



HAL
open science

Mesures de rendements isobariques et isotopiques des produits de fission lourds sur le spectromètre de masse LOHENGRIN

Adeline Bail

► **To cite this version:**

Adeline Bail. Mesures de rendements isobariques et isotopiques des produits de fission lourds sur le spectromètre de masse LOHENGRIN. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2009. Français. NNT : . tel-00410261

HAL Id: tel-00410261

<https://theses.hal.science/tel-00410261>

Submitted on 19 Aug 2009

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.

UNIVERSITÉ BORDEAUX I

École doctorale
ASTROPHYSIQUE & PHYSIQUE CORPUSCULAIRE

THÈSE DE DOCTORAT

présentée par

ADELINE BAIL

**MESURES DE RENDEMENTS
ISOBARIQUES
ET ISOTOPIQUES
DES PRODUITS DE FISSION LOURDS
SUR LE SPECTROMÈTRE DE MASSE
LOHENGRIN**

CEA Cadarache DEN/DER/SPRC/LEPh

Le 27 mai 2009

| | |
|--------------------|-------------|
| Président du jury | P. MORETTO |
| Rapporteur | R. BRISSOT |
| Rapporteur | C. WAGEMANS |
| Directeur de thèse | G. BARREAU |
| Encadrant de thèse | O. SÉROT |
| Examineur | B. HAAS |
| Examineur | U. KÖSTER |

A ma famille...

*“La gloire de Dieu, c’est de cacher les choses ; la gloire des rois,
c’est de sonder les choses.”*

La Bible, Pro. 25 :2

Remerciements

De nombreuses personnes ont contribué à la réalisation de ce travail, qui sans elles n'aurait jamais pu voir le jour.

C'est pourquoi je voudrais tout d'abord remercier les responsables du spectromètre Lohengrin, l'instrument sur lequel ont été faites toutes les mesures présentées dans cette thèse.

Merci à Ulli Köster, Herbert Faust et Thomas Materna pour leurs aides, disponibilités et précieux conseils.

Un grand merci également à Norbert Laurens pour sa patience et sa bonne humeur.

Merci à Paolo Mutti pour le temps qu'il a passé à nous aider.

Je voudrais chaleureusement remercier l'équipe de Saclay de s'être si souvent déplacée pour venir nous aider au cours des différentes expériences. Merci pour toutes ces heures, de jour comme de nuit, en semaine ou en week-end...

Merci à Alain Letourneau, Stefano Panebianco, Emmeric Dupont et Franco Michel-Sendis. Merci pour tout votre soutien...

Merci à Ludovic Mathieu, pour son temps, son aide, et tous ses conseils.

Je remercie également Gérard Barreau, mon directeur de thèse, ainsi que tous les membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail et pour leurs conseils. Plus particulièrement merci à Philippe Moretto pour avoir accepté de présider le jury de soutenance, ainsi qu'à Roger Brissot et Cyril Wagemans qui ont si gentilement accepté d'être rapporteurs.

Merci à Jean-Michel Ruggieri de m'avoir accueillie dans son laboratoire, et à tous les membres du LEPH qui m'ont soutenue et supportée jusqu'à la fin.

Un merci particulier à Olivier Litaize, pour sa gentillesse, sa bonne humeur et sa constante disponibilité.

Enfin, un grand merci à Olivier Sérot, sans qui cette thèse n'aurait probablement pas été achevée. Pour sa patience, son optimisme, ses encouragements, sa gentillesse et tous ses précieux conseils...

Puis surtout, merci à ma famille, qui a toujours été là et qui a su, inconditionnellement, me soutenir jusqu'au bout.

Merci à Mishaël, pour tout ce qu'il a fait...

