corrigés avec des facteurs de rotation K_{rot} et de vibration K_{vib} , qui ne seront pas détaillés d'avantage ici. Enfin, pour compléter cette partie sur la description des mécanismes de réaction, il nous faut parler de la fission induite par neutron, dans le cas des actinides, qui nécessite un traitement particulier.

4.2.6 La Fission induite

La fission d'un noyau induite par neutron est un phénomène complexe et le calcul des coefficients de transmissions associés à cette réaction utilisé dans ce travail de thèse a été proposé par D.L. Hill et J.A. Wheeler [123]. Lors de la fission d'un noyau, ce dernier se déforme jusqu'à la scission de deux (ou plus) fragments de fission. Pour cela, il faut que le noyau franchisse une barrière de potentiel, nommée barrière de fission. Le modèle historique de la goutte liquide présente une seule barrière de fission. Cependant, des modèles plus récents permettent de décrire la fission avec deux ou trois barrières [124,125]. La Figure 4.9 donne une représentation schématique d'une double barrière de fission en traçant l'énergie potentiel du noyau V en fonction de sa déformation ε . Sur cette Figure, les états de Classe I désignent les états du noyau non déformé (ou du moins, dans son état de déformation fondamentale). Les états de classe II sont des états isomériques issus du puits de potentiel entre les deux barrières. Leurs durées de vie sont plus élevées que les états de transition au dessus des barrières et ils augmentent localement la probabilité de fission du noyau. Chaque barrière i est caractérisée par sa hauteur V_i et sa largeur ω_i . Ces paramètres sont donnés dans la base de données *RIPL-3* mais sont ajustables dans *TALYS*.

On voit que selon l'énergie potentiel du noyau, la fission peut se produire via différentes voies. Outre la fission induite où l'énergie du système fissionnant est suffisante pour passer les deux barrières, il est possible qu'il fissionne également par effet tunnel, comme c'est le cas pour la fission spontanée par exemple.

Dans le modèle Hill-Wheeler, la probabilité du noyau composé, excité à l'énergie E_x , de traverser une barrière de fission de hauteur V_{fb} de largeur ω_{fb} est donnée par la formule suivante :

$$T_{fb}(E_x) = \frac{1}{1 + \exp \left[-2\pi \frac{(E_x - V_{fb})}{\hbar\omega_{fb}} \right]}. \quad (4.23)$$

Pour un état de transition, à une énergie ε_i au dessus de la barrière de fission, ce coefficient devient :

$$T_{fb}(E_x, \varepsilon_i) = \frac{1}{1 + \exp \left[-2\pi \frac{(E_x - V_{fb} - \varepsilon_i)}{\hbar\omega_{fb}} \right]}. \quad (4.24)$$

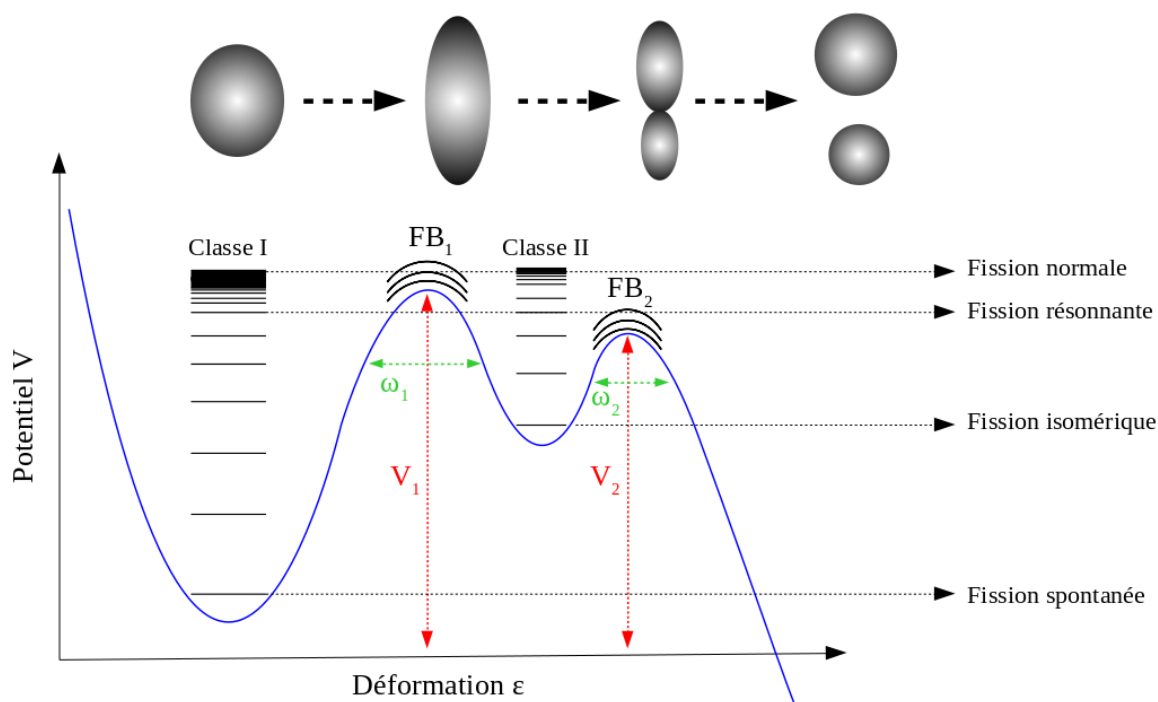


FIGURE 4.9 – Représentation schématique d'une double barrière de fission. Figure inspirée de [89].

Pour un noyau composé ayant pour énergie d'excitation E_x , un spin J , une parité Π , le coefficient de transmission total pour la fission est exprimé comme la somme des coefficients individuels pour chaque barrière $T_{fb}(E_x, \varepsilon_i)$, autrement dit :

$$T_{fb}^{j,\Pi}(E_x) = \sum_i T_{fb}(E_x, \varepsilon_i) f(i, J, \Pi) + \int_{E_{th}}^{E_x} \rho(\varepsilon, J, \Pi) T_{fb}(E_x, \varepsilon) d\varepsilon. \quad (4.25)$$

Dans cette dernière expression, la somme finie représente les états discrets accessibles jusqu'à l'énergie E_{th} où les niveaux ne sont plus discernables et l'on intègre en énergie sur les états du continuum, d'où la prise en compte de $\rho(\varepsilon, J, \Pi)$, la densité de niveaux. Notons qu'à chaque barrière de fission est associée une densité de niveaux ρ_{fb} , déterminée de la même manière que celle calculée pour le noyau composé dans son état fondamental, *i.e.* un modèle composite CTM et FGM (voir section 4.2.5). Il s'agira donc d'ajuster les paramètres présentés précédemment pour chaque barrière.

Dans le cas de la double barrière de fission, un coefficient de transmission effectif est généralement utilisé et s'exprime en fonction de T_{fb_1} et T_{fb_2} comme suit :

$$T_{eff} = \frac{T_{fb_1} T_{fb_2}}{T_{fb_1} + T_{fb_2}} \times F(E_x), \quad (4.26)$$

où $F(E_x)$ est un facteur prenant en compte l'augmentation de la probabilité de fission dans le cas où le noyau composé atteint un état isomérique de classe II (voir Figure 4.9). Afin de compléter la description des réactions présentées dans ce qui suit, il nous faut encore décrire les coefficients de transmission γ et la capture radiative.

4.2.7 Coefficient de transmission γ et capture radiative

Afin de modéliser la désexcitation du noyau via émission de rayon γ , la théorie de Hauser-Feshbach définit des coefficients de transmission γ . Ces derniers sont donnés pour une multipolarité l de type X (où $X = M$ ou E) comme suit :

$$T_{Xl}(E_\gamma) = 2\pi f_{Xl}(E_\gamma) E_\gamma^{2l+1}, \quad (4.27)$$

où E_γ est l'énergie du γ émis et f_{Xl} est la fonction de force- γ . Les différents modèles pour la fonction de force- γ n'ont pas non été spécifiquement étudiés dans le cadre de cette thèse. Nous renverrons donc le lecteur à la documentation de TALYS [89].

On mentionnera tout de même qu'à l'énergie de séparation de neutron s_n , f_{Xl} est généralement renormalisée par la largeur de capture radiative moyenne Γ_γ [126], ainsi que par l'espacement moyen des résonances D_0 . Ces deux derniers paramètres sont ajustables dans TALYS afin de reproduire la section efficace de capture radiative sur les données expérimentales disponibles.

Les modèles que nous avons utilisés pour réaliser nos calculs de sections efficaces ayant été décrits, nous allons maintenant présenter les résultats que nous avons obtenus. Les résultats présentés ci-après ont été obtenus avec la version locale de TALYS développée dans le cadre de ce travail de thèse, notée dans ce qui suit TALYS-1.95C. Sauf si cela est spécifiquement mentionné, c'est à cette version de TALYS que nous ferons référence.

4.3 Modélisation de sections efficaces de ^{233}U

Dans cette partie, nous nous intéressons à la modélisation des sections efficaces de ^{233}U . Nous présenterons les différentes paramétrisations qui ont été choisies, les résultats obtenus et les pistes d'amélioration afin de mieux reproduire les données expérimentales, ainsi que les évaluations. Nous comparerons dans un second temps les sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ aux prédictions de ce calcul et discuterons les résultats. Pour que ces dernières soient pertinentes, la justesse du calcul sur l'ensemble des sections efficaces doit être optimale.

4.3.1 La paramétrisation de TALYS

La description complète d'un fichier d'input de TALYS est décrite dans la documentation du code. Nous en donnerons donc seulement les grandes lignes dans ce manuscrit. Outre la nature de la particule incidente, le numéro atomique et la masse du noyau cible et enfin, l'énergie incidente du projectile, tous les autres mots-clés sont optionnels.

Le point de départ de ce calcul est le choix d'une paramétrisation du modèle optique. La base de données *RIPL-3* propose, en fonction des noyaux et des modèles (dispersif ou non par exemple), différents jeux de données pour les paramètres du modèle optique. La première partie de notre fichier d'entrée correspond donc aux paramètres du modèle optique. Pour le calcul de la section efficace totale, TALYS fait appel au code ECIS [127].

Ce dernier peut lire les tables de paramètres de modèles optiques fournies par la base de données *RIPL-3*. Cette table doit fournir, pour chaque énergie considérée dans le calcul les valeurs des OMP : $V_V, r_{V_V}, a_{V_V}, W_V, r_{W_V}, a_{W_V}, V_S, r_{V_S}, a_{V_S}, W_S, r_{W_S}, a_{W_S}, V_{SO}, r_{V_{SO}}, a_{V_{SO}}, W_{SO}, r_{W_{SO}}, a_{W_{SO}}$ et enfin V_c .

Notre choix s'est porté vers un jeu d'OMP proposé par R. Capote *et al.* [128, 129], publié sur *RIPL-3*. Le potentiel proposé utilise les relations de dispersion pour les composantes Volume, Surface et Spin Orbitale et est utilisable spécifiquement pour le noyau d' $l^{233}\text{U}$, pour une énergie comprise entre 1 keV et 200 MeV. Les paramètres de déformation multipolaire β_2, β_4 et β_6 sont également fournis par R. Capote *et al.* [129]. Enfin, la base de couplage est ici composée des trois premiers niveaux des deux premières bandes du noyau³ : $\left(\frac{5^+}{2}, \frac{7^+}{2}, \frac{9^+}{2}\right)$. Pour la partie Hauser-Feshbach, nous sommes partis du jeu de paramètres issu du dossier "best" fournit avec le code. Ce dossier réuni, pour chaque noyau présent dans la base de données TENDL [35], un fichier d'input avec des paramètres préalablement ajustés en fonction de la connaissance de celui-ci. Dans le cas de $l^{233}\text{U}$, des informations concernant les densités de niveaux pour les états de transitions des barrières de fission (voir eq. 4.25) pour les noyaux d' $l^{234}\text{U}$, $l^{233}\text{U}$ et $l^{232}\text{U}$ sont données. Pour la description des barrières de fission, nous avons utilisé les paramètres donnés par R. Capote [130]. Dans leur modélisation, ils font appel à trois barrières de fission. Nous ne rentrerons pas dans les détails techniques de la description de la fission induite à trois barrières dans ce manuscrit et renvoyons le lecteur aux travaux de M. López Jiménez [125] et à la documentation de TALYS [89]. On mentionnera tout de même que la prise en compte d'une troisième barrière change le coefficient de transmission effectif qui, dans le code TALYS, est défini comme suit :

$$T_{eff}^{fb_1,fb_2,fb_3} = \frac{T_{eff}^{fb_1,fb_2} T_{fb_3}}{T_{eff}^{fb_1,fb_2} + T_{fb_3}} \times F_{fb_1,fb_2,fb_3}, \quad (4.28)$$

avec $T_{eff}^{fb_1,fb_2}$ le coefficient de transmission à deux barrières donnée par l'équation (4.26).

Nombre de voies de réaction sont accessibles et une fois le noyau composé formé, il existe, de fait, plusieurs voies de déséxcitation. C'est pourquoi, dans l'ajustement des paramètres pour la réaction $n+l^{233}\text{U}$, il est nécessaire de prendre en compte les noyaux potentiellement formés suite à une telle interaction. Dans notre cas, il s'agit d'ajuster également les paramètres des noyaux tels que $l^{234}\text{U}$ ou $l^{232}\text{U}$ en plus de $l^{233}\text{U}$. Les valeurs des paramètres de densité de niveaux de la bande fondamentale ainsi que les hauteur V_i et largeur ω_i des barrières de fission sont données dans le Tableau 4.1.

Enfin, nous avons pris en compte la prescription du Pré-équilibre et fixé une valeur de spin cut-off à $\sigma_{cut-off} = 0.06$. Cette valeur est celle qui a été retenue lors de la modélisation des sections efficaces du noyau d' $l^{238}\text{U}$. Nous avons gardé cette valeur pour ce calcul-ci pour plus de cohérence entre les deux modélisations.

3. Le noyau d' $l^{233}\text{U}$ étant pair-impair, la bande fondamentale du noyau est divisée en deux bandes rotationnelles.

TABLEAU 4.1 – Tableau des paramètres de densité de niveaux et de barrières de fission suite à l’ajustement réalisé avec TALYS-1.95C, pour les sections efficaces du noyau d’ ^{233}U . Pour chaque isotope impliqué dans le calcul, *i.e.* les noyaux ^{234}U , ^{233}U et ^{232}U , les paramètres de densité de niveaux a , les hauteurs V_i et largeurs ω_i des barrières de fission sont donnés.

| | | ^{234}U | ^{233}U | ^{232}U |
|-------------------|---------------------------|------------------|------------------|------------------|
| Ground State | $a_{G.G.}$ (MeV $^{-1}$) | 25.28696 | 29.69297 | 25.19238 |
| Fission Barrier 1 | V_{FB_1} (MeV) | 4.5 | 1.6 | 5.2 |
| | ω_{FB_1} (MeV) | 0.5 | 0.6 | 0.9 |
| Fission Barrier 2 | V_{FB_2} (MeV) | 6.06 | 5.9 | 5.2 |
| | ω_{FB_2} (MeV) | 1.4 | 1.3 | 0.4 |
| Fission Barrier 3 | V_{FB_3} (MeV) | 5.7 | 5.2 | 5.1 |
| | ω_{FB_3} (MeV) | 1.4 | 1.3 | 0.6 |

4.3.2 Les sections efficaces totales et partielles

Comme exposé au chapitre 2, il existe des différences significatives entre les différentes évaluations des sections efficaces de réaction pour le noyau d’ ^{233}U . Pour la suite, nous comparerons les prédictions des codes de calculs avec les données évaluées de ENDF/B-VIII.0, ENDF/B-VII.1 [30], JEFF-3.3 [29] et JENDL-4.0 [31] pour une gamme en énergie neutron comprise entre 10 keV et 20 MeV. (*Nota bene* : dans le cas de l’évaluation des sections efficaces de l’ ^{233}U , les données de ENDF/B-VIII.0 et JENDL-4.0 sont identiques. C’est également le cas pour les librairies JEFF-3.3 et ENDF/B-VII.1).

La Figure 4.10 trace les sections efficace totales ^{233}U (n, tot), (n, n), (n, γ), (n, f) et (n, n’) obtenues avec TALYS et les compare aux évaluations ENDF/B-VIII et JEFF-3.3, ainsi qu’aux données expérimentales disponibles dans EXFOR.

Les sections efficaces totale, de diffusion élastique et de fission induite ainsi obtenues reproduisent fidèlement les données et sont globalement en accord avec les évaluations. La capture radiative quant à elle est surestimée, ce qui semble se répercuter sur la diffusion inélastique. Cependant, ces deux dernières sections efficaces sont entachées de grandes incertitudes et de peu (ou pas) de données expérimentales auxquelles se comparer.

Afin d’améliorer ces résultats, il faudrait réussir à mieux modéliser la section efficace de capture radiative. Les modèles implémentés dans TALYS n’ont pas pu tous être explorés pendant cette thèse. Cependant la description des fonctions de force- γ semble être à l’origine de cette sur-estimation. De plus, la base de données du code ne contient que peu d’information pour ce noyau. Bien que le fichier d’entrée fourni dans le répertoire "best" ait été notre point de départ, celui utilisé pour réaliser les calculs présentés ci-avant est très différent. La paramétrisation du spin cut-off pour la densité de niveaux (voir équation (4.21)) préconisé par [119] n’étant pas implémentée dans la version TALYS de base, les paramètres de densité de niveaux nécessitent un travail conséquent d’ajustement. Nous pouvons faire la même remarque avec le paramètre de spin cut-off du Pré-équilibre (voir Figure 4.7) qui a été modifié suite à la prescription de [68]. Enfin, la description de

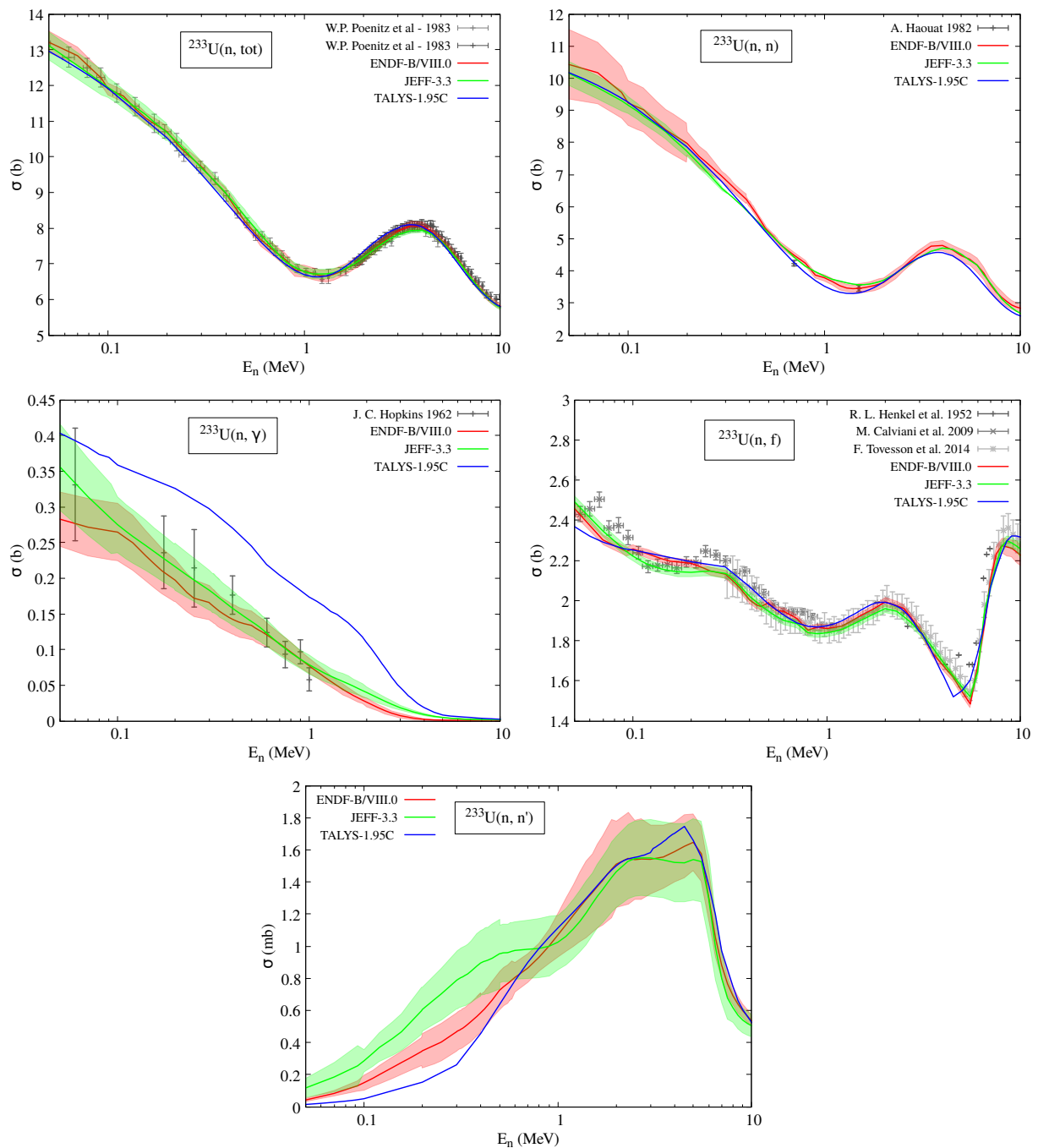


FIGURE 4.10 – Comparaison des sections efficaces ^{233}U (n, tot), (n, n), (n, γ), (n, f) et (n, n') obtenues avec la version locale de TALYS-1.95 avec les évaluations ENDF/B-VIII.0, JEFF-3.3 et les données expérimentales disponibles dans EXFOR.

la fission induite prenant en compte trois barrières de fissions a permis un bien meilleur accord entre les calculs et les données expérimentales ainsi que les évaluations. Une fois encore, les données de structure fournies par TENDL [35] ne fournissent des informations que pour un modèle à deux barrières.

A présent, nous pouvons comparer les sections efficaces expérimentales obtenues suite au travail d'analyse de données présenté dans les chapitres 2 et 3. Les Figures 4.11, 4.12, 4.13 et 4.14 comparent ces données avec les sections efficaces partielles ($n, n'\gamma$) issues du calcul TALYS-1.95C. Nous avons classé les transitions par bande rotationnelle. Pour chacune d'entre elle, on renseigne le spin/parité J^π du niveau initial et du niveau final, l'énergie du niveau initial E_i et l'énergie de la transition γ E_γ .

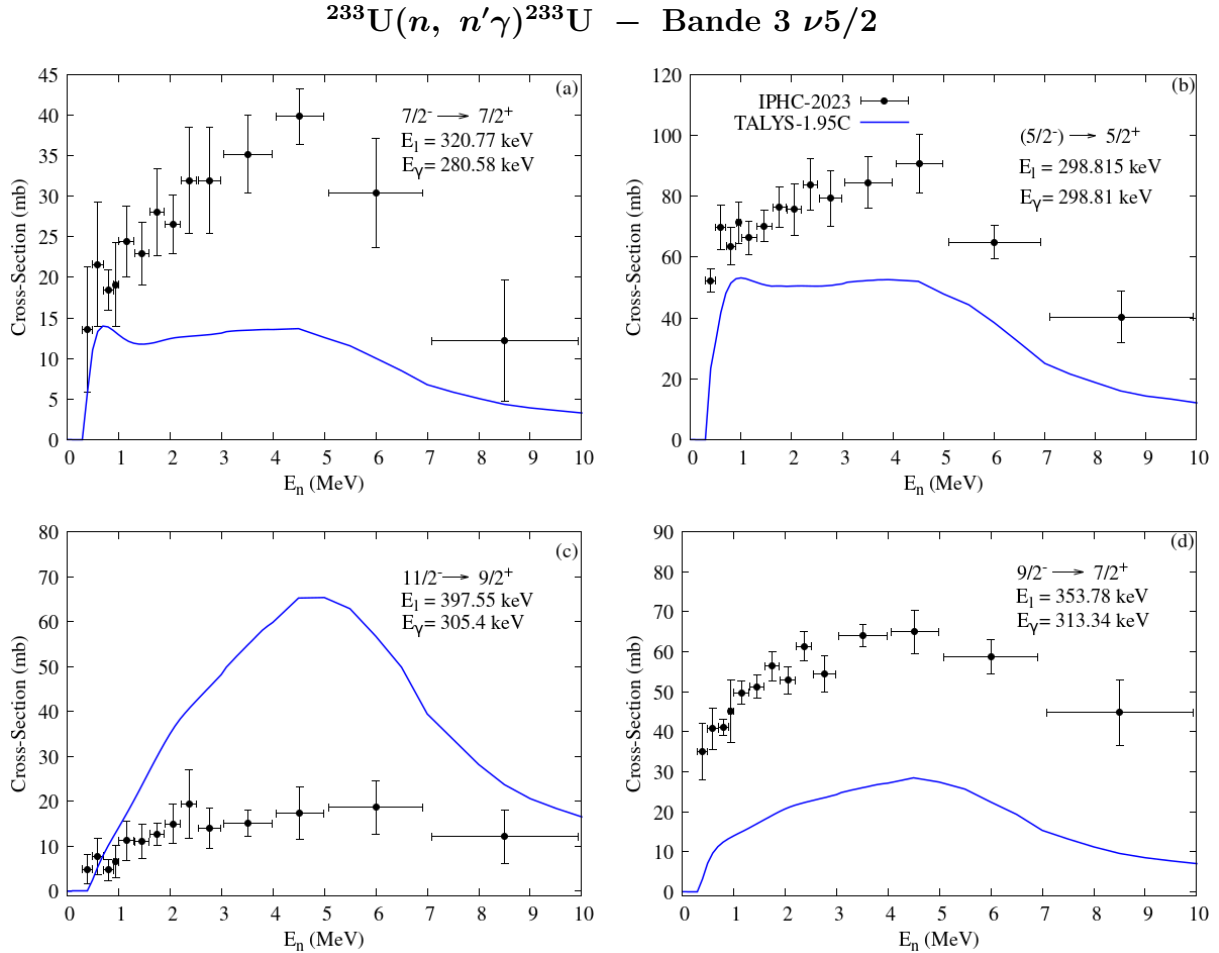


FIGURE 4.11 – Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions γ de la bande 3. En noir les points expérimentaux obtenus lors de ce travail de thèse et en bleu les résultats du calcul TALYS-1.95C.

Globalement, nous observons de grandes différences entre les résultats expérimentaux et les résultats des calculs TALYS-1.95C (avec les modèles choisis), que cela soit en termes d'amplitude ou de forme. Mise à part la transitions à $E_\gamma = 305.4$ keV, la formes des sections efficaces des transitions γ de la bande 3 (voir Figure 4.11) sont cependant plutôt bien reproduites. Concernant les différences en amplitude pour les autres transitions de cette bande, il pourrait s'agir d'un mauvais rapport d'embranchement renseigné dans le schéma de niveau. Pour les autres transitions, notre calcul prédit quasi-systématiquement un plateau entre 2 et 5 MeV, plateau rarement observé dans les données expérimentales.

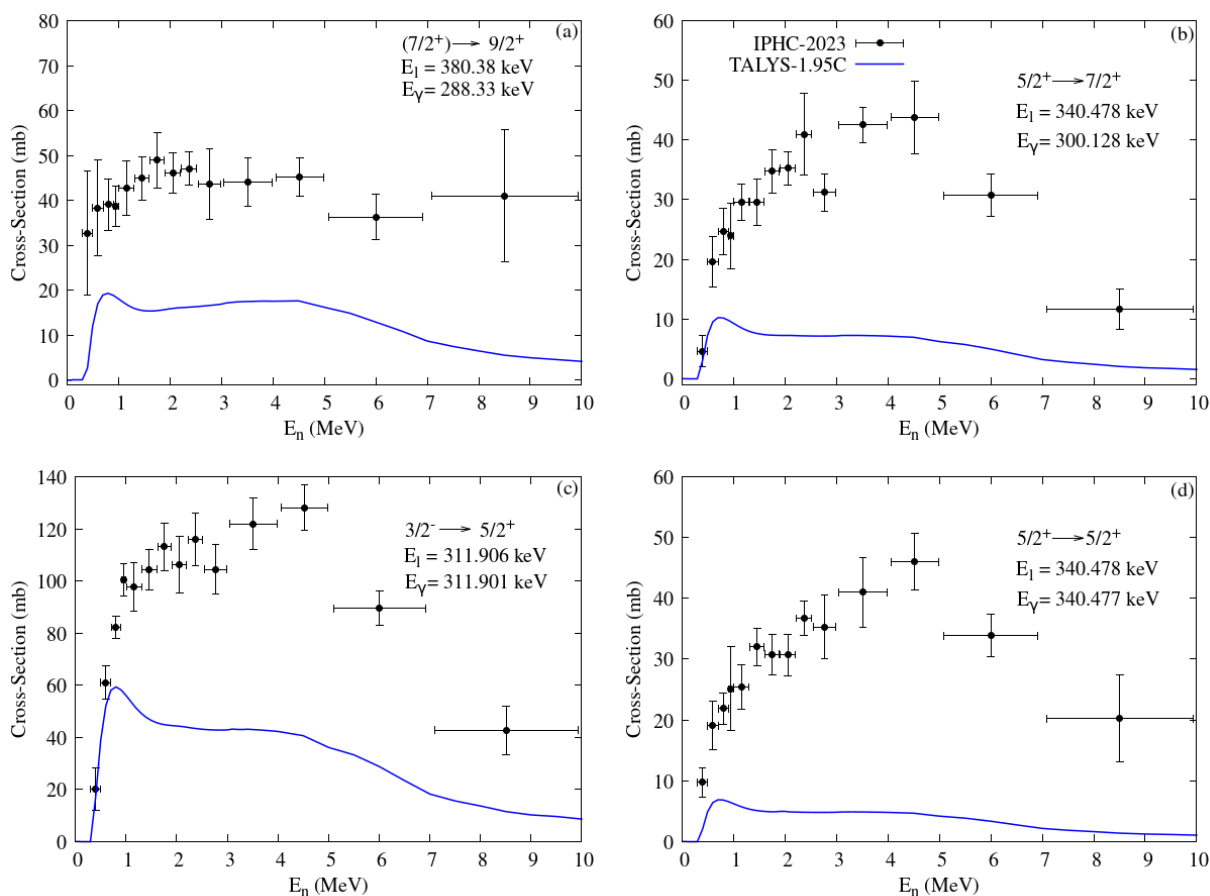
$^{233}\text{U}(n, n'\gamma)^{233}\text{U}$ – Bande 4 $\nu 3/2$ 

FIGURE 4.12 – Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions γ de la bande 4. En noir les points expérimentaux obtenus lors de ce travail de thèse et en bleu les résultats du calcul TALYS-1.95C.

De plus, la composante à basse énergie est davantage piquée dans la modélisation (en particulier pour la bande 4, voir Figure 4.12) que dans les données mesurées.

L'absence d'autres données expérimentales rend la discussion difficile car nous n'avons pas de point de comparaison. Cela étant dit, ces remarques mettent tout de même l'accent sur le manque de connaissance lié à ce noyau. On peut par exemple noter que certaines transitions observées expérimentalement sont absentes du schéma de niveau issu de *RIPL-3*. Si l'on fait abstraction des incertitudes expérimentales, on remarque un accord concernant la forme des sections efficaces, avec un creux pour une énergie de neutrons incidents d'environ 1 MeV. Cependant, les incertitudes actuelles ne permettent pas de confirmer la présence d'une telle structure dans les sections efficaces expérimentales.

Pour conclure, l'incapacité du code à reproduire globalement les formes et amplitudes des sections efficaces dénote d'un manque d'information concernant la structure du noyau d' ^{233}U . Il reste donc un travail de fond à réaliser avant de pouvoir bien décrire ce noyau, notamment la description de la diffusion inélastique.

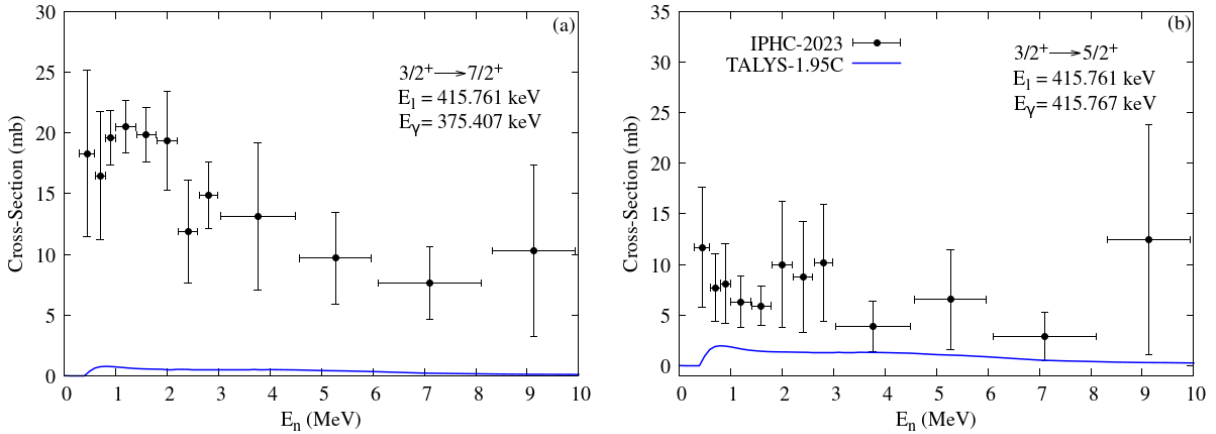
$^{233}\text{U}(n, n'\gamma)^{233}\text{U}$ – Bande 5 $\nu 1/2$


FIGURE 4.13 – Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions γ de la bande 5. En noir les points expérimentaux obtenus lors de ce travail de thèse et en bleu les résultats du calcul TALYS-1.95C.

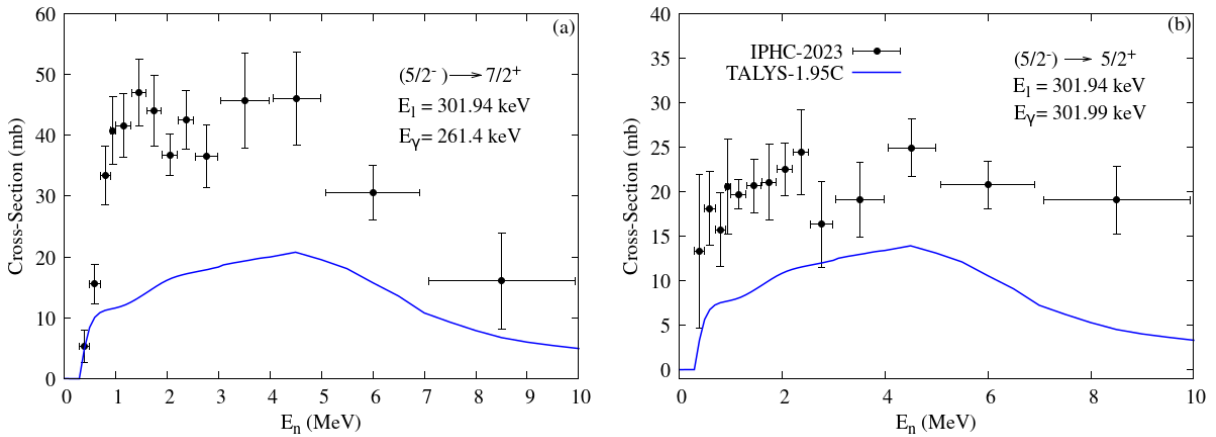
 $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)^{233}\text{U}$ – Hors Bande


FIGURE 4.14 – Sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions γ hors bande. En noir les points expérimentaux obtenus lors de ce travail de thèse et en bleu les résultats du calcul TALYS-1.95C.

4.4 Modélisation de sections efficaces de ^{238}U

La modélisation des sections efficaces pour le noyau d' ^{238}U avait déjà fait l'objet d'un travail mené par G. Noguere, en particulier la description de la section efficace de fission dans la région des Résonances Non-Résolues (URR). Les modifications apportées au code ont été motivées par les travaux de thèse de P. Tamagno [131] et de C. Châtel [132] sur la modélisation de la section efficace de fission dans cette zone en énergie. Le but du travail présenté ici a donc été de partir du calcul de G. Noguere réalisé avec sa propre version de TALYS et implémenter son travail dans la version 1.95 du code, distribuée en décembre

2019.

4.4.1 La paramétrisation de TALYS

En effet, il a fallu prendre en compte la nouvelle distribution en spin du Pré-équilibre issue des calculs microscopiques (voir partie 4.2.3). Le facteur du spin cut-off $\sigma_{cut-off}$ (voir eq. (4.13)) a été ajusté à la main afin de pouvoir reproduire au mieux les sections efficaces partielles ($n, n'\gamma$). On admettra donc, dans ce qui suit, une valeur de spin cut-off $\sigma_{cut-off} = 0.06$.

La paramétrisation du potentiel optique est la même que pour ^{233}U , à savoir un potentiel de la forme "Koning-Delaroche". Cependant, les relations de dispersion n'ont pas été utilisées. Pour le calcul de Modèle Optique, la base de couplage est dans ce cas composée des 5 premiers états de la bande fondamentale du noyau. Les paramètres de déformation multipolaire sont fournis avec les données du couplage, cependant, le paramètre β_4 a été ajusté. On prendra donc $\beta_4^{\text{TALYS-1.95C}} = 0.0745$ plutôt que $\beta_4^{\text{RIPL}} = 0.0560$.

Afin d'ajuster la section efficace de capture radiative $^{238}\text{U}(n, \gamma)$, les valeurs de la largeur totale de résonance radiative $\Gamma\gamma$ et l'espacement moyen des niveaux D_0 ont été modifiés. On peut trouver dans la littérature, notamment dans l'"Atlas of Neutron Resonances" [133], la valeur de $\Gamma\gamma^{\text{Atlas}} = 0.02336(31)$ eV et de $D_0^{\text{Atlas}} = 20.26(72)$ eV. Afin de reproduire la section efficace de capture, les valeurs $\Gamma\gamma^{\text{TALYS-1.95C}} = 0.02150$ eV et $D_0^{\text{TALYS-1.95C}} = 21.50$ eV ont été retenues.

Enfin, pour reproduire la section efficace de fission $^{238}\text{U}(n, f)$, les hauteurs V_i et largeurs ω_i des barrières de fission, ainsi que les paramètres de densité de niveaux a ont été ajustés. Le Tableau 5.2 donne la valeur des paramètres obtenus et les compare à ceux de la base de données *RIPL-3*.

TABLEAU 4.2 – Tableau comparatif entre les données de *RIPL-3* et l'ajustement réalisé avec la version locale de TALYS-1.95C. Pour chaque isotope impliqué dans le calcul, *i.e.* les noyaux ^{239}U , ^{238}U , ^{237}U , ^{236}U , ^{238}Pa et ^{235}U , les paramètres de densité de niveaux a , les hauteurs V_i et largeurs ω_i des barrières de fission sont donnés.

| | | ^{239}U | | ^{238}U | | ^{237}U | |
|-------------------|---------------------------|------------------|-------------|------------------|-------------|------------------|-------------|
| | | RIPL-3 | TALYS-1.95C | RIPL-3 | TALYS-1.95C | RIPL-3 | TALYS-1.95C |
| Ground State | $a_{G.S.}$ (MeV $^{-1}$) | 27.39080 | 31.05642 | 27.07969 | 29.17871 | 26.88953 | 27.34848 |
| Fission Barrier 1 | V_{FB_1} (MeV) | 6.45 | 6.22 | 6.30 | 6.16 | 6.40 | 6.12 |
| | ω_{FB_1} (MeV) | 0.70 | 0.48 | 1.00 | 0.76 | 0.70 | 0.62 |
| Fission Barrier 2 | V_{FB_2} (MeV) | 6.00 | 6.08 | 5.50 | 5.25 | 6.15 | 5.55 |
| | ω_{FB_2} (MeV) | 0.50 | 0.45 | 0.60 | 0.40 | 0.50 | 0.62 |

| | | ^{236}U | | ^{238}Pa | | ^{235}U | |
|-------------------|---------------------------|------------------|-------------|-------------------|-------------|------------------|-------------|
| | | RIPL-3 | TALYS-1.95C | RIPL-3 | TALYS-1.95C | RIPL-3 | TALYS-1.95C |
| Ground State | $a_{G.S.}$ (MeV $^{-1}$) | 27.40139 | 28.63531 | / | 28.16081 | 26.67688 | 25.23130 |
| Fission Barrier 1 | V_{FB_1} (MeV) | 5.00 | 5.00 | / | 4.50 | 5.25 | 5.10 |
| | ω_{FB_1} (MeV) | 0.90 | 0.85 | / | 0.45 | 0.70 | 0.57 |
| Fission Barrier 2 | V_{FB_2} (MeV) | 6.00 | 6.25 | / | 5.75 | 6.00 | 6.20 |
| | ω_{FB_2} (MeV) | 0.50 | 0.55 | / | 0.55 | 0.50 | 0.55 |

4.4.2 Les sections efficaces totales et partielles

Dans ce qui suit, les courbes des sections efficaces, à savoir $^{238}\text{U}(\text{n, tot})$, (n, n) , $(\text{n, } \gamma)$, (n, f) , $(\text{n, n}')$ et (n, 2n) , obtenues suite à l'ajustement des paramètres avec la version locale de TALYS sont présentées sur la Figure 4.15. Ces résultats seront comparés aux évaluations ENDF/B-VIII, JEFF-3.3 et les différents lots de données disponibles dans EXFOR pour chacune des réactions considérées.

L'effet de la prescription du Pré-équilibre (voir eq. 4.6) est visible sur la section efficace de fission et sur les sections efficaces $(\text{n, n}'\gamma)$, dont on donne une comparaison sur la Figure 4.16 avec les données expérimentales (notamment les dernières mesure de M. Kerveno *et al.* publiées en 2021 [68]), mais aussi avec le précédent calcul TALYS, où $\sigma_{\text{cut-off}} = 0.24$.

On remarque sur la Figure 4.16 un meilleur accord calcul/mesure avec la nouvelle distribution en spin pour une valeur de $\sigma_{\text{cut-off}}$ de 0.06, en particulier pour les transitions à $E_\gamma = 210.6$ keV et $E_\gamma = 257.8$ keV provenant d'état de haut spin (respectivement $J^\pi = 8^+$ et $J^\pi = 10^+$) pour les transitions de la bande fondamentales. Pour d'autres transitions en dehors de la bande fondamentale, on voit sur la Figure 4.17, les sections efficaces prédites avec la nouvelle distribution en spin du Pré-équilibre sont légèrement supérieures à celles prédites avec la distribution en spin par défaut.

Cependant, la modification de la distribution en spin du Pré-équilibre n'impacte pas la section efficace de diffusion inélastique $^{238}\text{U}(\text{n, n}')$. En effet, si on trace cette dernière sur la Figure 4.18 pour les deux valeurs de spin cut-off, aucune différence significative n'est observée.

Au regard de ces comparaisons entre calculs, évaluations et expériences, nous pouvons conclure que les données expérimentales sont bien reproduites par le calcul TALYS. La prescription du Pré-équilibre a bien été prise en compte et nous sommes parvenus à reproduire de nouveau la section efficace de fission $^{238}\text{U}(\text{n, f})$. La section efficace $^{238}\text{U}(\text{n, 2n})$ est surestimée vis-à-vis des données expérimentales. Enfin, la section efficace de diffusion inélastique $^{238}\text{U}(\text{n, n}')$ est réduite vis-à-vis des évaluations au niveau du plateau, pour $E_n \in [2, 6]$ MeV. Ce résultat est compatible avec les études de sensibilité menée par A. Santamarina [45] que nous présenterons dans le chapitre 5. Enfin, les sections efficaces de diffusions inélastiques partielles $(\text{n, n}'\gamma)$ présentent un bien meilleur accord calcul/mesure qu'avec le paramètre de spin cut-off par défaut de TALYS. De plus, nous obtenons des résultats similaires à ceux présentés en 2021 par M. Kerveno *et al.* [68].