Table des matières

| | |
|--|-----------|
| Introduction | 1 |
| 1 Motivations | 3 |
| 1.1 Importance des mesures de rendements de fission | 3 |
| 1.2 Les différentes bases de données | 6 |
| 1.3 Le spectromètre Lohengrin et les mesures de rendements | 10 |
| 2 La fission nucléaire, état de l'art | 13 |
| 2.1 Rappels sur quelques termes de fission | 13 |
| 2.2 Modèles de fission | 15 |
| 2.2.1 Modèle de la goutte liquide | 15 |
| 2.2.2 Modèle de Strutinsky | 17 |
| 2.2.3 "Finite range liquid-drop model" | 19 |
| 2.2.4 Modèle de Brosa | 21 |
| 2.2.5 Modèle de Wilkins | 22 |
| 2.2.6 Modèle de Bruyères-le-Châtel | 25 |
| 2.2.7 Modèle semi-empirique de Wahl | 26 |
| 2.3 Méthode de mesures de rendements | 29 |
| 2.3.1 Mesures de radiochimie | 29 |
| 2.3.2 Mesures par activation | 29 |
| 2.3.3 Mesures par chambre à fission | 29 |
| 2.3.4 Mesures par spectrométrie de masse | 31 |
| 2.3.5 Mesures de fission induite par cinématique inverse | 32 |
| 3 Dispositif expérimental | 33 |
| 3.1 L'Institut Laue-Langevin | 33 |
| 3.2 Les cibles | 33 |
| 3.2.1 Introduction | 33 |
| 3.2.2 Fabrication de cibles d'Uranium | 34 |
| 3.2.2.1 La matière première | 34 |
| 3.2.2.2 La méthode d'électrodéposition | 36 |
| 3.2.2.3 La méthode de peinture | 37 |
| 3.2.3 Caractéristiques des cibles utilisées pour les différentes expériences | 37 |
| 3.3 Le spectromètre de masse Lohengrin | 38 |
| 3.3.1 Principe de séparation | 39 |
| 3.3.2 Caractéristiques techniques | 40 |
| 3.3.3 La fission nucléaire et le spectromètre Lohengrin | 41 |
| 3.3.4 Les différents domaines de physique étudiés sur le Lohengrin | 42 |
| 3.4 La mesure des rendements en masse | 43 |
| 3.4.1 Chambre à ionisation | 43 |
| 3.4.2 Electronique d'acquisition | 47 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 3.5 | La mesure des rendements isotopiques | 47 |
| 3.5.1 | Principe de la méthode | 47 |
| 3.5.2 | Chambre à vide | 49 |
| 3.5.3 | Détecteurs | 50 |
| 4 | Méthode d'analyse | 53 |
| 4.1 | Introduction | 53 |
| 4.2 | Principe général de la méthode | 53 |
| 4.2.1 | Notations | 54 |
| 4.3 | Méthode de détermination des rendements | 54 |
| 4.4 | Rendements $\mathbf{Y}_{\text{exp}}(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})$ et $\mathbf{Y}_{\text{exp}}(\mathbf{A}, \mathbf{Z}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})$ | 56 |
| 4.5 | Corrections expérimentales systématiques | 59 |
| 4.5.1 | Temps d'acquisition des spectres | 59 |
| 4.5.2 | Acceptance en énergie du spectromètre | 59 |
| 4.5.3 | Perte d'énergie cinétique dans la cible et la feuille de Nickel | 59 |
| 4.5.4 | Flux du réacteur | 59 |
| 4.5.5 | Combustion de la cible | 60 |
| 4.5.6 | Conclusion | 65 |
| 4.6 | Corrections expérimentales dues aux détecteurs Germanium | 66 |
| 4.6.1 | Etalonnage des détecteurs Germanium | 66 |
| 4.6.2 | Efficacité des détecteurs Germanium | 66 |
| 4.6.3 | Coïncidences β - γ | 67 |
| 5 | Distributions en énergie cinétique et charge ionique | 71 |
| 5.1 | Etude des distributions en charge ionique | 71 |
| 5.1.1 | Forme typique des distributions | 71 |
| 5.1.2 | Mise en évidence d'isomères nanosecondes | 72 |
| 5.1.3 | Charge ionique moyenne et largeur de distribution | 78 |
| 5.1.4 | Comparaison des distributions en charge avec quelques modèles | 79 |
| 5.2 | Etude des distributions en énergie cinétique | 84 |
| 5.2.1 | Formes des distributions | 84 |
| 5.2.2 | Caractéristiques des énergies cinétiques moyennes | 84 |
| 5.2.2.1 | Moments des distributions en énergie cinétique | 84 |
| 5.2.2.2 | Comparaison des mesures avec les données de la littérature | 90 |
| 5.2.3 | Forme des distributions en énergie cinétique | 94 |
| 5.3 | Distributions en énergie et en charge ionique pour une masse A | 102 |
| 6 | Rendements en masse | 105 |
| 6.1 | Normalisation et calculs d'incertitude | 105 |
| 6.1.1 | Normalisation | 105 |
| 6.1.2 | Incertainces | 106 |
| 6.1.2.1 | Incertainces statistiques | 106 |
| 6.1.2.2 | Incertainces systématiques | 106 |
| 6.1.2.3 | Incertainces totales | 107 |
| 6.2 | Résultats | 108 |
| 6.2.1 | $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ | 109 |
| 6.2.2 | $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ | 122 |
| 6.2.3 | $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ | 131 |
| 6.2.4 | Conclusion | 138 |