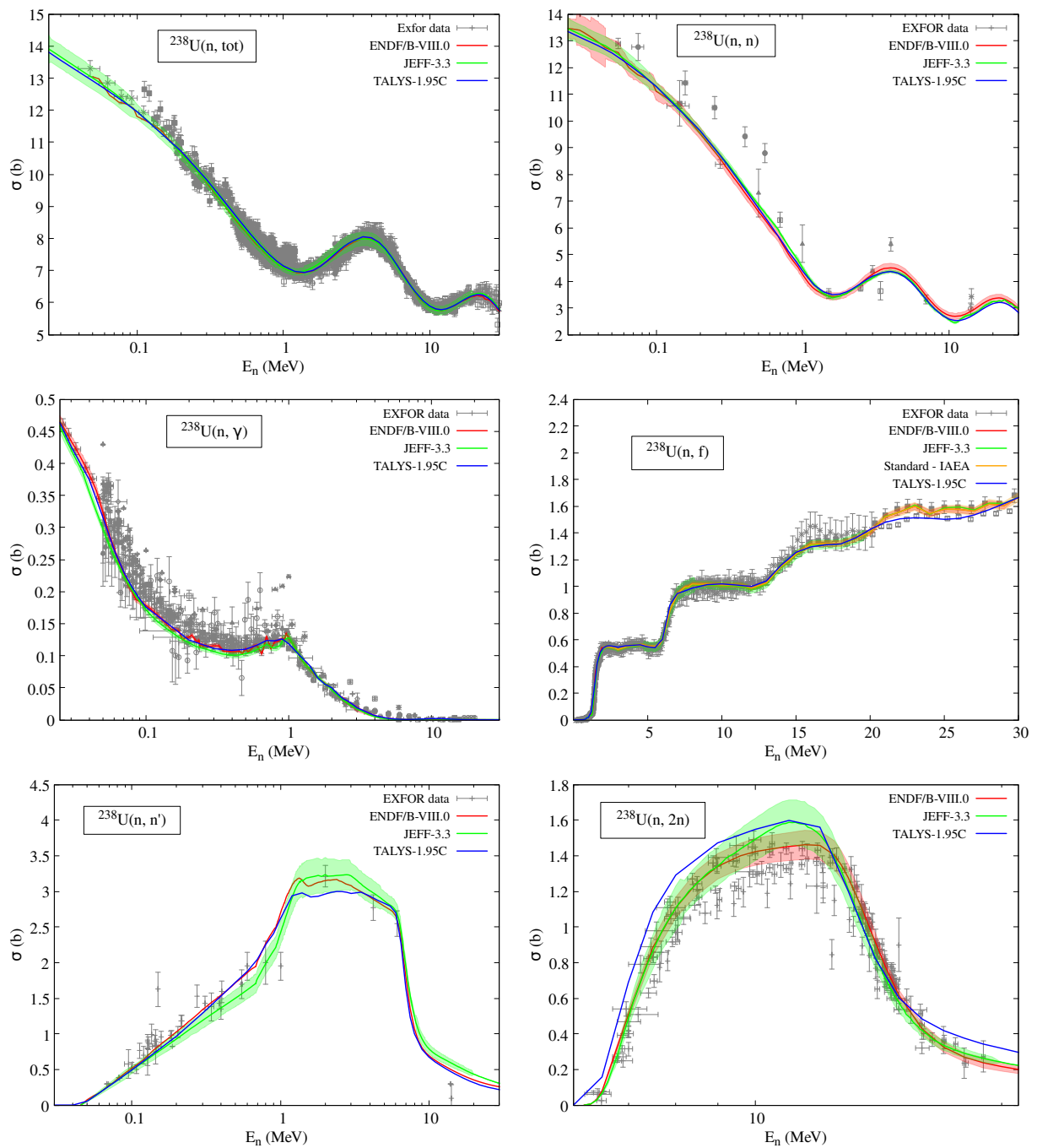


FIGURE 4.15 – Comparaison des sections efficaces ^{238}U (n, tot), (n, n), (n, γ), (n, f), (n, n') et (n, 2n) obtenues avec la version locale de TALYS-1.95 avec les évaluations ENDF/B-VIII, JEFF-3.3 (avec incertitudes si ces dernières sont fournies dans la base de données *JANIS - OECD / NEA Data Bank*) et les données expérimentales disponibles dans EXFOR. Pour des questions de lisibilité, la référence de chaque entrée d'EXFOR tracée dans l'une ou l'autre des figures est donnée en Annexe D.

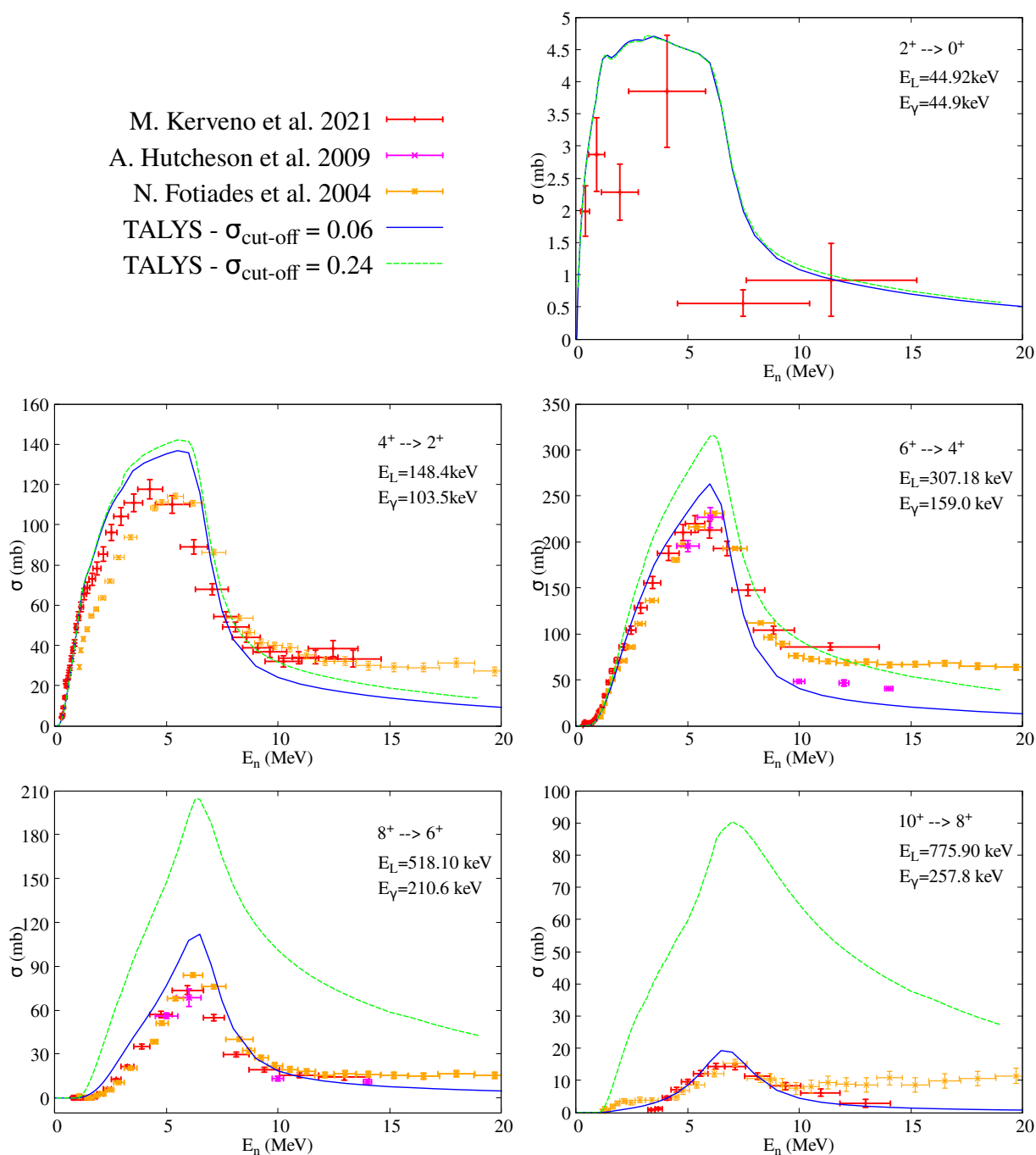


FIGURE 4.16 – Comparaison des sections efficaces expérimentales $^{238}\text{U} (n, n'\gamma)$ et les données expérimentales disponibles dans EXFOR avec celles obtenues avec la version locale de TALYS-1.95C pour les transitions de la bande fondamentale. Les courbes en pointillés sont les résultats des calculs avec la valeur de $\sigma_{\text{cut-off}}$ par défaut dans TALYS.

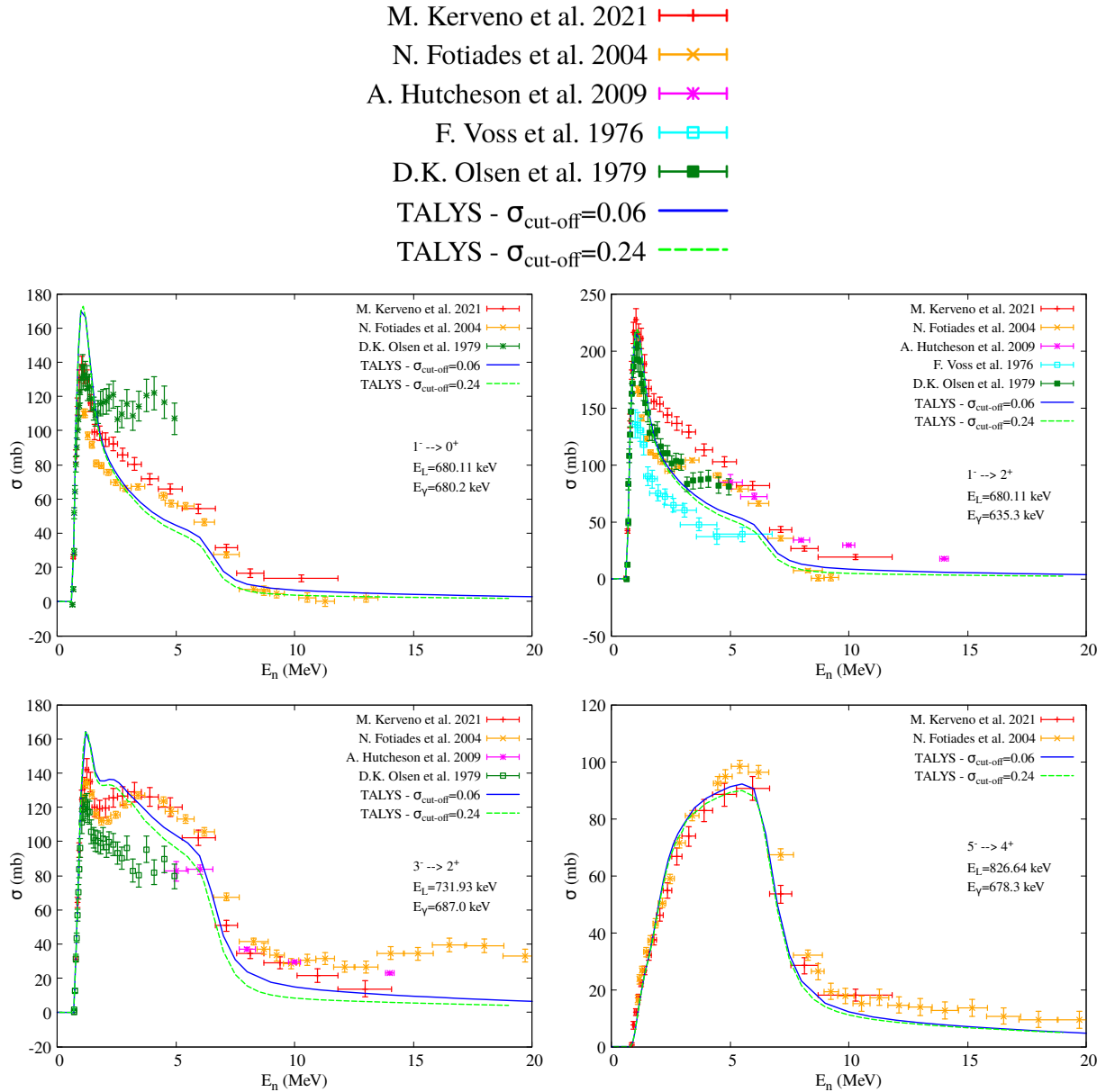


FIGURE 4.17 – Comparaison des sections efficaces expérimentales ^{238}U ($n, n'\gamma$) et les données expérimentales disponibles dans EXFOR avec celles obtenues avec la version locale de TALYS-1.95C pour des transitions en dehors de la bande fondamentale. Les courbes en pointillés sont les résultats des calculs avec la valeur de $\sigma_{\text{cut-off}}$ par défaut dans TALYS.

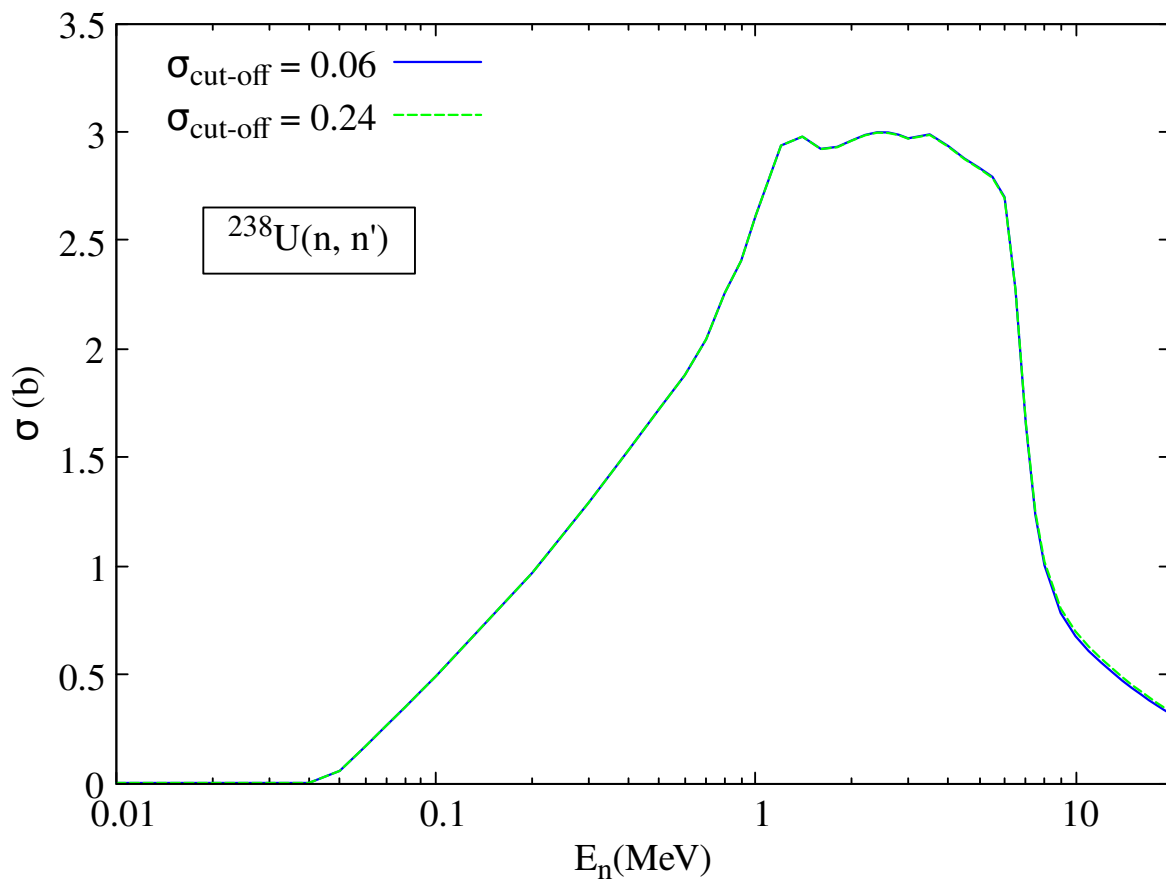


FIGURE 4.18 – Section efficace de diffusion inélastique $^{238}\text{U}(n, n')$ obtenue avec le calcul initial de G. Noguere avec la valeur par défaut de $\sigma_{\text{cut-off}} = 0.24$ (en vert pointillé) et avec le calcul TALYS-1.95C avec $\sigma_{\text{cut-off}} = 0.06$ (en bleu).

4.5 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre comment modéliser les sections efficaces issues du continuum de réaction grâce à l'enchaînement des modèles dans le code de réaction nucléaire TALYS. La nature phénoménologique des modèles utilisés dans ce travail et les modifications d'une version locale non distribuée de TALYS rendent difficile une comparaison directe des paramètres de modèles utilisés avec d'autres paramétrisations. Cependant, on peut voir que les sections efficaces de réaction de l' ^{233}U sont, à l'exception de la capture radiative $^{233}\text{U}(n, \gamma)$ qui est sur-estimée, bien reproduites. En revanche, des différences significatives entre calculs et mesures demeurent concernant les sections efficaces partielles $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour lesquels il reste un travail d'optimisation à réaliser. Dans le cas l' ^{238}U , les sections efficaces obtenues reproduisent fidèlement les évaluations et les données expérimentales.

Concernant l' ^{233}U , le but de ce travail de thèse n'est pas de réaliser une évaluation de ses sections efficaces. Comme on a pu le constater, un travail conséquent d'ajustement des paramètres de modèle reste à faire pour ce noyau et le manque de données expérimentales, combiné aux manques de connaissance de ce noyau (structure nucléaire ou densité de niveaux par exemple) ne rendent pas la tâche aisée. On pourra tout de même citer les récents travaux de R. Capote *et al.* [129] et M. Sin *et al.* [130] car une importante activité de modélisation des sections efficaces pour les différents isotopes de l'Uranium, respectivement $^{232,232,234,235,236,237,238}\text{U}$, a été menée avec le code de réaction nucléaire EMPIRE [134]. Une comparaison de nos résultats avec des calculs réalisés avec ce code nous semble donc pertinente. Un travail préliminaire a déjà été mené avec R. Capote utilisant la version EMPIRE-3.2 du code. Il reste une importante étape de comparaison des modèles utilisés par les deux codes qui n'a pas encore été fait. Ce travail mené conjointement, les résultats obtenus et les discussions qui en découleront feront l'objet d'un article à paraître : "Measurement of partial (n, n' γ) reaction cross sections on ^{233}U ".

En ce qui concerne la modélisation de l' ^{238}U , la nouvelle distribution en spin du Pré-équilibre, inspirée de modèles microscopiques, permet une meilleure description des sections efficaces $^{238}\text{U}(n, n'\gamma)$. En revanche, cela n'impacte pas la diffusion inélastique $^{238}\text{U}(n, n')$. Cette modélisation constitue le point de départ du travail d'évaluation des incertitudes présenté dans le chapitre 5, dédié à la mise en place d'une méthodologie d'évaluation des incertitudes des sections efficaces, illustrée avec l' ^{238}U . Le couplage de CONRAD et de TALYS permet une assimilation des données via la méthode de l'inférence Bayésienne, qui sera présentée également dans le chapitre suivant. Avec cette méthodologie, des paramètres, prenant en compte les données expérimentales d'une part et leurs incertitudes d'autre part, pourront être calculés et nous pourrions déterminer leurs incertitudes.

Évaluation des incertitudes des sections efficaces de l' ^{238}U

Sommaire

| | | |
|------------|--|------------|
| 5.1 | Introduction | 119 |
| 5.2 | CONRAD | 123 |
| 5.3 | Méthodologie de l'évaluation des données nucléaires | 124 |
| 5.3.1 | L'inférence Bayésienne | 124 |
| 5.3.2 | Les méthodes de marginalisation des données expérimentales | 126 |
| 5.3.3 | Conclusion intermédiaire | 132 |
| 5.4 | Propagation des incertitudes aux sections efficaces et validation des méthodes de marginalisation | 133 |
| 5.4.1 | Le prior et l'ajustement des paramètres | 135 |
| 5.4.2 | Comparaison des différentes méthodes de marginalisation des données expérimentales | 136 |
| 5.5 | Discussions | 141 |
| 5.6 | Sensibilités des sections efficaces de réaction aux OMP et β_λ | 144 |
| 5.7 | Conclusion | 147 |

5.1 Introduction

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 1 de ce manuscrit, la problématique du manque de données nucléaires précises, expérimentales ou évaluées, ne concerne pas uniquement les réacteurs innovants. Notamment, la section efficace de diffusion inélastique de l' ^{238}U présente, aujourd'hui, des incertitudes trop élevées pour répondre parfaitement aux besoins industriels. La Figure 5.1 illustre ce manque de données précises. Elle compare les données expérimentales et évaluées pour la section efficace $^{238}\text{U}(n, n')$.

Si à basse énergie, $E_n \in [0.1, 1]$ MeV, il y a des données expérimentales, les incertitudes et la dispersion de ces dernières ne permettent pas de contraindre suffisamment les évaluations. De plus, au-delà de 1 MeV, il n'y a que très peu de données expérimentales. *In fine*, c'est sur tout le domaine en énergie que l'on observe des incertitudes significatives entre pour les bases de données évaluées. Typiquement, L'évaluation de JEFF-3.3 donne des incertitudes comprises entre 3.4% (entre 7 et 8 MeV) et 14.5% pour une énergie proche du seuil.

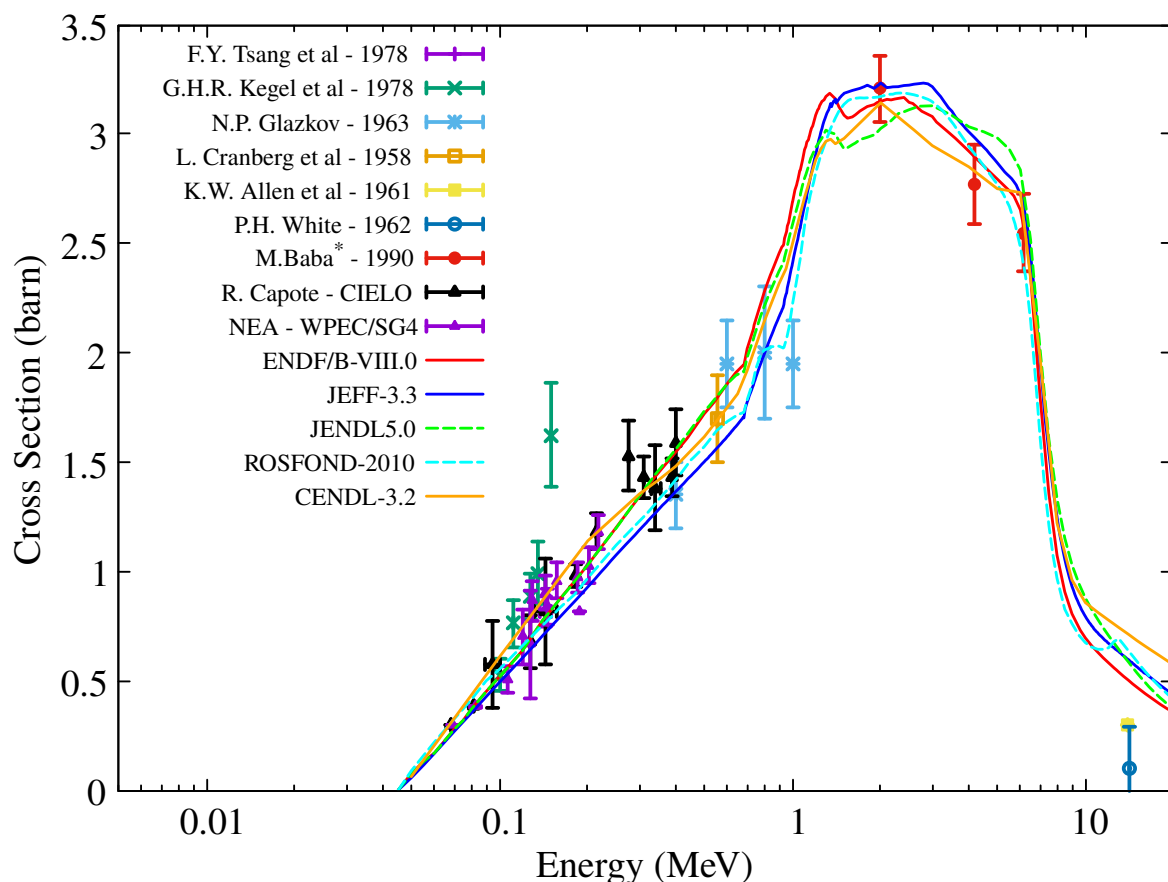


FIGURE 5.1 – Comparaison des données expérimentales de la section efficace de diffusion inélastique sur le noyau d' ^{238}U avec les bases de données évaluées dans leur version la plus récente.

Afin d'améliorer la modélisation et de fait, l'évaluation de cette section efficace de diffusion inélastique, de nouvelles mesures de sections efficaces (n , n') pourraient être réalisées. De plus, une nouvelle mesure des sections efficaces partielles (n , $n'\gamma$) réalisée par M. Kerveno *et al.* [68] est aujourd'hui disponible pour tester et contraindre les modèles sur ces dernières. En outre, les expériences intégrales peuvent également donner des tendances sur cette dernière, en étudiant des expériences spécifiques, dont les grandeurs étudiées (comme la valeur d'un k_{eff} par exemple) sont sensibles à la section efficace $^{238}\text{U}(n, n')$.

A. Santamarina *et al.* [45, 135] ont travaillé avec des benchmarks de référence afin d'améliorer la connaissance liée à cette section efficace. Dans leur étude, ils ont considéré plusieurs types d'expériences et ont comparé les résultats expérimentaux aux résultats de calculs *TRIPOLI-4@* [136], un code de calcul Monte-Carlo. Ils ont utilisé des bases de données provenant de sphères critiques ICSBEP [137] avec et sans réflecteurs, des réacteurs à neutrons rapides expérimentaux et le taux de fission dans un réacteur à eau pressurisé Français PWR-1500 MWe [138]. En comparant les écarts calculs/expériences (C/E) pour l'ensemble des données expérimentales, leurs conclusions furent les suivantes :

- La section efficace de diffusion inélastique $^{238}\text{U}(n, n')$ de JEFF-3.1.1, utilisée par les industriels, est surestimée et devrait être réduite de $(11 \pm 3) \%$ (1σ) pour une énergie de neutron incident comprise entre 2 et 5 MeV ;
- La composante du continuum (n, n'_{cont}) est en grande partie responsable de cette surestimation et devrait être réduite à elle seule de $(10 \pm 2) \%$ (1σ) dans cette même gamme en énergie.

Couplée à une incertitude trop élevée, cette tendance à la surestimation de la section efficace inélastique met l'accent sur le véritable besoin d'améliorer la connaissance de cette donnée, pour les concepts de réacteurs innovants de Génération IV mais aussi pour les grands cœurs de Génération III. Par exemple, D. Bernard s'est intéressé dans son HDR [53] à la longueur de migration moyenne des neutrons $\langle R \rangle$ (*i.e.* son libre parcours moyen) dans différents types de réacteurs de taille caractéristique $\langle L \rangle$. On peut montrer, selon la théorie de la diffusion, que la longueur de migration $\langle R \rangle$ est proportionnelle aux sections efficaces macroscopiques¹ totales et d'absorption et que $\langle L \rangle$ est proportionnelle au rapport Volume/Surface du réacteur considéré. Dans son travail, il a considéré une boule critique de Plutonium à spectre rapide du projet ICSBEP, avec $\langle L \rangle_{pmf-10} \sim 9.9$ cm, un cylindre contenant une faible quantité de Plutonium dissout à spectre thermique, également du projet ICSBEP, avec $\langle L \rangle_{pst-04} \sim 23.7$ cm et un réacteur de type REP à spectre thermique/épithermique dont $\langle L \rangle_{REP} \sim 300$ cm. La Figure 5.2 trace la longueur de migration moyenne du neutron $\langle R \rangle$ en fonction de son énergie cinétique, pour ces trois types de réacteurs.

Dans les deux premiers cas, on remarque que, globalement, $\langle R \rangle$ est supérieur à $\langle L \rangle$ ce qui signifie qu'en moyenne, les neutrons dans cette gamme d'énergie s'échappent du cœur. En revanche, dans le cas du REP, les neutrons restent confinés dans le cœur ($R < L$). On observe également que pour des neutrons dont l'énergie est comprise entre 500 keV et 1.3 MeV, la longueur de migration est maximale, et est d'environ 85 cm. En comparant $\langle R \rangle = 85$ cm à la taille d'un assemblage (typiquement 20 cm), on voit que ces neutrons peuvent se propager vers d'autres assemblages de combustible. L'une des conséquences notables de ce grand parcours est le découplage des nappes radiales de puissance de proche en proche. Cela implique la prise en compte d'un grand nombre d'assemblages couplés lors des calculs neutroniques, nécessitant une définition de la géométrie du cœur plus complexe et des temps de calcul beaucoup plus longs. Si l'on veut déterminer l'origine de ces neutrons dont l'énergie est comprise entre 500 keV et 1.3 MeV, il faut s'intéresser à la diffusion inélastique. En effet, c'est le principal mode de ralentissement des neutrons dans cette gamme en énergie. On peut tracer l'énergie de renvoi des neutrons après une réaction de diffusion inélastique en fonction de leur énergie incidente, dans le référentiel du centre de masse. On obtient la Figure 5.3, également extraite de [53] pour laquelle les sections efficaces de la base de données ENDF/B-VIII ont été utilisées.

Sur cette Figure 5.3, on observe trois tendances. Tout d'abord, on voit que les neutrons

1. La section efficace macroscopique est généralement plus utilisée en neutronique que la section efficace microscopique. Elle est définie comme $\Sigma = N \times \sigma$ où N est la concentration, soit le nombre d'atome par unité de volume, et σ est la section efficace microscopique (exprimée en barn). Autrement dit, Σ est la probabilité de collision par unité de longueur.

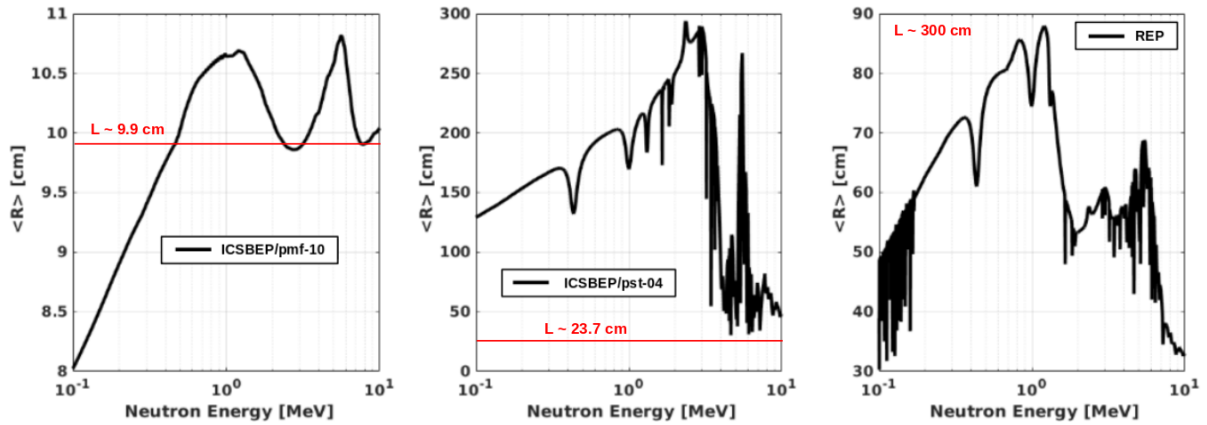


FIGURE 5.2 – Longueur de migration neutronique pour trois types de réacteurs : ICSBEP/pmf-10 (boule critique de Pu, spectre rapide) avec $\langle L \rangle_{pmf-10} \sim 9.9$ cm, ICSBEP/pst-04/1 (cylindre contenant une faible quantité de Pu, spectre thermique) avec $\langle L \rangle_{pst-04} \sim 23.7$ cm et un REP classique, spectre thermique/épithermique avec $\langle L \rangle_{REP} \sim 300$ cm exprimée en fonction de l'énergie des neutrons. Figure reprise de [53].

diffusés élastiquement (MT2) sont renvoyés avec une énergie secondaire (y) égale à l'énergie incidente (x). En effet, dans le cas d'une diffusion élastique entre un neutron et un noyau lourd tel qu'un actinide, la norme de l'énergie de renvoi est égale à celle de l'énergie incidente, le rapport $A/A + 1$ étant très proche de l'unité. (voir eq. (2.2) du chapitre 2). Puis, il y a les états dits discrets (de MT51 à MT89), pour lesquels le neutron incident perd une énergie correspondant à l'énergie d'excitation du noyau résiduel ($y = x - E_{L_i}$) avec E_{L_i} l'énergie du niveau L_i . On peut faire remarquer qu'il s'agit de réactions à seuil, avec une énergie de renvoi théoriquement nulle lorsque le neutron incident a une énergie incidente égale à E_{L_i} . Enfin, il y a le continuum (MT91) où, pour une large gamme en énergie incidente (entre 2 et 6 MeV), les neutrons sont renvoyés avec une énergie comprise entre 500 keV et 1.3 MeV, la zone où la longueur de migration $\langle R \rangle$ est maximale. Par ailleurs, cette zone en énergie incidente correspond au plateau (donc au maximum) de la section efficace de diffusion inélastique de neutrons sur ^{238}U (voir Figure 5.1). En conclusion, ce travail a montré que, quel que soit le devenir de ces neutrons (fuite ou migration vers une autre assemblée), la diffusion inélastique (en particulier dans le continuum) joue un rôle très important.

Toutes ces raisons motivent une meilleure connaissance et description de la diffusion inélastique pour le noyau de ^{238}U . Nous avons présenté dans la partie précédente une nouvelle modélisation des sections efficaces pour ce noyau, prenant en compte une distribution en spin de pré-équilibre inspirée des calculs microscopiques de type QRPA et nous avons vu un meilleur accord calcul/expérience en ce qui concerne les sections efficaces $^{238}\text{U}(n, n'\gamma)$. Ce calcul nominal nous servira de base pour le travail d'évaluation qui va être présenté par la suite.

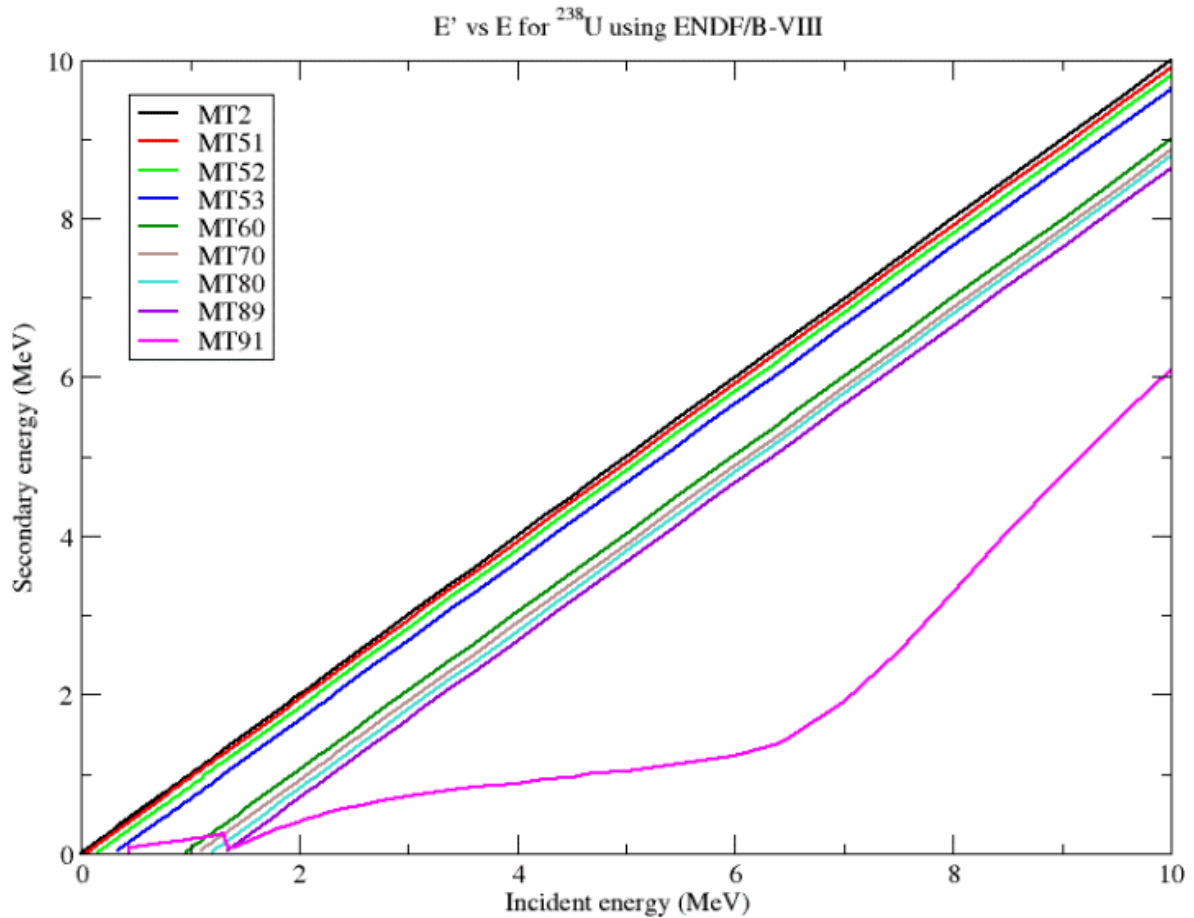


FIGURE 5.3 – Énergie de renvoi des neutrons en fonction de leur énergie incidente. La courbe MT2 représente une réaction de diffusion élastique, les courbes MT[51-89] représentent une diffusion inélastique sur un niveau discret de l' ^{238}U , et la courbe MT91 représente une diffusion inélastique sur les états du continuum. Figure reprise de [53].

5.2 CONRAD

Pour le travail d'évaluation des données mené lors de cette thèse, le code CONRAD (COde for Nuclear Reaction Analysis and Data assimilation) a été utilisé [139–142]. Cet outil, développé en C++ au LEPh (CEA) depuis 2005 permet, sur une large gamme en énergie, de fournir des données nucléaires évaluées (sections efficaces entre autres) avec leurs incertitudes associées grâce à des méthodes d'assimilation de données expérimentales. Il possède ses propres modèles de réactions nucléaires mais peut également faire appel à d'autres codes, en particulier le code TALYS, d'ores et déjà utilisé pour l'évaluation de données [143]. Bien que le code soit capable de fournir des données dans les domaines des résonances résolues (RRR) et du continuum, les calculs qui ont été réalisés pour les besoins de ce travail ne concernent que cette dernière gamme en énergie. C'est pourquoi nous n'aborderons pas le formalisme de la matrice R implémenté dans le code et utilisé pour décrire le domaine des RRR. Pour le continuum, CONRAD peut faire

appel au code ECIS pour les calculs liés au modèle optique. Plus récemment, P. Tamagno a implémenté dans le code un outil de résolution du modèle optique, permettant dans le même temps l'ajustement de ses paramètres (OMP), appelé "CCCP" [141]. Couplé à TALYS, CONRAD peut également calculer les sections efficaces de réaction. L'avantage de ce code est d'une part sa structure puisqu'il permet de paralléliser les calculs, réduisant de fait sensiblement la durée nécessaire pour chacun d'entre eux. D'autre part, CONRAD sert d'interface au code TALYS, en générant des fichiers d'entrées pour le code de réaction nucléaire et permet donc également d'ajuster des paramètres de TALYS depuis CONRAD.

Pour réaliser les différents ajustements, CONRAD utilise la technique de l'*inférence Bayésienne* et propage les incertitudes avec différentes méthodes de *marginalisation* qui seront décrites ultérieurement. Lors de ces ajustements, le code fournit non seulement les observables de physique (comme des sections efficaces) mais aussi la nouvelle valeur des paramètres ajustés ainsi que leurs incertitudes et leurs matrices de covariances.

5.3 Méthodologie de l'évaluation des données nucléaires

Pour rappel, une donnée évaluée est la meilleure prédiction possible d'une grandeur physique, construite à partir de résultats expérimentaux et de prédictions théoriques. Afin de réaliser ce travail d'évaluation, nous avons donc besoin de modèles (voir chapitre 4), définis par un certain nombre de paramètres à ajuster et de données expérimentales. Dans notre cas, on utilise CCCP pour la définition du potentiel optique et le code de réaction nucléaire TALYS. On parlera alors d'assimilation de données puisqu'il s'agit d'ajuster les paramètres de modèle afin de reproduire les données expérimentales. Une méthode d'assimilation de données est l'*inférence Bayésienne* où les jeux de paramètres et les données théoriques sont considérés comme des variables aléatoires. Nous allons donc en présenter le principe.

5.3.1 L'inférence Bayésienne

Considérons un jeu de données expérimentales $\vec{y} = \vec{y}_i$ ($i = 1, \dots, N$) et deux jeux de paramètres \vec{x} et $\vec{\theta}$ décrivant un modèle reproduisant les données \vec{y} . Les paramètres \vec{x} et $\vec{\theta}$ sont entachés d'une incertitude et sont considérés, comme mentionné plus haut, comme des variables aléatoires. On distingue les paramètres \vec{x} qui sont ajustés pour reproduire les données expérimentales, des paramètres $\vec{\theta}$ qui sont fixes mais dont l'erreur ne peut pas être négligée lors de la propagation des incertitudes. Ces derniers sont appelés *paramètres de nuisance*. L'inférence Bayésienne consiste à propager les incertitudes des données \vec{y} et des paramètres de nuisance $\vec{\theta}$ lors de l'ajustement des paramètres \vec{x} .

Le théorème de *Bayes* [144, 145] appliqué aux variables continues [146] permet d'exprimer la densité de probabilité ($p(\vec{x}|\vec{y}, U)$), *i.e.* d'obtenir un jeu de paramètres de modèle \vec{x} à partir d'une connaissance *a priori* U décrivant le jeu de données \vec{y} .

$$p(\vec{x}|\vec{y}, U) = \frac{p(\vec{x}|U) \cdot p(\vec{y}|\vec{x}, U)}{\int d\vec{x} \cdot p(\vec{x}|U) \cdot p(\vec{y}|\vec{x}, U)}. \quad (5.1)$$

Dans l'équation 5.1, $p(\vec{x}|U)$ représente la densité de probabilité *a priori* de \vec{x} , $p(\vec{y}|\vec{x}, U)$ désigne la fonction de vraisemblance (ou "likelihood") des mesures \vec{y} avec la connaissance des modèles et $p(\vec{x}|\vec{y}, U)$ représente la densité de probabilité *a posteriori*. Dans cette même formule, le dénominateur est un facteur de normalisation. *In fine*, on peut résumer l'équation 5.1 comme l'actualisation d'une connaissance à partir d'une nouvelle donnée [147] :

$$\text{posterior} [p(\vec{x}|\vec{y}, U)] = \text{prior} [p(\vec{x}|U)] \cdot \text{likelihood} [p(\vec{y}|\vec{x}, U)]. \quad (5.2)$$

La résolution de ce problème peut se faire de manière déterministe ou stochastique. Dans le premier cas, on fait l'hypothèse que les densités de probabilité suivent des lois gaussiennes [148]. Le but est donc de déterminer les valeurs des paramètres (on s'intéressera en particulier à leur valeur moyenne) ainsi que leur matrice de covariance. Dans ce qui suit, on notera \vec{x}^{prior} et M_x^{prior} le vecteur des valeurs moyennes des paramètres *a priori* et la matrice de covariance associée, \vec{y} et M_y le vecteur des mesures à assimiler et sa matrice de covariance. Enfin, \vec{t} est le vecteur des prédictions théoriques des expériences, fonction des modèles de réaction nucléaire et de leurs paramètres \vec{x} . Avec l'hypothèse gaussienne, on peut exprimer chacun des termes de l'équation 5.2 selon une loi gaussienne avec :

$$\begin{aligned} \text{prior} [p(\vec{x}|U)] &\propto e^{-\frac{1}{2}(\vec{x}-\vec{x}^{\text{prior}})^T M_x^{\text{prior}^{-1}} (\vec{x}-\vec{x}^{\text{prior}})}, \\ \text{likelihood} [p(\vec{y}|\vec{x}, U)] &\propto e^{-\frac{1}{2}(\vec{t}-\vec{y})^T M_y^{-1} (\vec{t}-\vec{y})}, \\ \text{posterior} [p(\vec{x}|\vec{y}, U)] &\propto e^{-\frac{1}{2}\chi_{\text{GLS}}^2}, \end{aligned} \quad (5.3)$$

où χ_{GLS}^2 est la fonction de coût de type moindres-carrés généralisés (Generalized Least Square) que l'on minimisera afin de résoudre le problème de manière déterministe. Elle est définie comme suit :

$$\chi_{\text{GLS}}^2 = (\vec{y} - \vec{t})^T M_y^{-1} (\vec{y} - \vec{t}) + (\vec{x} - \vec{x}^{\text{prior}})^T M_x^{\text{prior}^{-1}} (\vec{x} - \vec{x}^{\text{prior}}). \quad (5.4)$$

Le critère de convergence de cette résolution itérative par descente de gradient ε est défini par l'utilisateur et se compare à la variation de la fonction de coût entre deux itérations :

$$\frac{|\chi_n^2 - \chi_{n-1}^2|}{\chi_{n-1}^2} < \varepsilon. \quad (5.5)$$

Pour la résolution déterministe, il existe plusieurs méthodes implémentées par B. Herbert [149] dans CONRAD. Outre le choix de distributions gaussienne pour les densités de probabilité, d'autres hypothèses sont faites pour obtenir χ_{GLS}^2 : l'approximation de Laplace [148], pour les cas de faibles non-linéarités, on utilise une itérative, dite méthode de Gauss-Newton, pour laquelle on linéarise au premier ordre la distribution *a priori* et où on néglige le terme d'ordre supérieur.

Dans le cas d'une résolution stochastique, les paramètres sont échantillonnés aléatoirement selon la densité de probabilité du *prior* (pas nécessairement gaussienne. On peut par exemple considéré une distribution uniforme). Cette méthode a été proposée pour la première fois par D. Smith et R. Capote dans le cadre de l'évaluation de sections efficaces dans le continuum des énergies [150]. Depuis, cette méthode a été utilisée à plusieurs reprises par les évaluateurs [151–157]. Selon si les valeurs calculées sont proches (respectivement éloignées) de l'expérience, la fonction de vraisemblance $p(\vec{y}|\vec{x}U)$ sera importante (respectivement faible). Ainsi, les valeurs moyennes et covariances du *posterior* peuvent se comprendre comme une pondération par la *likelihood* des valeurs de paramètres \vec{x} suivant la distribution du *prior* [154]. Pour un nombre N_x de réalisations, on obtient les valeurs moyennes et covariances associées suivantes :

$$\langle x_i \rangle_{N_x} = \frac{\sum_k^{N_x} x_{i,k} \cdot \mathcal{L}_k}{\sum_k^{N_x} \mathcal{L}_k}, \quad \text{cov}(x_i, x_j)_{N_x} = \frac{\sum_k^{N_x} x_{i,k} \cdot x_{j,k} \cdot \mathcal{L}_k}{\sum_k^{N_x} \mathcal{L}_k} - \langle x_i \rangle_{N_x} \langle x_j \rangle_{N_x}, \quad (5.6)$$

avec $\mathcal{L}_k = p(\vec{y}_k|\vec{x}_kU)$. L'inconvénient majeur de cette méthode est la difficulté à converger vers une solution si la fonction de vraisemblance est faible, autrement dit, si le *prior* est loin de la solution. Pour résoudre ce problème, on peut introduire une fonction d'importance pour accélérer la convergence. Dans ce cas, les N_x réalisations sont échantillonnées selon la loi de distribution de cette fonction d'importance. Ce formalisme a fait l'objet du travail de thèse de E. Privas [154]. On peut également mentionner l'algorithme de Metropolis-Hastings pour une résolution stochastique de l'inférence Bayésienne via les chaîne de Markov [158–160]. Ces méthodes n'ont pas été explorées dans le cadre de cette thèse.

Avant de comparer les résultats donnés par les deux méthodes, déterministe et stochastique, il est nécessaire de présenter le concept de *Marginalisation* de paramètres.

5.3.2 Les méthodes de marginalisation des données expérimentales

La modélisation des données nucléaires nécessite l'utilisation de paramètres de modèle. Or, les données expérimentales que l'on cherche à reproduire sont entachées d'incertitudes que l'on doit prendre en compte dans le processus d'évaluation. C'est lors de la prise en compte de ces incertitudes qu'émerge la notion de *paramètres de nuisance*. Ces derniers ne sont pas ajustés lors de l'assimilation des données expérimentales mais leur incertitude n'est pas négligeable et doit être prise en compte. Dans le cas contraire, les incertitudes de l'évaluation sont sous-estimées. Ces paramètres peuvent venir de grandeurs expérimentales qui ne sont pas nécessairement pris en compte lors de l'ajustement (par exemple la température, le temps mort du système d'acquisition ou l'efficacité de détection). Ils peuvent également être introduits par l'évaluateur lorsque les incertitudes fournies dans la base de données sont incomplètes (par exemple des paramètres de normalisation). Ces paramètres de nuisance $\vec{\theta}$ doivent donc être pris en compte dans la méthode de l'*inférence*

Bayésienne. Considérant l'ensemble de paramètres de modèle \vec{x} et de nuisance $\vec{\theta}$, on obtient une nouvelle densité de probabilité définie par :

$$p(\vec{x}, \vec{\theta} | \vec{y}, U) = p(\vec{x} | \vec{\theta}, \vec{y}, U) \cdot p(\vec{\theta} | \vec{y}, U), \quad (5.7)$$

où $p(\vec{\theta} | \vec{y}, U)$ devient la connaissance *a priori* sur les paramètres de modèle et de nuisances. La mesure \vec{y} et les paramètres de nuisance étant supposés indépendants, on a $p(\vec{\theta} | \vec{y}, U) = p(\vec{\theta} | U)$. La distribution marginalisée recherchée, notée $p_{\vec{\theta}}(\vec{x} | \vec{y}, U)$ s'exprime donc par :

$$p_{\vec{\theta}}(\vec{x} | \vec{y}, U) = \int d\vec{\theta} \cdot p(\vec{x}, \vec{\theta} | \vec{y}, U) = \int d\vec{\theta} \cdot p(\vec{x} | \vec{\theta}, \vec{y}, U) \cdot p(\vec{\theta} | U). \quad (5.8)$$

En reprenant l'équation 5.1 et en injectant l'équation 5.8, on obtient alors l'expression de la marginalisation Bayésienne :

$$p_{\vec{\theta}}(\vec{x} | \vec{y}, U) = \int p(\vec{\theta} | U) \cdot \frac{p(\vec{x} | U) \cdot p(\vec{y} | \vec{\theta}, \vec{x}, U)}{\int d\vec{x} \cdot p(\vec{x} | U) \cdot p(\vec{y} | \vec{\theta}, \vec{x}, U)} d\vec{\theta}, \quad (5.9)$$

avec $p(\vec{y} | \vec{\theta}, \vec{x}, U)$ la fonction de vraisemblance de la mesure connaissant les paramètres de modèle et de nuisance.

Les valeurs moyennes et matrices de covariance des paramètres peuvent être calculées par des méthodes stochastique ou déterministe implémentées dans CONRAD. C'est ce que nous allons présenter dans ce qui suit.

5.3.2.1 Marginalisation Bayésienne Monte-Carlo

La méthode de marginalisation Bayésienne Monte-Carlo (BMC) que nous avons utilisée permet de simuler la distribution de l'équation 5.9 en réalisant un tirage aléatoire sur les paramètres de nuisance $\vec{\theta}$ selon la distribution $p(\vec{\theta} | U)$. Il s'agira dans ce qui suit de décrire cette méthode telle qu'elle est implémentée dans CONRAD.

Considérons \mathcal{N} tirages aléatoires de $\vec{\theta} : \vec{\theta}^{(k)}$ ($k = 1, \dots, \mathcal{N}$). Pour chacun des tirages k , l'ajustement des paramètres est réalisé avec la distribution suivante :

$$p_{\vec{\theta}=\vec{\theta}^{(k)}}(\vec{x} | \vec{y}, U) \propto p(\vec{x} | U) \cdot p(\vec{y} | \vec{x}, \vec{\theta} = \vec{\theta}^{(k)}, U), \quad (5.10)$$

avec $p(\vec{y} | \vec{x}, \vec{\theta} = \vec{\theta}^{(k)}, U)$ la fonction de vraisemblance définie précédemment pour une valeur fixe de $\vec{\theta}$. Dans notre cas, la résolution de ce problème se fait donc par minimisation de la fonction coût associée à cette distribution définie dans l'équation 5.4².

On obtient donc \mathcal{N} jeux de résultats admettant pour valeur moyenne de paramètres de modèle $\vec{x}^{(k)}$ et les matrices de covariance associées $M^{(k)}$. D'un point de vue probabiliste, le vecteur de paramètres de modèle $\vec{x}^{(k)}$ peut être vu comme l'espérance (*i. e.* la valeur moyenne) du vecteur de paramètres \vec{x} sachant que $\vec{\theta} = \vec{\theta}^{(k)}$.

In fine, on peut montrer (voir [157]) que la covariance finale marginalisée entre deux valeurs x_i et x_j s'exprime comme suit :

2. On parle alors de méthode "hybride" Monte-Carlo [157].

$$\text{cov}(x_i, x_j) = \text{cov}(x_i^{(k)}, x_j^{(k)}) + \mathbb{E}(M^{(k)}). \quad (5.11)$$

Cette dernière équation exprime l'estimation de la matrice de covariance des paramètres de modèle \vec{x} comme la somme de deux termes. Le premier correspond à la covariance calculée sur les \mathcal{N} valeurs moyennes obtenues lors de l'ajustement et le deuxième correspond à la moyenne des \mathcal{N} matrices de covariances associées à chaque ajustement.

Cette méthode de marginalisation BMC, comme beaucoup de méthodes stochastiques, est très coûteuse en temps de calcul. Des méthodes analytiques moins chronophages ont donc été implémentées récemment dans CONRAD par P. Tamagno [161], en plus de la méthode déterministe déjà présente dans le code. Nous allons maintenant présenter ces méthodes, leurs avantages et leurs inconvénients.

5.3.2.2 Marginalisations déterministes

Contrairement à la méthode précédente, on peut considérer que l'incertitude des paramètres de nuisance impacte la matrice de covariance de la simulation de l'expérience (et non la matrice de covariance des modèles dans le cas BMC). Une méthode basée sur des hypothèses d'algèbre linéaire a été implémentée par B. Habert [149]. Il s'agit de la marginalisation dite *matricielle*, notée dans ce qui suit MAT.

Méthode Matricielle

Considérons un jeu de paramètres \vec{p} comme l'ensemble des paramètres de modèle \vec{x} et des paramètres de nuisance $\vec{\theta}$ et sa matrice de covariance associée :

$$\vec{p} = \begin{pmatrix} \vec{x} \\ \vec{\theta} \end{pmatrix}, \quad M_p = \begin{pmatrix} M_x & M_{x,\theta} \\ M_{\theta,x} & M_\theta \end{pmatrix}. \quad (5.12)$$

La philosophie de cette méthode consiste à utiliser les sensibilités des modèles \vec{t} aux paramètres \vec{x} et $\vec{\theta}$ défini comme $S^t = \begin{pmatrix} \frac{dt}{dx} \\ \frac{dt}{d\theta} \end{pmatrix}$ pour propager les incertitudes et obtenir une matrice de covariance marginalisée sur les paramètres \vec{x} uniquement. On obtient alors l'expression de cette matrice, notée M_x^{marg} , dans l'équation (5.13).

$$M_x^{\text{marg}} = \left[\begin{pmatrix} S_x^t \\ S_\theta^t \end{pmatrix}^T \begin{pmatrix} S_x^t \\ S_\theta^t \end{pmatrix} \right]^{-1} \begin{pmatrix} S_x^t \\ S_\theta^t \end{pmatrix}^T S_p^t M_p \begin{pmatrix} S_x^t \\ S_\theta^t \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_x^t \\ S_\theta^t \end{pmatrix}^{-1}. \quad (5.13)$$

Il est possible de simplifier davantage cette expression en faisant remarquer que s'il n'y a pas de corrélation *a priori* entre les paramètres de modèle \vec{x} et les paramètres de nuisance θ , alors la matrice de covariance associée à \vec{p} , M_p , devient \tilde{M}_p définie par :

$$\tilde{M}_p = \begin{pmatrix} M_x^{\text{post}} & 0 \\ 0 & M_\theta^{\text{prior}} \end{pmatrix}. \quad (5.14)$$

Dans le cadre de cette hypothèse et en posant $M_p = \tilde{M}_p$ dans l'équation 5.13, on obtient une nouvelle expression pour la matrice de covariance des paramètres marginalisés :

$$M_x^{\text{marg}} = M_x^{\text{post}} + \left[\begin{pmatrix} (S_x^t)^T & S_x^t \end{pmatrix}^{-1} (S_x^t)^T S_\theta M_\theta^{\text{prior}} (S_\theta)^T S_x \begin{pmatrix} (S_x^t)^T & S_x^t \end{pmatrix}^{-1} \right]^{-1} \quad (5.15)$$

On voit dans cette dernière expression que contrairement à la méthode BMC, la méthode MAT s'effectue en deux étapes. Tout d'abord les paramètres des modèles sont ajustés sans prendre en compte les paramètres de nuisance. Ce n'est que dans une seconde étape que les incertitudes des paramètres de nuisance sont propagées. Cette méthode est beaucoup plus rapide que la méthode BMC. Cependant, elle n'est valable que si les tailles des vecteurs \vec{x} et \vec{t} sont égales (voir [161]). De plus, l'inversion du terme $\left[\begin{pmatrix} (S_x^t)^T & S_x^t \end{pmatrix}^{-1} \right]^{-1}$ n'est pas triviale, en particulier lorsque les sensibilités sont trop faibles, ou s'il y a de fortes corrélations entre les paramètres de modèle.

Dans les cas de marginalisation BMC et MAT, les paramètres de nuisance sont fixes et leurs incertitudes sont propagées. Or, la technique de marginalisation MAT, contrairement aux méthodes Bayésiennes, ne prend pas en compte la possibilité que le modèle ne soit pas en mesure de reproduire les données expérimentales malgré un ajustement des paramètres. Comment alors tirer parti de la rapidité d'un calcul déterministe tout en conservant une approche Bayésienne à l'assimilation des données expérimentales? Pour répondre à cette question, P. Tamagno [161] a implémenté de nouvelles méthodes de marginalisation déterministe dans CONRAD que nous allons à présent décrire.

La Décomposition Spectrale SIMPLE

Le principe de cette méthode repose sur les mêmes bases que la marginalisation MAT, où l'on cherche à égaliser la matrice marginalisée avec la matrice de covariance de la simulation ($M_x^{\text{marg}} = M_y^{\text{calc}}$). Toutefois, afin d'éviter les problèmes mentionnés précédemment, tous les paramètres (de modèle \vec{x} et de nuisance $\vec{\theta}$) sont ajustés lors de l'inférence Bayésienne. De façon similaire, la marginalisation est réalisée lors d'une seconde étape (premièrement, calcul des valeurs moyennes de \vec{x} et $\vec{\theta}$ *a posteriori* et deuxièmement, calcul de la matrice de covariance marginalisée des paramètres de modèle).

Étant donné un jeu de paramètres $\vec{p} = \begin{pmatrix} \vec{x} \\ \vec{\theta} \end{pmatrix}$ définissant un modèle \vec{t} , l'inférence Bayésienne prédit la densité de probabilité de l'*a posteriori*. La matrice de covariance M_p^{post} obtenue prédit alors des incertitudes plus faibles que la matrice de covariance marginalisée M_x^{marg} (voir équation 5.15). Ainsi, pour un vecteur de sensibilité noté $\vec{S} = \frac{d\vec{t}}{d\vec{p}}$, on peut écrire :

$$\forall \vec{S}, v_S^{\text{marg}} = \vec{S}^T M_x^{\text{marg}} \vec{S} \geq v_S^{\text{post}} = \vec{S}^T M_p^{\text{post}} \vec{S}, \quad (5.16)$$

avec v_S^{marg} et v_S^{post} les variances des observables associées aux matrices de covariance M_x^{marg} et M_p^{post} propagées sur les sensibilités \vec{S} . Le but ici est bien de propager les incertitudes des paramètres $\vec{p} = \begin{pmatrix} \vec{x} \\ \vec{\theta} \end{pmatrix}$ sur les paramètres de modèle \vec{x} uniquement.

Pour réaliser ce travail, nous allons procéder à une "décomposition spectrale" [161], en remarquant que la matrice de covariance M_x^{post} peut être obtenue par le produit de la

matrice de corrélation C_x^{post} et de la matrice diagonale des écarts types Σ associées, on peut poser $M_x^{\text{post}} = \Sigma C_x^{\text{post}} \Sigma$. Par définition, C_x^{post} est réelle et symétrique et on peut la décomposer comme suit :

$$C_x^{\text{post}} = Q \Lambda Q^T, \quad (5.17)$$

avec Λ une matrice diagonale ayant pour valeurs propres Λ_i , avec $\Lambda_i \in \mathbb{R}^+$ pour s'assurer que C_p^{post} soit définie positive et Q , une matrice de "passage". Selon cette décomposition, on pourrait exprimer la matrice de covariance marginalisée M_x^{marg} en fonction de Σ et Q comme suit :

$$M_x^{\text{marg}} = \Sigma Q \Lambda^m Q^T \Sigma, \quad (5.18)$$

avec, $\forall i$, $\Lambda_i^m \geq \Lambda_i$ d'après l'équation (5.16)³. On peut alors réécrire l'équation (5.16) et on obtient :

$$v_S^{\text{marg}} = \sum_i \Lambda_i^m [Q^T \Sigma \vec{S}]_i^2 \geq v_S^{\text{post}} = \sum_i \Lambda_i [Q^T \Sigma \vec{S}]_i^2. \quad (5.19)$$

Le problème n'est donc plus de trouver la matrice de covariance marginalisée mais les Λ_i^m tels que, $\forall i$, $\Lambda_i^m \geq \Lambda_i$. Il faut aussi que les Λ_i^m soient proches des Λ_i , ces dernières étant données par le résultat de l'ajustement. Enfin, il faut que les incertitude finales marginalisées soit cohérentes avec les incertitudes des paramètres de nuisance. Sur ce dernier point, P. Tamagno propose une démarche qui consiste à poser ce problème comme étant un problème de *minimisation sous contraintes*. Une fonction coût χ^2 est définie afin de quantifier l'écart entre les matrices M_x^{marg} et M_p^{post} et admet la forme :

$$\tilde{\chi}^2 = \frac{1}{2} \sum_i \left(\frac{\Lambda_i^m}{\Lambda_i} - 1 \right)^2 + \mu \sum_n \frac{1}{g_n}. \quad (5.20)$$

Les contraintes ajoutées lors d'une minimisation d'une telle fonction peuvent s'exprimer sous la forme de "barrières". Le second terme de cette équation, g_n , fonction des Λ_i^m , représente les contraintes d'inégalité à satisfaire, à savoir $g_n \geq 0$. Dans l'équation (5.20), on voit que si $g_n \rightarrow 0$, alors $\tilde{\chi}^2 \rightarrow \infty$. Il s'agit là des "barrières", qui garantissent des valeurs positives de g_n . Cependant, comme mentionné plus tôt, il faut que les Λ_i^m soient proches des Λ_i , autrement dit, dans une région où g_n est proche de 0. Pour éviter que $\tilde{\chi}^2$ ne diverge trop vite, un facteur μ est introduit. Ce dernier est ajusté à chaque étape du calcul pour tendre vers 0 lors de la minimisation afin de pouvoir se rapprocher de la contrainte et admettre une faible valeur de g_n . D'après l'équation (5.19), on pose la contrainte :

$$g_n = \frac{v_n^{\text{marg}}}{v_n^{\text{prop}}} - 1 \geq 0, \quad (5.21)$$

avec, en posant $R = Q^T \Sigma \vec{S}$:

3. Les nouveaux Λ_i^m obtenus ne sont pas nécessairement les valeurs propres de la matrice de corrélation associée à M_x^{marg} .

$$\begin{aligned}
v_n^{\text{prop}} &= \left[S_p^t M_{x+\theta}^{\text{post}} (S_p^t)^T \right]_{nn}, \\
v_n^{\text{marg}} &= \left[S_x^t M_x^{\text{marg}} (S_x^t)^T \right]_{nn} = \sum_i \Lambda_i^m R_{ni}^2,
\end{aligned} \tag{5.22}$$

On utilisera la méthode de descente de gradient mentionnée dans la partie 5.3.1 pour minimiser la fonction 5.20, assurant que, $\forall n$, $v_S^{\text{marg}} \geq v_S^{\text{prop}}$. Cette méthode est dite SIMPLE, car, jusqu'à présent, nous n'avons émis aucune contrainte concernant la capacité qu'a le modèle à reproduire les données expérimentales. C'est ce que nous allons voir à présent avec les deux méthodes de *Model defect*.

Méthode *Model defect LOCAL*

Dans cette approche, on force tous les points expérimentaux y_n à être en accord avec la valeur t_n prédite par le modèle. Cette contrainte a pour effet d'augmenter sensiblement l'incertitude propagée et de fait, impacte fortement M_x^{marg} lorsque le modèle n'arrive pas à reproduire les données. Dans ce qui suit, on suppose toujours que \vec{t} et \vec{y} sont deux variables aléatoires indépendantes et que leur différence suit une loi normale centrée en 0. La variance associée en chaque point expérimental n est donnée par $v_n = v_n^{\text{marg}} + v_n^{\text{exp}}$. Ce cas désigne le cas idéal car \vec{t} a été ajusté sur \vec{y} donc, en toute rigueur, t_n et y_n sont corrélés. Cependant, on peut raisonnablement négliger cette corrélation si le nombre de points expérimentaux est grand. Sous ces conditions, la probabilité f que la différence $t_n - y_n$ prenne une valeur dans l'intervalle $[-\alpha\sqrt{v_n}, +\alpha\sqrt{v_n}]$ est donnée par la fonction d'erreur évaluée en α :

$$f = \mathbb{P}(t_n - y_n \in [-\alpha\sqrt{v_n}, +\alpha\sqrt{v_n}]) = \text{erf}\left(\frac{\alpha}{\sqrt{2}}\right). \tag{5.23}$$

Dans CONRAD, on choisit f de telle sorte que l'intervalle entre le modèle et chaque point expérimental soit de 1σ , soit $f = 68.3\%$. En posant $|t_n - y_n|/\sqrt{v_n} \leq \alpha$, on peut alors définir une nouvelle contrainte g_n comme suit :

$$g_n = \alpha^2 \frac{v_n^{\text{marg}} + v_n^{\text{exp}}}{(t_n - y_n)^2} - 1 \geq 0. \tag{5.24}$$

La philosophie de ce modèle est donc de considérer chaque valeur expérimentale individuellement et d'augmenter l'incertitude finale si l'écart entre le modèle et cette valeur est trop grand afin d'inclure ce dernier dans le bandeau d'incertitude.

Méthode *Model defect GLOBAL*

La méthode précédente, bien que conservative dans le sens où on considère chacune des valeurs expérimentales individuellement, a tendance à surestimer l'incertitude finale. En effet, il est tout à fait plausible que certaines valeurs de $t_n - y_n$ se trouvent en dehors de l'écart type $\pm\sqrt{v_n}$. Lorsqu'on admet que le modèle est capable de reproduire correctement les données, on peut raisonnablement réduire la contrainte concernant tous les points

expérimentaux à une contrainte globale. Autrement dit, on laisse la possibilité à certaines valeurs de $t_n - y_n$ d'être supérieures en valeur absolue à cet intervalle. Si on considère que les différences réduites $(t_n - y_n)/\sqrt{v_n}$ sont indépendantes les unes des autres, $\forall n$, alors leur somme quadratique X définie dans l'équation 5.25 suit une distribution de χ^2 .

$$X = \sum_{n=1}^{N_y} \frac{(t_n - y_n)^2}{v_n}, \quad (5.25)$$

avec N_y le degré de liberté *i.e.* le nombre de points expérimentaux. Une fois de plus, l'hypothèse d'indépendance est discutable pour cette méthode mais reste une bonne approximation. La probabilité f définie par l'équation 5.23 admet alors une condition sur X et devient :

$$f = \mathbb{P}(X \leq \alpha) = \frac{\gamma(N_y/2, \alpha/2)}{\Gamma(N_y/2)}, \quad (5.26)$$

où γ est la fonction gamma incomplète. De façon similaire à la méthode LOCAL, on choisit pour f une valeur de 1σ afin de déduire α . Enfin, la nouvelle contrainte globale s'exprime en fonction de X et α comme :

$$g = 1 - \frac{X}{\alpha} \geq 0. \quad (5.27)$$

Le *Model defect GLOBAL* est donc moins strict que le *Model defect LOCAL* puisque la condition est fixée pour l'ensemble des données expérimentales et non sur chaque valeur individuelle.

5.3.3 Conclusion intermédiaire

Pour conclure cette partie, il est important de préciser que le but de ce travail de thèse n'a pas été d'implémenter ces méthodes dans CONRAD, mais de les appliquer à un cas concret d'évaluation des incertitudes de sections efficaces. Le Tableau 5.1 récapitule les propriétés, avantages et inconvénients de chaque méthode.

TABLEAU 5.1 – Tableau récapitulatif des propriétés, avantages et inconvénients des méthodes de marginalisation de données présentées et utilisées dans ce travail de thèse.

| | Type de calcul | Traitement des $\vec{\theta}$ | Avantages | Inconvénients |
|--------|----------------|-------------------------------|---|---|
| BMC | Stochastique | $\vec{\theta}$ constants | Peu d'hypothèses | Très long en temps de calcul |
| MAT | Déterministe | $\vec{\theta}$ constants | Rapide et simple à mettre en place | Domaine d'application restreint |
| SIMPLE | Déterministe | $\vec{\theta}$ ajustés | Assure une propagation réaliste des incertitudes | Contraintes uniquement sur les $\vec{\theta}$ |
| LOCAL | Déterministe | $\vec{\theta}$ ajustés | Est cohérent avec l'ensemble des points expérimentaux | Tendance à surestimer l'incertitude finale |
| GLOBAL | Déterministe | $\vec{\theta}$ ajustés | Permet d'éviter certains "artéfacts" | Tendance à sous-estimer l'incertitude finale |

Ces méthodes n’ont pas encore été testées dans le cadre d’une évaluation de sections efficaces. Ce travail consiste à regarder l’impact de ces différentes méthodes de propagation des incertitudes. On considère donc le cas de la section efficace totale de l’ $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$. Il s’agira ici de comparer les résultats obtenus et de les discuter. Cette étape de validation de méthodologies avec cette section efficace spécifique a été motivée, d’une part car cette section efficace est bien connue (plusieurs lots de données expérimentales et un bon accord entre les évaluations) et d’autre part car le modèle optique permet de bien la reproduire dans cette gamme d’énergie.

5.4 Propagation des incertitudes aux sections efficaces et validation des méthodes de marginalisation

On rappelle que, dans cette partie, nous allons évaluer les incertitudes de la section efficace totale de l’ ^{238}U . Dans ce qui suit, nous utiliserons 11 lots de données expérimentales, dans une gamme d’énergie comprise entre 20 keV et 20 MeV. Ces lots de données viennent de la base de données EXFOR. Leurs caractéristiques sont données dans le Tableau 5.2 ci après.

TABLEAU 5.2 – Tableau récapitulatif des données expérimentales de section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ utilisées pour tester les différentes méthodes de marginalisation implémentées dans CONRAD. Pour chaque lot, on renseigne, lorsque que ces informations sont disponibles : L’année, l’auteur, le laboratoire, la méthodologie expérimentale, les incertitudes totales données dans EXFOR et si les incertitudes systématiques sont fournies ou non. Lorsque qu’il n’y a pas d’incertitudes systématiques, les incertitudes totales correspondent uniquement aux incertitudes statistiques.

| Année | Auteur | Laboratoire | Technique exp. | Incertitudes Totales (données à 1σ) | | | Incertitudes Systématiques |
|-------|------------------------|---------------|-------------------|---|---------|-------------|----------------------------|
| | | | | Min (%) | Max (%) | Moyenne (%) | |
| 1971 | D. G. Foster et al | PNL (USA) | TOF | 0.59 | 3.21 | 1.53 | non |
| 1973 | S. H. Hayes et al | RPI (USA) | TOF | 0.78 | 4.47 | 1.38 | non |
| 1974 | R. B. Schwartz et al | NBS, (USA) | TOF | 0.69 | 2.52 | 0.97 | non |
| 1981 | W. P. Poenitz et al | ANL (USA) | TOF | 0.60 | 1.88 | 1.01 | oui |
| 1960 | J. M. Peterson et al | LLNL (USA) | TOF | 0.97 | 1.16 | 1.08 | non |
| 1958 | A. Bratenahl et al | LLNL (USA) | TOF | 0.81 | 1.04 | 0.95 | non |
| 2001 | W. P. Abfalterer et al | LANL (USA) | TOF | 0.16 | 0.33 | 0.25 | non |
| 1973 | J. Cabe et al | CEA/DAM (FR) | TOF | 1 | 2 | / | oui |
| 1965 | R. Batchelor et al | AWE (UK) | TOF, PSD | 0 | 3 | 2.09 | non |
| 1968 | J. Voignier | CEL, (FR) | ASSOP, TOF, COINC | 3.08 | 3.08 | 3.08 | non |
| 1967 | C. Thibault | CEA/DRF, (FR) | / | 5.41 | 5.41 | 5.41 | non |

On remarque que pour seulement deux d’entre elles, les incertitudes systématiques sont données. Pour les autres, il s’agit seulement des incertitudes statistiques à 1σ . Un facteur de normalisation $\mathcal{N} = 1$ est donc appliqué à chacun des lots de données. Si des incertitudes systématiques sont données dans EXFOR, alors on les appliquera à \mathcal{N} . Dans le cas contraire, son incertitude est fixée par l’évaluateur. Ici, nous avons choisi une

incertitude reflétant la dispersion des données expérimentales des différents lots.

Le Tableau 5.3 donne les incertitudes sur les \mathcal{N} pour les différents lots de données.

TABLEAU 5.3 – Valeurs et incertitudes des facteurs de normalisation \mathcal{N} pris pour le travail d'évaluation.

| | | | | | | |
|----------------|------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| Lot de données | Abfalterer | Batchelor | Bratenahl | Cabe | Foster | Hayes |
| \mathcal{N} | 1.000(25) | 1.000(30) | 1.000(25) | 1.000(35) | 1.000(35) | 1.000(30) |
| Lot de données | Peterson | Poenitz | Schwartz | Thibault | Voignier | |
| \mathcal{N} | 1.000(20) | 1.000(40) | 1.000(35) | 1.000(30) | 1.000(25) | |

Ce choix est certes arbitraire et nous verrons par la suite son impact sur les méthodes de marginalisation. Nous avons fait l'hypothèse, pour le travail présenté ici, que les données expérimentales utilisées ne sont pas corrélées.

Il s'agit en premier lieu de définir quels paramètres de modèle sont ajustés et donc, sur lesquels on propage les incertitudes des paramètres de nuisance. On s'intéresse ici aux paramètres de modèle optique dont on réalise l'ajustement. Le fichier *R IPL-3* (2601) [105] donne la paramétrisation complète du potentiel optique. En tout, cela représente 37 paramètres ajustables (voir annexe C). Avec les sensibilités calculées lors d'un ajustement, le code CONRAD donne en données de sortie les valeurs ajustées des paramètres mais également le nombre de paramètres *effectifs* N_p^{eff} qu'il a utilisé afin de réaliser l'ajustement et dont la formule est donnée ci-après.

$$N_p^{eff} = N_p - \text{Tr} \left[\left(M_x^{\text{prior}} \right)^{-1} M_x^{\text{post}} \right], \quad (5.28)$$

On procède donc par itération pour trouver le nombre de paramètres optimal à ajuster. La figure 5.4 donne le résultat de ce processus.

Le critère de convergence a été choisi de telle sorte que la différence entre le nombre initial de paramètres et le nombre de paramètres effectifs soit inférieur à 1, en écartant à chaque étape les paramètres auxquels la section efficace totale est le moins sensible. Afin de choisir quel(s) paramètre(s) enlever à chaque étape, on regarde les sensibilités de la section efficace ²³⁸U(n, tot) et on retire ceux qui contribuent le moins. Finalement, ce critère est satisfait à l'étape (5), avec $p_i - p_{eff} = 0.18$. Le nombre de paramètres de modèle optique optimal pour ajuster les sections efficaces totales (n, tot) a donc été fixé à 8. Il s'agit des paramètres suivants : $\beta_2, \beta_4, V_V, r_{V_V}, a_{V_V}, r_{W_V}, a_{W_S}$ et r_{W_S} . On doit tout de même noter que ce choix de paramètres est lié aux expériences et à la réaction que l'on a choisi. D'autres paramètres pourrait être conservés pour d'autres voies de réactions.

On pourrait se questionner sur la pertinence de cette étape. Après tout, pourquoi ne pas considérer l'ensemble des paramètres lors de l'ajustement, à condition que le résultat soit physique. Lors de l'ajustement des paramètres, CONRAD calcule les sensibilités des modèles aux paramètres $\frac{\partial p}{\partial t}$. Bien qu'ils définissent le modèle, les sections efficaces peuvent être peu, voire très peu, sensibles à certains d'entre eux. On voit deux conséquences à cette dernière remarque. Tout d'abord, lors de l'ajustement, si la sensibilité est faible, les paramètres peuvent prendre des valeurs très éloignées de leur valeur initiale. Cela

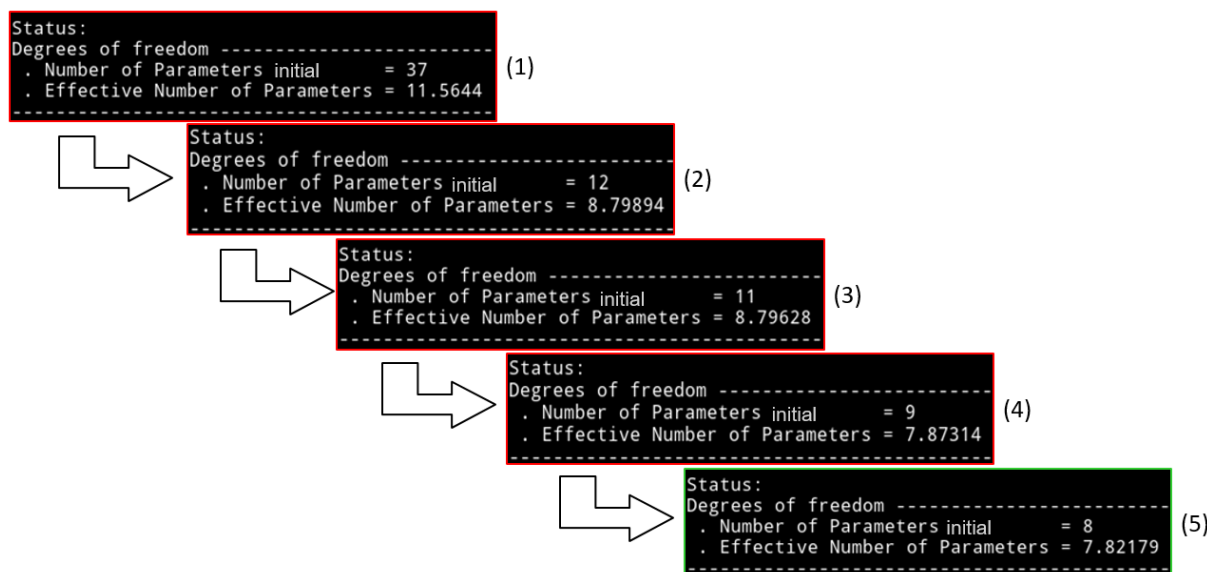


FIGURE 5.4 – Résultat de la recherche du nombre optimal de paramètres avec CONRAD. Le nombre final de OMP à ajuster est ainsi fixé à 8.

pourrait être acceptable s'ils sont entachés d'une grande incertitude. Cependant, lors de l'étape de marginalisation, les incertitudes des paramètres de nuisance sont propagées aux paramètres ajustés. Si l'un d'entre eux a très peu d'impact sur le modèle (autrement dit une sensibilité très faible), alors, d'après l'équation 5.13, la variance marginalisée et l'incertitude de ce paramètre seront très élevées. On peut typiquement obtenir une incertitude relative de l'ordre de 200% pour un paramètre mal choisi. Enfin, le nombre de paramètres à ajuster influe sur le temps de calcul. Plus ce nombre est grand, plus le temps de calcul est long.

Dans ce qui suit, on présentera donc les résultats des 5 méthodes de marginalisation : MAT, BMC, SIMPLE, LOCAL et GLOBAL.

5.4.1 Le prior et l'ajustement des paramètres

Le point de départ de ce travail est le calcul TALYS pour le noyau d' ^{238}U présenté dans le chapitre 4. Pour le calcul *a priori*, l'incertitude des 8 paramètres β_2 , β_4 , V_V , r_{V_V} , a_{V_V} , r_{W_S} , a_{W_S} et r_{W_S} a été fixée à 50%. Cette valeur d'incertitude très élevée a été volontairement choisie afin de pouvoir passer par l'ensemble des points expérimentaux et ne prend pas en compte la sensibilité de la section efficace totale aux paramètres ajustés. La Figure 5.5 à gauche (Prior) montre le résultat du calcul *a priori*, avec l'impact des incertitudes de ces paramètres sur la section efficace totale. L'incertitude résultante étant très élevée dû au choix de l'incertitude des paramètres, ce calcul se veut *non-informatif*. La Figure 5.5 à droite (Fitted) montre le résultat de l'ajustement des paramètres de modèle et le nouveau bandeau d'incertitude associé sur la section efficace. Nous nous serons assuré de la cohérence des résultats en ce qui concerne les valeurs centrales des paramètres ajustés par rapport aux valeurs de l'*a priori*. Pour chacun des cas, on trace

l'incertitude relative de la section efficace $\Delta\sigma/\sigma$ (exprimée en %). On voit, comme attendu, que l'incertitude finale de la section efficace est sous-estimée lors de la procédure d'ajustement, avec $\Delta\sigma/\sigma \in [0.02, 0.37]$ %. On rappelle ici que le résultat (Fitted) de la Figure 5.5 n'est obtenue que pour les marginalisations déterministes, où l'on propage l'incertitude des paramètres de nuisance $\vec{\theta}$ dans une seconde étape, contrairement à la méthode Monte-Carlo.

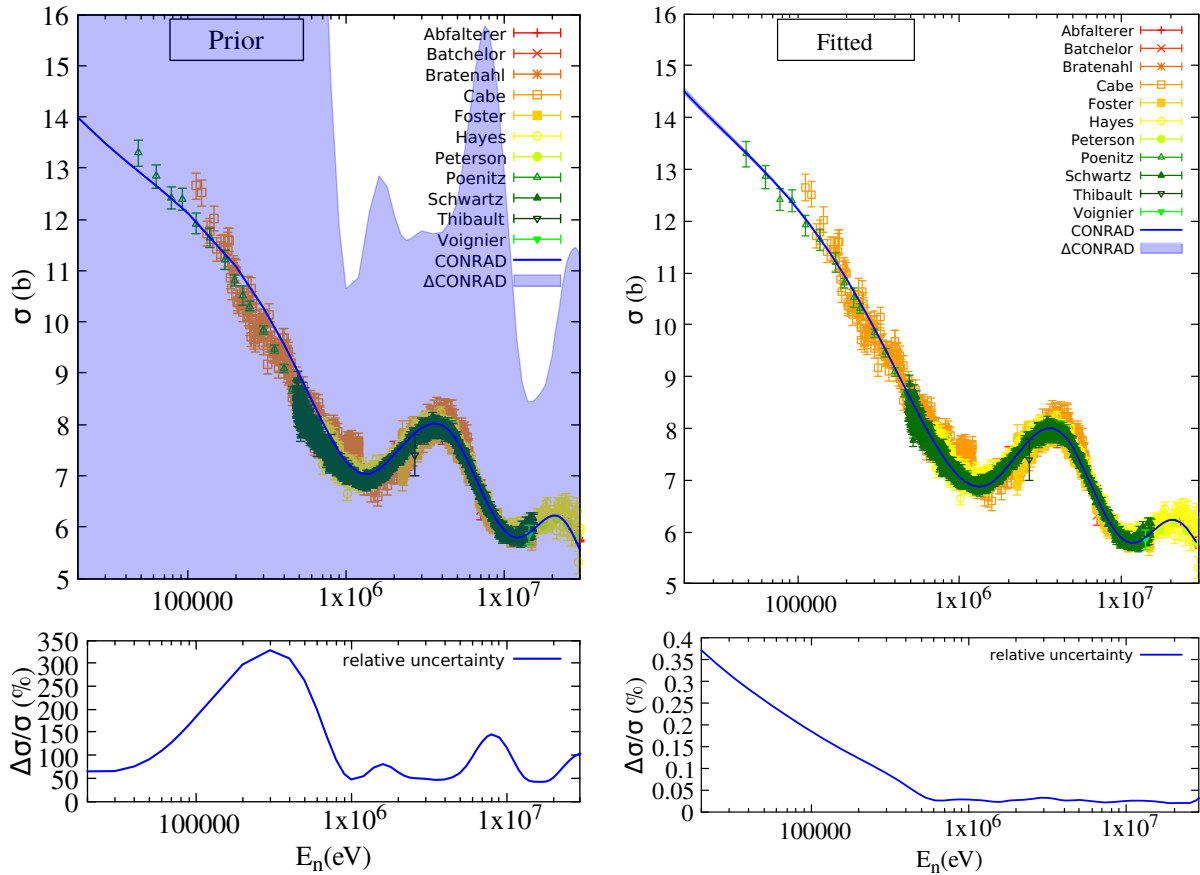


FIGURE 5.5 – Calcul de la section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ avant et après ajustement des paramètres de modèle. Le résultat du calcul est la ligne bleue et le bandeau tracé autour représente l'incertitude initiale (à gauche) et ajustée (à droite) obtenue pour la section efficace. En bas de chacun des graphiques est tracée l'incertitude relative $\Delta\sigma/\sigma$.

5.4.2 Comparaison des différentes méthodes de marginalisation des données expérimentales

Dans ce qui suit, on tracera pour chacune des méthodes de marginalisation implémentées dans CONRAD le résultat de l'ajustement ainsi que l'incertitude relative (même format que la Figure 5.5). Le Tableau 5.4 contient le résultat des ajustements, avec notamment la valeur des paramètres et leurs incertitudes en fonction de la méthode choisie.