| | |
|---|----------------|
| 7 Rendements isotopiques | 139 |
| 7.1 Désintégrations β^- des produits de fission | 139 |
| 7.1.1 Introduction | 139 |
| 7.1.2 Equations de Bateman | 140 |
| 7.2 Normalisation et calculs d'incertitudes | 142 |
| 7.2.1 Normalisation | 142 |
| 7.2.2 Incertitudes | 142 |
| 7.3 Rendements isotopiques | 143 |
| 7.3.1 Rapports isomériques | 151 |
| 7.3.2 Masses et charges moyennes pour certains Z et A respectivement . . | 152 |
| 7.3.3 Effets de parité | 155 |
| 7.4 Limites de la méthode et conclusion | 156 |
| Conclusion | 159 |
| Annexe A : Démonstration de l'équation de calcul de rendement | 161 |
| Annexe B : Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution | 167 |
| Annexe C : Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution | 171 |
| Annexe C : Bases de données utilisées pour la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ | 175 |
| Bibliographie | 181 |

Table des figures

| | | |
|-----|---|----|
| 1.1 | Temps de demie-vie des produits de fission en fonction de leur rendement indépendant. | 3 |
| 1.2 | Rendements isobariques pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ de la base de données JEFF-3.1 (échelle de droite) comparées avec les rapports des évaluations JEFF-3.1 sur JENDL-3.3 (rouge) et JEFF-3.1 sur ENDF/B-VI.8 (vert) (échelle de gauche) [4]. | 8 |
| 1.3 | Rendements isotopiques pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ de la base de données JEFF-3.1 (échelle de droite) comparées avec les rapports des évaluations JEFF-3.1 sur JENDL-3.3 (rouge) et JEFF-3.1 sur ENDF/B-VI.8 (vert) (échelle de gauche) [4]. | 9 |
| 1.4 | Rendements en masse des produits de fission légers pour certains noyaux mesurés sur Lohengrin. | 10 |
| 1.5 | Rendements en masse pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ des produits de fission légers aux énergies cinétiques de 88,5 MeV (en bas), 98,5 MeV (au milieu) et 108,5 MeV (en haut). Les rendements en masse pour l'énergie cinétique la plus élevée représentent les évènements de la fission à faible énergie d'excitation (fission \sim sans émission de particules prompts) pour laquelle se dessine des structures directement liées au processus de fission [9]. | 11 |
| 2.1 | Schéma de la réaction de fission. | 13 |
| 2.2 | Echelle de temps pour le processus de fission, [11]. | 14 |
| 2.3 | Mise en évidence de l'existence d'une barrière de fission pour des valeurs de fissilité < 1 . La figure du haut représente la variation de l'énergie de déformation en fonction des paramètres a_2 et a_4 , alors que la figure du bas représente cette variation obtenue par minimisation de l'énergie potentielle de déformation. | 17 |
| 2.4 | Barrière de fission pour un noyau d'actinide [11]. | 18 |
| 2.5 | Paramétrisation d'un noyau selon les cinq paramètres du "finite range liquid-drop model" [18]. Les différentes couleurs indiquent les trois différentes surfaces prises en compte dans les calculs. Les produits tensoriels des points pour les cinq espaces à une dimension montrent qu'il y a 2 767 500 points à considérer sur la grille. Cependant un certain nombre de ces points correspondent à des cas non-physique (156 615). Au final il est donc nécessaire de prendre en compte de 2 610 885 points qui ont une signification physique sur la grille. | 19 |
| 2.6 | Masses moyennes pour la fission asymétrique calculée selon le "finite range liquid-drop model" [16]. | 20 |