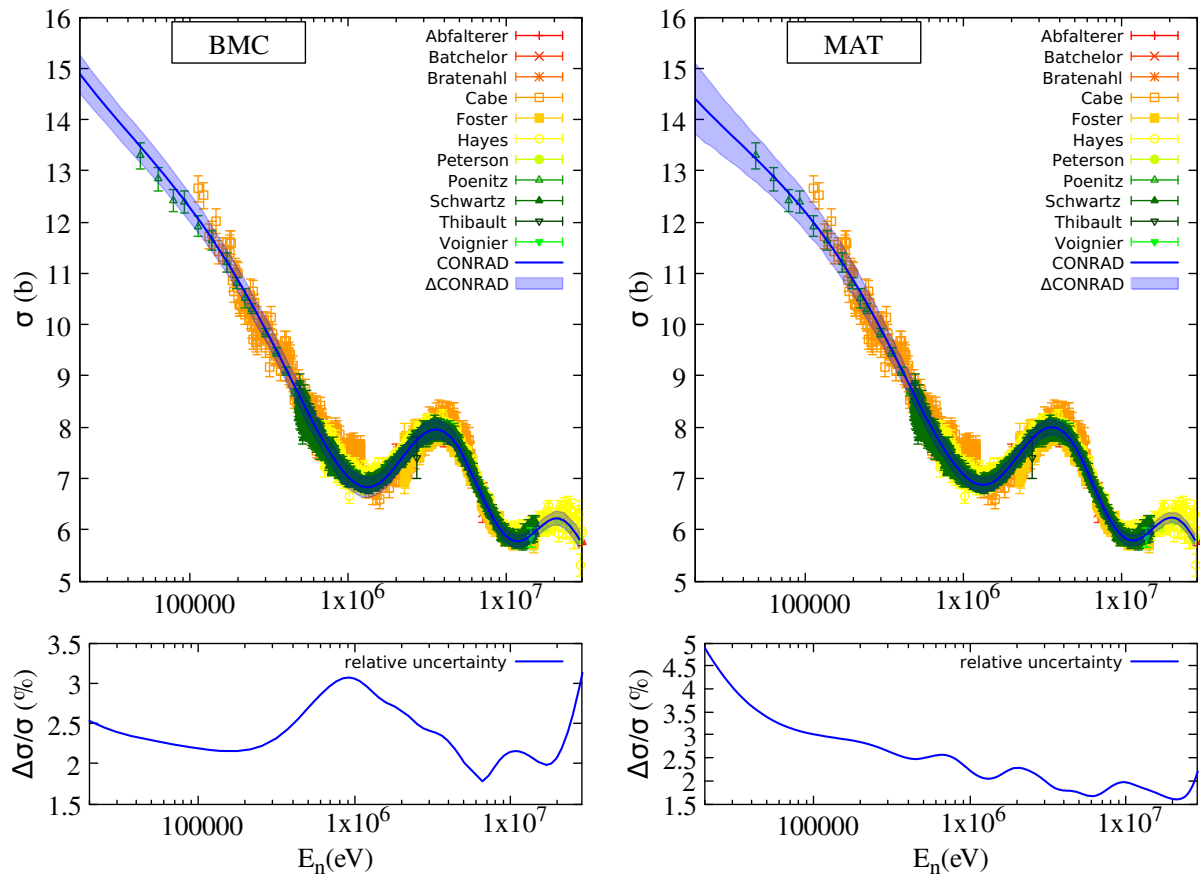


FIGURE 5.6 – Résultats de la marginalisation des données expérimentales dans l’ajustement et la propagation des incertitudes pour la section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ obtenus avec la méthode BMC à gauche et MAT à droite. La courbe bleue donne le résultat de CONRAD avec le bandeau d’incertitude associé et l’incertitude relative $\Delta\sigma/\sigma$.

On remarque que les différentes méthodes de marginalisation présentent des résultats variés, que cela soit du point de vue des valeurs centrales des sections efficaces ou des incertitudes propagées. Afin de discuter ces résultats, nous pouvons nous intéresser à différents indicateurs, comme les matrices de corrélation des paramètres, l’écart calcul/mesure ou encore les sensibilités des sections efficaces aux paramètres.

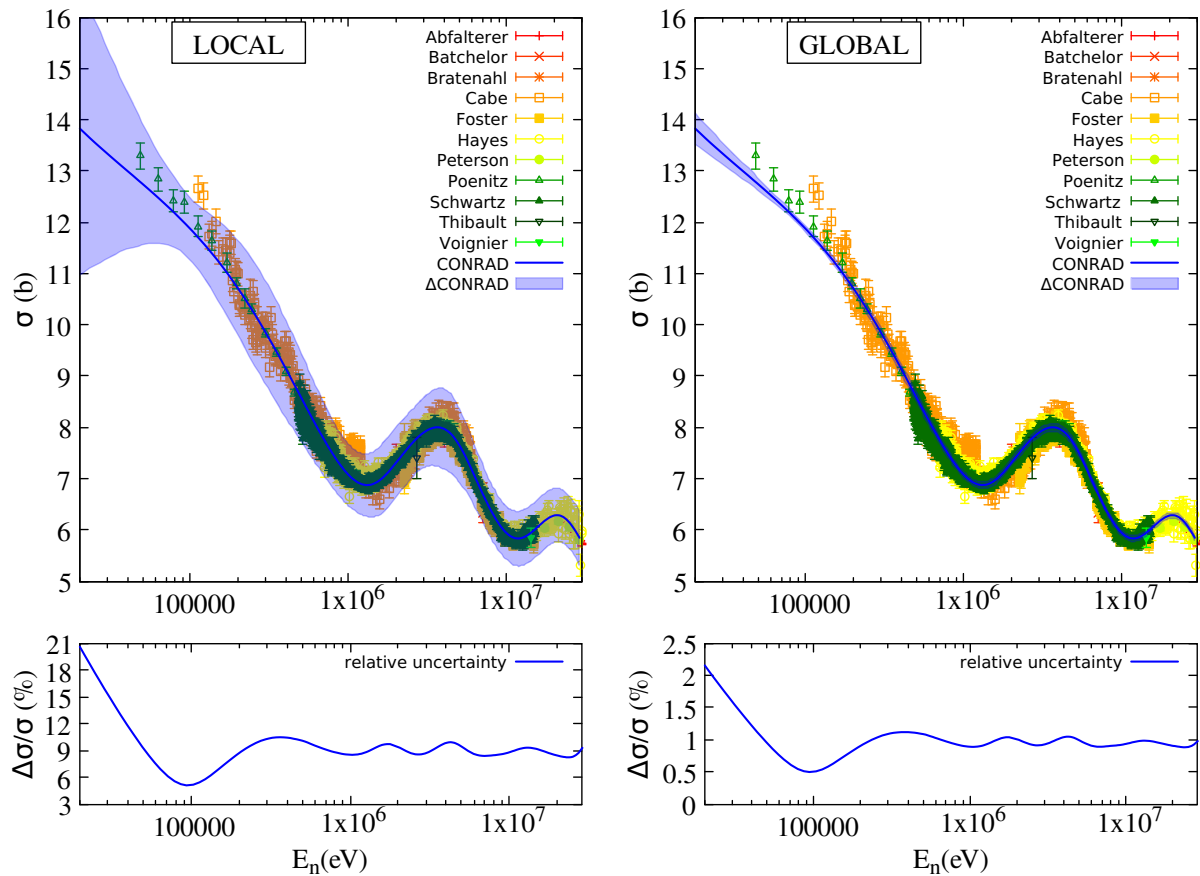


FIGURE 5.7 – Résultats de la marginalisation des données expérimentales dans l’ajustement et la propagation des incertitudes pour la section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ obtenus avec les méthodes LOCAL à gauche et GLOBAL à droite. La courbe bleue donne le résultat de CONRAD avec le bandeau d’incertitude associé et l’incertitude relative $\Delta\sigma/\sigma$.

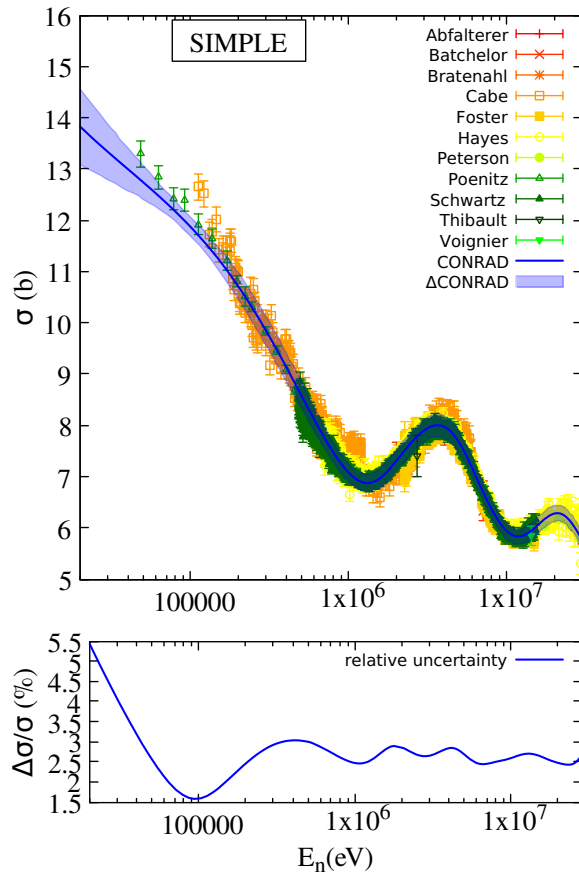


FIGURE 5.8 – Résultats de la marginalisation des données expérimentales dans l’ajustement et la propagation des incertitudes pour la section efficace $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ obtenus avec la méthode SIMPLE. La courbe bleue donne le résultat de CONRAD avec le bandeau d’incertitude associé et l’incertitude relative $\Delta\sigma/\sigma$.

TABLEAU 5.4 – Résultats des ajustements et propagations des incertitudes pour les méthodes BMC, MAT, SIMPLE, LOCAL et GLOBAL de marginalisation. On donne, pour chacune d'elles le temps de calcul t_{calcul} , le nombre de degrés de liberté du calcul N_{DOF} , la valeur du χ^2 , le rapport de ces deux dernières quantités χ^2/N_{DOF} , la valeur centrale des paramètres ajustés, leur incertitude absolue (entre parenthèses) et leur incertitude relative.

| Méthode | Prior | BMC | MAT | SIMPLE | LOCAL | GLOBAL |
|------------------------------|--------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| t_{calcul} (h) | / | 68.10 | 0.72 | 1.93 | 1.95 | 1.91 |
| N_{DOF} | / | 3354 | 3354 | 3343 | 3343 | 3343 |
| χ^2 | / | 8736.47 | 7130.98 | 6130.44 | 6130.44 | 6130.44 |
| χ^2/N_{DOF} | / | 2.60402 | 2.12611 | 1.83381 | 1.83381 | 1.83381 |
| β_2 | 0.2157(1078) | 0.2236(112) | 0.2172(130) | 0.2049(148) | 0.2049(576) | 0.2049(60) |
| $\Delta\beta_2/\beta_2$ (%) | 50 | 5.02 | 5.98 | 7.24 | 28.12 | 2.94 |
| β_4 | 0.0671(335) | 0.0822(183) | 0.0727(299) | 0.0791(182) | 0.0791(693) | 0.0791(73) |
| $\Delta\beta_4/\beta_4$ (%) | 50 | 22.21 | 41.17 | 23.04 | 87.62 | 9.25 |
| V_V | 0.9529(4765) | 0.9782(99) | 0.9731(256) | 0.9516(253) | 0.9516(951) | 0.9516(100) |
| $\Delta V_V/V_V$ (%) | 50 | 1.01 | 2.63 | 2.66 | 9.99 | 1.05 |
| r_{V_V} | 1.2450(6225) | 1.2136(111) | 1.2168(263) | 1.2421(242) | 1.2421(908) | 1.2421(95) |
| $\Delta r_{V_V}/r_{V_V}$ (%) | 50 | 0.91 | 2.16 | 1.95 | 7.31 | 0.76 |
| a_{V_V} | 0.6600(3300) | 0.6874(388) | 0.6797(514) | 0.6373(459) | 0.6373(1682) | 0.6373(171) |
| $\Delta a_{V_V}/a_{V_V}$ (%) | 50 | 5.64 | 7.57 | 7.19 | 26.39 | 2.68 |
| r_{W_V} | 1.2476(6238) | 1.5621(518) | 1.5771(658) | 1.5476(1054) | 1.5476(3836) | 1.5476(389) |
| $\Delta r_{W_V}/r_{W_V}$ (%) | 50 | 2.79 | 5.81 | 6.62 | 24.79 | 2.51 |
| r_{W_S} | 1.2080(6040) | 1.1672(425) | 1.1224(658) | 1.1561(1323) | 1.1561(5061) | 1.1561(522) |
| $\Delta r_{W_S}/r_{W_S}$ (%) | 50 | 3.64 | 5.86 | 11.44 | 43.78 | 4.52 |
| a_{W_S} | 0.6140(3070) | 0.6158(518) | 0.6340(656) | 0.6610(724) | 0.6610(2784) | 0.6610(290) |
| $\Delta a_{W_S}/a_{W_S}$ (%) | 50 | 8.42 | 10.35 | 10.95 | 42.12 | 4.39 |

5.5 Discussions

Le but de cette partie est de déterminer, de la façon la plus objective possible, quelle est la méthode de marginalisation la plus performante, en termes d'assimilation de données. On s'intéressera dans un second temps à l'impact des incertitudes des OMPs et des β_λ sur les autres sections efficaces, à savoir $^{238}\text{U}(n, n)$, (n, γ) , (n, f) , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$.

Lorsque l'on compare les valeurs centrales des paramètres, on remarque que les valeurs des paramètres *a posteriori* obtenues avec les méthodes SIMPLE, LOCAL et GLOBAL sont identiques. En effet, la seule différence entre ces méthodes est la manière dont sont traitées les incertitudes. On se sera également assuré que les paramètres de nuisance ajustés sont identiques dans les trois cas de la décomposition spectrale.

En plus des paramètres de modèle et de leurs incertitudes, on peut s'intéresser aux matrices de corrélation données par CONRAD. La Figure 5.9 donne les matrices de corrélations des paramètres obtenues avec les méthodes BMC, MAT et SIMPLE (cette dernière étant représentative des matrices de corrélations obtenues avec les méthodes de décomposition spectrale, nous ne les avons pas tracées pour les cas LOCAL et GLOBAL).

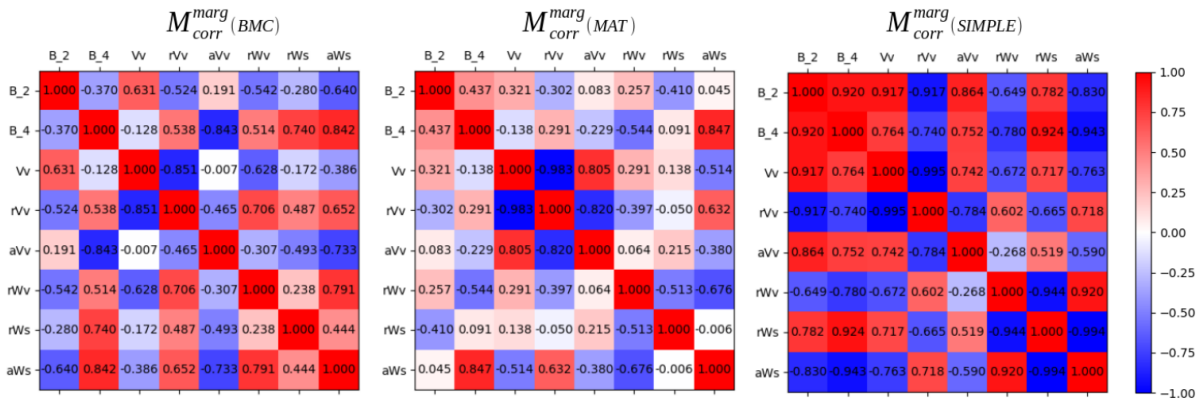


FIGURE 5.9 – Matrices de corrélation des paramètres de modèle et de nuisance après marginalisation pour, de gauche à droite, les méthodes BMC, MAT et SIMPLE.

Pour rappel, la corrélation entre deux paramètres p_1 et p_2 indique comment un paramètre est impacté par un autre lorsque celui-ci varie. Plus la corrélation est proche de 1, plus les paramètres sont corrélés (si la valeur de p_1 augmente, la valeur de p_2 augmente également et vice-versa). À l'inverse, plus la corrélation est proche de -1 , plus les paramètres sont anti-corrélés (si la valeur de p_1 augmente, la valeur de p_2 diminue et vice-versa). On remarque que les profils des matrices de corrélation sont différents d'une méthode à l'autre. On peut s'attendre à ce que les corrélations produites par la méthode BMC soient différentes des méthodes déterministes. En effet, l'ajustement et la marginalisation sont réalisés dans le même temps. En revanche, parmi les méthodes déterministes, on observe que les paramètres sont beaucoup plus corrélés avec la méthode SIMPLE qu'avec la méthode MAT. Cela pourrait être dû à l'ajustement des paramètres de nuisance $\vec{\theta}$. En effet, en ajustant ces paramètres, les données expérimentales d'un même lot varient en amplitude de la même manière. Si l'on trace les matrices de corrélation des

paramètres après l'ajustement mais avant la marginalisation pour les méthodes MAT et SIMPLE, on obtient la Figure 5.10.

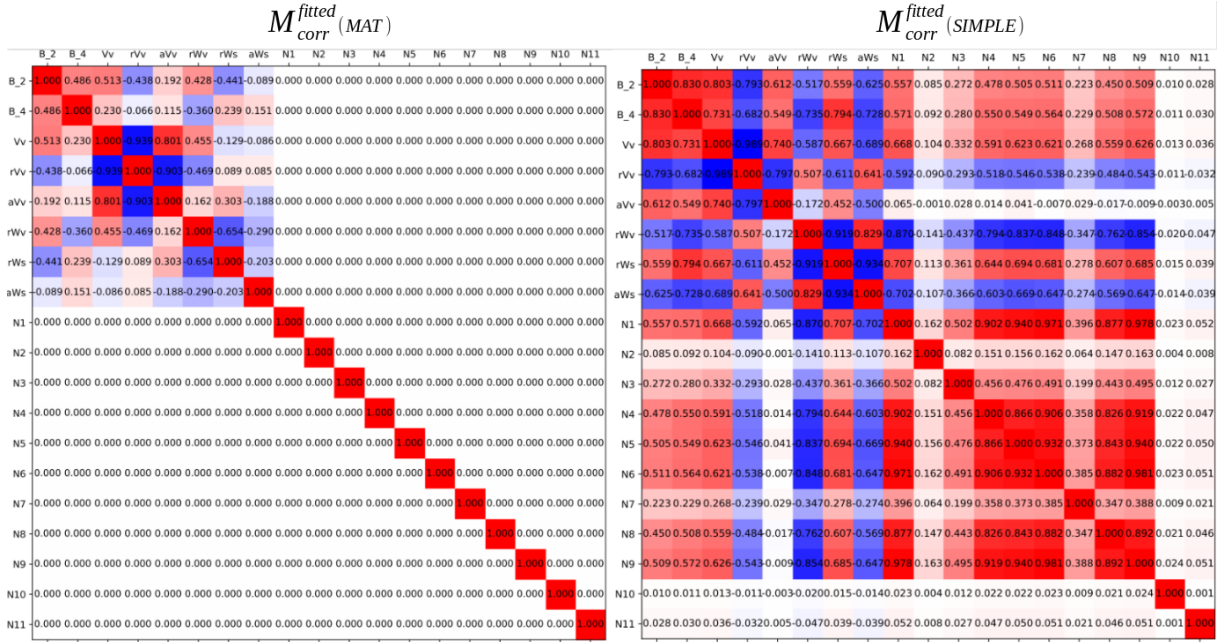


FIGURE 5.10 – Matrices de corrélation des paramètres de modèle et de nuisance après ajustement mais avant marginalisation obtenue, de gauche à droite, avec la méthode MAT la méthode SIMPLE.

On voit ici qu'avec la méthode MAT, il n'y a pas de corrélation introduite par les paramètres de nuisance et chaque élément non diagonal impliquant un facteur de normalisation est nul. À l'inverse, avec la méthode SIMPLE, on remarque que l'ajustement des $\vec{\theta}$ introduit d'avantage de corrélation, ce qui expliquerait l'effet observé.

Finalement, quelle que soit la méthode de marginalisation utilisée, il existe des corrélations entre les paramètres de modèle. De plus, chaque méthode produisant des incertitudes différentes, l'argument de la forte corrélation entre les paramètres n'est pas suffisant pour exclure ces méthodes. On peut également noter que les matrices de corrélation marginalisées produites par les méthodes BMC et MAT sont différentes. À ce stade, nous ne pouvons donc pas encore conclure quant à la méthode la plus adaptée. Si on peut visuellement rejeter les méthodes LOCAL et GLOBAL en raison de la mauvaise description des incertitudes (dans le premier cas, elles sont surestimées et dans l'autre cas sous-estimées), il nous faut d'autres critères plus objectifs.

Une autre piste de réflexion consiste à regarder l'écart entre chaque point calculé t_i et chaque point expérimental y_i . On étudie donc une distribution ressemblant à celle d'un χ^2 admettant la forme $PDF \sim \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{t_i - y_i}{\sigma_{y_i}} \right)^2 \right]$, où σ_{y_i} est l'incertitude expérimentale associée à la valeur y_i .

La Figure 5.11 donne les distributions obtenues pour les méthodes MAT, BMC, SIMPLE et SIMPLE_{Norm}. En effet, puisqu'on ne s'intéresse pas ici aux incertitudes sur

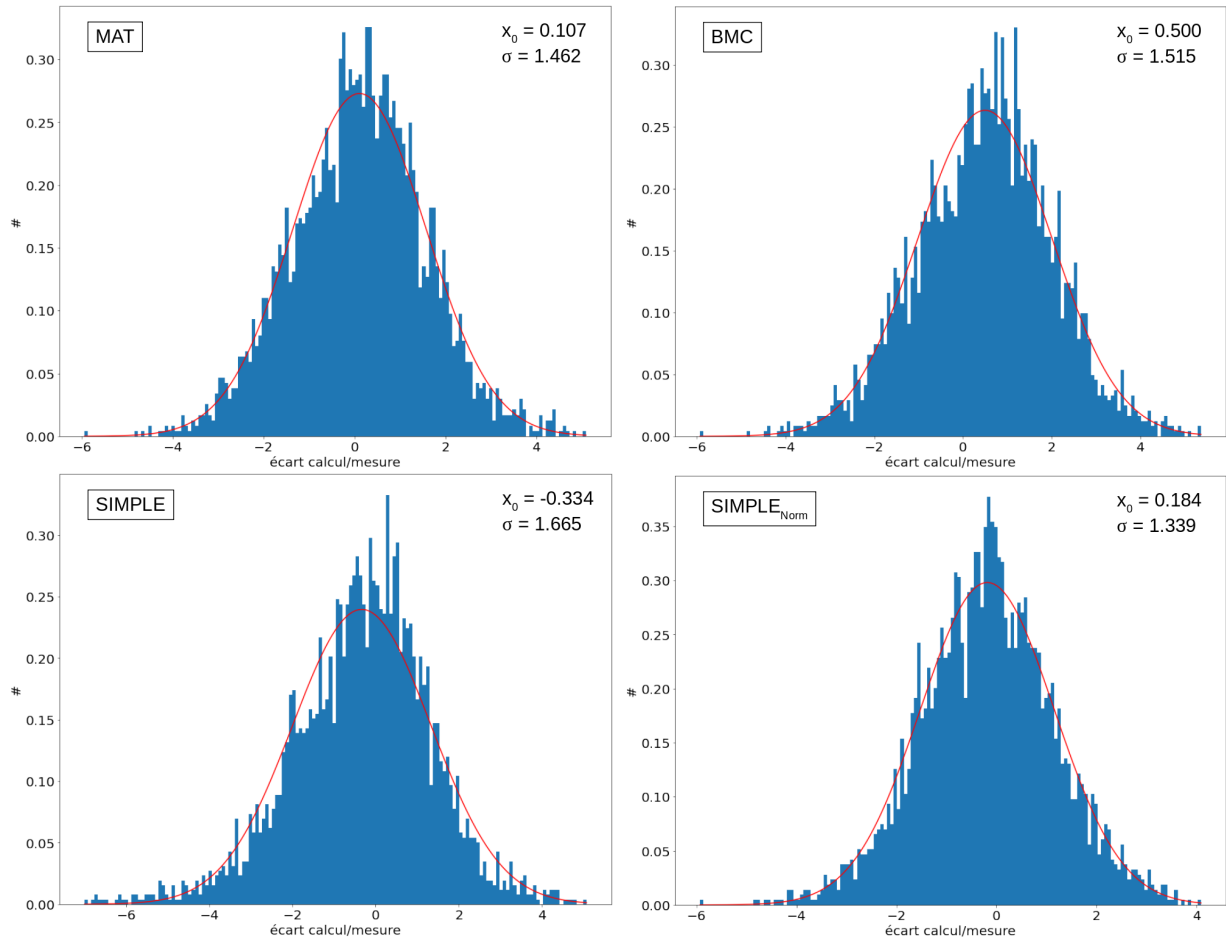


FIGURE 5.11 – Distribution des écarts calcul/mesure pour les différentes méthodes de marginalisation MAT, BMC et SIMPLE. La figure SIMPLE_{Norm} correspond à la méthode SIMPLE, avec la prise en compte des facteurs de normalisation.

les points t_i mais seulement à leurs valeurs centrales, les méthodes SIMPLE, LOCAL et GLOBAL sont équivalentes du point de vue de ce test. De plus, avec ces méthodes, les facteurs de normalisation étant ajustés, il faudrait comparer les t_i^{SIMPLE} avec les y_i renormalisés. Dans le cas des méthodes MAT, BMC et SIMPLE, on voit que les distributions ne sont pas tout à fait de forme gaussienne puisqu'est observé un étalement de la distribution vers la gauche, traduisant une tendance à la sous-estimation de la section efficace calculée par rapport aux données expérimentales. Dans le cas où les expériences sont renormalisées (SIMPLE_{Norm}), cet étalement est moins marqué et l'ajustement de la distribution semble meilleure. De plus, l'écart-type de cette dernière est plus faible en comparaison avec les autres distributions obtenues. Cependant, il est important de se rappeler que l'étape de marginalisation consiste à se débarrasser des paramètres de nuisance pour n'avoir que les paramètres de modèles. Or, si les incertitudes des $\vec{\theta}$ sont propagées, leur nouvelle valeur centrale est une information qui est perdue. Dans ce cas, il faudrait fournir le résultat de l'ajustement avec les nouveaux paramètres de normalisation \mathcal{N} pour les lots de données expérimentales afin de pouvoir reproduire les résultats. Il semblerait donc que, dans le

cadre de ce test, les trois méthodes donnent des résultats similaires pour prédire la section efficace totale. Enfin, il est très important de rappeler que ce test ne prend pas en compte les incertitudes des modèles.

Pour prendre ces dernières en compte, nous pourrions, à l'avenir, appliquer une méthode Monte-Carlo. Pour chacune des méthodes de marginalisation, on pourrait tirer aléatoirement une nouvelle valeur des paramètres dans l'intervalle de leur incertitude. Pour chaque tirage k , on aurait alors un jeu de points théoriques \vec{t}_k à comparer avec \vec{y} . Cette fois-ci, nous ne regarderions pas une distribution de χ^2 mais de variances. En effet, si on pose v_k la variance entre le modèle \vec{t}_k et l'expérience \vec{y} , exprimée par $v_k = (\vec{y} - \vec{t}_k)^T C_y^{-1} (\vec{y} - \vec{t}_k)$, avec C_y la matrice de covariance associée à \vec{y} , alors on peut tracer la distribution des v_k ⁴. D'après le théorème de la limite centrale, la distribution ressemblant le plus à une courbe gaussienne et admettant le plus petit écart type serait le modèle le plus performant. Malheureusement, par manque de temps, cette piste n'a pas pu être explorée pour le moment.

5.6 Sensibilités des sections efficaces de réaction aux OMP et β_λ

Pour aller plus loin dans ce travail d'évaluation des incertitudes des sections efficaces pour le noyau d' ^{238}U , on peut s'intéresser aux sensibilités des sections efficaces de réactions aux paramètres. En effet, CONRAD calcule les sensibilités $\frac{d\sigma}{dp}$ pour les paramètres ajustés. Grâce au couplage CONRAD-TALYS, on peut étudier les sensibilités des OMP et des β_λ à la section efficace totale mais aussi aux sections efficaces de réaction. On peut ainsi déterminer l'impact des incertitudes de ces paramètres sur l'ensemble des sections efficaces, notamment la diffusion inélastique.

Nous avons donc, pour chaque méthode de marginalisation, obtenu un nouveau jeu de paramètres et incertitudes associées. Pour la partie Hauser-Feshbach, nous avons repris le travail qui a été réalisé lors de la modélisation des sections efficaces pour l' ^{238}U présenté dans le chapitre 4. Puisque la section efficace totale $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ a changé, les autres sections en seront affectées, bien que nous nous intéressions ici à l'impact des incertitudes seulement. Ces écarts sont donnés dans l'annexe E. Les Figures 5.12, 5.13, 5.14, 5.15 et 5.16 donnent pour les sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, n)$, (n, γ) , (n, f) , (n, n') et $(n, 2n)$ les matrices de sensibilité aux paramètres (OMP, β_λ) en fonction de l'énergie de neutron incident et tracent les sections efficaces obtenues ainsi que les incertitudes associées à chaque méthode de marginalisation. La sensibilité S d'une section efficace σ à un paramètre de modèle p est donnée, pour rappel, par $S = \frac{d\sigma}{dp}$.

En ce qui concerne les amplitudes des incertitudes, on retrouve sans surprise les mêmes amplitudes relatives vis-à-vis des méthodes de marginalisation, avec la plus grande incertitude propagée obtenue avec la méthode LOCAL et la plus faible avec la méthode GLOBAL. On remarque également que, contrairement au cas de la section efficace totale,

4. D. Regnier, communication personnelle.

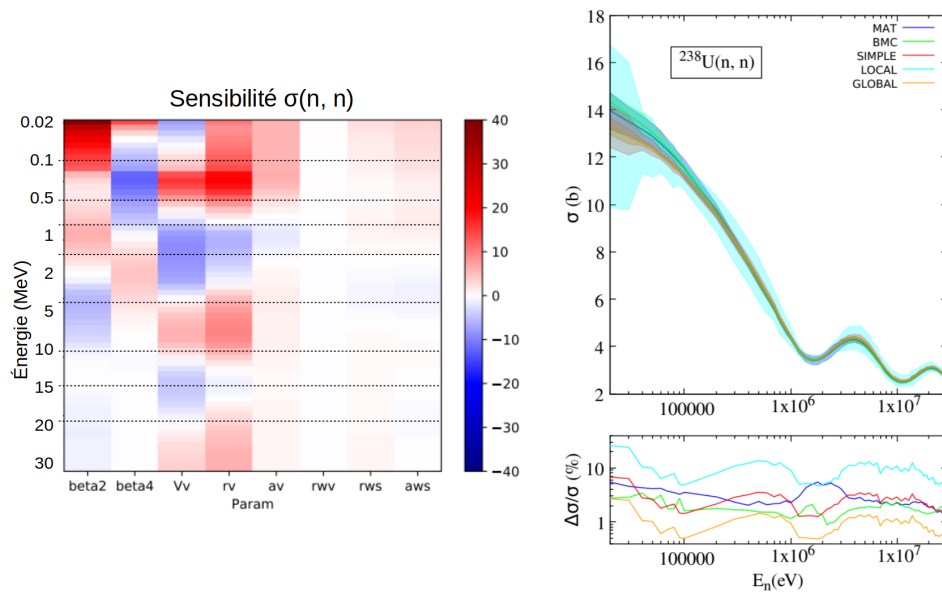


FIGURE 5.12 – Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction (n, n) aux paramètres (OMP, β_λ) et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation.

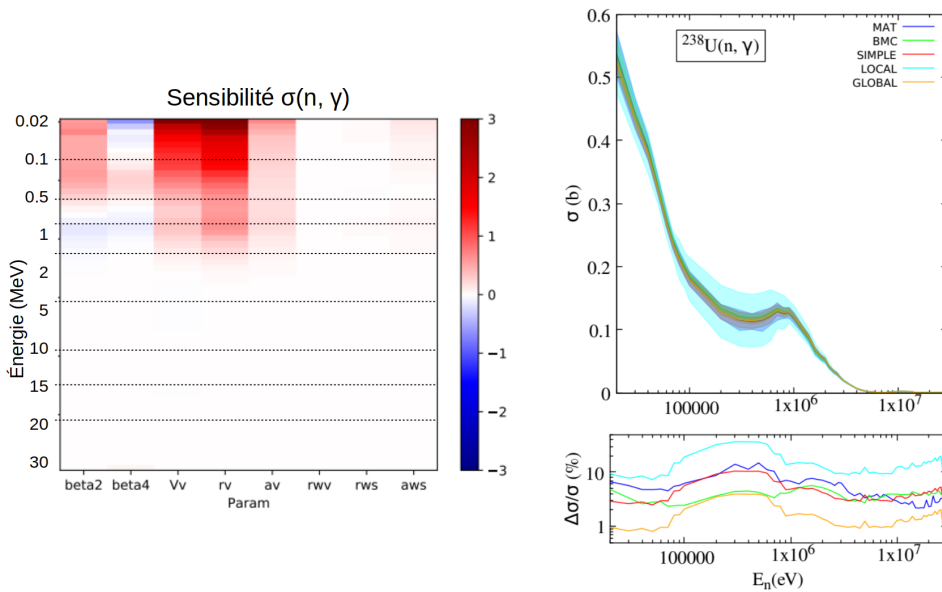


FIGURE 5.13 – Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction (n, γ) aux paramètres (OMP, β_λ) et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation.

les incertitudes des sections efficaces de réaction présentent de fortes variations en fonction de l'énergie, surtout pour des énergies supérieures à quelques MeV. Cet effet peut être compris lorsque l'on regarde les matrices de sensibilité des section efficaces. Là où les sections efficaces sont très sensibles à un ou plusieurs paramètres, alors l'incertitude de

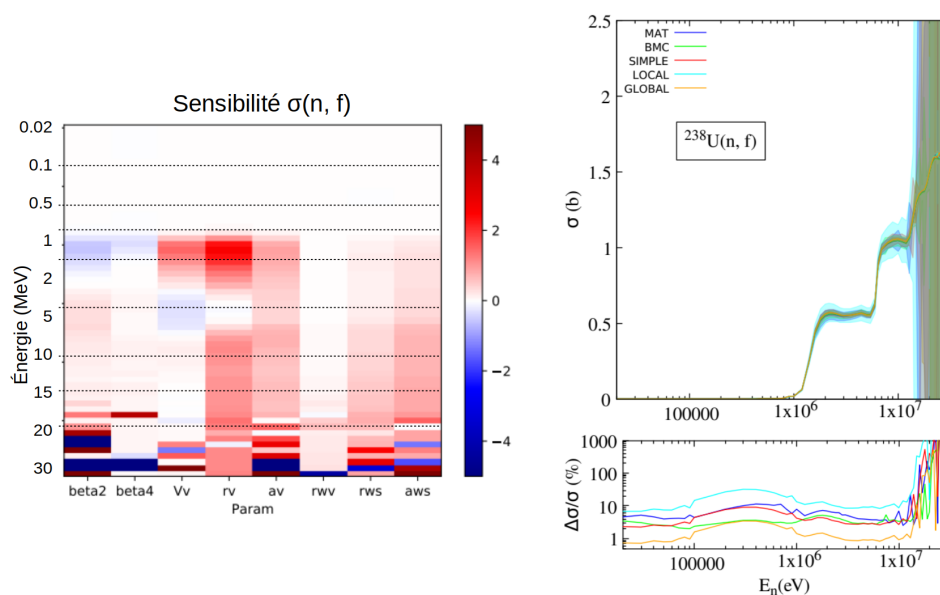


FIGURE 5.14 – Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction (n, f) aux paramètres (OMP, β_λ) et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation.

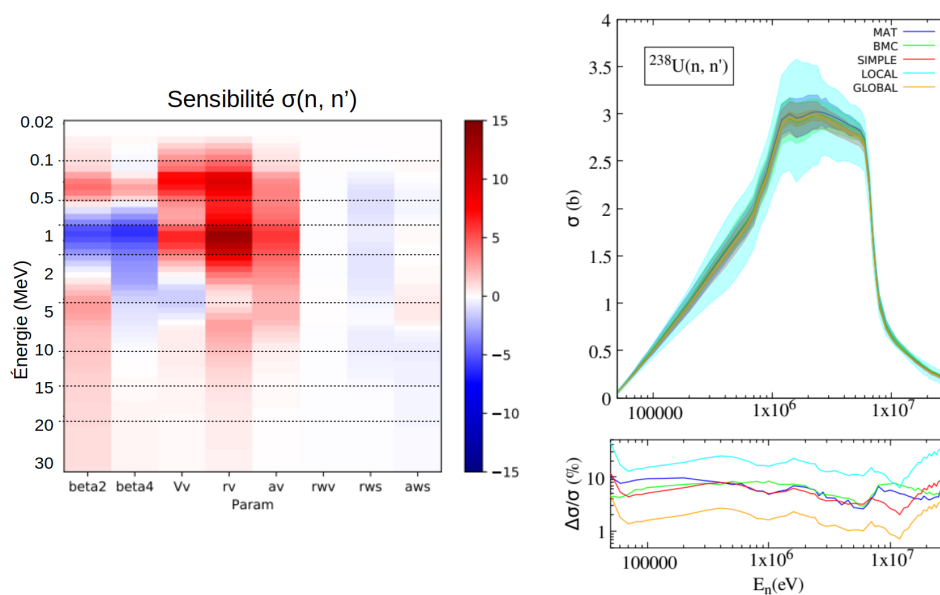


FIGURE 5.15 – Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction (n, n') aux paramètres (OMP, β_λ) et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation.

celles-ci sera grande. A contrario, là où elles sont très peu sensibles, l'incertitude associée est faible. Enfin, on peut noter le cas de la fission, où les incertitudes au-delà de 10 MeV (à l'ouverture de la 3^{ème} chance de fission) divergent avec de très fortes variations, quelle que soit la méthode de marginalisation utilisée. De façon similaire, on remarque une forte

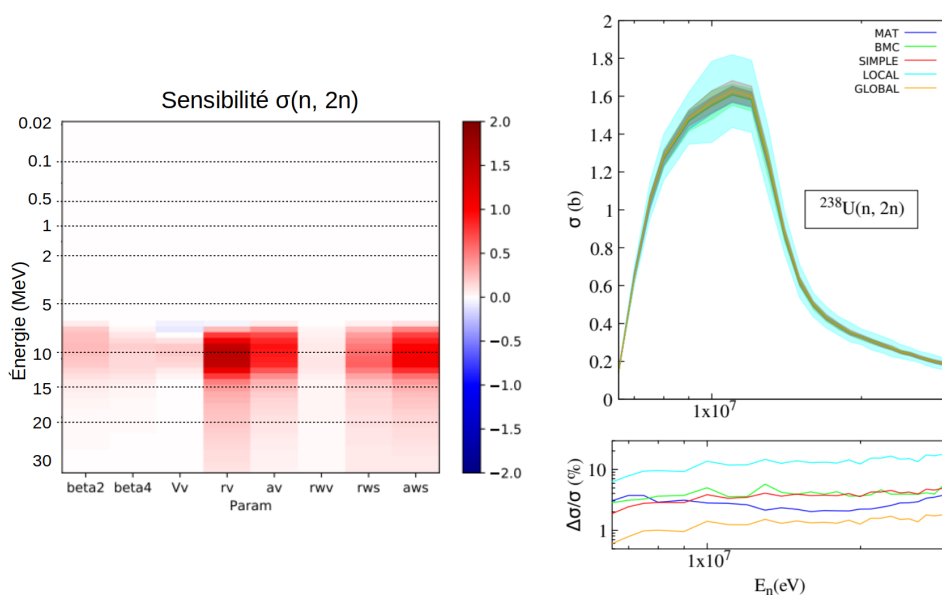


FIGURE 5.16 – Matrices de sensibilité de la section efficace de réaction $(n, 2n)$ aux paramètres (OMP, β_λ) et section efficace et incertitude associée en fonction des méthodes de marginalisation.

variation dans la matrice de sensibilité aux paramètres à ces mêmes énergies. Nous avons identifié deux origines à ce phénomène⁵. La première est que ce phénomène advient à l’ouverture de la fission de 4^{ème} chance, où nombre de noyaux sont alors impliqués dans la modélisation, pouvant rendre la sensibilité aux paramètres de modèle optique chaotée. La deuxième pourrait venir du fait, qu’à cette énergie de neutron incident, une variation de la section efficace totale est répercutée sur la fission. En effet, dans cette zone en énergie, les sections efficaces d’émission de deux $(n, 2n)$ et trois $(n, 3n)$ neutrons diminuent fortement. Une modification de la section efficace totale est alors portée par la section efficace de fission.

5.7 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre comment ont été identifiées les problématiques liées à la diffusion inélastique de l’ ^{238}U , en particulier pour les grands cœurs, grâce notamment aux études de sensibilité menées par A. Santamarina [45] et aux travaux de D. Bernard [53]. Le code CONRAD, développé au CEA et couplé au code de réaction nucléaire TALYS, a vocation à produire une évaluation basée sur l’assimilation de données via l’inférence Bayésienne. Le traitement des incertitudes expérimentales ou des paramètres de modèle représente, aujourd’hui encore, un véritable défi. Bien qu’il soit encore en cours de développement, CONRAD et les méthodes d’assimilation de données auxquelles il fait appel permettent de réaliser une évaluation reflétant la réalité des incertitudes expérimentales.

5. M. Dupuis, communication privée.

Comme on l'a vu en étudiant les sensibilités des sections efficaces de réaction, le couplage avec TALYS nécessite encore un travail de validation de la propagation des incertitudes. A terme, on pourra procéder à l'assimilation de données pour les sections efficaces de réaction et ajuster les paramètres Hauser-Feshbach de TALYS avec CONRAD.

Enfin, pour revenir sur la problématique de la diffusion inélastique de ^{238}U , on trace de nouveau sur la Figure 5.17 cette section efficace avec les incertitudes prédites par les méthodes MAT, BMC et SIMPLE qui sont les plus vraisemblables en termes d'amplitude.

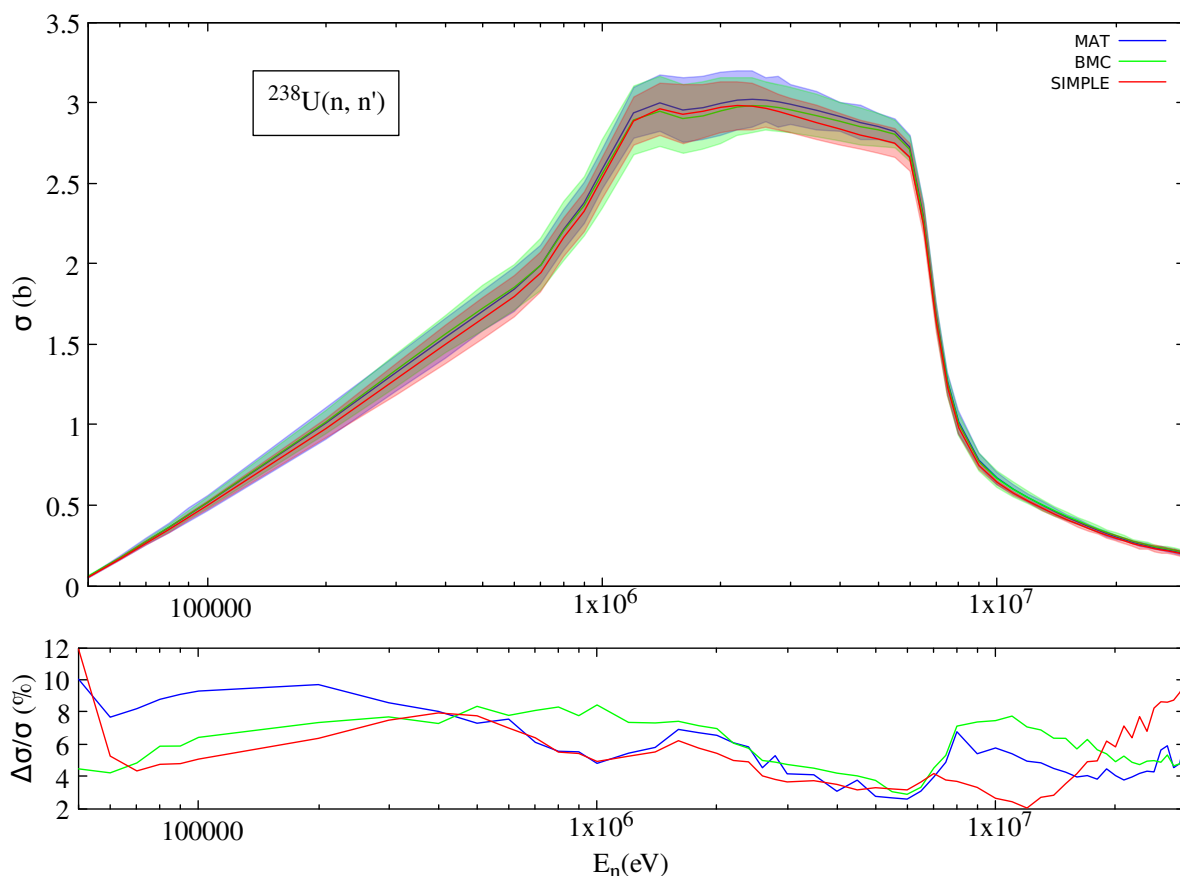


FIGURE 5.17 – Résultat de la propagation des incertitudes des OMP et β_λ à la section efficace de diffusion inélastique $^{238}\text{U}(n, n')$.