| | | |
|------|---|----|
| 2.7 | Représentation d'un noyau selon les paramètres de Lawrence. La moitié de la longueur du noyau est notée l , r correspond au rayon du cou, z à sa position et c à sa courbure. La position du centre de masse est indiquée par la distance axe ρ/s | 21 |
| 2.8 | Rendements des fragments de fission pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$. Les modes standard I, standard II et superlong calculés selon le modèle de Brosa sont représentés par les courbes continues en noir [24]. Les points en noir représentent des valeurs expérimentales. | 22 |
| 2.9 | Distributions en masse pour la fission thermique calculée par le modèle de Wilkins à gauche et données expérimentales à droite, [27]. | 24 |
| 2.10 | Surface d'énergie potentielle calculée pour un noyau d' ^{238}U selon le modèle de Bruyères-le-Châtel [31]. | 25 |
| 2.11 | Distribution en masse et énergies cinétiques moyennes pour le système fissionnant ^{238}U calculées selon le modèle de Bruyères-le-Châtel [31]. | 26 |
| 3.1 | Vue schématique en coupe de l'Institut Laue-Langevin représentant les lignes de faisceau de neutrons ainsi que les différents instruments. | 34 |
| 3.2 | Vue en coupe (gauche) et vue de profil (droite) d'une cible et de son support. La cible consiste en un actinide (matière fissile) déposé sur une plaque de Ti. L'actinide est lui même recouvert par une feuille de Ni pour limiter les pertes de matière. | 35 |
| 3.3 | Schéma (gauche) et photographie (droite) du matériel d'électrodéposition. | 36 |
| 3.4 | Représentation schématique du spectromètre Lohengrin. | 38 |
| 3.5 | Vue du plan focal du Lohengrin. La trajectoire centrale du spectromètre correspond aux valeurs de $A=136$, $q=21$ et $E_k=65$ MeV. Les lignes A/q voisines (130/20, 142/22) sont séparées grâce au caractère discret de A et de q. | 40 |
| 3.6 | Schéma du plan focal du spectromètre Lohengrin. La dispersion en énergie (en masse) signifie qu'un déplacement de 7,2 cm (3,24 cm) dans le plan focal du spectromètre correspond à une variation en énergie cinétique (en masse) de 1%. Le rectangle central du schéma correspond à l'image de la source dans le plan focal du Lohengrin. Les rectangles +1 et -1 sont les images de cette même source pour des variations en masse ou en énergie cinétique de 1% par rapport à la masse et à l'énergie cinétique de la trajectoire centrale. | 40 |
| 3.7 | Représentation schématique de la dispersion en x (Δx). | 41 |
| 3.8 | Echelle de temps de la fission et spectromètre Lohengrin. | 42 |
| 3.9 | Vue schématique de la chambre à ionisation. | 44 |
| 3.10 | Exemples de spectres obtenus pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$. La figure du haut correspond aux paramètres $A = 100$, $q = 20$ et $E_k = 100$ MeV, alors que celle du bas correspond aux valeurs $A = 136$, $q = 21$ et $E_k = 64$ MeV. La tâche à gauche de la figure du bas annotée $E_{tot} = \Delta E$ correspond aux produits de fission qui sont restés bloqués dans la grille de séparation. | 45 |
| 3.11 | Système d'acquisition en sortie de la chambre à ionisation. Le module de sommation assure la coïncidence entre les deux signaux ΔE et E_{res} | 47 |
| 3.12 | A gauche : vue de profil de la chambre à vide placée à la sortie du spectromètre. Elle est traversée par une bande passante qui a pour rôle de stopper les produits de fission. A droite : vue de dessus de la chambre à vide, ainsi que des deux clovers Germanium et du scintillateur. | 48 |

| | | |
|------|---|----|
| 3.13 | Photographie du système de détection lors de la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ | 49 |
| 3.14 | Représentation schématique de la chambre à vide et de la bande passante. | 49 |
| 3.15 | Résistivité (<i>inverse de la conductivité</i>) pour différents types de matériaux. | 50 |
| 3.16 | Photographie du système de détection lors d'une expérience sur le Lohengrin. | 51 |
| 4.1 | Mesure du rendement de la masse 136 pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ en fonction de E_k et q . Le rendement de cette masse est proportionnel au volume de la distribution. | 55 |
| 4.2 | Exemple de spectre obtenu pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Le rendement $Y_{exp}(136, 21, 64)$ correspond aux nombre d'ions de la tâche en rouge. | 56 |
| 4.3 | Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 137$, la charge ionique $q = 21$ et l'énergie cinétique $E_k = 52$ MeV. <i>Temps d'acquisition du spectre : 1800 s.</i> | 57 |
| 4.4 | Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 140$, la charge ionique $q = 23$ et l'énergie cinétique $E_k = 67$ MeV. <i>Temps d'acquisition du spectre : 1200 s.</i> On peut voir sur ce spectre trois régions sélectionnées. Les deux régions les plus extrêmes, les plus à gauche et à droite, permettent d'évaluer le bruit de fond qui est donné par la ligne verte. La région du milieu représente les pics γ à fitter. Leur nombre est choisi par l'utilisateur au vue de la contamination de cette région par des raies γ parasites. L'isotope mesuré sur cet exemple correspond au pic d'énergie 602,3 keV du Césium ($Z=55$). | 57 |
| 4.5 | Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 143$, la charge ionique $q = 22$ et l'énergie cinétique $E_k = 62$ MeV. <i>Temps d'acquisition du spectre : 1200 s.</i> Sur ce spectre la courbe en jaune correspond au fit total des trois pics γ , chacun représenté séparément par une gaussienne en violet. | 58 |
| 4.6 | Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 141$, la charge ionique $q = 22$ et l'énergie cinétique $E_k = 53$ MeV. <i>Temps d'acquisition du spectre : 1200 s.</i> | 58 |
| 4.7 | Variation de la puissance thermique du réacteur au cours de la mesure des rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ | 60 |
| 4.8 | L'intégrale de la distribution en énergie cinétique de la masse 136 à la charge 21 est tracée en fonction du temps pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$. Elles correspondent aux burn-up de ces trois cibles. | 63 |
| 4.9 | Burn-up des deux différentes mesures dans la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$: raie γ de 334 keV du noyau $^{136}_{52}\text{Te}$ en fonction du temps. | 64 |
| 4.10 | Impact des différentes corrections sur une distribution en énergie cinétique ($A=133, q=21$ pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$). La figure du milieu correspond à la distribution du haut après la prise en compte de la perte d'énergie des produits de fission dans la cible et la feuille de Nickel, alors que celle du bas montre l'effet des corrections du burn-up et du flux du réacteur. Ces dernières restent faibles en fonctionnement normal : le flux varie peu et la combustion de la cible est négligeable le temps de la mesure d'une distribution. | 65 |
| 4.11 | Courbe d'efficacité typique pour un détecteur Germanium. Les points représentent les valeurs expérimentales alors que le fit est donné par la courbe continue [76]. | 68 |

| | | |
|------|--|----|
| 4.12 | Efficacité photopic relative des détecteurs Germanium pour la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ de juin 2008. Les points en noir représentent les valeurs expérimentales, le fit est donné par la courbe continue en rouge. | 68 |
| 5.1 | Exemples de distributions typiques en charge ionique ajustées par une distribution gaussienne pour les trois noyaux mesurés. | 72 |
| 5.2 | Exemples de distributions en charge ionique mettant en évidence la présence d'isomère nanoseconde pour les trois noyaux mesurés. | 73 |
| 5.3 | Mise en évidence des isomères nanosecondes pour les masses (points en noir, échelle de droite, mesures avec chambre à ionisation) et les isotopes (points en rouge et vert, échelle de gauche, mesures par spectrométrie γ) des produits de fission de la réaction $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 74 |
| 5.4 | Distributions en charge ionique pour la région des produits de fission légers (figures de gauche [81] : $A = 89$, $E_k = 97,3 \text{ MeV}$) et pour la région des produits de fission lourds (figure de droite [82] : $A = 142$) de la réaction $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ [82]. La distribution de la masse 89 (figure en haut à gauche) : a est fittée avec deux gaussiennes, celle de gauche : b correspond à l'état fondamental du noyau alors que celle de droite : c correspond à son état isomérique. De la même façon est tracée sur la figure en bas à gauche la distribution de l'isotope de Krypton de cette même masse. La figure de droite montre la distribution en charge ionique de la masse 142 pour différentes énergies cinétiques. | 75 |
| 5.5 | Représentation schématique de la désexcitation d'un isomère nanoseconde par conversion interne. | 77 |
| 5.6 | Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour les trois noyaux mesurés. | 80 |
| 5.7 | Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour les trois noyaux mesurés (points en noir) comparées aux prédictions de V. Nikolaev (cercles en rouge). | 81 |
| 5.8 | Charges ioniques moyennes (points) pour les trois noyaux mesurés comparées aux prédictions de K. Shima (cercles). Les figures de gauche représentent les charges ioniques moyennes des distributions mesurées comparées aux prédictions de Shima. Sur les figures de droite seules les valeurs des fits gaussiens de plus basse charge sont comparées avec les prédictions de Shima (rouge). Les distributions en charge ionique des états isomériques représentées par les gaussiennes de plus haute charge sont représentées en vert. | 83 |
| 5.9 | Exemples de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$. Les deux figures du haut montrent les distributions en énergie cinétique des masses 128 et 137 à la charge ionique $q = 22$ (points en noir). Les figures du milieu représentent ces mêmes distributions ajustées par un simple fit gaussien (courbe en rouge). Les figures du bas représentent toujours les distributions en énergies cinétiques des masses 128 et 137 mais cette fois-ci ajustées par une double gaussienne (courbes en vert, les courbes en rouge sont la somme de ces deux fonctions). Pour chaque fit tous les paramètres des gaussiennes ont été laissés indépendants. | 85 |