On voit ici que, quelle que soit la méthode de marginalisation de données choisie, la seule incertitude propagée des OMP et des β_λ contribue au moins à hauteur de 2% de l'incertitude pour cette section efficace et atteint entre 4 et 8 % sur le plateau, entre 1 et 6 MeV. Il faudra bien sûr attendre de voir l'impact des incertitudes des paramètres Hauser-Feshbach pour conclure davantage quant à l'incertitude finale sur la section efficace $^{238}\text{U}(n, n')$. Cependant, bien que les études de sensibilités et les mesures de sections efficaces partielles $^{238}\text{U}(n, n'\gamma)$ permettent de contraindre les modèles, il est primordial d'améliorer la connaissance de l'ensemble des paramètres des modèles afin d'atteindre les objectifs industriels fixés.

Conclusion générale

L'objectif de ce travail de thèse était, pour rappel, d'apporter sa contribution à l'amélioration des données nucléaires. Pour ce faire, nous avons pu aborder les trois aspects du processus de production de données nucléaires évaluées : la mesure de données expérimentales, la modélisation des sections efficaces et l'évaluation des données nucléaires. La partie expérimentale de la thèse concernait la mesure de sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ et la préparation de la campagne expérimentale pour le ^{239}Pu . Dans la partie théorique, nous avons réalisé la modélisation des sections efficaces pour les noyaux d' ^{233}U et d' ^{238}U avec le code de réaction nucléaire TALYS. Enfin, la partie évaluation concernait l'évaluation des incertitudes de la section efficace totale $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ et l'effet de la propagation de ces incertitudes sur les sections efficaces de réaction.

Mesure de sections efficaces

Les travaux de cette thèse ont permis de mettre en place une méthodologie spécifique à l'analyse des données de la campagne expérimentale de l' ^{233}U menée avec GRAPhEME, dispositif installé auprès de la source de neutrons blancs GELINA. La nature très radioactive de cet isotope a fait émerger des effets qui n'étaient alors pas observés lors des campagnes expérimentales précédentes. D'une part, le très fort taux de comptage des détecteurs, qui a engendré un fort taux d'empilement des données mais aussi la déformation des transitions γ pour les détecteurs HPGe classiques. D'autre part, le grand nombre de transitions γ de radioactivité dans les spectres. Malgré ces difficultés, nous avons obtenu, pour la première fois, douze sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ et des valeurs d'intensité γ relative pour quatre transitions. Cependant, malgré un long temps d'acquisition de données (de l'ordre de 5000 heures) et un détecteur HPGe segmenté offrant une très bonne résolution en énergie, nous avons obtenu, en moyenne, une faible statistique pour chaque transition, induisant une grande incertitude. Même pour les transitions les plus intenses, nous ne sommes pas descendus en-deçà de 10% d'incertitude relative en moyenne sur toute la gamme en énergie. A titre de comparaison, E. Party [77], dans son travail de thèse, a produit des sections efficaces $^{232}\text{Th}(n, n'\gamma)$ pouvant atteindre 4% d'incertitude relative pour les transitions les plus intenses, ou encore les données de M. Kerveno *et al.* [68], avec des incertitudes relatives pouvant également atteindre 4%. A titre de comparaison, cette campagne expérimentale pour cet isotope du Thorium a nécessité environ 800 heures de temps d'acquisition de données.

L'amélioration de la qualité de ces sections efficaces dépend en partie de l'augmentation de la statistique des pics γ dans les spectres en énergie γ . En effet, cette dernière contribue majoritairement à l'incertitude sur les sections efficaces $(n, n'\gamma)$. Cela pourrait s'obtenir en augmentant le temps d'acquisition des données. Nous serions cependant d'avantage soumis aux contraintes de stabilité liées aux longs temps d'acquisition mentionnées dans le chapitre 3. Une autre piste envisagée serait l'ajout d'un deuxième détecteur segmenté. Les transitions issues des spectres des détecteurs classiques étant déformées,

avec un fort taux d'empilement, ils participent grandement à cette incertitude finale. Pour rappel, pour obtenir une section efficace $(n, n'\gamma)$, on somme des sections efficaces différentielles via la méthode de la quadrature de Gauss. Placés aux deux angles appropriés, ces deux détecteurs segmentés constitueraient alors un couple de détecteurs idéal, minimisant l'incertitude statistique des transitions.

Modélisation de sections efficaces

Dans ce travail de thèse, nous avons réalisé une modélisation des sections efficaces pour les noyaux d' ^{233}U et d' ^{238}U . Pour plus de cohérence dans les modèles utilisés, la version locale de TALYS-1.95C a été utilisée pour réaliser les deux modélisations. Par rapport à la version par défaut de TALYS, nous pouvons noter les changements suivants :

- La prise en compte de la prescription du spin cut-off afin de reproduire la distribution en spin de Pré-équilibre obtenue avec des calculs microscopiques de type JLM/QRPA. Dans ce travail, on aura donc pris $\sigma_{cut-off} = 0.06$;
- L'utilisation du modèle composite proposé par Gilbert & Cameron [118] pour le calcul de la densité de niveaux pour les états du continuum avec la paramétrisation du spin cut-off $\sigma^2(U)$ préconisée par Jensen & Luttinger [119] ;
- Les modifications de G. Noguere pour la description de la fission dans la zone des Résonances Non-Résolues (URR) [131, 132] utilisées pour la modélisation du noyau d' ^{238}U ;
- La description de la fission du noyau d' ^{233}U avec trois barrières de fission⁶.

La modélisation des sections efficaces de l' ^{233}U avait fait l'objet du travail de thèse de C. Morariu [162] en 2013. Elle a utilisé la paramétrisation du potentiel optique préconisée par R. Capote *et al.* [128, 129] mais ne décrivait la fission qu'avec deux barrières. Pour notre calcul, nous avons pris pour point de départ les paramètres donnés par M. Sin *et al.* [130] décrivant un modèle de fission à trois barrières. *In fine*, nous avons abouti à une description satisfaisante des sections efficaces de réaction, avec tout de même une surestimation de la section efficace $^{233}\text{U}(n, \gamma)$ et une sous-estimation de la diffusion inélastique $^{233}\text{U}(n, n')$ entre l'énergie seuil et 500 keV. C'est cependant dans la description des sections efficaces partielles $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ que nous observons des différences significatives entre le calcul et l'expérience. Ce constat met en lumière le manque de connaissance de ce noyau. D'une part, en terme de structure nucléaire et d'autre part, en terme de modèles, qui ne parviennent pas à reproduire les formes et amplitudes des sections efficaces. Un important travail reste donc à fournir afin d'obtenir, avec TALYS, une modélisation satisfaisante de l'ensemble des sections efficaces de ce noyau.

En ce qui concerne la modélisation de l' ^{238}U , notre point de départ a été une évaluation réalisée par G. Noguere⁷. Après avoir implémenté son travail, mais également après avoir

6. La description de la fission à trois barrières n'a pas nécessité d'ajout de modèle dans le code. Cependant, par défaut et dans le répertoire "best" de TALYS, seules deux barrières de fission sont décrites.

7. Évaluation non publiée.

pris en compte le paramètre de spin cut-off de la distribution en spin de Pré-équilibre de M. Dupuis *et al.* [108], nous avons été en mesure de produire une nouvelle modélisation pour ce noyau. Cette dernière est compatible avec l'évaluation précédente de G. Noguere et présente un meilleur écart calcul/mesure avec les sections efficaces $^{238}\text{U}(n, n'\gamma)$ de M. Ker-veno *et al.* [68]. Malgré cette amélioration, nous n'avons pas observé de diminution de la diffusion inélastique $^{238}\text{U}(n, n')$. Les études de sensibilité menées par A. Santamarina *et al.* [45] ont pourtant montré une tendance à la surestimation de cette section efficace, notamment entre 2 et 6 MeV.

Évaluation des incertitudes des sections efficaces

Le travail d'évaluation des incertitudes des sections efficaces pour l' ^{238}U a été motivé par ces mêmes études de sensibilité et par l'incertitude sur la section efficace $^{238}\text{U}(n, n')$ qui, pour les grands cœurs ainsi que pour le développement des concepts de réacteurs Gen. IV, est encore trop élevée à ce jour [38]. Les récents développements du code CONRAD incluent plusieurs méthodes de marginalisation de données expérimentales. Cette étape est nécessaire afin de pouvoir fournir une évaluation avec des incertitudes réalistes et compatibles avec les données expérimentales. Ces méthodes, que nous avons testé avec la section efficace totale $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ ont chacune leurs avantages et inconvénients. La méthode stochastique BMC et les méthodes déterministes MAT et SIMPLE produisent des incertitudes comparables, avec pour chacune d'elles, un jeu de paramètres de modèle optique (OMP), de déformation multipolaire β_λ et les matrices de covariance associés.

Avec le couplage CONRAD-TALYS, on a pu tester l'impact de ces différentes paramétrisations sur les sections efficaces de réaction, en particulier sur celle de la diffusion inélastique $^{238}\text{U}(n, n')$. La seule propagation des incertitudes de ces paramètres, sans prendre en compte la paramétrisation de la partie statistique (Hauser-Feshbach) de la modélisation, contribue déjà pour au moins 2% de l'incertitude de la section efficace et atteint 8% sur le plateau entre 1 et 6 MeV.

Au regard de ces résultats, un découplage des calculs de modèle optique et Hauser-Feshbach lors d'une évaluation sur le domaine en énergie du continuum n'est pas recommandé. Les sections efficaces de réaction sont sensibles à la variation des OMP et des β_λ . On s'attend donc à ce que ces derniers soient corrélés avec les paramètres de densité de niveaux ou de barrière de fission par exemple. Faire un calcul en deux étapes, c'est négliger ces éventuelles corrélations et de fait, l'incertitude finale n'en sera que plus grande.

Perspectives

La campagne expérimentale pour le noyau de ^{239}Pu a débuté en 2022. Le nouveau système d'acquisition de GRAPhEME, FASTER [163], développé au LPC-Caen, semble être plus adapté pour les forts taux de comptage. En effet, malgré la haute activité de la cible, les effets de déformation des pics ne sont pas observés et le taux d'empilement des données est plus faible qu'avec les cartes TNT. Un tel système d'acquisition pour la

campagne expérimentale de l' ^{233}U aurait très certainement permis d'obtenir des données de meilleure qualité. Cependant, rien ne garantit que l'on pourrait observer des transitions γ provenant de réactions $^{233}\text{U}(n, 2n)$. En revanche, les récentes mesures réalisées par l'IPHC auprès de NFS au GANIL sont encourageantes pour l'étude de ces sections efficaces $^{233}\text{U}(n, 2n\gamma)$. En effet, le flux de neutrons produit par l'installation (voir Figure A.5) est beaucoup plus favorable à l'étude des réactions $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ que le flux produit par GELINA. De plus, l'Uranium-233 est un noyau encore peu connu, qui n'a pas fait l'objet de beaucoup d'études expérimentales (schéma de niveau sensiblement différent d'une base de données à une autre, *RIPL-3* et *TENDL* notamment, rapports d'embranchement fournis avec peu ou pas d'incertitude) et des sections efficaces encore jamais mesurées, comme la (n, n') ou la $(n, 2n)$.

Ce manque de données expérimentales se ressent lors de la modélisation des sections efficaces de ce noyau car il y a peu de contrainte. De plus, malgré un bon accord pour les sections efficaces de réaction (à l'exception de la capture radiative), nous observons des différences pour chaque section efficace $(n, n'\gamma)$ que nous avons obtenues lorsque nous les comparons au calcul TALYS. En ce qui concerne l' ^{238}U , malgré le meilleur accord calcul/mesure sur les sections efficaces $(n, n'\gamma)$, la diffusion inélastique reste inchangée. Plusieurs mesures de cette section efficace existent à ce jour mais la dispersion entre les différentes mesures et les incertitudes expérimentales rendent une contrainte difficile.

Nous pourrions imaginer réaliser de nouveau une campagne expérimentale pour déterminer la section efficace de diffusion inélastique $^{238}\text{U}(n, n')$. Mais comme nous l'avons vu, une meilleure connaissance expérimentale des sections efficaces de l'ensemble des réactions est nécessaire. Par exemple, l'incertitude de la section efficace totale que nous avons estimée à 2-2.5% entre 2 et 6 MeV est responsable de jusqu'à 8% d'incertitude sur la diffusion inélastique. Une meilleure évaluation, plus précise, des sections efficaces pour lesquelles il y a beaucoup de données expérimentales, comme les sections efficaces $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$, (n, γ) , (n, f) ou $(n, 2n)$ participerait à la réduction des incertitudes de la diffusion inélastique.

Etude de faisabilité de l'expérience ^{239}Pu

A.1 Introduction

L'annexe qui suit a eu pour but de déterminer la faisabilité et de préparer l'expérience sur la cible de ^{239}Pu , initialement prévue dans le cadre de cette thèse à l'EC-JRC Geel, auprès du dispositif GRAPhEME et qui a débutée depuis 2022. Cette expérience a pour but de mesurer des sections efficaces de réaction $(n, n'\gamma)$ et $(n, 2n\gamma)$ sur une cible de ^{239}Pu . Ce noyau est d'une part, très radioactif, $A(^{239}\text{Pu}) = 2.295 \times 10^9 \text{Bq.g}^{-1}$ [164] et il s'agit d'un noyau fissile d'autre part. Tout comme le noyau de ^{233}U , cela signifie que la section efficace de fission est plus importante que la section efficace des autres réactions induites par neutron (diffusion inélastique et (n, xn) notamment). La Figure A.1 illustre bien cette différence de section efficace. La conséquence de ces deux caractéristiques du ^{239}Pu sur le spectre γ , est, tout comme pour le spectre γ de l' ^{233}U , un nombre important de transitions γ qui se superposent aux transitions γ qui nous intéressent. Ainsi, afin de préparer au mieux l'expérience, cette étude consiste à lister toutes transitions γ susceptibles d'être étudiées et de les comparer au spectre de radioactivité, mais aussi aux γ prompts issus de la fission du ^{239}Pu , ainsi que tous les autres rayons γ présents dans le bruit de fond (Ge, blindage, radioactivité naturelle, etc...).

Pour étayer cette étude, des résultats d'une expérience précédente, menée sur le ^{239}Pu au Los Alamos Neutron Science Center, auprès de l'installation Weapons Neutron Research (LANSCE/WNR), avec de le dispositif GEANIE, ont été utilisés [165]. Dans ce rapport, L.A. Bernstein et al. présentent leurs résultats de mesure de sections efficaces $^{239}\text{Pu}(n, xn\gamma)$, dont les données ont été prises entre 1998 et 1999, en utilisant la méthode du temps de vol. Même si les deux expériences diffèrent par quelques aspects, leurs résultats permettent d'identifier les transitions susceptibles d'être extraites dans le cas de notre expérience.

A.1.1 Méthodologie

Dans un premier temps, les transitions susceptibles d'être observées sur le spectre γ ont été sélectionnées. Puisque les noyaux d' ^{233}U et de ^{239}Pu présentent les mêmes caractéristiques, et connaissant le spectre γ pour l' ^{233}U , seules les transitions γ de haute

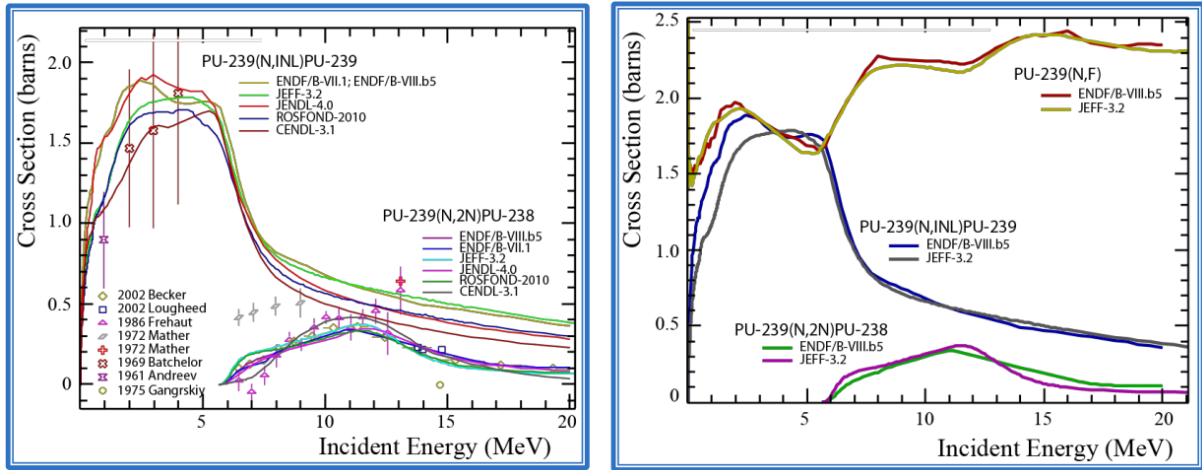


FIGURE A.1 – Gauche : Sections efficaces, évaluées et expérimentales, des réactions $^{239}\text{Pu}(n, n')$ et $(n, 2n)$. Droite : Sections efficaces évaluées (ENDF et JEFF) des différentes voies de réactions possibles sur ^{239}Pu , (n, f) , (n, n') et $(n, 2n)$, entre 0 and 20 MeV. Figure extraite de [33].

intensité I_γ ont été sélectionnées parmi la liste des niveaux du ^{239}Pu . (voir [166]). La Table A.1, resp. Table A.2, montrent toutes les transitions γ qui pourraient être vues pour le ^{239}Pu , resp. pour le ^{238}Pu .

Avec un rapide calcul classique, il est possible d'avoir une idée du moment angulaire total que l'on peut transmettre au noyau cible.

$$\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}, \quad (\text{A.1})$$

\vec{L} étant le moment orbital et \vec{S} le spin.

En mécanique classique, le moment orbital \vec{L} est lié à la position et à l'impulsion par la relation suivante :

$$\vec{L} = \vec{r} \wedge \vec{p}, \text{ avec } |\vec{p}| = \sqrt{2 \times \mu \times E_k} \text{ et } |\vec{r}| = 1.2 \times A^{\frac{1}{3}}, \quad (\text{A.2})$$

où \vec{r} est le rayon du noyau cible, μ la masse de la particule incidente, et E_k son énergie cinétique incidente. Dans le cas des réactions en jeu, on a $A_{(n,n')} = 239$ et $A_{(n,2n)} = 238$. Pour ce calcul qualitatif visant à obtenir un ordre de grandeur, on supposera que les deux rayons sont identiques, *i.e.* après application numérique $r = 7.4$ fm. Ainsi, pour un neutron incident avec une énergie cinétique $E_k = 1$ MeV, (resp. $E'_k = 20$ MeV), la valeur maximum du moment orbital L , en unité de \hbar , est : $L_{max}(E_{k,n} = 1 \text{ MeV}) = 1.5$ (resp. $L_{max}(E'_{k,n} = 20 \text{ MeV}) = 6$). Le spin \vec{S} du neutron étant $\frac{1}{2}$, on obtient un moment angulaire total maximum de $J_{max}(E_{k,n} = 1 \text{ MeV}) = 2$ et $J_{max}(E'_{k,n} = 20 \text{ MeV}) = \frac{13}{2}$. Cependant, il est important de noter que ce calcul est uniquement mené à titre indicatif. Dans un précédent travail d'identification des transitions γ pour un spectre de ^{232}Th [77] ou pour l' ^{238}U [68], certaines transitions avec un moment angulaire total $J = 9$ ont été observées, et la section efficace de la transitions $(10^+ \rightarrow 8^+)$ de la bande fondamentale a

TABLEAU A.1 – Ensemble des transitions γ provenant de la réaction $^{239}\text{Pu}(n, n')$ que l'on pourrait observer sur le spectre γ .

| Number | Mass | Initial Level | | Final Level | | E_γ | I_γ |
|-------------------|------|-------------------|-------------|-------------------|-------------|------------------------|------------|
| | | J^π | E_i (keV) | J^π | E_f (keV) | | |
| 1 | 239 | 5/2 ⁺ | 57.275 | 3/2 ⁺ | 7.861 | 49.412 | 100 |
| 2 | 239 | 7/2 ⁺ | 163.76 | 5/2 ⁺ | 57.275 | 106.47 | 100 |
| 3 | 239 | 11/2 ⁺ | 192.8 | 7/2 ⁺ | 75.705 | 117.3 | 100 |
| 4 ⁽¹⁾ | 239 | 5/2 ⁺ | 245.460 | 3/2 ⁺ | 7.861 | 277.599 ⁽¹⁾ | 100 |
| 5 | 239 | 21/2 ⁺ | 764.6 | 17/2 ⁺ | 519.3 | 245.3 | 100 |
| 6 ⁽¹⁾ | 239 | 13/2 ⁺ | 318.5 | 9/2 ⁺ | 163.76 | 154.3 ⁽¹⁾ | 100 |
| 7 | 239 | 17/2 ⁺ | 519.3 | 13/2 ⁺ | 318.5 | 201 | 100 |
| 8 | 239 | 7/2 ⁺ | 330.124 | 5/2 ⁺ | 285.460 | 44.663 | 100 |
| 9 | 239 | 9/2 ⁺ | 387.42 | 7/2 ⁺ | 330.124 | 57.3 | 100 |
| 10 | 239 | 7/2 ⁻ | 391.584 | 5/2 ⁺ | 285.460 | 106.125 | 100 |
| 11 | 239 | 1/2 ⁻ | 469.8 | 3/2 ⁺ | 7.861 | 461.9 | 100 |
| 12 | 239 | 3/2 ⁻ | 492.1 | 5/2 ⁺ | 57.275 | 434.7 | 100 |
| 13 | 239 | 5/2 ⁻ | 505.6 | 7/2 ⁺ | 75.705 | 430 | 100 |
| 14 | 239 | 5/2 ⁻ | 505.6 | 3/2 ⁺ | 7.861 | 497.8 | 88 |
| 15 ⁽¹⁾ | 239 | 7/2 ⁺ | 511.838 | 5/2 ⁺ | 285.460 | 226.383 ⁽¹⁾ | 100 |
| 16 | 239 | 7/2 ⁻ | 556.2 | 9/2 ⁺ | 163.76 | 392.4 | 100 |
| 17 | 239 | 19/2 ⁺ | 570.6 | 15/2 ⁺ | 358.1 | 212 | 100 |
| 18 ⁽¹⁾ | 239 | 5/2 ⁺ | 285.460 | 5/2 ⁺ | 57.275 | 228.183 ⁽²⁾ | 75 |

⁽¹⁾ : transitions observées dans [165].

pu être extraite (même si cette dernière est faible comparée aux autres transitions avec $\sigma_{max} \simeq 20mb$). En conclusion, les transitions 5, 6, 7 et 17 de la Table A.1, ainsi que les transitions 22, 23, 26, 33 et 35 de la Table A.2 risquent d'être difficile à observer.

D'après les données prises avec le dispositif GRAPhEME dans le cadre de l'expérience avec la cible d' ^{233}U , la résolution en énergie du détecteur Germanium segmenté est de ~ 0.7 keV à $E \sim 50$ keV et de ~ 1 keV à $E \sim 500$ keV. D'après ces valeurs, un critère de séparation des pics a été choisi à $\Delta E = \pm 0.2$ keV. Cela signifie que, si un γ émis par une réaction (n, n') a une énergie de $E_\gamma = e$ keV, et qu'un γ du bruit de fond (radioactivité, dispositif, etc...) a une énergie $E_{BdF} \in [e - 0.2, e + 0.2]$ keV, alors on ne pourra pas les distinguer. Au delà de cette limite de ± 0.2 keV, nous disposons des outils appropriés pour pouvoir les distinguer.

N.B. Ce critère de séparation ΔE est arbitraire. Il aurait pu être pris plus grand afin d'augmenter le nombre de potentiels polluants pour les γ d'intérêts. C'est pourquoi, pour les γ considérés comme de "bons candidats" avec le premier critère, se sont vu affecter un autre critère $\Delta E' = \pm 0.5$ keV comme étant la séparation entre deux pics. Ce nouveau critère a été appliqué, d'une part, pour affiner la sélection et s'assurer que les pics

TABLEAU A.2 – Ensemble des transitions γ provenant de la réaction $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ que l'on pourrait observer sur le spectre γ .

| Number | Mass | Initial Level | | Final Level | | E_γ | I_γ |
|-------------------|------|---------------|-------------|-------------|-------------|-----------------------|------------|
| | | J^π | E_i (keV) | J^π | E_f (keV) | | |
| 19 | 238 | 2^+ | 44.065 | 0^+ | 0.0 | 44.06 | 100 |
| 20 | 238 | 4^+ | 145.936 | 2^+ | 44.065 | 101.88 | 100 |
| 21 ⁽¹⁾ | 238 | 6^+ | 303.36 | 4^+ | 145.936 | 157.42 ⁽¹⁾ | 100 |
| 22 ⁽¹⁾ | 238 | 8^+ | 512.55 | 6^+ | 303.36 | 209.2 ⁽¹⁾ | 100 |
| 23 | 238 | 10^+ | 771.9 | 8^+ | 512.55 | 259.2 | 100 |
| 24 | 238 | 1^- | 605.18 | 2^+ | 44.065 | 561.17 | 100 |
| 25 ⁽¹⁾ | 238 | 3^- | 661.44 | 2^+ | 44.065 | 617.41 ⁽¹⁾ | 100 |
| 26 | 238 | 7^- | 911.6 | 6^+ | 303.36 | 608.7 | 100 |
| 27 | 238 | 0^+ | 941.47 | 2^+ | 44.065 | 897.33 | 100 |
| 28 ⁽¹⁾ | 238 | 1^- | 962.783 | 0^+ | 0.0 | 962.77 ⁽¹⁾ | 100 |
| 29 ⁽¹⁾ | 238 | 2^- | 968.2 | 2^+ | 44.065 | 924 ⁽¹⁾ | 100 |
| 30 | 238 | 2^+ | 983.09 | 0^+ | 0.0 | 983 | 100 |
| 31 | 238 | 2^+ | 1028.573 | 2^+ | 44.065 | 984.45 | 100 |
| 32 | 238 | 3^+ | 1069.929 | 2^+ | 44.065 | 1025.87 | 100 |
| 33 | 238 | 12^+ | 1077.7 | 10^+ | 771.9 | 305.9 | 100 |
| 34 ⁽¹⁾ | 238 | 4^- | 1082.55 | 4^+ | 145.936 | 936.61 ⁽¹⁾ | 100 |
| 35 | 238 | 9^- | 1102.4 | 8^+ | 512.55 | 589.9 | 100 |
| 36 | 238 | 4^+ | 1125.75 | 4^+ | 145.936 | 979.8 | 100 |
| 37 | 238 | 2^+ | 1174.4 | 2^+ | 44.065 | 1130.2 | 100 |
| 38 ⁽¹⁾ | 238 | 1^- | 962.783 | 2^+ | 44.065 | 918.69 ⁽²⁾ | 82 |
| 39 ⁽²⁾ | 238 | 5^- | 763.24 | 6^+ | 303.36 | 459.8 ⁽²⁾ | 3.4 |

⁽¹⁾ : transitions observées dans [165].

⁽²⁾ : transitions mesurées dans [165] mais avec une valeur de I_γ faible.

initialement sélectionnés sont toujours d'aussi bon candidats, et d'autre part, la résolution en énergie du détecteur augmente avec l'énergie (elle est de 1.3 keV à $E = 1$ MeV) et donc, pour des transitions où $E_\gamma > 600$ keV, ce nouveau critère est plus approprié.

La base de données NNDC [34] a été utilisée pour trouver tous les γ des différentes chaînes de décroissance impliqués dans l'expérience, et les valeurs en énergie des rayons X ont été prises dans [167].

Étant donné le caractère fissile du noyau de ^{239}Pu , les γ prompts de fissions doivent également être pris en compte (et en toute rigueur, leur chaînes de désintégration respectives, mais ces derniers n'ont pas été considérés dans cette étude préliminaire). La carte des probabilités de fission du ^{239}Pu provient du Nuclear Data Center de la Japan Nuclear Energy Agency [168].

Enfin, tous les γ venant du bruit de fond (blindage autour de la cible, diffusion des neutrons sur les cristaux Germanium, radioactivité naturelle, etc...) doivent également

être pris en compte. Puisque le dispositif expérimental n'a pas changé depuis la dernière analyse de données, une précédente identification a été utilisée pour identifier toutes ces transitions. Ainsi, les travaux d'identification d'une précédente thèse, étudiant le noyau de ^{232}Th , ont été repris pour cette étude (voir [77]).

En résumé, pour chaque γ d'intérêt, toutes les sources de pollution, dans une gamme en énergie de ± 0.2 keV autour de l'énergie de ce γ d'intérêt, ont été identifiées, et reportées sur la Figure A.2.

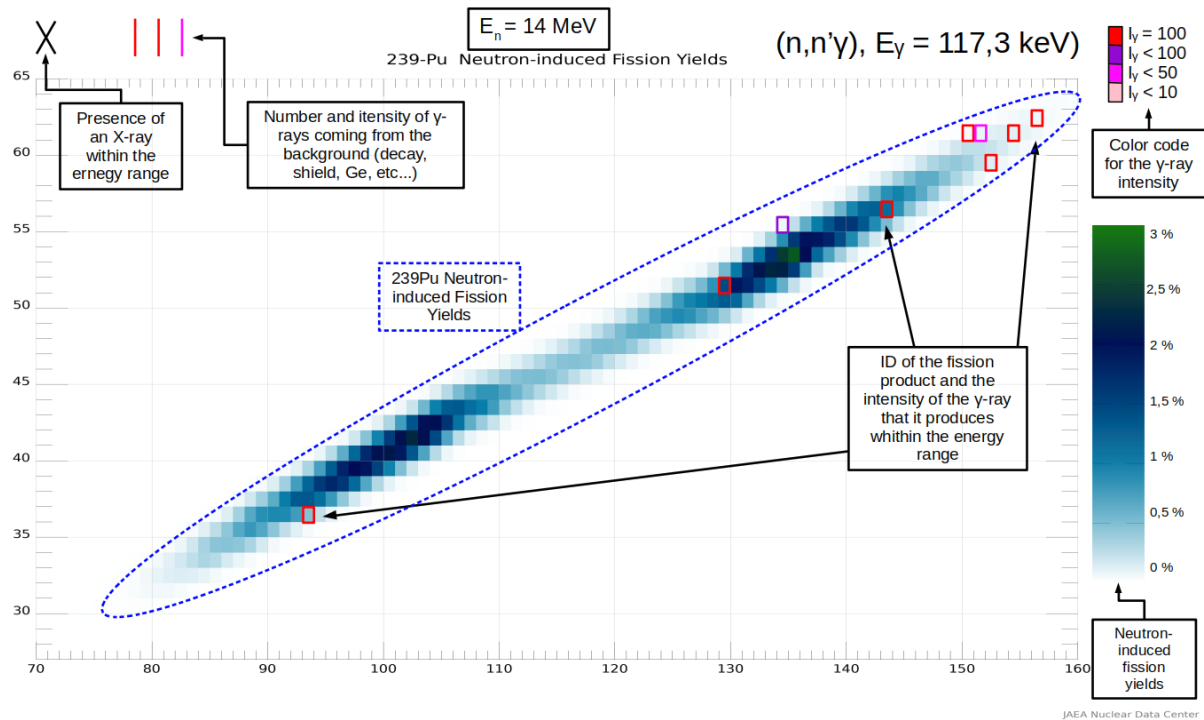


FIGURE A.2 – Méthodologie utilisée pour résumer toutes les informations provenant des différentes sources de pollution des pics d'intérêts.

La Figure A.2 trace en premier lieu le rendement des produits de fission (zone entourée en ligne pointillée bleue) pour une réaction de fission induite avec un neutron incident de 14 MeV, chaque carré représentant un noyau. Dans le cas présenté ici, on considère la 3^{ème} transition γ possible, produite par une réaction $^{239}\text{Pu}(n,n')$, avec $E_\gamma = 117.3$ keV (voir Table A.1). On applique le critère de ± 0.2 keV et si des γ des produits de fission sont identifiés comme polluants, ces derniers sont encadrés. Le code couleur utilisé correspond à l'intensité γ de la transition. Enfin, on renseigne en haut à gauche de la Figure sur la présence ou non de rayon-X ou de transition provenant du bruit de fond (radioactivité, blindage, détecteur, etc.) dans l'intervalle de confiance en énergie. Ainsi, pour ce γ , ont été identifiés comme source de pollution :

- 1 X-ray,
- 3 γ provenant des différentes chaînes de décroissance radioactives, dont 2 avec un $I_\gamma = 100$ et 1 avec un $I_\gamma < 50$,
- 9 γ provenant de produit de fissions, avec leur intensité- γ associée, ainsi que la

probabilité de production du produit de fission.

Dans cet exemple, les sources de pollution sont nombreuses, ce qui rend difficile l'extraction de la section efficace de cette transition.

N.B. La carte de probabilité de fission sur la Figure A.2 est obtenu pour une fission induite par un neutron dont l'énergie cinétique incidente est $E_n = 14$ MeV (voir [168]). Sachant que la valeur moyenne de l'énergie des neutrons produits par l'installation GE-LINA est de l'ordre de 1 MeV, les probabilités de production des différents produits de fissions peuvent être différentes. Pour illustrer cette dépendance à l'énergie du neutron incident, la Figure A.3 montre la probabilité de production des produits de fission 1D du ^{239}Pu , pour une réaction de fission induite par neutrons, pour un énergie incidente $E_n = 500$ keV (en noir) et pour une énergie incidente $E'_n = 14$ MeV (en rouge).

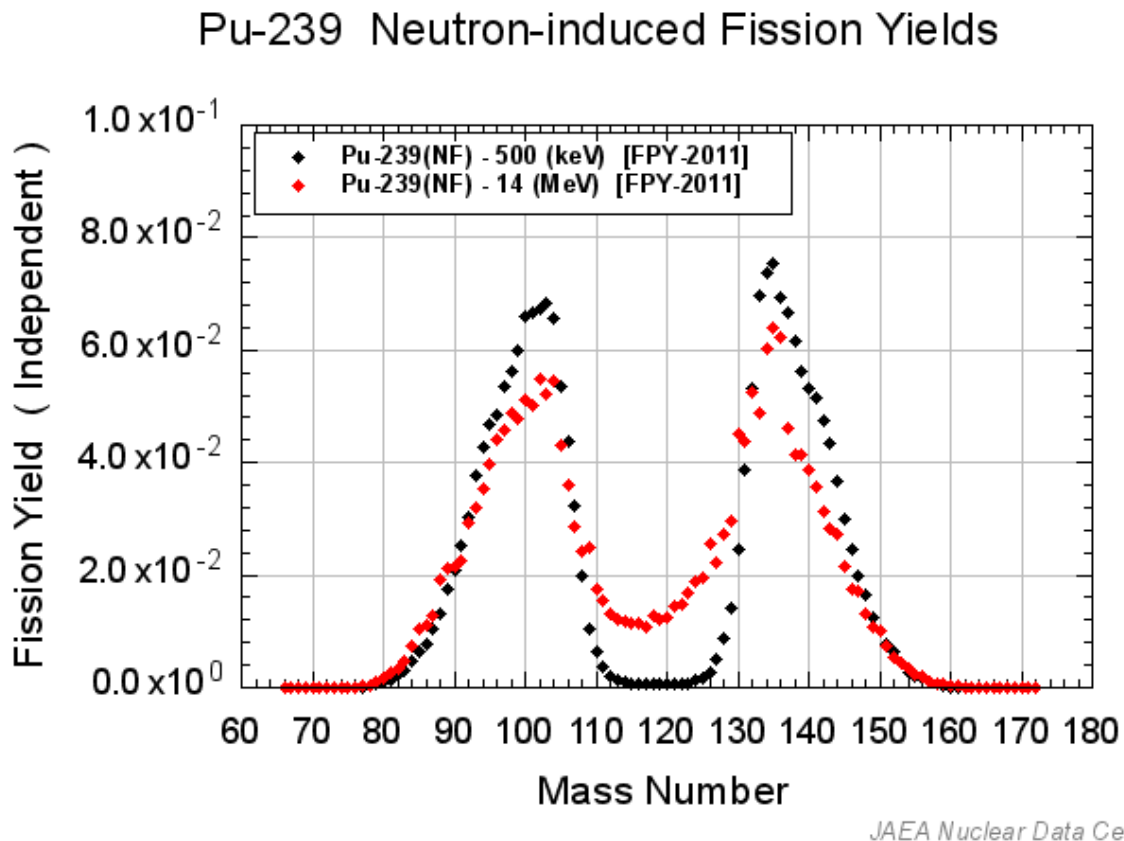


FIGURE A.3 – Probabilité de production des produits de fission pour une réaction de fission induite par neutrons sur du ^{239}Pu , pour une énergie incidente $E_n = 500$ keV (en noir) et pour $E'_n = 14$ MeV (en rouge).

Un autre critère "théorique" a été appliqué. Le code FIFRELIN [169], développé par le CEA, permet de simuler la fission nucléaire induite par neutron, ainsi que les γ immédiatement émis après la réaction, appelés γ prompts de fission (voir [170]). En utilisant la base de données nucléaires RIPL-3, FIFRELIN peut prédire l'intensité relative des γ

prompts de fission. En comparant le spectre en énergie obtenu par le code avec les positions en énergie des transitions d'intérêt, un nouveau critère vient appuyer, ou non, la sélection des bon candidats que l'on pourrait observer. Sur la Figure A.4, une distribution en énergie est tracée. Les lignes bleues correspondent aux énergies des γ prompts de fission, avec leur intensité relative, les lignes rouges correspondent aux énergies des γ émis par les réactions $^{239}\text{Pu}(n, n')$ et les lignes vertes aux énergies des γ émis par les réactions $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$. Comparé avec tous les γ des produits de fission identifiés avec NNDC [34], cet histogramme montre le spectre γ des produits de fission attendu.

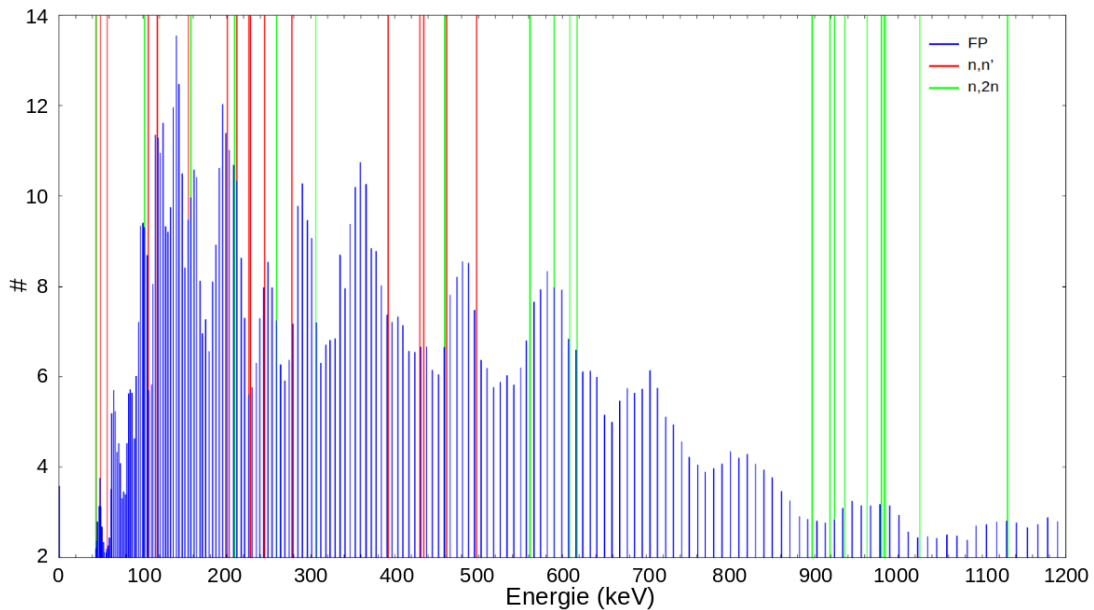


FIGURE A.4 – Simulation des γ prompts de fission donnée par le code FIFRELIN (en bleu), comparé aux positions en énergie des transitions d'intérêt pour les réactions $^{239}\text{Pu}(n, n')$ (en rouge) et pour les réactions $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ (en vert). La hauteur des transitions représente leur intensité relative. Pour les transtions d'intérêt, seule leur position dans le spectre est donnée. Figure obtenue avec un calcul FIFRELIN réalisé par O. Li-taize.

A.1.2 Comparaison avec les résultats obtenus par Bernstein

Une série d'expériences a été réalisée entre 1998 et 1999 par Bernstein *et al.* [165] à Los Alamos LANSCE/WNR avec le spectromètre GEANIE. Le Tableau A.3 montre la composition isotopique de la cible qu'ils ont utilisée, ainsi que les cibles fabriquées au EC-JRC Geel.

Les cibles fabriquées par l'EC-JRC Geel sont plus pures en terme de composition isotopique (plus de 99.9% de ^{239}Pu) mais ont, en valeur absolue, plus d' ^{241}Am que la cible américaine. Ce dernier est une grande source radioactive et pollue les spectres γ .

De plus, le flux de neutrons diffère entre les installations du LANSCE/WNR et GELINA, le premier ayant un flux de neutron rapide plus important que le second. La Figure

TABLEAU A.3 – Composition isotopique de la cible utilisée par Bernstein *et al.* au LANSCE/WNR lors de ses campagnes de mesure comparée à celles des cibles fabriquées par l'EC-JRC Geel.

| Cible | Composition isotopique (atom %) | | | | | |
|--------------------|---------------------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| | ^{238}Pu | ^{239}Pu | ^{240}Pu | ^{241}Pu | ^{242}Pu | ^{241}Am |
| Bernstein [165] | 0.0027 | 98.014 | 1.973 | 0.0093 | 0.0013 | 0.00015(3) |
| EC-JRC Geel - 2014 | 0.0015(6) | 99.973(4) | 0.024(3) | 0.0012(11) | 0.00056(8) | 0.0002659* |
| EC-JRC Geel - 2017 | <0.002 | 99.90198(29) | 0.058428(78) | 0.025215(99) | 0.01304(14) | 0.0029099* |

* : la quantité d' ^{241}Am est ici calculée à partir de la décroissance du ^{241}Pu seulement. Les quantités initiales d' ^{241}Am ne sont pas connues. Considérant les données préliminaires acquises en Décembre 2021, les quantités calculées sont en deçà de la valeur réelle, en particulier pour la cible de 2017. Cette proportion initiale n'est pas négligeable.