| | | |
|------|--|----|
| 5.10 | Distributions en énergie cinétique de la réaction $^{239}\text{Np}(n_{th},f)$ pour les masses 90, 100 et 105 [57]. De même que les masses lourdes les distributions de ces trois masses légères présentent une forte asymétrie dans les basses énergies. | 86 |
| 5.11 | Valeurs moyennes (noir), largeurs de distribution (rouge) et coefficients d'asymétrie (bleu) des énergies cinétiques pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. | 87 |
| 5.12 | Valeurs moyennes (noir), largeurs de distribution (rouge) et coefficients d'asymétrie (bleu) des énergies cinétiques pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. | 88 |
| 5.13 | Valeurs moyennes (noir), largeurs de distribution (rouge) et coefficients d'asymétrie (bleu) des énergies cinétiques pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$. | 89 |
| 5.14 | Différentes mesures des énergies cinétiques moyennes pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ sont comparées sur cette figure. Les cercles représentent des mesures avant évaporation des neutrons prompts ([87, 88, 89]). Les points en noir correspondent à nos données corrigées de l'émission des neutrons prompts. | 91 |
| 5.15 | Différentes mesures des énergies cinétiques moyennes pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ sont comparées sur cette figure. Les cercles représentent des mesures avant évaporation des neutrons prompts ([90, 91, 92, 93]). Les points en noir correspondent à nos données corrigées de l'émission des neutrons prompts. | 92 |
| 5.16 | Différentes mesures des énergies cinétiques moyennes pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ sont comparées sur cette figure. Les cercles représentent une mesure avant évaporation des neutrons prompts ([94]). Les points en noir correspondent à nos données corrigées de l'émission des neutrons prompts. La sous-estimation sur la correction de la perte en énergie des valeurs Lohengrin (inhomogénéité de la cible) est visible également dans la région des produits de fission légers [95]. | 93 |
| 5.17 | Schéma de la cible mettant en évidence l'influence de l'épaisseur de la matière traversée pour la perte d'énergie : $\Delta E_1 > \Delta E_2$ même si $E_{pf_1} = E_{pf_2}$ (les échelles ne sont pas respectées). | 94 |
| 5.18 | Contribution de la traversée de la cible et de la feuille de Nickel sur la forme des distributions en énergie cinétique des produits de fission (simulation Monte-Carlo, TRIM). Ces calculs ont été faits en supposant une cible parfaitement homogène. | 95 |
| 5.19 | Exemples de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. | 96 |
| 5.20 | Exemples de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ avec une cible sans couverture de Nickel. On remarque que ces distributions conservent une forte queue dans les basses énergies. Ces mesures mettent en évidence que la perte d'énergie des produits de fission dans la cible ne peut pas expliquer l'asymétrie de ces distributions. | 97 |
| 5.21 | Exemples de distributions en énergie cinétique pour les masses (chambre à ionisation, figure du haut) et les isotopes (spectrométrie γ , figures du bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ avec une cible sans couverture de Nickel. | 98 |
| 5.22 | Rendements en masse (haut), énergies cinétiques moyennes (milieu) et leurs largeurs (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les cercles représentent les points de mesures alors que les traits pleins montrent les différentes contributions des modes de fission, [99]. | 99 |