A.5 montre les flux de neutrons de différentes installations. On s'intéressera en particulier aux courbes orange, le flux de LANSCE/WNR, et bleue, le flux de GELINA. Les zones d'intérêt sont représentées en noir sur la Figure. Elles correspondent aux fenêtres en énergie utilisées par Bernstein *et al.*. Dans cette zone, on voit immédiatement que le flux de Los Alamos est plus favorable que celui de Geel, en particulier pour l'étude des réactions (n, $2n\gamma$).

Une partie des résultats de [165] est montrée dans ce qui suit pour illustrer les difficultés qu'ils ont rencontrées pour obtenir leurs sections efficaces (faible statistique et pollution par d'autres transitions). Ces difficultés seront très certainement présentes dans l'expérience de l'IPHC à l'EC-JRC Geel, combinées à un flux plus faible dans la zone en énergie entre 5 et 15 MeV.

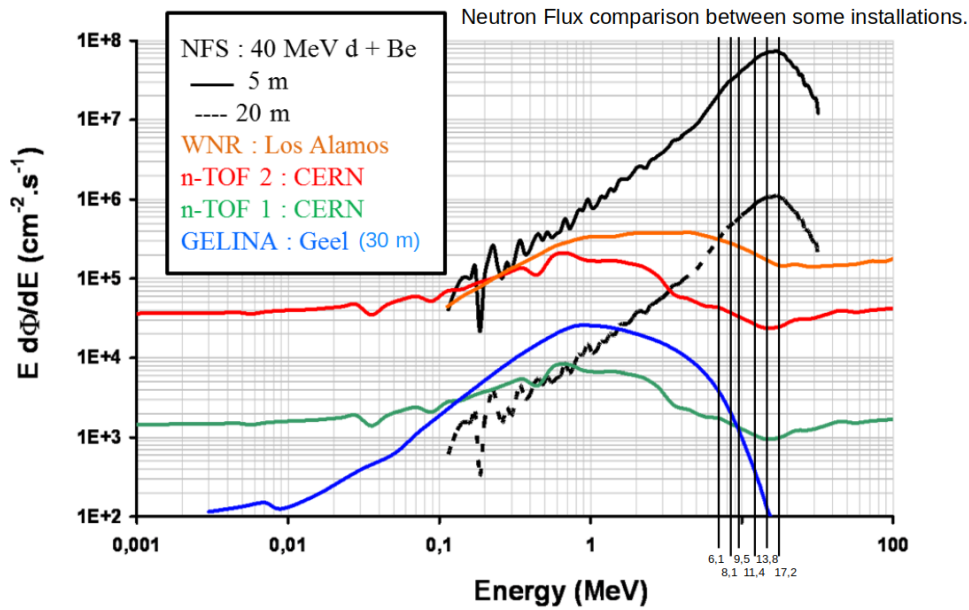


FIGURE A.5 – Comparaison des flux de neutrons entre plusieurs installations. Les courbes qui nous intéressent ici sont les courbes orange et bleue, respectivement les flux de LANSCE/WNR et GELINA. Les lignes noires représentent les fenêtrage en énergie neutrons utilisées par Bernstein *et al.* pour la détermination de leur sections efficaces ($n, 2n\gamma$). Figure reprise de X. Ledoux.

A.2 Résultat

Une transition γ sera considérée comme une transition favorable pour l'extraction de sa section efficace si les conditions suivantes sont réunies :

- Absence de rayon-X à côté de la transition ;
- Il n'y a pas (ou peu intense) de rayons γ provenant de la radioactivité dans un intervalle de ± 0.2 keV autour de E_γ ;
- Il n'y a pas (ou peu intense) de rayons γ provenant d'un produit de fission admettant un rendement trop important, dans un intervalle de ± 0.2 keV autour de E_γ .

Le Tableau A.4 donne les résultats de cette sélection.

* : Au regard des données obtenues pour le noyau d' ^{238}U , les transitions γ de basse énergie (typiquement, une centaine de keV ou moins) pour les numéros atomiques Z élevés ont un coefficient de conversion très grand. Avec le code *BrIcc* [171], on peut calculer ces coefficients de conversion, notés α , en fonction du noyau et de la multipolarité de la transition. Par exemple, pour la transition du ^{238}Pu à $E_\gamma = 44.06$ keV (pure E2), on a $\alpha_{E2}(^{238}\text{Pu}) = 788$. Si on compare ce coefficient à un autre obtenu avec une transition de ^{238}U avec $E_\gamma = 45$ keV, on a $\alpha_{E2}(^{238}\text{U}) = 604$. Dans le cas de ^{238}U , 99.8% de cette transition γ est converti mais, avec un temps d'acquisition de l'ordre du millier d'heures, une section efficace a pu être extraite (avec tout de même peu de point en énergie et une grande incertitude). En remarquant que la section efficace $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ est inférieure à celle

TABLEAU A.4 – Résultats obtenus pour la sélection des transitions d'intérêt pour le ^{239}Pu . Les cases en vert représentent les transitions retenues, les cases en orange sont des transitions dont la section efficace a été extraite par Bernstein *et al.* mais ces dernières sont polluées par d'autres transitions. Ces dernières sont possiblement acceptables mais des précautions supplémentaires doivent être prises. Enfin, les cases en rouge représentent les transitions γ dont on ne pourra pas extraire la section efficace car trop polluées, d'après cette étude.

| (n,n' γ), E_γ (keV) | (n,2n γ), E_γ (keV) |
|------------------------------------|------------------------------------|
| 49.412* | 44.06* |
| 106.47 | 101.88 |
| 154.3 | 157.42 |
| 201 | 209.2 |
| 245.3 | 259.4 |
| 117.3 | 561.17 |
| 277.599 | 617.41 |
| 44.663* | 608.7 |
| 57.3 | 897.33 |
| 106.125 | 962.77 |
| 461.9 | 924 |
| 434.7 | 983 |
| 430 | 984.45 |
| 497.8 | 1025.87 |
| 226.383 | 305.9 |
| 392.4 | 936.61 |
| 212 | 589.9 |
| 228.183 | 979.8 |
| | 1130.2 |
| | 918.69 |
| | 459.8 |

de l' ^{238}U et que $\alpha_{E2}(^{238}\text{Pu})$ est plus grand que $\alpha_{E2}(^{238}\text{U})$, on suppose que la transition du ^{238}Pu à $E_\gamma = 44.06$ keV pourrait être vue sur le spectre γ et une section efficace pourrait être obtenue, à condition d'avoir un temps d'acquisition suffisamment long. Si l'on considère les transitions du ^{239}Pu à $E_\gamma = 49.412$ keV et $E_\gamma = 44.663$ keV, le cas est plus favorable. En effet, ces transitions ne sont pas E2 pure mais un mixe M1+E2. Dans ce cas, le coefficient de conversion interne est plus faible. De plus, la section efficace de diffusion inélastique $^{239}\text{Pu}(n, n')$ est plus grande que la section efficace (n, 2n) de l' ^{238}U . Les cas des transitions inélastiques de basse énergie sont donc plus favorable que celle provenant des réactions (n, 2n).

Pour conclure cette étude de faisabilité d'expérience, quatre transitions ($n, n'\gamma$) et quatre transitions ($n, 2n\gamma$) ont été identifiées comme favorable pour l'obtention d'une section efficace avec la prochaine campagne de mesure prévue par l'IPHC avec GRA-PhEME auprès de GELINA. Cette étude met également l'emphase sur deux points très importants. Premièrement, la cible de ^{239}Pu doit être la plus pure possible, en ayant le moins possible d' ^{241}Am , principale source de pollution dans le spectre γ . Deuxièmement, le temps d'acquisition des données doit être suffisamment long pour permettre une bonne statistique pour chacune des transitions.

A.3 Les sections efficaces de réactions $(n, xn\gamma)$ Bernstein *et al.*

Figure 3a: Neutron energy gated spectra and fits in the energy region near the $^{238}\text{Pu } 6^+ \rightarrow 4^+$ with $E_\gamma=157.4$ keV. The energy calibration is given by $E_\gamma=A+B(\text{channel})$ where $A= -0.171$ and $B= 0.1278$. Green arrows indicate the location of $6^+ \rightarrow 4^+$.

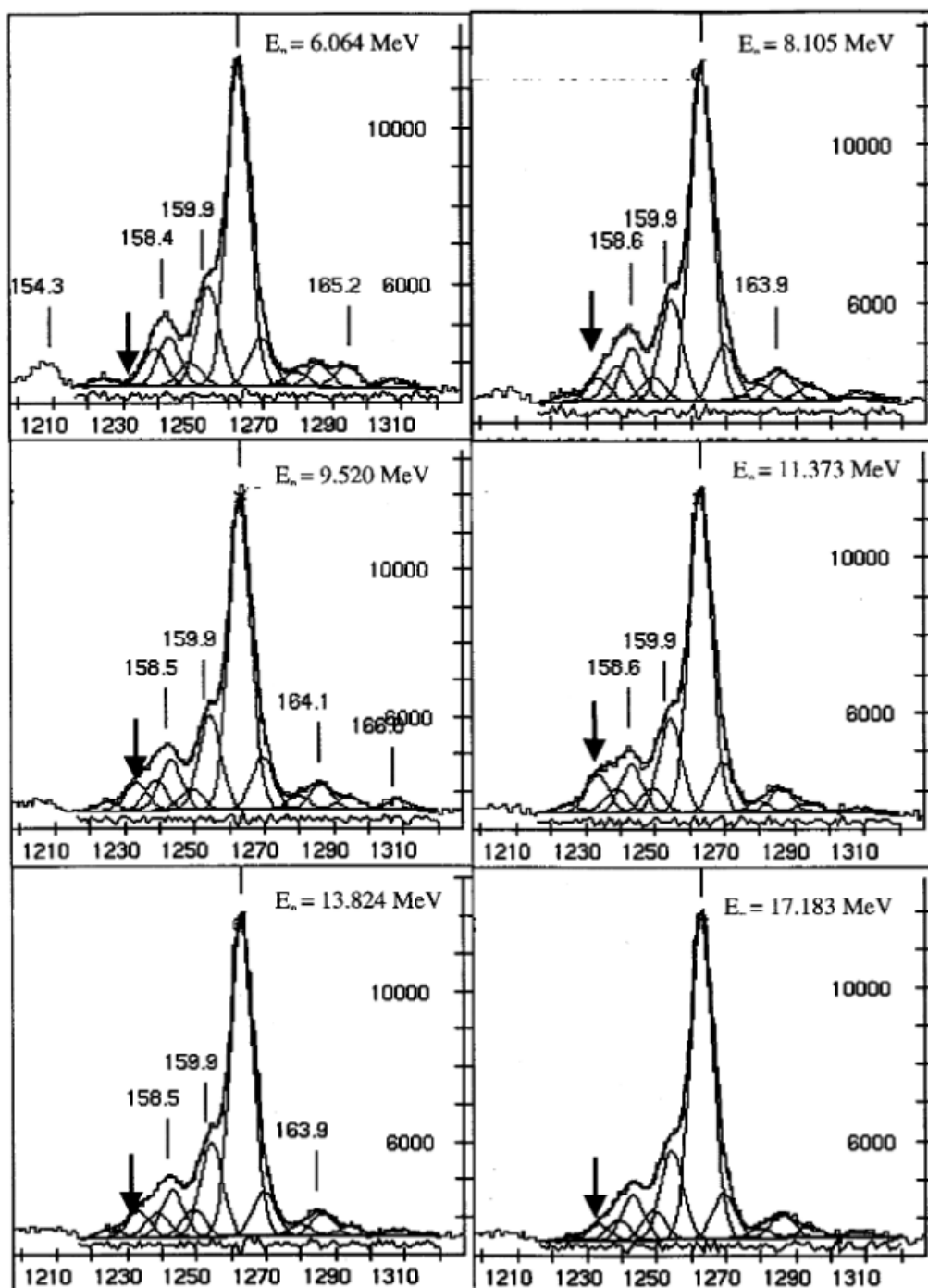


Figure 3b: Neutron energy gated spectra and fits in the energy region near the $^{238}\text{Pu } 8 \rightarrow 6$ with $E_\gamma=210.0$ keV. The energy calibration is given by $E_\gamma=A+B(\text{channel})$ where $A= -0.56$ and $B= 0.1278$. Green arrows indicate the location of $8^+ \rightarrow 6^+$.

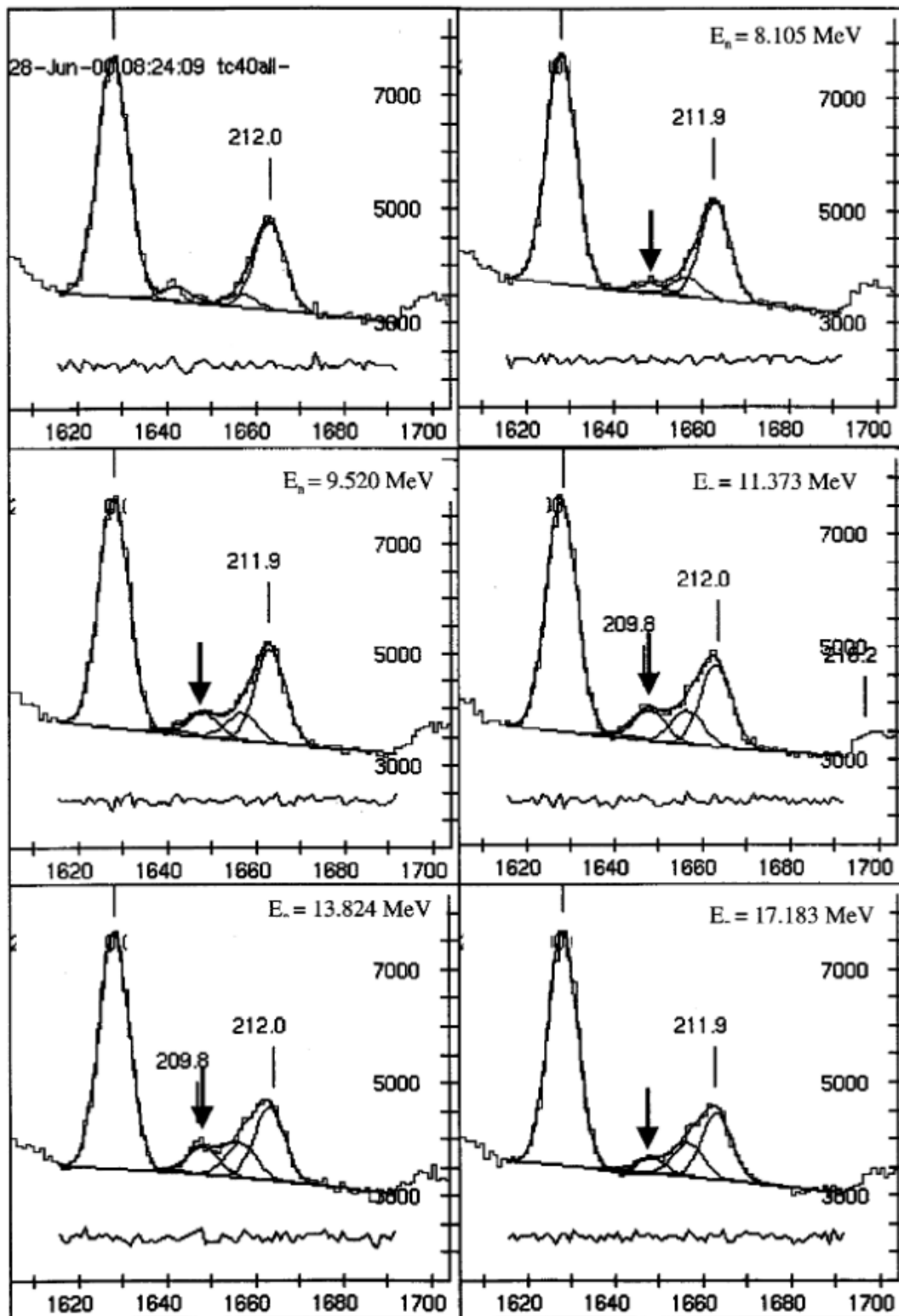
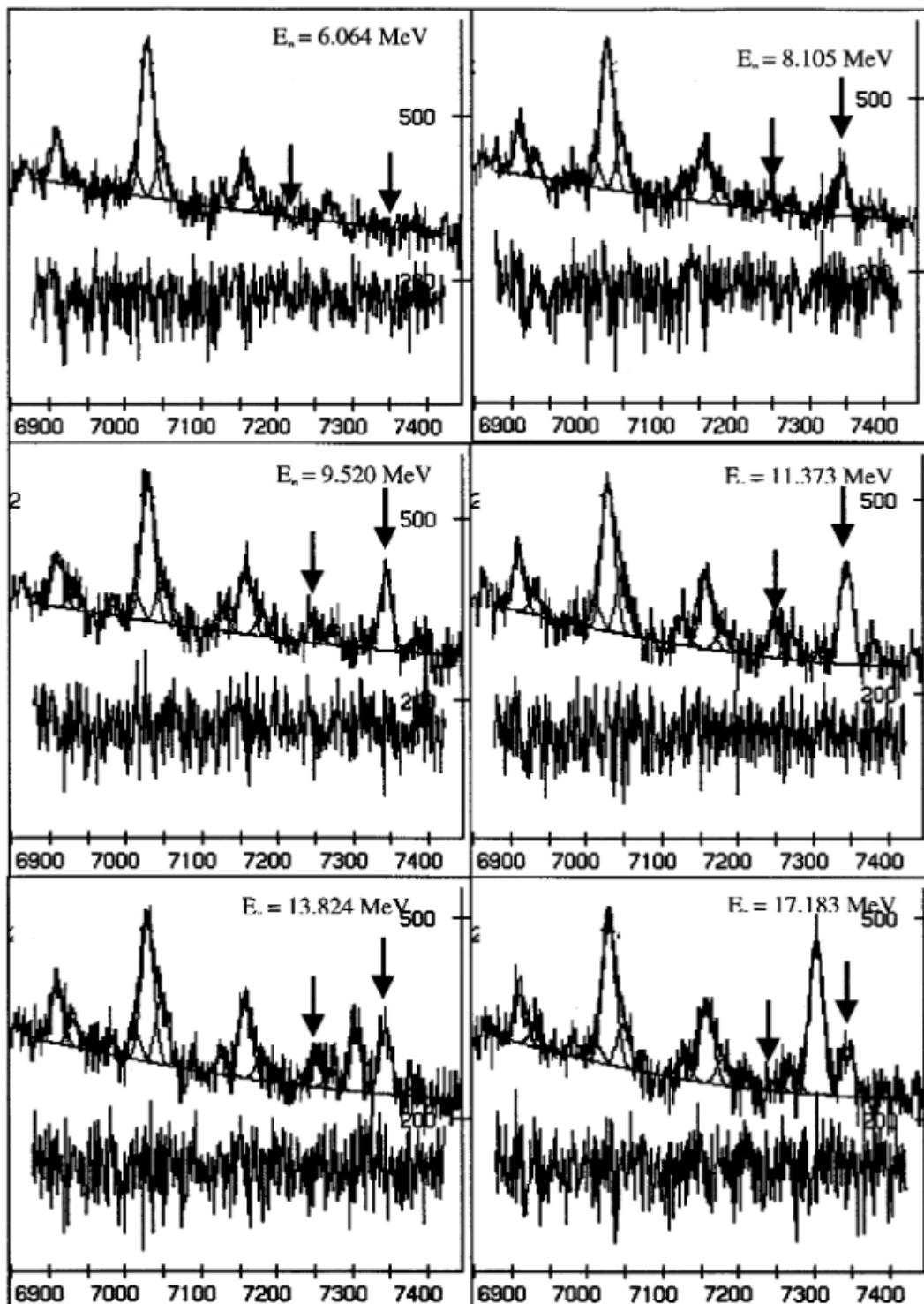


Figure 3c: Neutron energy gated spectra and fits near the ^{238}Pu $4^+ \rightarrow 4^+$ and $2^+ \rightarrow 2^+$ with $E_n=936.6$ and 924.0 keV. respectively. The energy calibration is given by $E_n=A+B(\text{channel})$ where $A=-1.80$ and $B=0.1278$. . Green arrows indicate the location of transitions.



Les sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$

B.1 Identification des transitions

Dans ce qui suit, les Figures B.1, B.2, B.3, B.4 et B.5 montrent des portions de spectre γ du détecteur segmenté (somme des 28 pixels) dans les zones en énergie comportant les transitions de l' ^{233}U , pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV. comme pour la Figure 3.6 du chapitre 3, chaque spectre est tracé en rouge, l'ajustement en noir et donne pour chaque transition γ identifiée son énergie, son identification et l'intégrale sous le pic ainsi que l'incertitude associée. Les énergies et identification données proviennent de la base de données ENSDF [87]. Les transitions issues de produits de fission sont tracées en bleu, les transitions issues du dispositif expérimental sont tracées en orange et les transitions d'intérêt $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ sont tracées en rouge.

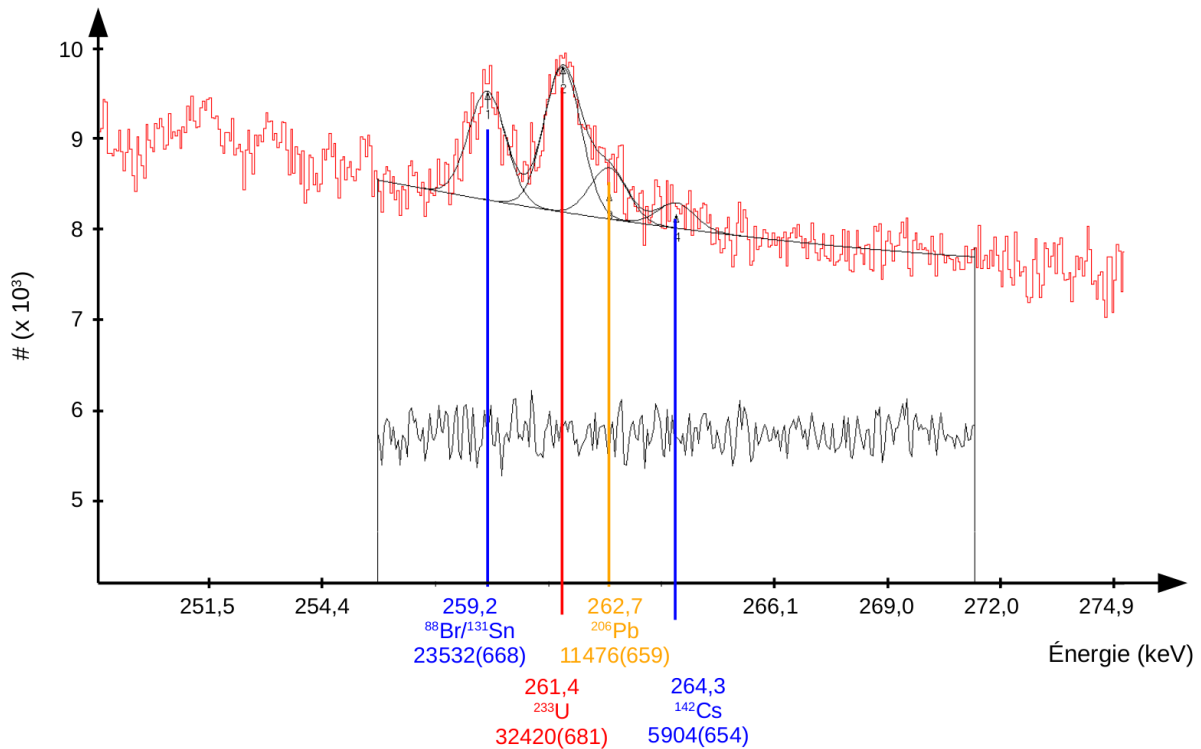


FIGURE B.1 – Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 251.5 et 274.9 keV.

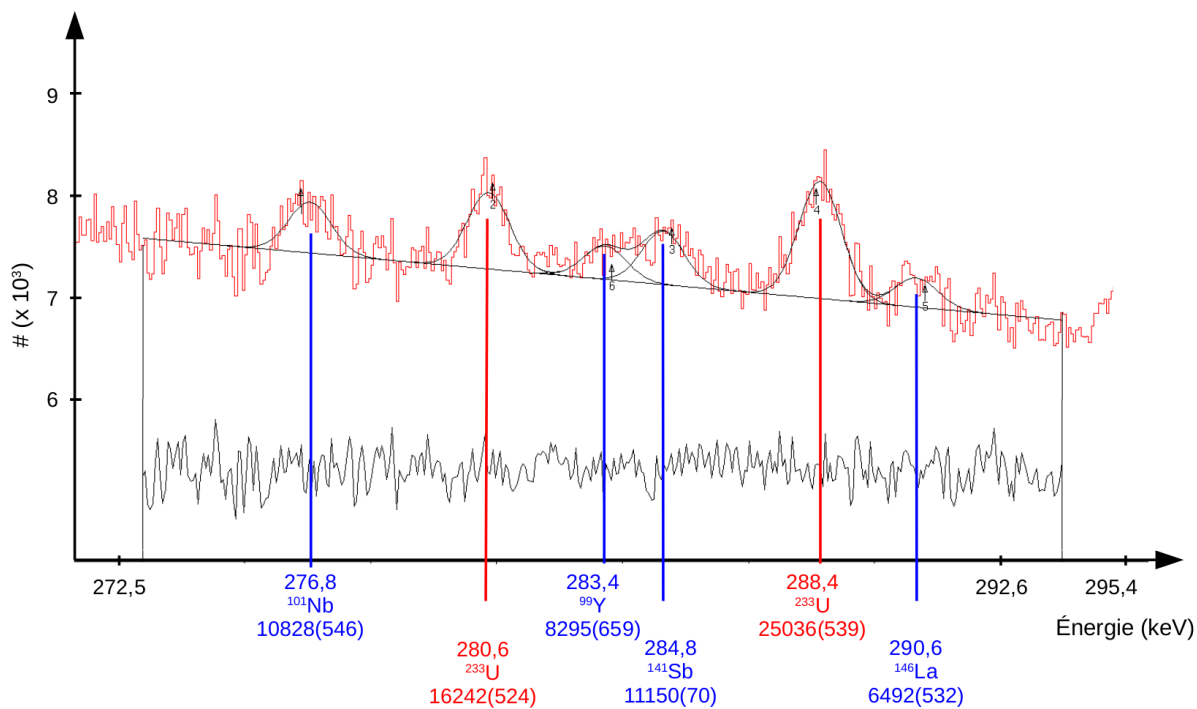


FIGURE B.2 – Portion du spectre γ pour une fenetre en energie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une energie γ entre 272.5 et 295.4 keV.

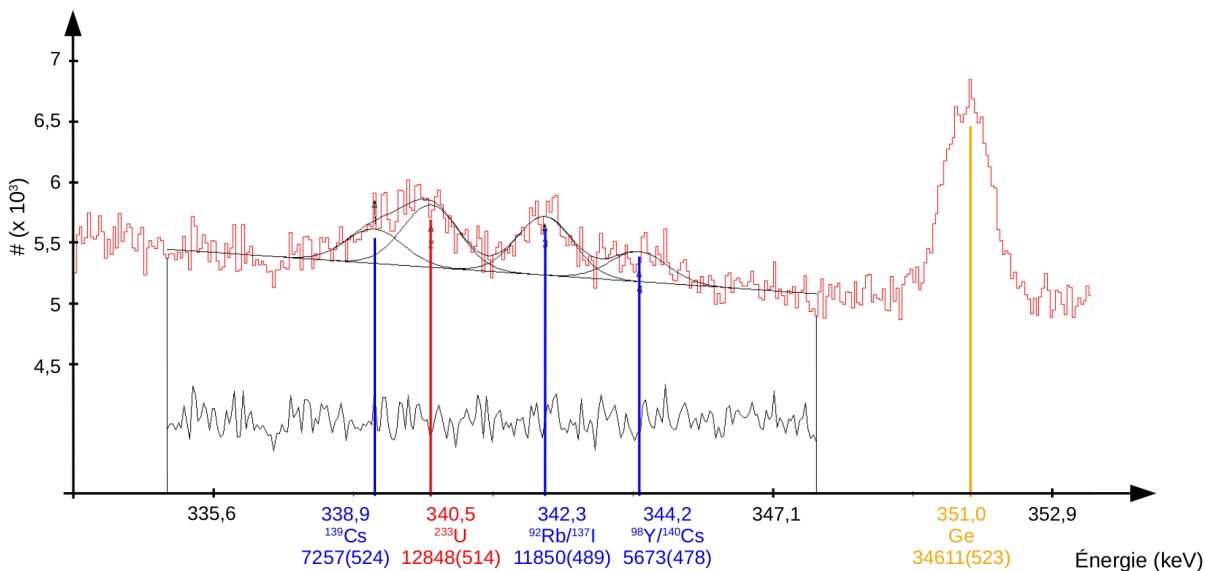


FIGURE B.3 – Portion du spectre γ pour une fenetre en energie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une energie γ entre 335.6 et 352.9 keV.

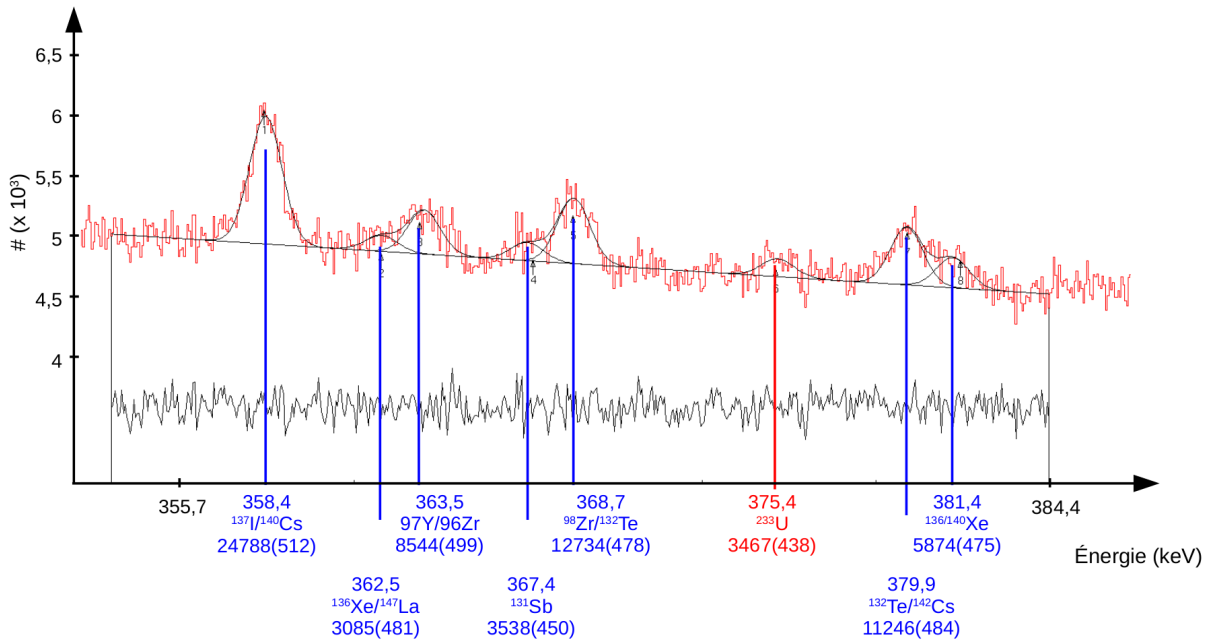


FIGURE B.4 – Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 355.7 et 384.4 keV.

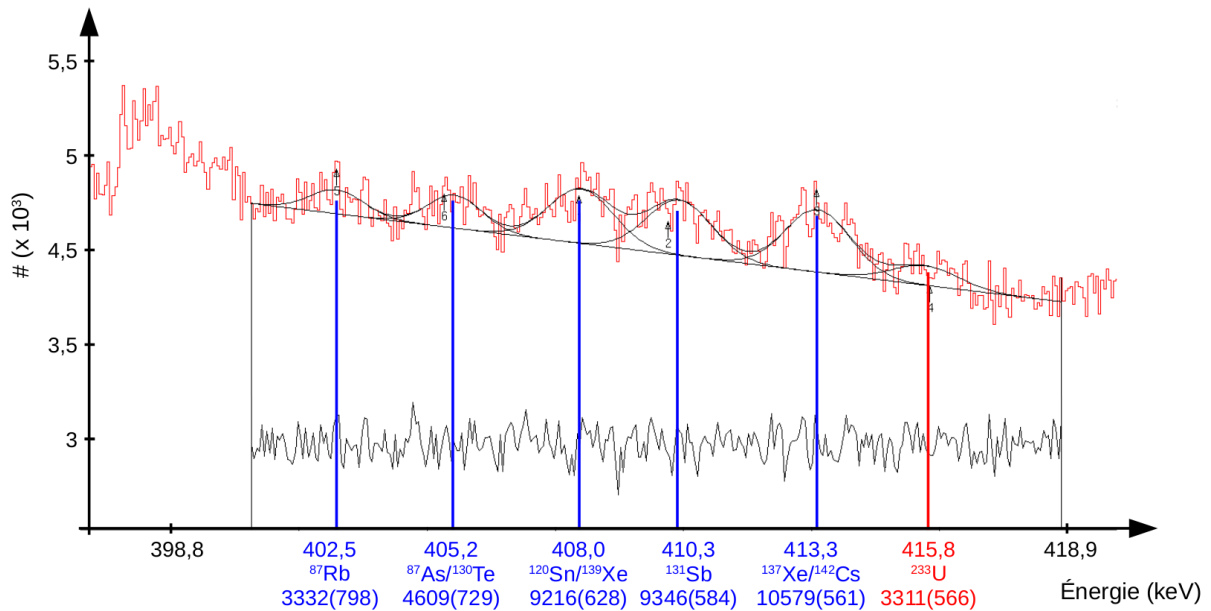


FIGURE B.5 – Portion du spectre γ pour une fenêtre en énergie neutron comprise entre 1 et 10 MeV et pour une énergie γ entre 398.8 et 418.9 keV.

B.2 Tableaux de valeurs des sections efficaces

Dans ce qui suit, nous donnons les valeurs numériques des sections efficaces de réaction $^{233}\text{U}(\text{n}, \text{n}'\gamma)$ présentées dans le chapitre 3. Les transitions sont classées par ordre croissant en énergie. Pour chaque tableau, E et ΔE représentent le centre et la largeur de la fenêtre en énergie considérée, σ est la section efficace donnée en mb et $\Delta\sigma$ est l'incertitude totale (statistique et systématique).

TABLEAU B.1 – Tableau de valeurs de sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions à $E_\gamma = 261.4$ keV, $E_\gamma = 280.58$ keV et $E_\gamma = 288.33$ keV.

| E (MeV) | ΔE (MeV) | $E_\gamma = 261.4$ keV | | $E_\gamma = 280.58$ keV | | $E_\gamma = 288.33$ keV | |
|-----------|------------------|------------------------|---------------------|-------------------------|---------------------|-------------------------|---------------------|
| | | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) |
| 0,400 | 0,099 | 5,285 | 2,721 | 13,543 | 7,720 | 32,728 | 13,882 |
| 0,603 | 0,099 | 15,545 | 3,185 | 21,606 | 7,686 | 38,314 | 10,647 |
| 0,804 | 0,096 | 33,337 | 4,799 | 18,422 | 2,540 | 39,091 | 5,708 |
| 0,953 | 0,045 | 40,774 | 5,572 | 19,115 | 5,220 | 38,725 | 4,512 |
| 1,155 | 0,148 | 41,580 | 5,275 | 24,458 | 4,376 | 42,733 | 6,111 |
| 1,460 | 0,143 | 46,972 | 5,460 | 22,976 | 3,866 | 44,878 | 4,914 |
| 1,757 | 0,134 | 44,055 | 5,772 | 28,083 | 5,354 | 48,964 | 6,237 |
| 2,058 | 0,142 | 36,797 | 3,451 | 26,560 | 3,628 | 46,131 | 4,548 |
| 2,372 | 0,140 | 42,496 | 4,824 | 31,934 | 6,527 | 47,118 | 3,664 |
| 2,772 | 0,221 | 36,497 | 5,146 | 31,949 | 6,526 | 43,647 | 7,813 |
| 3,515 | 0,471 | 45,684 | 7,848 | 35,192 | 4,785 | 43,992 | 5,382 |
| 4,525 | 0,461 | 46,092 | 7,664 | 39,843 | 3,404 | 45,165 | 4,327 |
| 6,005 | 0,910 | 30,567 | 4,436 | 30,418 | 6,709 | 36,283 | 5,045 |
| 8,509 | 1,415 | 16,048 | 7,880 | 12,160 | 7,486 | 41,010 | 14,733 |

TABLEAU B.2 – Tableau de valeurs de sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions à $E_\gamma = 298.8$ keV, $E_\gamma = 300.128$ keV et $E_\gamma = 301.99$ keV.

| E (MeV) | ΔE (MeV) | $E_\gamma = 298.81$ keV | | $E_\gamma = 300.128$ keV | | $E_\gamma = 301.99$ keV | |
|-----------|------------------|-------------------------|---------------------|--------------------------|---------------------|-------------------------|---------------------|
| | | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) |
| 0,400 | 0,099 | 52,291 | 3,720 | 4,601 | 2,667 | 13,316 | 8,618 |
| 0,603 | 0,099 | 69,776 | 7,473 | 19,597 | 4,286 | 18,130 | 4,100 |
| 0,804 | 0,096 | 63,534 | 6,121 | 24,654 | 3,881 | 15,727 | 4,161 |
| 0,953 | 0,045 | 71,305 | 6,859 | 23,929 | 5,542 | 20,529 | 5,348 |
| 1,155 | 0,148 | 66,322 | 5,384 | 29,607 | 3,036 | 19,701 | 1,619 |
| 1,460 | 0,143 | 70,151 | 5,186 | 29,607 | 3,855 | 20,672 | 3,006 |
| 1,757 | 0,134 | 76,289 | 6,672 | 34,763 | 3,662 | 21,048 | 4,236 |
| 2,058 | 0,142 | 75,728 | 8,442 | 35,259 | 2,744 | 22,550 | 2,948 |
| 2,372 | 0,140 | 83,822 | 8,504 | 40,969 | 6,921 | 24,422 | 4,746 |
| 2,772 | 0,221 | 79,309 | 9,095 | 31,203 | 3,105 | 16,339 | 4,798 |
| 3,515 | 0,471 | 84,571 | 8,556 | 42,560 | 2,966 | 19,126 | 4,180 |
| 4,525 | 0,461 | 90,711 | 9,653 | 43,823 | 6,061 | 24,933 | 3,260 |
| 6,005 | 0,910 | 64,951 | 5,543 | 30,723 | 3,512 | 20,794 | 2,667 |
| 8,509 | 1,415 | 40,292 | 8,431 | 11,639 | 3,373 | 19,060 | 3,802 |

TABLEAU B.3 – Tableau de valeurs de sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions à $E_\gamma = 305.4$ keV, $E_\gamma = 311.901$ keV, $E_\gamma = 313.34$ keV et $E_\gamma = 340.477$ keV.

| E (MeV) | ΔE (MeV) | $E_\gamma = 305.4$ keV | | $E_\gamma = 311.901$ keV | | $E_\gamma = 313.34$ keV | | $E_\gamma = 340.477$ keV | |
|-----------|------------------|------------------------|---------------------|--------------------------|---------------------|-------------------------|---------------------|--------------------------|---------------------|
| | | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) |
| 0,400 | 0,099 | 4,858 | 3,287 | 20,088 | 8,259 | 35,013 | 6,983 | 9,710 | 2,449 |
| 0,603 | 0,099 | 7,761 | 4,064 | 60,990 | 6,372 | 40,743 | 5,123 | 19,034 | 3,985 |
| 0,804 | 0,096 | 4,702 | 2,454 | 82,152 | 4,227 | 41,184 | 2,008 | 21,854 | 2,613 |
| 0,953 | 0,045 | 6,559 | 3,618 | 100,471 | 6,222 | 45,074 | 7,900 | 25,107 | 6,915 |
| 1,155 | 0,148 | 11,220 | 4,333 | 97,675 | 9,255 | 49,757 | 2,872 | 25,411 | 3,669 |
| 1,460 | 0,143 | 11,051 | 3,791 | 104,444 | 7,791 | 51,229 | 2,901 | 32,001 | 3,077 |
| 1,757 | 0,134 | 12,712 | 2,463 | 113,032 | 9,255 | 56,372 | 3,626 | 30,774 | 3,314 |
| 2,058 | 0,142 | 14,955 | 4,384 | 106,086 | 10,896 | 52,813 | 3,386 | 30,729 | 3,402 |
| 2,372 | 0,140 | 19,369 | 7,703 | 115,814 | 10,053 | 61,315 | 3,645 | 36,694 | 2,868 |
| 2,772 | 0,221 | 14,034 | 4,555 | 104,478 | 9,423 | 54,386 | 4,476 | 35,298 | 5,228 |
| 3,515 | 0,471 | 15,091 | 2,938 | 121,838 | 9,912 | 63,974 | 2,800 | 40,967 | 5,675 |
| 4,525 | 0,461 | 17,320 | 5,785 | 128,124 | 8,623 | 64,934 | 5,388 | 46,000 | 4,644 |
| 6,005 | 0,910 | 18,654 | 5,951 | 89,489 | 6,605 | 58,657 | 4,278 | 33,871 | 3,475 |
| 8,509 | 1,415 | 12,116 | 6,000 | 42,668 | 9,371 | 44,782 | 8,164 | 20,200 | 7,134 |

TABLEAU B.4 – Tableau de valeurs de sections efficaces expérimentales $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ pour les transitions à $E_\gamma = 375.407$ keV et $E_\gamma = 415.764$ keV.

| E (MeV) | ΔE (MeV) | $E_\gamma = 375.407$ keV | | $E_\gamma = 415.764$ keV | |
|-----------|------------------|--------------------------|---------------------|--------------------------|---------------------|
| | | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) | σ (mb) | $\Delta\sigma$ (mb) |
| 0,450 | 0,151 | 18,304 | 6,861 | 11,702 | 5,908 |
| 0,704 | 0,098 | 16,480 | 5,276 | 7,700 | 3,363 |
| 0,903 | 0,094 | 19,581 | 2,253 | 8,104 | 3,919 |
| 1,200 | 0,193 | 20,504 | 2,163 | 6,291 | 2,568 |
| 1,602 | 0,193 | 19,844 | 2,266 | 5,891 | 1,928 |
| 2,009 | 0,191 | 19,344 | 4,070 | 9,963 | 6,236 |
| 2,411 | 0,180 | 11,874 | 4,255 | 8,773 | 5,460 |
| 2,813 | 0,181 | 14,881 | 2,762 | 10,176 | 5,787 |
| 3,767 | 0,723 | 13,155 | 6,073 | 3,869 | 2,458 |
| 5,277 | 0,694 | 9,696 | 3,787 | 6,538 | 4,929 |
| 7,109 | 0,995 | 7,641 | 2,992 | 2,877 | 2,354 |
| 9,128 | 0,797 | 10,297 | 7,090 | 12,462 | 11,340 |

Paramétrisation du Modèle Optique

Dans cette annexe sont données les paramétrisations du modèle optique utilisé dans ce travail. Les fichiers dont sont issus les paramètres qui vont être présentés ici viennent de la base de données *RIPPL-3* [107]. Dans les deux cas de l' ^{233}U et l' ^{238}U , un potentiel de la forme de *Koning* [104] a été utilisé. cette forme fait appel à l'énergie de Fermi et le facteur η , définis comme suit :

$$E_F = -\frac{1}{2} [S_n(Z, A) + S_n(Z, A + 1)], \quad \eta = \frac{N - Z}{A}, \quad (\text{C.1})$$

où S_n est l'énergie de séparation du neutron considéré.

On rappelle ici cependant que les relations de dispersion ont été utilisées pour l' ^{233}U et pas dans le cas de l' ^{238}U .

C.1 OMP pour l' ^{233}U

Le potentiel utilisé pour l' ^{233}U est un potentiel dispersif en voies couplées. Les trois premières voies ont été couplées pour ce noyau pair-impair. Le jeu d'équations C.2 donne les formules pour les valeurs de potentiels p_i , rayons r_i et diffusivités a_i pour les différentes composantes et parties réelle et imaginaire du potentiel. Le Tableau C.1 donne la valeur des paramètres issus de *RIPPL-3*.

$$\begin{aligned}
R_{V_V} &= (|r_{V_V,1}| + r_{V_V,7}A) A^{1/3} ; \\
a_{V_V} &= a_{V_V,1} + a_{V_V,7}A ; \\
V_V &= \left(\frac{1 + p_{V_V,20}\eta}{p_{V_V,16}} \right) \times p_{V_V,16} \exp[-p_{V_V,17}(E - E_F)] ; \\
\\
R_{W_V} &= |r_{W_V,1}|A^{1/3} ; \\
a_{W_V} &= a_{W_V,1} + a_{W_V,7}A ; \\
W_V &= \frac{p_{W_V,1}(E - E_F)^2}{(E - E_F)^2 + p_{W_V,3}^2} + \alpha_V \left[\frac{\sqrt{E} + (E_F - p_{W_V,21})^{3/2}}{2E - 1.5\sqrt{E_F - p_{W_V,21}}} \right] ; \\
\\
R_{W_S} &= |r_{W_S,1}|A^{1/3} ; \\
a_{W_S} &= a_{W_S,1} + a_{W_S,7}A ; \\
W_S &= \frac{(p_{W_V,1} + p_{W_V,8}\eta)(E - E_F)^2}{(E - E_F)^2 + p_{W_S,6}^2} \exp[-p_{W_V,2}(E - E_F)] ; \\
\\
R_{V_{SO}} &= |r_{V_{SO},1}|A^{1/3} ; \\
a_{V_{SO}} &= a_{V_{SO},1} ; \\
V_{SO} &= p_{W_V,10} \exp[-p_{W_V,12}(E - E_F)] ; \\
\\
R_{W_{SO}} &= |r_{W_{SO},1}|A^{1/3} ; \\
a_{W_{SO}} &= a_{W_{SO},1} ; \\
W_{SO} &= \frac{p_{W_{SO},1}(E - E_F)^2}{(E - E_F)^2 + p_{W_{SO},3}^2} ;
\end{aligned} \tag{C.2}$$

TABLEAU C.1 – Table des valeurs des OMP issus de *RIPL-3* dans le cas de $l^{233}\text{U}$.

| | | | | | |
|-------------|-------------------------|-------------------------|---------------------|---------------------|--|
| Volume | $r_{V_V,1} = 1.57695$ | $r_{V_V,7} = -0.001367$ | | | |
| | $a_{V_V,1} = 0.160$ | $a_{V_V,7} = 0.002$ | | | |
| | $p_{V_V,16} = 48.62$ | $p_{V_V,17} = 0.01037$ | $p_{V_V,20} = -10$ | | |
| | $r_{W_V,1} = 1.253$ | | | | |
| | $a_{W_V,1} = 0.60146$ | $a_{W_V,7} = 0.00033$ | | | |
| | $p_{W_V,1} = 12.53$ | $p_{W_V,3} = 80.94$ | $p_{W_V,21} = 350$ | $\alpha_V = 1.65$ | |
| Surface | $r_{W_S,1} = 1.1808$ | | | | |
| | $a_{W_S,1} = 0.484$ | $a_{W_S,7} = 0.0005$ | | | |
| | $p_{W_S,1} = 17.73$ | $p_{W_S,2} = 0.01328$ | $p_{W_S,6} = 11.56$ | $p_{W_S,8} = -23.5$ | |
| Spin-Orbite | $r_{V_{SO},1} = 1.1214$ | | | | |
| | $a_{V_{SO},1} = 0.59$ | | | | |
| | $p_{V_{SO},10} = 6.03$ | $p_{V_{SO},12} = 0.005$ | | | |
| | $r_{W_{SO},1} = 1.1214$ | | | | |
| | $a_{W_{SO},1} = 0.59$ | | | | |
| | $p_{W_{SO},1} = -3.10$ | $p_{W_{SO},3} = 160$ | | | |

C.2 OMP pour $l^{238}\text{U}$

Dans le cas de $l^{238}\text{U}$, un potentiel non dispersif en voies couplées a été choisi [105]. Le couplage pour ce potentiel s'effectue sur les 5 premiers états de la bande fondamentale du noyau. Comme précédemment, le jeu d'équations C.3 donne les formules pour les valeurs de potentiels p_i , rayons r_i et diffusivités a_i pour les différentes composantes et parties réelle et imaginaire du potentiel. Le Tableau C.2 donne la valeur des paramètres issus de *RIPL-3*.

$$\begin{aligned}
R_{V_V} &= |r_{V_V,1}| \frac{(1 - r_{V_V,3})(E - E_F)^2}{(E - E_F)^2 + r_{V_V,5}^2} A^{1/3} ; \\
a_{V_V} &= a_{V_V,1} + a_{V_V,2} E ; \\
V_V &= \left(\frac{1 + p_{V_V,20} \eta}{p_{V_V,14} + p_{V_V,14} A + p_{V_V,16}} \right) \\
&\times \left[-p_{V_V,3}(E - E_F) + p_{V_V,5}(E - E_F)^2 + p_{V_V,16} \exp(-(p_{V_V,17}(E - E_F))) \right] ;
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
R_{W_V} &= |r_{W_V,1}| A^{1/3} ; \\
a_{W_V} &= a_{W_V,1} ; \\
W_V &= \frac{p_{W_V,1}(E - E_F)^2}{(E - E_F)^2 + p_{W_V,3}^2} ; \\
R_{W_S} &= |r_{W_S,1}| A^{1/3} ; \\
a_{W_S} &= a_{W_S,1} ; \\
W_S &= \frac{(p_{W_V,1} + p_{W_V,8} \eta + p_{W_V,7} A)(E - E_F)^2}{(E - E_F)^2 + p_{W_S,6}^2} \exp[-p_{W_V,2}(E - E_F)] ;
\end{aligned} \tag{C.3}$$

$$\begin{aligned}
R_{V_{SO}} &= |r_{V_{SO},1}| A^{1/3} ; \\
a_{V_{SO}} &= a_{V_{SO},1} ; \\
V_{SO} &= p_{W_V,10} \exp(-(p_{W_V,12}(E - E_F))) ;
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
R_{W_{SO}} &= |r_{W_{SO},1}| A^{1/3} ; \\
a_{W_{SO}} &= a_{W_{SO},1} ; \\
W_{SO} &= \frac{p_{W_{SO},1}(E - E_F)^2}{(E - E_F)^2 + p_{W_{SO},3}^2} ;
\end{aligned}$$

TABLEAU C.2 – Table des valeurs des OMP issus de *RIPL-3* dans le cas de $l^{238}\text{U}$.

| | | | | |
|-------------|-------------------------|-------------------------|--------------------------|-------------------------|
| Volume | $r_{V_V,1} = 1.245$ | $r_{V_V,3} = 0.05$ | $r_{V_V,5} = 100$ | |
| | $a_{V_V,1} = 0.66$ | $a_{V_V,2} = 0.000253$ | | |
| | $p_{V_V,1} = 1.00$ | $p_{V_V,3} = -0.024$ | $p_{V_V,5} = 0.00017$ | $p_{V_V,14} = -25.9826$ |
| | $p_{V_V,15} = -0.06667$ | $p_{V_V,16} = 92.44$ | $p_{V_V,17} = 0.0039075$ | $p_{V_V,20} = -10.5$ |
| | $r_{W_V,1} = 1.2476$ | | | |
| | $a_{W_V,1} = 0.5940$ | | | |
| | $p_{W_V,1} = 14.74$ | $p_{W_V,3} = 81.63$ | | |
| Surface | $r_{W_S,1} = 1.208$ | | | |
| | $a_{W_S,1} = 0.614$ | | | |
| | $p_{W_S,1} = 8.48744$ | $p_{W_S,2} = 0.01759$ | $p_{W_S,6} = 11.79$ | |
| | $p_{W_S,7} = 0.03833$ | $p_{W_S,8} = -24.0$ | | |
| Spin-Orbite | $r_{V_{SO},1} = 1.1213$ | | | |
| | $a_{V_{SO},1} = 0.59$ | | | |
| | $p_{V_{SO},10} = 5.86$ | $p_{V_{SO},12} = 0.005$ | | |
| | $r_{W_{SO},1} = 1.1213$ | | | |
| | $a_{W_{SO},1} = 0.59$ | | | |
| | $p_{W_{SO},1} = -3.10$ | $p_{W_{SO},3} = 160$ | | |

Références EXFOR des données expérimentales des sections efficaces de réactions pour le noyau d' ^{238}U .

TABLEAU D.1 – Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, \text{tot})$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1.

| Nom | Année | Référence | Entrée EXFOR |
|------------------------|-------|--|--------------|
| W.P. Abfalterer et al. | 2001 | Physical Review C, Vol. 63, p. 044608 | 13753030 |
| R. Batchelor et al. | 1965 | Nuclear Physics, Vol. 65, p. 236 | 21019013 |
| A. Bratenahl et al. | 1958 | Physical Review, Vol. 110, p. 927 | 11155033 |
| J. Cabe et al. | 1973 | Centre d'Etudes Nucléaire, Report 4524 | 20480019 |
| D.G. Foster et al. | 1971 | Physical Review C, Vol. 3, p. 576 | 10047099 |
| J.A. Harvey et al. | 1980 | Pric. Comm. | 13769002 |
| S.H. Hayes et al. | 1973 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 50, p. 243 | 10279002 |
| S. Mubarakmand et al. | 1974 | Nuclear Instrumentation and Methods in Physics, Vol. 115, p. 345 | 30305004 |
| W.P. Poenitz et al. | 1981 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 78, p. 333 | 10935007 |
| R.B. Schwartz et al. | 1974 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 54, p. 322 | 10280006 |
| C. Thibault | 1967 | Centre d'Etudes Nucléaire, Report 3124 | 22549009 |
| J. Voignier | 1968 | Centre d'Etudes Nucléaire, Report 3503 | 21725002 |

TABLEAU D.2 – Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, n)$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1.

| Nom | Année | Référence | Entrée EXFOR |
|------------------------|-------|--|--------------|
| R.C. Allen et al. | 1956 | Physical Review, Vol. 104, p. 731 | 12207010 |
| E. Barnard et al. | 1966 | Nuclear Physics, Vol. 80, p. 466 | 21320003 |
| R. Batchelor et al. | 1965 | Nuclear Physics, Vol. 65, p. 236 | 21019011 |
| G. Haouat et al. | 1982 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 81, p. 291 | 21782028 |
| L.L. Litvinskii et al. | 1987 | Atomnaya Energiya, Vol. 62, p. 192 | 40924006 |
| L.L. Litvinskii et al. | 1990 | Yadernaya Fizika, Vol. 52, p. 1025 | 41040002 |
| F.Y. Tsang et al. | 1978 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 65, p. 70 | 10696002 |
| J. Voignier | 1968 | Centre d'Etudes Nucléaire, Report 3503 | 21725003 |

TABLEAU D.3 – Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, \gamma)$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1.

| Nom | Année | Référence | Entrée EXFOR |
|-------------------------|-------|--|--------------|
| J.F. Barry et al. | 1964 | Nuclear Energy A&B, Vol 18, p. 481 | 21187002 |
| E.G. Bilpuch et al. | 1960 | Annals of Physics, Vol. 10, p. 455 | 11187006 |
| E. Broda | 1945 | Cavendish Lab. Reports, No. 574 | 21479902 |
| J.S. Brzosko et al. | 1971 | Acta Physica Polonica, Vol. 2, p. 489 | 30159029 |
| N.N. Buleeva et al. | 1988 | Conf. of Nucl. Data For Sci. and Technol., Mito, p. 71 | 14023003 |
| R. Crasta et al. | 2014 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 178, p. 66 | 33059002 |
| D.K. Mc Daniels et al. | 1982 | Nuclear Physics, Sec. A, Vol. 384, p. 88 | 12767003 |
| B.C. Diven et al. | 1960 | Physical Review, Vol. 120, p. 556 | 11616030 |
| D. Drake et al. | 1971 | Physics Letters, Sec. B, Vol. 36, p.557 | 10193007 |
| M.P. Fricke et al. | 1970 | Nuclear Data for Reactors Conf., Helsinki, Vol. 2, p.265 | 10049008 |
| J.H. Gibbons et al. | 1961 | Physical Review, Vol. 122, p. 182 | 11329074 |
| J.H. Gibbons et al. | 1969 | Priv. Comm. | 12229003 |
| R.C. Hanna et al. | 1959 | Journal of Nuclear Energy, Vol. 8, p. 197 | 21067003 |
| H.I. Kim et al. | 2016 | European Physical Journal A, Vol. 52, p.170 | 23302002 |
| A.I. Leipunskiy et al. | 1958 | 2 nd Internat. Atomic Energy Conf., Geneva, Vol. 15, p.50 | 40244084 |
| M. Linder et al. | 1976 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 59, p. 381 | 10221061 |
| G.A. Linenberger et al. | 1944 | Los Alamos Scientific Lab. Repports, No. 179 | 14137003 |
| G.A. Linenberger et al. | 1946 | Los Alamos Scientific Lab. Repports, No. 467 | 11945013 |
| W.S. Lyon et al. | 1959 | Physical Review, Vol. 114, p.1619 | 11407034 |
| H.O.Menlove et al. | 1968 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 33, p. 24 | 20362002 |
| M.C. Moxon | 1968 | Div. of Tech. Info. U.S. AEC Reports, No. 17644 | 21331003 |
| V.K. Mulik et al. | 2014 | Annals of Nuclear Energy, Vol. 63, p. 233 | 33056002 |
| H. Naik et al. | 2012 | Journal of Radioanalytical and Nucl. Chem., Vol. 293, p. 469 | 33043002 |
| H. Naik et al. | 2015 | Journal of Radioanalytical and Nucl. Chem., Vol. 303, p. 2497 | 33091004 |
| Yu.G. Panitkin et al. | 1971 | Nuclear Data for Reactors Conf., Helsinki, Vol. 2, p.265 | 10049008 |
| Yu.G. Panitkin et al. | 1972 | Soviet Atomic Energy, Vol. 33, p. 893 | 40121002 |
| Yu.G. Panitkin et al. | 1972 | Soviet Atomic Energy, Vol. 33, p. 945 | 40177002 |
| R.B. Perez et al. | 1979 | Physical Review C, Vol. 20, p. 528 | 12867002 |
| J.L. Perkin et al. | 1958 | Proceedings of the Physical Society, London, Vol. 72, p.505 | 21438031 |
| W.P. Poenitz et al. | 1975 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 57, p. 300 | 10421003 |
| W.P. Poenitz et al. | 1975 | Conf. on Nucl. Cross-sect. and Tech., Washington, p. 901 | 12670006 |
| W.P. Poenitz et al. | 1981 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 78, p. 239 | 10000003 |
| E. Quang et al. | 1992 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 110, p. 282 | 13190002 |
| T.B. Ryves et al. | 1973 | Journal of Nuclear Energy, Vol. 27, p. 519 | 20942003 |
| V.H. Tan et al. | 1996 | Vietnam report to the I.N.D.C., No. 8 | 31678002 |
| V.A. Tolstikov et al. | 1963 | Atomnaya Energiya, Vol. 15, p. 414 | 40803003 |
| J.L Ullmann et al. | 2014 | Physical Review C, Vol. 89, p. 034603 | 14310003 |
| J. Voignier et al. | 1968 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 112, p. 87 | 22006049 |
| L.W. Weston et al. | 1963 | European-American Nucl. Data Committee Doc., No. 33, p. 64 | 12456002 |
| T. Wright et al. | 2017 | Physical Review C, Vol. 96, p. 064601 | 23364004 |
| Z. Yuan et al. | 2020 | Journal of Radioanalytical and Nucl. Chem., Vol. 324, p. 277 | 32802002 |
| H. Zheng-De et al. | 1980 | Lawrence Berkeley Lab. Reports, No. 11118, p. 243 | 30583003 |

TABLEAU D.4 – Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, f)$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1.

| Nom | Année | Référence | Entrée EXFOR |
|------------------------|-------|--|--------------|
| J. Blons et al. | 1975 | Physical Review Letters, Vol. 35, p. 1749 | 20796003 |
| B. Leugers et al. | 1976 | Meet. Fast Neutr. Cross Sect. of U and Pu, Argonne, p. 246 | 20943003 |
| O. Shcherbakov et al. | 2002 | Jour. of Nucl. Sci. and Technol. Suppl., Vol. 2, p. 230 | 41455010 |
| F. Tovesson et al. | 2014 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 178, p. 57 | 14402008 |
| P.E. Vorotnikov et al. | 1971 | Yaderno-Fizicheskie Issledovaniya v SSSR, No. 12, p.22 | 40110002 |

TABLEAU D.5 – Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, n')$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1.

| Nom | Année | Référence | Entrée EXFOR |
|--------------------|-------|--|--------------|
| K.W. Allen et al. | 1961 | Nuclear Energy A& B, Vol. 14, p. 100 | 21210003 |
| R. Baba et al. | 1956 | Jour. of Nucl. Sci. and Technol., Vol. 27, p. 601 | 22158009 |
| R. Batchelor | 1956 | Proc. Physical Society, Sect. A, Vol. 69, p. 214 | 22572002 |
| L. Cranberg et al. | 1958 | Physical Review, Vol. 109, p. 2063 | 12378005 |
| N.P. Glazkov | 1963 | Atomnaya Energiya, Vol. 14, p. 400 | 40662003 |
| G.H. Kegel et al. | 1978 | U.S. D.O.E. Nuclear Data Committee Reports, No. 12, p. 151 | 14019003 |
| A.B. Smith et al. | 1963 | Nuclear Physics, Vol. 65, p. 236 | 21019012 |
| F.Y. Tsang et al. | 1978 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 65, p. 70 | 10696004 |
| P.H. White et al. | 1962 | Nuclear Energy A& B, Vol. 16, p. 261 | 21755003 |
| R. Capote | / | Priv. Comm. | / |
| NEA | / | WPEC/SG4 report | / |

TABLEAU D.6 – Sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, 2n)$ provenant de la base de données EXFOR montrées sur la Figure 4.1.

| Nom | Année | Référence | Entrée EXFOR |
|------------------------|-------|---|--------------|
| B. Anders et al. | 1985 | Ges. Kernen.-Verwertung, No. 85-E-24 | 24976048 |
| Anonymous | 1967 | Priv. Comm. | 30537002 |
| G.P. Antropov et al. | 1958 | Soviet Atomic Energy, Vol. 5, p.1352 | 40411002 |
| R. Crasta et al. | 2014 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 178, p. 66 | 33059003 |
| A.A. Filatenkov et al. | 1999 | Khlopin Radiev. Inst., Leningrad Reports, No. 252 | 41298100 |
| V.Y. Golovnya et al. | 1987 | 1 st Int. Conf. on Neutron Physics, Kiev, Vol. 3, p. 281 | 40997002 |
| H. Karius et al. | 1979 | Jour. of Physics, part G, Vol. 5, p. 715 | 20499002 |
| J.D. Knight et al. | 1958 | Physical Review, Vol. 112, p. 259 | 12459002 |
| C. Konno et al. | 1993 | JAERI Reports, No. 1329 | 22637090 |
| N.V. Kornilov et al. | 1980 | Zentralinst. f. Kernforschung Rossendorf Repors, No. 410, p.68 | 30561002 |
| Krishichayan et al. | 2017 | PhysicalReview C, Vol. 96, p. 044623 | 14482002 |
| J.H. Landrum et al. | 1973 | PhysicalReview C, Vol. 8, p. 1938 | 10376002 |
| D.S. Mather et al. | 1969 | A.W.R.E. Aldermaston Reports, No. 47, p. 69 | 20794013 |
| D.S. Mather et al. | 1972 | A.W.R.E. Aldermaston Reports, No. 72, p. 72 | 20795012 |
| V.K. Mulik et al. | 2014 | Annals of Nuclear Energy, Vol. 63, p. 233 | 33056003 |
| H. Naik et al. | 2012 | Journal of Radioanalytical and Nucl. Chem., Vol. 293, p. 469 | 33043003 |
| H. Naik et al. | 2015 | Journal of Radioanalytical and Nucl. Chem., Vol. 303, p. 2497 | 33091005 |
| J.L. Perkin et al. | 1961 | Nuclear Energy A& B, Vol. 14, p. 69 | 21208003 |
| J.A. Phillips | 1956 | A.E.R.E. Harwell Reports, No. 2033 | 21521003 |
| P. Raics et al. | 1990 | Hungarian report to the I.N.D.C., No. 029, p. 3 | 30923002 |
| P. Raics et al. | 1990 | Hungarian report to the I.N.D.C., No. 029, p. 3 | 30923003 |
| V.K. Mulik et al. | 2014 | Annals of Nuclear Energy, Vol. 63, p. 233 | 33056002 |
| T.B. Ryves et al. | 1980 | Jour. of Physics, part G, Vol. 6, p. 771 | 21627008 |
| L.R. Veaser et al. | 1978 | Int. Conf. on Neutron Physics and Nuclear Data, Harwell | 10795004 |
| X. Wang et al. | 2010 | Nucl. Instrum. Methods in Physics Res. A, Vol. 621, p. 326 | 32677002 |
| X. Wang et al. | 2010 | Nucl. Instrum. Methods in Physics Res. B, Vol. 268, p. 1949 | 32683002 |
| C. Zhu et al. | 2011 | Nuclear Science and Engineering, Vol. 169, p. 188 | 32696012 |

Impact de la marginalisation sur les sections efficaces de réactions pour le noyau d' ^{238}U

Dans cette annexe, on donne les écarts entre les sections efficace de réaction pour le noyau d' ^{238}U présentées dans le chapitre 4, *i. e.* à partir de la connaissance *a priori* et après marginalisation des données expérimentales de la section efficace totale. Ces dernières sont obtenues avec les méthodes BMC, MAT et SIMPLE, présentées dans le chapitre 5.

On peut noter un bon accord entre les deux calculs, quelle que soit la section efficace de réaction étudiée et quelle que soit la méthode de marginalisation choisie, avec un écart relatif ne dépassant pas les 10% dans le cas de la fission à haute énergie ($E_n > 27$ MeV) et à l'ouverture de la (n, 3n) ce qui en deçà des incertitudes à ces énergies.

Ce constat conforte notre résultat avec une modification des paramètres de modèles optiques et de déformation du noyau qui ne dégrade pas significativement les sections efficaces de réaction.

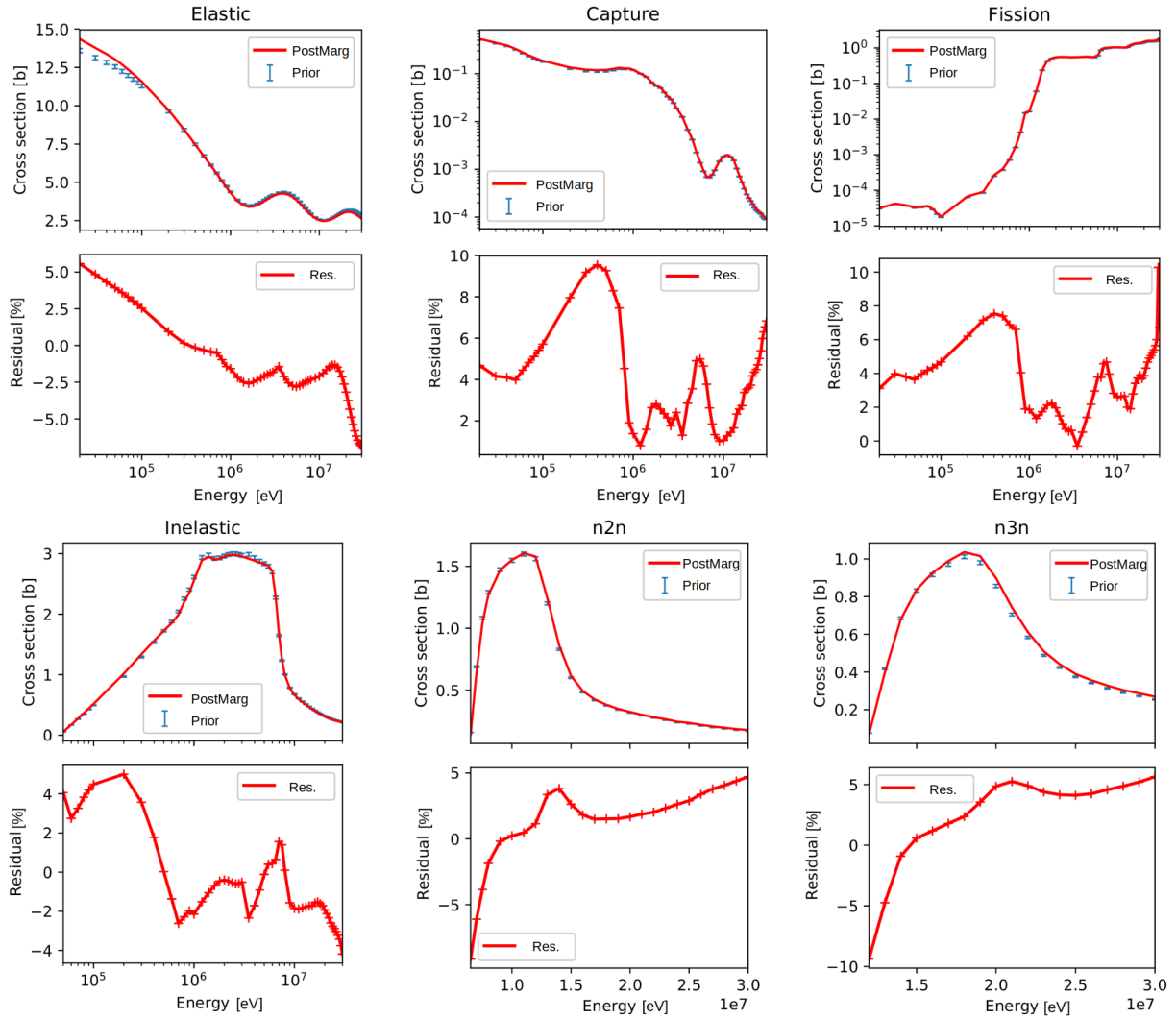


FIGURE E.1 – Comparaison des valeurs centrales des sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, n)$, (n, γ) , (n, f) , (n, n') , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ avant et après marginalisation pour la méthode **BMC**. Pour chaque réaction, on donne, en haut les valeurs centrales des sections efficaces du calcul *a priori* (points bleus) et après marginalisation des données expérimentales de la section efficace totale (ligne rouge). En bas, on trace l'écart relatif entre les deux courbes avant et après marginalisation.

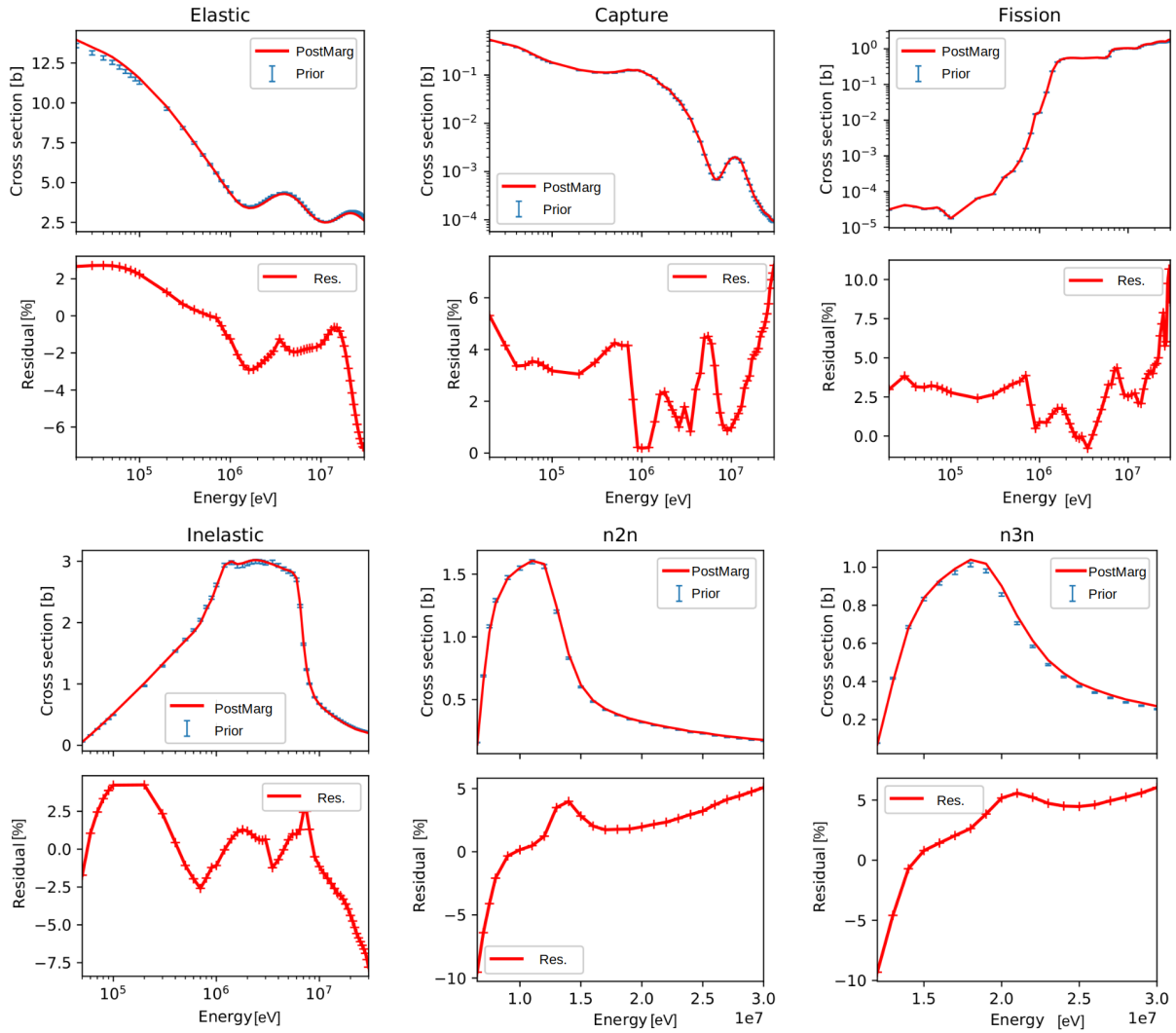


FIGURE E.2 – Comparaison des valeurs centrales des sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, n)$, (n, γ) , (n, f) , (n, n') , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ avant et après marginalisation pour la méthode **MAT**. Pour chaque réaction, on donne, en haut les valeurs centrales des sections efficaces du calcul *a priori* (points bleus) et après marginalisation des données expérimentales de la section efficace totale (ligne rouge). En bas, on trace l'écart relatif entre les deux courbes avant et après marginalisation.

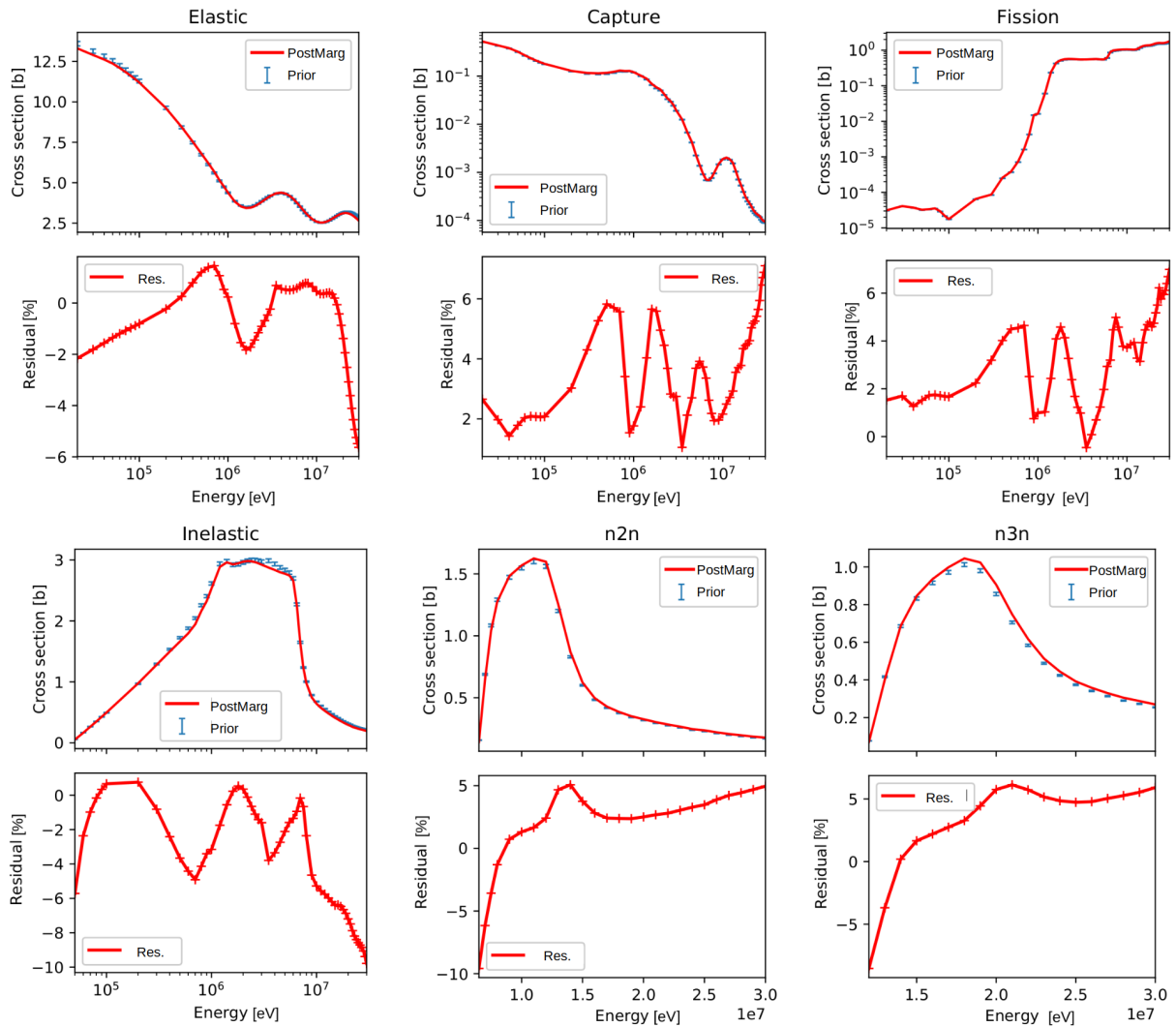


FIGURE E.3 – Comparaison des valeurs centrales des sections efficaces de réaction $^{238}\text{U}(n, n)$, (n, γ) , (n, f) , (n, n') , $(n, 2n)$ et $(n, 3n)$ avant et après marginalisation pour la méthode **SIMPLE**. Pour chaque réaction, on donne, en haut les valeurs centrales des sections efficaces du calcul *a priori* (points bleus) et après marginalisation des données expérimentales de la section efficace totale (ligne rouge). En bas, on trace l'écart relatif entre les deux courbes avant et après marginalisation.

Ma thèse en 180 secondes

Devant ¹ vous aujourd'hui laissez-moi vous parlez de l'une de mes amies fort bien controversée. L'énergie nucléaire trop crainte de nos jours, A pourtant tout pour plaire je le dis sans détour ! Comme une femme fatale au sourire envoûtant Elle ne fait rien de mal sitôt qu'on est méfiant. Production d'énergie, absence de CO₂, Voilà des atouts qui sont forts avantageux ! Ainsi c'est avec elle que je passe mes journées devant mes logiciels pour traiter des données. Plus particulièrement au coeur du réacteur J'étudie ses enfants qui sont très chahuteurs. Grand Dieu qu'ils sont nombreux ces noyaux atomiques ! Et ils sont paresseux c'n'est vraiment pas pratique...

Je les connais très mal ces petits avortons Mais si je lance une balle ce que j'appelle neutron, Alors là je peux dire parole de thésard Qu'ils vont tous réagir ça devient le bazars ! Prenez donc celui là dans ce Capharnaüm C'est le deux cents trente-trois son nom est Uranium. C'est un petit génie franchement pas très connu que je nomm'rais ainsi le petit prince de l'U. Il est très prometteur sa mère est fière de lui un nouveau réacteur va naître grâce à lui. Et il s'en passent des choses dans cette machinerie, Il faut que l'on s'impose d'être super précis ! Lorsqu'un neutron percute notre cher prince de l'U, Il montre dans cette lutte une résistance ardue.

Dans le meilleur des cas puisqu'il est dit fissile, Il vole-t-en éclat se montrant bien utile, Puisqu'ainsi le produit de ce décès tragique, Deviendra ce qui suit l'énergie électrique. Mais il pourrait aussi ce neutron capturer, Briguer son énergie et s'en débarrasser **NON MAIS DIS DONC ! T'AS PAS HONTE TOI ? !**

Avec cette énergie il est tout excité Mais malgré ce délit, il va la restaurer. Il peut éventuellement émettre en un frisson Un peu de rayonnement sous forme de photon. Mais il peut arriver que cela ne suffise... Pour tout évacuer il est plein de surprise ! Notre prince va alors émettre des neutrons Et c'est dans cet effort qu'il va perdre son nom. De deux cent trente-trois il va dégingoler Et perdre un peu de poids pour se stabiliser. Ces types de réactions qui sans mentir, nous gêne, sont dans notre jargon appelées (n,xn). Elles ont peu de scrupule il me faut les cerner, C'est pourquoi je calcul leur probabilité Et cette quantité cherchée depuis l'Alsace est ainsi baptisée la section efficace. Une fois mise à nue elles ne nous gêneront guère Laisant le prince de l'U faire la fierté d'une mère !

1. [Lien vers la vidéo complète.](#)

Bibliographie

- [1] “Institut Pluridisciplinaire Hubert CURIE - IPHC (page d’accueil),” 2023. <http://www.iphc.cnrs.fr/>.
- [2] CEA, “CEA/CEA Cadarache - Accueil,” 2023. <http://www.cadarache.cea.fr/cad>.
- [3] CEA, “CEA Portail DAM,” 2023. <http://www-dam.cea.fr/>.
- [4] S. Singh, *Le roman du Big Bang : la plus importante découverte scientifique de tous les temps*. JC Lattès, 2005.
- [5] BP, “Statistical Review of World Energy,” 2022. <https://www.bp.com/en/global/corporate/energy-economics/statistical-review-of-world-energy.html>.
- [6] P. R. Michel Chouha, *Tchernobyl, 25 ans après... Fukushima - Quel avenir pour le nucléaire ?* Editions TEC & DOC, 2011.
- [7] COE, “Charbon : formation, extraction, utilisation, pays producteurs et chiffres clés,” 2018. <https://www.connaissancedesenergies.org/fiche-pedagogique/charbon>.
- [8] M. d. l. e. d. A. étrangères, “Présentation de l’Islande,” 2023. France Diplomatie, <https://www.diplomatie.gouv.fr/fr/dossiers-pays/islande/presentation-de-l-islande/>.
- [9] EDF, “L’hydraulique en France,” 2022. <https://www.edf.fr/groupe-edf/espaces-dedies/l-energie-de-a-a-z/tout-sur-l-energie/produire-de-l-electricite/l-hydraulique-en-chiffres>.
- [10] ENGIE, “Coup de projecteur sur le rendement d’un panneau solaire,” 2022. <http://mypower.engie.fr/energie-solaire/conseils/rendement-panneau-solaire.html>.
- [11] F. Padovani, “Les effets sociopolitiques des migrations forcées en chine liées aux grands travaux hydrauliques - l’exemple du barrage des trois-gorges,” *Centre d’études et de recherches internationales - Sciences Po*, no. 103, p. 37, 2004. <https://www.sciencespo.fr/cei/fr/content/les-effets-sociopolitiques-des-migrations-forcees-en-chine-liees-aux-grands-travaux-hydrauli>.
- [12] “Débat public Programmation pluriannuelle de l’énergie,” 2018. <https://cpdp.debatpublic.fr/cpdp-ppe/lenergie-nucleaire-serait-elle-renouvelable.htm>.
- [13] “Programme des Nations Unies pour l’environnement,” 1972. <https://www.unenvironment.org/fr>.
- [14] N. Unies, “Convention-cadre des nations unies sur les changements climatiques,” 1992. <https://unfccc.int/sites/default/files/convfr.pdf>.
- [15] “Protocole de Kyoto à la Convention-cadre des Nations Unies sur les changements climatiques,” 1998. <https://unfccc.int/resource/docs/convkp/kpfrench.pdf>.
- [16] “Conférence de paris de 2015 sur les changements climatiques,” 2015. <https://www.apc-paris.com/cop-21>.

- [17] P. Reuss, *Précis de neutronique*. EDP Sciences, 2003.
- [18] “Fission Yield Graph.” <https://www.ndc.jaea.go.jp/>.
- [19] “Fonctionnement d’un réacteur nucléaire,” 2015. <http://www.cea.fr/comprendre/Pages/energies/nucleaire/sur-fonctionnement-reacteur-nucleaire-electrogene.aspx>.
- [20] “L’essentiel sur l’uranium,” 2017. <https://www.cea.fr/comprendre/Pages/radioactivite/essentiel-sur-uranium.aspx>.
- [21] Y. Guérin and J.-L. t. Guillet, *Les combustibles nucléaires*. Editions LE MONITEUR. Une monographie de la Direction de l’énergie nucléaire, CEA.
- [22] “Lexique de l’autorité de sûreté nucléaire,” 2015. <https://www.asn.fr/Lexique/F>.
- [23] G. Rodriguez, “GIF Annual Report,” *ANNUAL REPORT*, no. 7527, p. 142, 2019.
- [24] DOENE (USDOE Office of Nuclear Energy, Science and Technology (NE)), “A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems,” Tech. Rep. GIF-002-00, 859029, 2002. [10.2172/859029](https://doi.org/10.2172/859029).
- [25] P. R. Jean Bussac, *Traité de neutronique : physique et calcul des réacteurs nucléaires, avec application aux réacteurs à eau pressurisée et aux réacteurs à neutrons rapides*. Paris : Hermann, 2003.
- [26] CEA, “Dossier sur le cycle du combustible nucléaire,” 2019. <https://www.cea.fr/Pages/domaines-recherche/energies/energie-nucleaire/dossier-cycle-du-combustible-nucleaire.aspx>.
- [27] S. David, “Future scenarios for fission based reactors,” *Nuclear Physics A*, vol. 751, pp. 429–441, 2005. Proceedings of the 22nd International Nuclear Physics Conference (Part 1), [10.1016/j.nuclphysa.2005.02.014](https://doi.org/10.1016/j.nuclphysa.2005.02.014).
- [28] V. Zerkin and B. Pritychenko, “The experimental nuclear reaction data (EXFOR) : Extended computer database and Web retrieval system,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 888, pp. 31–43, 2018. [10.1016/j.nima.2018.01.045](https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.01.045).
- [29] “JEFF-3.3.” www.oecd-nea.org/dbdata/jeff/jeff33/.
- [30] “ENDF/B-VIII.0 Evaluated Nuclear Data Library.” <https://www.nndc.bnl.gov/endl/b8.0/>.
- [31] “JENDL-4.0 : A New Library for Nuclear Science and Engineering,” *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 48, no. 1, pp. 1–30, 2011. [10.1080/18811248.2011.9711675](https://doi.org/10.1080/18811248.2011.9711675).
- [32] N. E. Holden, “A Short History of CSISRS,” p. 6, 2005.
- [33] M. Kerveno, *NACRE - le Noyau Au Coeur du RéactEur*. Habilitation à diriger des recherches, Université de Strasbourg, 2018.
- [34] “National Nuclear Data Center.” <https://www.nndc.bnl.gov/>.
- [35] “TENDL-2019 nuclear data library.” https://tendl.web.psi.ch/tendl_2019/tendl2019.