| | | |
|------|---|-----|
| 5.23 | Energies cinétiques moyennes en fonction des masses tracées pour les 3 systèmes fissionnants étudiés. Les points en noir représentent l'énergie cinétique moyenne de la gaussienne de haute énergie dans la distribution en E_k alors que la gaussienne de basse énergie est représentée par les points en rouge. La courbe en bleu correspond à l'énergie cinétique moyenne de la distribution totale. Les valeurs $\langle \Delta E \rangle$ correspondent à la différence moyenne entre les gaussiennes de haute énergie et celles de basse énergie. | 101 |
| 5.24 | Des distributions en énergie cinétique et en charge ionique pour les masses 98 (haut) et 136 (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les traits blancs représentent un fit sur les énergies cinétiques moyennes des distributions alors que ceux en noir représentent un fit sur les valeurs moyennes des distributions en charge ionique. | 102 |
| 5.25 | Charges ioniques moyennes calculées à partir du modèle de Shima pour des produits de fission après traversée d'une feuille de Nickel en fonction de leur énergie cinétique (figure du haut) et de leur charge nucléaire la plus probable (figure du bas). Sur la figure du haut les courbes en pointillés représentent les tangentes au modèle de Shima aux énergies typiques pour un produit de fission léger (en rouge : $E_k \sim 100$ MeV) et pour un produit de fission lourd (en vert : $E_k \sim 72$ MeV). | 104 |
| 6.1 | Energie de déformation, d'interaction coulombienne et totale au point de scission selon la déformation du noyau $C_1/A_1 + C_2/A_2$ (C_1, C_2, A_1 et A_2 représentent les paramètres de déformation des fragments 1 et 2 de fission) [103]. | 108 |
| 6.2 | Thomas Materna (gauche) et Herbert Faust (droite) pendant la réparation du générateur de haute tension. | 110 |
| 6.3 | Rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ | 110 |
| 6.4 | Rendements en masse pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques sont données par des barres verticales alors que les incertitudes systématiques sont représentées par la zone grisée. | 112 |
| 6.5 | Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JEFF-3.1</i> | 114 |
| 6.6 | Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>ENDF/B-VI.8</i> | 115 |
| 6.7 | Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JENDL-3.3</i> | 116 |
| 6.8 | Rendements en masse mesurés sur le spectromètre Lohengrin comparés avec les données de Wahl évaluées par le modèle Z_p [33]. | 117 |
| 6.9 | Comparaison des rendements en masse des produits de fission de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur différents spectromètres de masse : Lohengrin (points en noir et cercles en vert [9]) et Hiawatha (cercles en bleu [105]). | 118 |
| 6.10 | Rendements en masse tracés pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission. | 119 |
| 6.11 | Fission à faible énergie d'excitation pour l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$: figure du haut. Nombre de neutrons moyen $\bar{\nu}$ émis en fonction des masses (évaluation de Wahl) : figure du bas. | 121 |
| 6.12 | Rendements en masse pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques (négligeables) sont données par des barres verticales alors que les incertitudes systématiques sont représentées par la zone grisée. | 123 |

| | | |
|------|---|-----|
| 6.13 | Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JEFF-3.1</i> | 125 |
| 6.14 | Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>ENDFB- VI</i> | 126 |
| 6.15 | Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JENDL-3.3</i> | 127 |
| 6.16 | Rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin comparés avec les données de Wahl évaluées par le modèle Z_p [33]. | 128 |
| 6.17 | Rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés dans les légers (cercles [59]) et dans les lourds (points). | 128 |
| 6.18 | Rendements en masse tracés pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission. | 129 |
| 6.19 | Fission à faible énergie d'excitation pour le $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$: figure du haut. Nombre de neutrons moyen $\bar{\nu}$ émis en fonction des masses (évaluation de Wahl) : figure du bas. | 130 |
| 6.20 | Distributions en charge ionique (à l'énergie 58 MeV) et énergie cinétique (à la charge 22) de la masse 149 pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ | 132 |
| 6.21 | Rendements en masse pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques (négligeables) sont données par des barres verticales alors que les incertitudes systématiques sont représentées par la zone grisée. | 132 |
| 6.22 | Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JEFF-3.1</i> | 133 |
| 6.23 | Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>ENDF/B-VI.8</i> | 134 |
| 6.24 | Comparaison entre les rendements en masse de l' $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque <i>JENDL-3.3</i> | 135 |
| 6.25 | Rendements en masse du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Cosisan-Tutte [106] (cercles en vert) et sur le spectromètre Lohengrin (points en noir) comparés aux données de JEFF-3.1(courbe en pointillés rouge). | 136 |
| 6.26 | Rendements en masse tracés pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission. | 137 |
| 7.1 | Charte des noyaux [www.nndc.bnl.gov]. | 139 |
| 7.2 | Rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ (les incertitudes données sont les incertitudes totales). | 145 |
| 7.3 | Tableau récapitulatif des raisons pour lesquelles les rendements isotopiques de certaines masses n'ont pas pu être mesurés. | 146 |
| 7.4 | Comparaison avec différentes mesures et évaluations des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin dans la région des produits de fission légers (les incertitudes données pour nos résultats sont les incertitudes totales). | 147 |
| 7.5 | Comparaison avec différentes mesures et évaluations des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin dans la région des produits de fission lourds (les incertitudes données pour nos résultats sont les incertitudes totales). | 148 |
| 7.6 | Comparaison avec différentes mesures et évaluations des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin dans la région des produits de fission lourds (les incertitudes données pour nos résultats sont les incertitudes totales). | 149 |