- [36] “WPEC Expert Group on the High Priority Request List (EGHPRL) for Nuclear Data.” https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_23118/wpec-expert-group-on-the-high-priority-request-list-eghprl-for-nuclear-data.
- [37] F. Michel-Sendis, E. Dupont, J. Gulliford, and C. Nordborg, “Overview of nuclear data activities at the OECD Nuclear Energy Agency,” (Proc. Int. Conf. NEMEA-6, Nuclear Measurements, Evaluations and Applications, Krakow, Poland), 2010. https://www.researchgate.net/publication/273131629_Overview_of_nuclear_data_activities_at_the_O
- [38] “The NEA High Priority Request List (HPRL) for Nuclear Data.” https://www.oecd-nea.org/jcms/c_12806/the-nea-high-priority-request-list-hprl-for-nuclear-data.
- [39] D. Smith, T. Fukahori, A. Koning, G. Manturov, R. McKnight, C. Nordborg, G. Rimpault, and H. Takano, “The OECD Nuclear Energy Agency Request List for Nuclear Data,” *AIP Conference Proceedings*, vol. 769, p. 545, June 2005. [10.1063/1.1945067](https://doi.org/10.1063/1.1945067).
- [40] A. J. M. Plompen, T. Fukahori, H. Henriksson, A. Ignatyuk, T. Iwasaki, G. Manturov, R. D. McKnight, G. Rimpault, and D. L. Smith, “The NEA High Priority Nuclear Data Request List for future needs,” in *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, pp. 765–768, EDP Sciences, 2007. [10.1051/ndata:07419](https://doi.org/10.1051/ndata:07419).
- [41] NEA, “International Evaluation Co-operation, Volume 26 : Uncertainty and Target Accuracy Assessment for Innovative Systems Using Recent Covariance Data Evaluations.” https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_14440/international-evaluation-co-operation-volume-26?details=true.
- [42] G. Palmiotti, M. Salvatores, G. Aliberti, M. Herman, S. Hoblit, R. McKnight, P. Obložinský, P. Talou, G. Hale, H. Hiruta, T. Kawano, C. Mattoon, G. Nobre, A. Palumbo, M. Pigni, M. Rising, W.-S. Yang, and A. Kahler, “Combined Use of Integral Experiments and Covariance Data,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 118, pp. 596–636, 2014. [10.1016/j.nds.2014.04.145](https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.04.145).
- [43] M. Salvatores, G. Palmiotti, G. Aliberti, P. Archier, C. De Saint Jean, E. Dupont, M. Herman, M. Ishikawa, T. Ivanova, E. Ivanov, S.-J. Kim, I. Kodeli, G. Manturov, R. McKnight, S. Pelloni, C. Perfetti, A. Plompen, B. Rearden, D. Rochman, K. Sugino, A. Trkov, W. Wang, H. Wu, and W.-S. Yang, “Methods and Issues for the Combined Use of Integral Experiments and Covariance Data : Results of a NEA International Collaborative Study,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 118, pp. 38–71, 2014. [10.1016/j.nds.2014.04.005](https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.04.005).
- [44] R. Capote, A. Trkov, M. Sin, M. Pigni, V. Pronyaev, J. Balibrea, D. Bernard, D. Cano-Ott, Y. Danon, A. Daskalakis, T. Goričanec, M. Herman, B. Kiedrowski, S. Kopecky, E. Mendoza, D. Neudecker, L. Leal, G. Noguere, P. Schillebeeckx, I. Sirakov, E. Soukhovitskii, I. Stetcu, and P. Talou, “IAEA CIELO Evaluation of Neutron-induced Reactions on ^{235}U and ^{238}U Targets,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 148, pp. 254–292, 2018. [10.1016/j.nds.2018.02.005](https://doi.org/10.1016/j.nds.2018.02.005).
- [45] A. Santamarina, D. Bernard, P. Leconte, and J.-F. Vidal, “Improvement of ^{238}U Inelastic Scattering Cross Section for an Accurate Calculation of Large Commercial Reactors,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 118, pp. 118–121, 2014. [10.1016/j.nds.2014.04.015](https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.04.015).

- [46] M. Kerveno, A. Bacquias, C. Borcea, P. Dessagne, J.-C. Drohé, N. Nankov, M. Nyman, A. Negret, A. Plompen, C. Rouki, G. Rudolf, M. Stanoiu, and J.-C. Thiry, “(n,xn g) reaction cross section measurements for (n,xn) reaction studies,” *EPJ Web of Conferences*, vol. 42, p. 01005, 2013. [10.1051/epjconf/20134201005](https://doi.org/10.1051/epjconf/20134201005).
- [47] M. Kerveno, A. Bacquias, C. Borcea, P. Dessagne, G. Henning, L. C. Mihailescu, A. Negret, M. Nyman, A. Olacel, A. J. M. Plompen, C. Rouki, G. Rudolf, and J. C. Thiry, “From gamma-emissions to (n,xn) cross sections of interest : The role of GAINS and GRAPhEME in nuclear reaction modeling,” *The European Physical Journal A*, vol. 51, no. 12, p. 167, 2015. [10.1140/epja/i2015-15167-y](https://doi.org/10.1140/epja/i2015-15167-y).
- [48] A. Daskalakis, R. Bahran, E. Blain, B. McDermott, S. Piela, Y. Danon, D. Barry, G. Leinweber, R. Block, M. Rapp, R. Capote, and A. Trkov, “Quasi-differential neutron scattering from ^{238}U from 0.5 to 20 MeV,” *Annals of Nuclear Energy*, vol. 73, pp. 455–464, 2014. [10.1016/j.anucene.2014.07.023](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.07.023).
- [49] W. R. Leo, *Techniques for nuclear and particle physics experiments*. Springer, corrected ed., 1992.
- [50] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*. Wiley, 4th ed., 2010.
- [51] M. Coste-Delclaux, C. M’Backé Diop, F. Malvagi, and A. t. Nicolas, *La neutronique*. Editions LE MONITEUR. Une monographie de la Direction de l’énergie nucléaire, CEA.
- [52] “National nuclear data center - brookhaven national laboratory.” www.nndc.bnl.gov/nudat2/chartNuc.
- [53] D. Bernard, *Évaluation et validation des données nucléaires pour la physique des réacteurs et du cycle*. Habilitation à diriger des recherches, Université d’Aix-Marseille, 2022.
- [54] G. Haouat, J. Lachkar, C. Lagrange, J. Jary, J. Sigaud, and Y. Patin, “Neutron Scattering Cross Sections for ^{232}Th , ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , and ^{242}Pu Between 0.6 and 3.4 MeV,” *Nuclear Science and Engineering*, vol. 81, no. 4, pp. 491–511, 1982. [10.13182/NSE82-A21439](https://doi.org/10.13182/NSE82-A21439).
- [55] D. Karamanis, S. Andriamonje, P. A. Assimakopoulos, G. Doukellis, D. A. Karademos, A. Karydas, M. Kokkoris, S. Kossionides, N. G. Nicolis, C. Papachristodoulou, C. T. Papadopoulos, N. Patronis, P. Pavlopoulos, G. Perdikakis, and R. Vlastou, “Neutron cross-section measurements in the Th–U cycle by the activation method,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 505, no. 1, pp. 381–384, 2003. [10.1016/S0168-9002\(03\)01102-1](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01102-1).
- [56] V. Méot, O. Roig, B. Laurent, P. Morel, J. Aupiais, O. Delaune, G. Haouat, and O. Bouland, “ $^{239}\text{Pu}(n,2n)^{238}\text{Pu}$ cross section measurement using a recoil method,” *Physical Review C*, vol. 103, no. 5, p. 054609. [10.1103/PhysRevC.103.054609](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.103.054609).
- [57] “n_{tof} - The neutron Time-of-Flight facility at CERN.” ntof-exp.web.cern.ch.
- [58] “Los Alamos Neutron Science Center.” lansce.lanl.gov/.

- [59] “GANIL/Spiral2 - NFS.” www.ganil-spiral2.eu/scientists/ganil-spiral-2-facilities/experimental-areas/nfs/.
- [60] F. team, “The JRC Neutron Time-of-Flight Facility,” 2013. ec.europa.eu/jrc/en/research-facility/linear-electron-accelerator-facility.
- [61] D. K. Olsen, G. L. Morgan, and J. W. McConnell, “Measurement of $^{238}\text{U}(n,n'\gamma)^{238}\text{U}^*$ cross sections,” *Conf. on Nuclear Cross Sections and Technology*, 1979. www.osti.gov/biblio/5936258.
- [62] F. Voss, S. Cierjacks, D. Erbe, and G. Schmatz, “unpublished,” *Kernforschungszentrum Karlsruhe Reports*, vol. N°2379, 1976.
- [63] L. A. Bernstein, J. A. Becker, P. E. Garrett, W. Younes, D. P. McNabb, D. E. Archer, C. A. McGrath, H. Chen, W. E. Ormand, M. A. Stoyer, R. O. Nelson, M. B. Chadwick, G. D. Johns, W. S. Wilburn, M. Devlin, D. M. Drake, and P. G. Young, “ $^{239}\text{Pu}(n, 2n)^{238}\text{Pu}$ cross section deduced using a combination of experiment and theory,” *Physical Review C*, vol. 65, p. 021601, 2002. [10.1103/PhysRevC.65.021601](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.65.021601).
- [64] L. Arnold, R. Baumann, E. Chambit, M. Filliger, C. Fuchs, C. Kieber, D. Klein, P. Medina, C. Parisel, M. Richer, C. Santos, and C. Weber, “TNT digital pulse processor,” in *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 53, p. 723, 2005. [10.1109/TNS.2006.873712](https://doi.org/10.1109/TNS.2006.873712).
- [65] M. Kerveno, J. C. Thiry, A. Bacquias, C. Borcea, P. Dessagne, J. C. Drohé, S. Goriely, S. Hilaire, E. Jericha, H. Karam, A. Negret, A. Pavlik, A. J. M. Plompen, P. Romain, C. Rouki, G. Rudolf, and M. Stanoiu, “Measurement of $^{235}\text{U}(n, n'\gamma)$ and $^{235}\text{U}(n, 2n\gamma)$ reaction cross sections,” *Physical Review C*, vol. 87, p. 024609, 2013. [10.1103/PhysRevC.87.024609](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.87.024609).
- [66] M. Kerveno, A. Bacquias, F. Belloni, C. Borcea, R. Capote, P. Dessagne, M. Dupuis, G. Henning, S. Hilaire, T. Kawano, N. Nankov, A. Negret, M. Nyman, E. Party, A. Plompen, P. Romain, C. Rouki, G. Rudolf, and M. Stanoiu, “ $(n, xn\gamma)$ cross sections on actinides versus reaction code calculations,” *EPJ Web of Conferences*, vol. 146, p. 11012, 2017. [10.1051/epjconf/201714611012](https://doi.org/10.1051/epjconf/201714611012).
- [67] G. Henning, A. Bacquias, C. Borcea, M. Boromiza, R. Capote, P. Dessagne, J. Drohé, M. Dupuis, S. Hilaire, T. Kawano, M. Kerveno, A. Negret, M. Nyman, A. Olacel, A. Plompen, P. Romain, G. Rudolf, and P. Scholtes, “MEASUREMENT OF $^{182,184,186}\text{W}(N, N'\gamma)$ CROSS SECTIONS AND WHAT WE CAN LEARN FROM IT,” *EPJ Web of Conferences*, vol. 247, p. 09003, 2021. [10.1051/epjconf/202124709003](https://doi.org/10.1051/epjconf/202124709003).
- [68] M. Kerveno, M. Dupuis, A. Bacquias, F. Belloni, D. Bernard, C. Borcea, M. Boromiza, R. Capote, C. De Saint Jean, P. Dessagne, J. C. Drohé, G. Henning, S. Hilaire, T. Kawano, P. Leconte, N. Nankov, A. Negret, M. Nyman, A. Olacel, A. J. M. Plompen, P. Romain, C. Rouki, G. Rudolf, M. Stanoiu, and R. Wynants, “Measurement of $^{238}\text{U}(n, n'\gamma)$ cross section data and their impact on reaction models,” *Physical Review C*, vol. 104, p. 044605, 2021. [10.1103/PhysRevC.104.044605](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.104.044605).

- [69] W. Mondelaers and P. Schillebeeckx, “GELINA, a neutron time-of-flight facility for high-resolution neutron data measurements,” *JRC35644*, vol. 11, no. 2, p. 7, 2006.
- [70] D. Bhattacharjee, R. Tiwari, B. Nayak, A. Tillu, D. Jayaprakash, L. Mishra, K. Mittal, D. Chakravarthy, L. Gantayet, E. Kharghar, and N. Mumbai, “DESIGN AND DEVELOPMENT OF A PIERCE ELECTRON GUN,” 2014. [10.1109/DEIV.2014.6961753](https://doi.org/10.1109/DEIV.2014.6961753).
- [71] D. Delacroix, J. Guerre, and P. Leblanc, *Guide pratique - Radionucléides & Radioprotection*, vol. 39. EDP Sciences and CEA, 2 ed., 2006.
- [72] A. Carlson, V. Pronyaev, R. Capote, G. Hale, Z.-P. Chen, I. Duran, F.-J. Hamsch, S. Kuniieda, W. Mannhart, B. Marcinkevicius, R. Nelson, D. Neudecker, G. Noguere, M. Paris, S. Simakov, P. Schillebeeckx, D. Smith, X. Tao, A. Trkov, A. Wallner, and W. Wang, “Evaluation of the Neutron Data Standards,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 148, pp. 143–188, 2018. [10.1016/j.nds.2018.02.002](https://doi.org/10.1016/j.nds.2018.02.002).
- [73] A. Carlson, V. Pronyaev, R. Capote, G. Hale, Z.-P. Chen, I. Duran, F.-J. Hamsch, S. Kuniieda, W. Mannhart, B. Marcinkevicius, R. Nelson, D. Neudecker, G. Noguere, M. Paris, S. Simakov, P. Schillebeeckx, D. Smith, X. Tao, A. Trkov, A. Wallner, and W. Wang, “Corrigendum to “evaluation of the neutron data standards” [nucl. data sheets 148, p. 143 (2018)],” *Nuclear Data Sheets*, vol. 163, pp. 280–281, 2020. [10.1016/j.nds.2019.12.008](https://doi.org/10.1016/j.nds.2019.12.008).
- [74] J.-C. Thiry, *Measurement of (n,xng) reaction cross sections of interest for the Generation IV reactors*. Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, 2010. Dirigée par Philippe Dessagne, [2010STRA6144](https://doi.org/10.1016/j.nds.2019.12.008).
- [75] S. Agostinelli and *et al.*, “Geant4—a simulation toolkit,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 506, no. 3, pp. 250–303, 2003. [10.1016/S0168-9002\(03\)01368-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01368-8).
- [76] R. Brun and F. Rademakers, “ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 389, pp. 81–86, 1997. root.cern/doc/master/index.
- [77] E. Party, *Etude des réactions (n, xn) pour les noyaux fertiles / fissiles du cycle du combustible innovant au Thorium*. Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, 2019. Dirigée par Philippe Dessagne, [2019STRAE020](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)01552-8).
- [78] “Notes on the use of gf3 (html).” radware.phy.ornl.gov/gf3.
- [79] K. S. Krane, *Introductory Nuclear Physics*. John Wiley & Sons, 1991.
- [80] C. R. Brune, “Gaussian quadrature applied to experimental γ -ray yields,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 493, no. 1, pp. 106–110, 2002. [0.1016/S0168-9002\(02\)01552-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)01552-8).
- [81] H. Olliver, T. Glasmacher, and A. E. Stuchbery, “Angular distributions of γ rays with intermediate-energy beams,” *Physical Review C*, vol. 68, no. 4, p. 044312, 2003. [10.1103/PhysRevC.68.044312](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.68.044312).

- [82] H. J. ROSE and D. M. BRINK, “Angular Distributions of Gamma Rays in Terms of Phase-Defined Reduced Matrix Elements,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 39, no. 2, pp. 306–347, 1967. [10.1103/RevModPhys.39.306](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.39.306).
- [83] M. Kerveno, G. Henning, C. Borcea, P. Dessagne, M. Dupuis, S. Hilaire, A. Negret, M. Nyman, A. Olacel, E. Party, and A. Plompen, “How to produce accurate inelastic cross sections from an indirect measurement method?,” *EPJ Nuclear Sciences & Technologies*, vol. 4, p. 23, 2018. [10.1051/epjn/2018020](https://doi.org/10.1051/epjn/2018020).
- [84] “Python Software Foundation. Python Language Reference, Version 3.6.9.” [/www.python.org/](http://www.python.org/).
- [85] C. R. Harris, K. J. Millman, S. J. van der W., R. Gommers, P. Virtanen, D. Cournapeau, E. Wieser, J. Taylor, S. Berg, N. J. Smith, R. Kern, M. Picus, S. Hoyer, M. H. van K., M. Brett, A. Haldane, J. del Río, M. Wiebe, P. Peterson, P. Gérard-Marchant, K. Sheppard, T. Reddy, W. Weckesser, H. Abbasi, C. Gohlke, and T. E. Oliphant, “Array programming with NumPy,” *Nature*, vol. 585, no. 7825, pp. 357–362, 2020. [10.1038/s41586-020-2649-2](https://doi.org/10.1038/s41586-020-2649-2).
- [86] “Matplotlib : Python plotting — Matplotlib 3.4.2 documentation.” matplotlib.org/.
- [87] B. Singh, J. K. Tuli, and E. Browne, “Nuclear Data Sheets for A = 233,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 170, pp. 499–705, 2020. [10.1016/j.nds.2020.11.002](https://doi.org/10.1016/j.nds.2020.11.002).
- [88] L. Arnold, R. Baumann, E. Chambit, M. Filliger, C. Fuchs, C. Kieber, D. Klein, P. Medina, C. Parisel, M. Richer, C. Santos, and C. Weber, “TNT digital pulse processor,” in *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 53, p. 723, 2005. [10.1109/TNS.2006.873712](https://doi.org/10.1109/TNS.2006.873712).
- [89] A. J. Koning, D. Rochman, J. C. Sublet, N. Dzysiuk, M. Fleming, and S. van der Marck, “TENDL : Complete Nuclear Data Library for Innovative Nuclear Science and Technology,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 155, pp. 1–55, 2019. [10.1016/j.nds.2019.01.002](https://doi.org/10.1016/j.nds.2019.01.002).
- [90] S. Lukić, *Mesure de sections efficaces de réaction (n,xn) par spectroscopie γ prompte auprès d’un faisceau à très haut flux instantané*. Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur (Strasbourg), 2004. Dirigée par Gérard Rudolf et Stevan Jokić, [2004STR13158](https://doi.org/10.1004STR13158).
- [91] H. Karam, *Mise au point de la mesure de sections efficaces de réactions (n,XN) par spectroscopie γ prompte sur des cibles très radioactives*. Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, 2009. Dirigée par Gérard Rudolf, [2009STRA6014](https://doi.org/10.1009STRA6014).
- [92] J.-C. Thiry, *Measurement of (n,xng) reaction cross sections of interest for the Generation IV reactors*. Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, 2010. Dirigée par Philippe Dessagne, [2010STRA6144](https://doi.org/10.1010STRA6144).
- [93] V. T. Jordanov, G. F. Knoll, A. C. Huber, and J. A. Pantazis, “Digital techniques for real-time pulse shaping in radiation measurements,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 353, no. 1, pp. 261–264, 1994. [10.1016/0168-9002\(94\)91652-7](https://doi.org/10.1016/0168-9002(94)91652-7).
- [94] “SCK CEN.”

- [95] E. Browne and J. K. Tuli, “Nuclear Data Sheets for $A = 229$,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 109, no. 11, pp. 2657–2724, 2008.
- [96] J. Tuli, “Evaluated nuclear structure data file,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 369, no. 2-3, pp. 506–510, 1996. [10.1016/S0168-9002\(96\)80040-4](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(96)80040-4).
- [97] E. Browne and J. K. Tuli, “Nuclear Data Sheets for $A = 229$,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 109, no. 11, pp. 2657–2724, 2008. [10.1016/j.nds.2008.10.001](https://doi.org/10.1016/j.nds.2008.10.001).
- [98] C. W. Reich, R. G. Helmer, J. D. Baker, and R. J. Gehrke, “Emission probabilities and energies of γ -ray transitions from the decay of ^{233}u ,” *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 35, no. 3, 1984. [10.1016/0020-708X\(84\)90232-1](https://doi.org/10.1016/0020-708X(84)90232-1).
- [99] V. Barci, G. Ardisson, G. Barci-Funel, B. Weiss, O. El Samad, and R. K. Sheline, “Nuclear structure ^{229}th from γ -ray spectroscopy study of ^{233}u α -particle decay,” *Physical Review C*, vol. 68, no. 3, p. 034329, 2003. [10.1103/PhysRevC.68.034329](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.68.034329).
- [100] N. Bohr, “Neutron capture and nuclear constitution,” *Nature*, vol. 137, no. 3461, pp. 344–348, 1936. [10.1038/137344a0](https://doi.org/10.1038/137344a0).
- [101] A. M. Lane and R. G. Thomas, “R-matrix theory of nuclear reactions,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 30, no. 2, pp. 257–353, 1958. [10.1103/RevModPhys.30.257](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.30.257).
- [102] E. Vogt, “Theory of low energy nuclear reactions,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 34, no. 4, pp. 723–747, 1962. [10.1103/RevModPhys.34.723](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.34.723).
- [103] B. Morillon and P. Romain, “Dispersive and global spherical optical model with a local energy approximation for the scattering of neutrons by nuclei from 1 keV to 200 MeV,” *Physical Review C*, vol. 70, no. 1, p. 014601, 2004. [10.1103/PhysRevC.70.014601](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.70.014601).
- [104] A. J. Koning and J. P. Delaroche, “Local and global nucleon optical models from 1 keV to 200 MeV,” *Nuclear Physics A*, vol. 713, no. 3, pp. 231–310, 2003. [10.1016/S0375-9474\(02\)01321-0](https://doi.org/10.1016/S0375-9474(02)01321-0).
- [105] E. Soukhovitskii, S. Chiba, J. Lee, O. Iwamoto, and T. Fukahori, “Global coupled-channel optical potential for nucleon–actinide interaction from 1 keV to 200 MeV,” *Journal of Physics G : Nuclear and Particle Physics*, vol. 30, no. 7, p. 905, 2004. [10.1088/0954-3899/30/7/007](https://doi.org/10.1088/0954-3899/30/7/007).
- [106] C. Mahaux, H. Ngô, and G. R. Satchler, “Causality and the threshold anomaly of the nucleus-nucleus potential,” *Nuclear Physics A*, vol. 449, no. 2, pp. 354–394, 1986. [10.1016/0375-9474\(86\)90009-6](https://doi.org/10.1016/0375-9474(86)90009-6).
- [107] R. Capote, M. Herman, P. Obložinský, P. Young, S. Goriely, T. Belgya, A. Ignatyuk, A. Koning, S. Hilaire, V. Plujko, M. Avrigeanu, O. Bersillon, M. Chadwick, T. Fukahori, Z. Ge, Y. Han, S. Kailas, J. Kopecky, V. Maslov, G. Reffo, M. Sin, E. Soukhovitskii, and P. Talou, “RIPL – reference input parameter library for calculation of nuclear reactions and nuclear data evaluations,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 110, no. 12, pp. 3107–3214, 2009. [10.1016/j.nds.2009.10.004](https://doi.org/10.1016/j.nds.2009.10.004).

- [108] M. Dupuis, T. Kawano, J.-P. Delaroche, and E. Bauge, “Microscopic model approach to (n , xn) pre-equilibrium reactions for medium-energy neutrons,” *Physical Review C*, vol. 83, no. 1, p. 014602, 2011. [10.1103/PhysRevC.83.014602](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.83.014602).
- [109] A. J. Koning and M. C. Duijvestijn, “A global pre-equilibrium analysis from 7 to 200 MeV based on the optical model potential,” *Nuclear Physics A*, vol. 744, pp. 15–76, 2004. [10.1016/j.nuclphysa.2004.08.013](https://doi.org/10.1016/j.nuclphysa.2004.08.013).
- [110] H. Gruppelaar, “IAEA advisory group meeting on basic and applied problems of nuclear level densities,” no. BNL-NCS-51694; CONF-830465-, 1983. <https://www.osti.gov/biblio/5090392>.
- [111] J. P. Blaizot and D. Gogny, “Theory of elementary excitations in closed shell nuclei,” *Nuclear Physics A*, vol. 284, no. 3, pp. 429–460, 1977. [10.1016/0375-9474\(77\)90395-5](https://doi.org/10.1016/0375-9474(77)90395-5).
- [112] J.-P. Jeukenne, A. Lejeune, and C. Mahaux, “Optical-model potential in finite nuclei from Reid’s hard core interaction,” *Physical Review C*, vol. 16, no. 1, pp. 80–96, 1977. [10.1103/PhysRevC.16.80](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.16.80).
- [113] E. Bauge, J. P. Delaroche, and M. Girod, “Lane-consistent, semimicroscopic nucleon-nucleus optical model,” *Physical Review C*, vol. 63, no. 2, p. 024607, 2001. [10.1103/PhysRevC.63.024607](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.63.024607).
- [114] T. Kawano, “CoH3 : The Coupled-Channels and Hauser-Feshbach Code,” *Springer Proc. Phys.*, vol. 254, pp. 27–34, 2020. [10.1007/978-3-030-58082-7_3](https://doi.org/10.1007/978-3-030-58082-7_3).
- [115] W. Hauser and H. Feshbach, “The inelastic scattering of neutrons,” *Physical Review*, vol. 87, no. 2, pp. 366–373, 1952. [10.1103/PhysRev.87.366](https://doi.org/10.1103/PhysRev.87.366).
- [116] T. Kawano, R. Capote, S. Hilaire, and P. Chau Huu-Tai, “Statistical hauser-feshbach theory with width-fluctuation correction including direct reaction channels for neutron-induced reactions at low energies,” *Physical Review C*, vol. 94, p. 014612, 2016. [10.1103/PhysRevC.94.014612](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.94.014612).
- [117] P. A. Moldauer, “Evaluation of the fluctuation enhancement factor,” *Physical Review C*, vol. 14, no. 2, pp. 764–766, 1976. [10.1103/PhysRevC.14.764](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.14.764).
- [118] A. Gilbert and A. G. W. Cameron, “A composite nuclear-level density formula with shell corrections,” *Canadian Journal of Physics*, vol. 43, no. 8, pp. 1446–1496, 1965. [10.1139/p65-139](https://doi.org/10.1139/p65-139).
- [119] J. H. D. Jensen and J. M. Luttinger, “Angular Momentum Distributions in the Thomas-Fermi Model,” *Physical Review*, vol. 86, no. 6, pp. 907–910, 1952. [10.1103/PhysRev.86.907](https://doi.org/10.1103/PhysRev.86.907).
- [120] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, “Theory of Superconductivity,” *Physical Review*, vol. 108, no. 5, pp. 1175–1204, 1957. [10.1103/PhysRev.108.1175](https://doi.org/10.1103/PhysRev.108.1175).
- [121] T. Ericson, “The statistical model and nuclear level densities,” *Advances in Physics*, vol. 9, no. 36, pp. 425–511, 1960. [10.1080/00018736000101239](https://doi.org/10.1080/00018736000101239).

- [122] S. Hilaire and S. Goriely, “Global microscopic nuclear level densities within the hfb plus combinatorial method for practical applications,” *Nuclear Physics A*, vol. 779, pp. 63–81, 2006. [10.1016/j.nuclphysa.2006.08.014](https://doi.org/10.1016/j.nuclphysa.2006.08.014).
- [123] D. L. Hill and J. A. Wheeler, “Nuclear Constitution and the Interpretation of Fission Phenomena,” *Physical Review*, vol. 89, no. 5, pp. 1102–1145, 1953. [10.1103/PhysRev.89.1102](https://doi.org/10.1103/PhysRev.89.1102).
- [124] S. Bjørnholm and J. E. Lynn, “The double-humped fission barrier,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 52, no. 4, pp. 725–931, 1980. [10.1103/RevModPhys.52.725](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.52.725).
- [125] M. Lopez Jimenez, B. Morillon, and P. Romain, “Triple-humped fission barrier model for a new ^{238}U neutron cross-section evaluation and first validations,” *Annals of Nuclear Energy (Oxford)*, vol. 32, no. 2, pp. 195–213, 2005. [10.1016/j.anucene.2004.08.005](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2004.08.005).
- [126] D. G. Gardner, “Neutron Radiative Capture,” *OECD/NEA Series on Neutron Physics and Nuclear Data in Science and Technology*, p. 62, 1984.
- [127] J. Raynal, “Coupled channel calculations and computer code ECIS,” 1988. CEA-CONF-9461 INIS Reference Number : 20004954, [RN:20004954](https://doi.org/10.1016/j.nuclphysa.2000.08.005).
- [128] R. Capote, E. S. Soukhovitskii, J. M. Quesada, and S. Chiba, “Is a global coupled-channel dispersive optical model potential for actinides feasible?,” *Physical Review C*, vol. 72, no. 6, 2005. [10.1103/PhysRevC.72.064610](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.72.064610).
- [129] R. Capote, S. Chiba, E. Soukhovitskii, Q. M. J., and E. Bauge, “A global dispersive coupled-channel optical model potential for actinides,” *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 45, pp. 333–340, 2008. [10.1080/18811248.2008.9711442](https://doi.org/10.1080/18811248.2008.9711442).
- [130] M. Sin, R. Capote, M. W. Herman, and A. Trkov, “Modelling neutron-induced reactions on $^{232}\text{--}^{237}\text{U}$ from 10 keV up to 30 MeV,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 139, pp. 138–170, 2017. [10.1016/j.nds.2017.01.003](https://doi.org/10.1016/j.nds.2017.01.003).
- [131] P. Tamagno, *De la phénoménologie à la microscopie, une nouvelle approche pour l'évaluation des sections efficaces de fission*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 2015. Dirigée par Mourad Aiche [2015BORD0123](https://doi.org/10.1016/j.nds.2017.01.003).
- [132] C. Châtel, *Section efficace de fission du ^{242}Pu : progrès théoriques et expérimentaux*. Thèse de doctorat, Université d’Aix-Marseille, 2021. Dirigée par Olivier Bouland [2021AIXM0416](https://doi.org/10.1016/j.nds.2017.01.003).
- [133] S. Mughabghab, *Atlas of Neutron Resonance - Resonance Parameters and Thermal Cross Sections Z=1-100*. Oxford, UK : Elsevier, 5th ed., 2006.
- [134] M. Herman, R. Capote, B. Carlson, P. Obložinský, M. Sin, A. Trkov, H. Wienke, and V. Zerkin, “EMPIRE : Nuclear Reaction Model Code System for Data Evaluation,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 108, p. 2655, 2007.
- [135] A. Santamarina, P. Blaise, N. Santos, C. Vaglio-Gaudard, and C. De Saint Jean, “NUCLEAR DATA UNCERTAINTY PROPAGATION ON POWER MAPS IN LARGE LWR CORES,” (Proc. Int. Conf. PHYSOR2014, Kyoto, JAPAN), 2014. [26679495](https://doi.org/10.1016/j.nds.2017.01.003).

- [136] E. Brun, F. Damian, C. M. Diop, E. Dumonteil, F. X. Hugot, C. Jouanne, Y. K. Lee, F. Malvagi, A. Mazzolo, O. Petit, J. C. Trama, T. Visonneau, and A. Zoia, “TRIPOLI-4@, CEA, EDF and AREVA reference Monte Carlo code,” *Annals of Nuclear Energy*, vol. 82, pp. 151–160, Aug. 2015. [10.1016/j.anucene.2014.07.053](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.07.053).
- [137] J. Briggs, “International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project,” *OECD/Nucl. Sci.*, 2021.
- [138] P. Leconte, J. Vidal, and N. Kerkar, “Validation of the jeff3.1.1 library for the calculation of the physical measurements in the n4 ho0z-b1 pwr using the continuous energy monte carlo code tripoli-4,” (Proc. Int. Conf. PHYSOR2010, Pittsburgh, USA), American Nuclear Society, 2010. [42004341](https://doi.org/10.1016/j.nds.2010.04.114).
- [139] C. De Saint Jean, B. Habert, O. Litaize, G. Noguere, and C. Suteau, “Status of CONRAD, a nuclear reaction analysis tool,” in *ND2007*, p. 068, EDP Sciences, 2007. [10.1051/ndata:07704](https://doi.org/10.1051/ndata:07704).
- [140] P. Archier, C. De Saint Jean, O. Litaize, G. Noguère, L. Berge, E. Privas, and P. Tamagno, “CONRAD evaluation code : Development status and perspectives,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 118, pp. 488–490, 2014. [10.1016/j.nds.2014.04.114](https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.04.114).
- [141] C. De Saint Jean, P. Tamagno, P. Archier, and G. Noguere, “CONRAD – a code for nuclear data modeling and evaluation,” *EPJ Nuclear Sciences & Technologies*, vol. 7, p. 10, 2021. [10.1051/epjn/2021011](https://doi.org/10.1051/epjn/2021011).
- [142] P. Archier, *Contribution à l'amélioration des données nucléaires neutroniques du sodium pour le calcul des réacteurs de génération IV*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2011. Dirigée par Elsa Merle et Jean Tomasi, [2011GRENI065](https://doi.org/10.1016/j.nds.2012.11.002).
- [143] A. J. Koning and D. Rochman, “Modern nuclear data evaluation with the TALYS code system,” *Nuclear Data Sheets*, vol. 113, no. 12, pp. 2841–2934, 2012. [10.1016/j.nds.2012.11.002](https://doi.org/10.1016/j.nds.2012.11.002).
- [144] T. Bayes and Price, “An essay towards solving a problem in the doctrine of chances. By the late Rev. Mr. Bayes, F. R. S. communicated by Mr. Price, in a letter to John Canton,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, vol. 53, pp. 370–418, 1763. [10.1098/rstl.1763.0053](https://doi.org/10.1098/rstl.1763.0053).
- [145] A. I. Dale, “Chapter 15 - thomas bayes, an essay towards solving a problem in the doctrine of chances (1764),” in *Landmark Writings in Western Mathematics 1640-1940* (I. Grattan-Guinness, R. Cooke, L. Corry, P. Crépel, and N. Guicciardini, eds.), Elsevier Science, 2005. [10.1016/B978-044450871-3/50096-6](https://doi.org/10.1016/B978-044450871-3/50096-6).
- [146] A. Papoulis and U. Pillai, “Probability, random variables, and stochastic processes, fourth edition,” *McGraw-Hill series*, 2002.
- [147] F. H. Fröhner, “Assigning uncertainties to scientific data,” *Nuclear Science and Engineering*, vol. 126, no. 1, pp. 1–18, 1997. [10.13182/NSE97-A24453](https://doi.org/10.13182/NSE97-A24453).

- [148] C. P. Robert and G. Casella, *Monte Carlo Statistical Methods*. Springer Texts in Statistics, 2004. [10.1007/978-1-4757-4145-2](https://doi.org/10.1007/978-1-4757-4145-2).
- [149] B. Habert, *Estimation des incertitudes dans l'évaluation des sections efficaces de réactions nucléaires*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2009. Dirigée par Daniel Heuer et Cyrille De Saint Jean, [2009INPG0128](https://doi.org/10.1007/978-1-4757-4145-2).
- [150] R. Capote and D. L. Smith, "An investigation of the performance of the unified monte carlo method of neutron cross section data evaluation," *Nuclear Data Sheets*, vol. 109, no. 12, pp. 2768–2773, 2008. [10.1016/j.nds.2008.11.007](https://doi.org/10.1016/j.nds.2008.11.007).
- [151] E. Bauge and P. Dossantos-Uzarralde, "Evaluation of the Covariance Matrix of 239Pu Neutronic Cross Sections in the Continuum Using the Backward-forward Monte-Carlo Method," *Journal of the Korean Physical Society*, vol. 59, no. 2, pp. 1218–1223, 2011. [10.3938/jkps.59.1218](https://doi.org/10.3938/jkps.59.1218).
- [152] T. Kawano, K. M. Hanson, S. Frankle, P. Talou, M. B. Chadwick, and R. C. Little, "Evaluation and Propagation of the 239Pu Fission Cross-Section Uncertainties Using a Monte Carlo Technique," *Nuclear Science and Engineering*, vol. 153, no. 1, pp. 1–7, 2006. [10.13182/NSE06-A2589](https://doi.org/10.13182/NSE06-A2589).
- [153] R. Capote, D. Smith, A. Trkov, and M. Meghzifene, "A new formulation of the unified monte carlo approach (umc-b) and cross-section evaluation for the dosimetry reaction 55 mn(n, γ) 56 mn," *Journal of ASTM International*, vol. 9, p. 104115, 2012. [10.1520/JAI104115](https://doi.org/10.1520/JAI104115).
- [154] E. Privas, *Contribution à l'évaluation des incertitudes sur les sections efficaces neutroniques, pour les réacteurs à neutrons rapides*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2015. Dirigée par Elsa Merle et Cyrille De Saint Jean, [2015GREAI109](https://doi.org/10.1007/978-1-4757-4145-2).
- [155] A. J. Koning, "Bayesian Monte Carlo Method for Nuclear Data Evaluation," *Nuclear Data Sheets*, vol. 123, pp. 207–213, 2015. [10.1016/j.nds.2014.12.036](https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.12.036).
- [156] C. De Saint Jean, P. Archier, E. Privas, and G. Noguere, "On the use of Bayesian Monte-Carlo in evaluation of nuclear data," *EPJ Web of Conferences*, vol. 146, p. 02007, 2017. [10.1051/epjconf/201714602007](https://doi.org/10.1051/epjconf/201714602007).
- [157] C. De Saint Jean, P. Archier, E. Privas, G. Noguère, B. Habert, and P. Tamagno, "Evaluation of Neutron-induced Cross Sections and their Related Covariances with Physical Constraints," *Nuclear Data Sheets*, vol. 148, pp. 383–419, 2018. [10.1016/j.nds.2018.02.010](https://doi.org/10.1016/j.nds.2018.02.010).
- [158] N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, A. H. Teller, and E. Teller, "Equation of State Calculations by Fast Computing Machines," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 21, no. 6, pp. 1087–1092, 1935. [10.1063/1.1699114](https://doi.org/10.1063/1.1699114).
- [159] W. K. Hastings, "Monte Carlo sampling methods using Markov chains and their applications," *Biometrika*, vol. 57, pp. 97–109, 04 1970. [10.1093/biomet/57.1.97](https://doi.org/10.1093/biomet/57.1.97).
- [160] C. J. Geyer, "Practical Markov Chain Monte Carlo," *Statistical Science*, vol. 7, no. 4, pp. 473–483, 1992. [10.1214/ss/1177011137](https://doi.org/10.1214/ss/1177011137).

- [161] Tamagno, Pierre, “Conservative covariance for general-purpose nuclear data evaluation,” *Eur. Phys. J. A*, vol. 57, no. 2, p. 61, 2021. [10.1140/epja/s10050-021-00367-1](https://doi.org/10.1140/epja/s10050-021-00367-1).
- [162] C. Morariu, *Modelisation of the fission cross section*. Thèse de doctorat, University of Bucarest, 2012. Dirigée par Anabella Tudora et Olivier Sérot tel-01858756.
- [163] B. Carniol, D. Etasse, C. Fontbonne, J. M. Fontbonne, J. Harang, J. Hommet, H. Plard, J. Poincheval, T. Chaventré, and D. Cussol, “Fast Acquisition System for nuclEAR Research.” <http://faster.in2p3.fr/>.
- [164] IRSN, “Fiche radionucléide - plutonium et environnement.” https://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/Documents/environnement/Plutonium_Pu239_v2.pdf.
- [165] L. Bernstein and al., “Measurement of Several $^{239}\text{Pu}(n, n')$ Partial γ -ray Cross Sections for $x \leq 3$ using GEANIE at LANSCE/WNR,” *Lawrence Livermore National Laboratory*, 2000.
- [166] E. Browne and J. K. Tuli, “Nucl. data sheets 122,” *ENSDF*, vol. 293, 2014. www.nndc.bnl.gov/nudat2/getdataset.jsp?nucleus=239PU&unc=nds.
- [167] R. B. Firestone, *Table of Isotopes*, vol. 2. New York, USA : John Wiley and Sons, INC, eighth ed., 1996.
- [168] N. J. A. E. Agency, “Graph of fission product yields.” www.ndc.jaea.go.jp/.
- [169] O. Litaize, O. Serot, and L. Berge, “Fission modelling with FIFRELIN,” *The European Physical Journal A*, vol. 51, no. 12, p. 177, 2015. [10.1140/epja/i2015-15177-9](https://doi.org/10.1140/epja/i2015-15177-9).
- [170] D. Regnier, *Contributions à l'étude des gammas prompts de fission*. Thèse de doctorat, Université de Grenoble, 2013. Dirigée par Olivier Sérot, [2013GRENI065](https://tel.archives-ouvertes.fr/2013GRENI065).
- [171] B. v2.3S, “Conversion coefficient calculator.” <http://bricc.anu.edu.au/>.

Mesure, modélisation et évaluation de sections efficaces à seuil ($n, n'\gamma$) d'intérêt pour les applications de l'énergie nucléaire

Résumé

Dans le contexte du développement des réacteurs de génération IV, des données nucléaires précises sont requises. Dans ce travail de thèse, on s'intéresse en particulier à la section efficace de diffusion inélastique (n, n') pour les noyaux d' ^{233}U et d' ^{238}U . L'analyse des données de GRAPHEME, dispositif combinant les méthodes de la spectroscopie- γ prompte et du temps de vol, ont permis d'obtenir, pour la première fois, 12 sections efficaces $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$. Une modélisation des sections efficaces de ces deux isotopes (^{233}U et ^{238}U) a été réalisée avec le code de réaction nucléaire TALYS. Dans le cas de ^{238}U , l'implémentation de nouveaux modèles permet un meilleur accord calcul/mesure pour les sections efficaces ($n, n'\gamma$). Il a été montré cependant que cela n'influe pas sur la section efficace

(n, n'). Enfin, une évaluation des incertitudes des sections efficaces de réaction pour ^{238}U menée avec CONRAD compare différentes méthodes afin de propager les incertitudes expérimentales aux paramètres des modèles via l'inférence Bayésienne.

Mots clefs : Diffusion inélastique, section efficace, ($n, n'\gamma$), spectroscopie- γ prompte, temps de vol, GRAPHEME, modélisation, TALYS, évaluation, CONRAD, incertitudes, inférence Bayésienne.

Résumé en anglais

In the context of the development of generation IV nuclear reactors, precise nuclear data are needed. In this work, we study in particular inelastic scattering cross section for ^{233}U and ^{238}U nuclei. From the analysis of data from GRAPHEME, an experimental device combining prompt γ -spectroscopy and time of flight, we obtained for the first time 12 $^{233}\text{U}(n, n'\gamma)$ reaction cross sections. Cross sections modelling has been performed for both isotopes (^{233}U et ^{238}U) with the nuclear reaction code TALYS. In the ^{238}U case, the implementation of new model in the code highlighted better agreement calculation/experiment for ($n, n'\gamma$) reaction cross sections. Despite this result, no change in the total inelastic scattering cross section has been seen. Finally, a cross sections uncertainties evaluation has been done with CONRAD, comparing different methods of propagating experimental uncertainties to model parameters via the Bayesian inference.

Keywords: Inelastic scattering, cross section, ($n, n'\gamma$), prompt γ -spectroscopy, time of flight, GRAPHEME, modelling, TALYS, evaluation, CONRAD, uncertainties, Bayesian inference.