| | | |
|------|--|-----|
| 7.7 | Comparaison de nos mesures (points) avec les données de C. Schmitt (étoiles) obtenues sur le spectromètre Lohengrin avec une chambre à ionisation [59]. Les incertitudes données pour nos résultats sont les incertitudes totales. . . | 150 |
| 7.8 | Rapports isomériques $RI = \frac{\text{Rendement}(^mY)}{\text{Rendement}(^gY)}$ des noyaux concernés mesurés avec le spectromètre de masse Lohengrin et disponibles dans la bibliothèque de données JEFF-3.1. | 151 |
| 7.9 | Distributions des masses pour quelques charges nucléaires. | 152 |
| 7.10 | Distributions des charges nucléaires pour quelques masses. | 154 |
| 7.11 | ΔZ en fonction des masses (figure de gauche) et des charges nucléaires moyennes (figure de droite). Ces données sont en accord avec les mesures présentées référence [112]. | 155 |
| 7.12 | Effet de parité global pour les protons en fonction du paramètre de Coulomb $Z^2/A^{1/3}$ de plusieurs systèmes fissionnants [73, 11]. | 155 |
| 7.13 | Effet de parité local en fonction des masses pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les calculs ont été effectués uniquement pour les isotopes qui ont été mesurés sur le spectromètre Lohengrin. Les points en noir représentent les valeurs calculées à partir de nos mesures, les croix en rouge représentent les valeurs calculées à partir des données de JEFF-3.1. | 156 |

Introduction

En validant la mesure des rendements isobariques pour la région des produits de fission lourds et en mettant au point une nouvelle technique de mesure pour déterminer les rendements isotopiques de cette même région, le travail de cette thèse s'inscrit dans la problématique des données nucléaires. En effet parce que la fission nucléaire est un phénomène très complexe, les modèles ne sont pas encore à même de reproduire les distributions en masse et en charge nucléaire des produits de fission pour un noyau donné. Cependant ces données sont indispensables entre autre dans le calcul des scénarios des réacteurs nucléaires, ou encore pour valider les modèles théoriques. Il est donc encore aujourd'hui nécessaire de poursuivre ce type de mesure.

Les expériences présentées dans cette thèse, fruit d'une collaboration CEA-ILL, ont été entreprises sur le spectromètre de masse Lohengrin de l'Institut Laue-Langevin de Grenoble (ILL). Elles ont permis de déterminer les rendements en masse des réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ ainsi que les rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ pour la région des produits de fission lourds.

La thèse se compose de sept chapitres.

Le premier chapitre, **Motivations**, permet de situer ce travail par rapport à la problématique des bases de données nucléaires.

Dans le deuxième chapitre, **La fission nucléaire, état de l'art** sont résumés les principaux modèles de fission ainsi que les différents types d'expérience à même de mesurer des rendements de fission.

Le troisième chapitre **Dispositif expérimental** est consacré à l'Institut Laue-Langevin et au spectromètre de masse Lohengrin. Les méthodes de fabrication de cibles ainsi que la description des dispositifs expérimentaux pour la mesure des rendements isobariques et isotopiques y sont données.

La **Méthode d'analyse** pour déterminer les rendements en masse et les rendements isotopiques est décrite dans le chapitre quatre. Cette partie aurait pu être présentée dans les deux derniers chapitres, séparant ainsi la méthode d'analyse des rendements isobariques et des rendements isotopiques. Cette disposition aurait facilité la lecture en présentant directement à la suite des méthodes d'analyse les résultats. Cependant si ces deux expériences sont différentes, elles ont également un grand nombre de points communs. Mais le choix de réunir ces deux parties en un seul chapitre vient surtout du fait que le chapitre cinq, indispensable pour une bonne appréhension des résultats, s'appuie sur des exemples qui proviennent tantôt des mesures en masse, et tantôt des mesures par spectrométrie.

Le chapitre cinq, intitulé **Distributions en énergie cinétique et charge ionique**, présente une étude approfondie de ces distributions. Cette étude a permis dans un premier temps de mieux estimer les rendements, mais également de mettre en évidence certaines propriétés physiques, telle que la présence d'isomères nanosecondes pour certains noyaux étudiés.

Les résultats des mesures de **Rendements en masse** (également appelés “rendements isobariques”) sont donnés au chapitre six.

Le chapitre sept, quant à lui, présente les résultats des **Rendements isotopiques** indépendants du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Chapitre 1

Motivations

1.1 Importance des mesures de rendements de fission

Parce que la fission nucléaire est un phénomène très complexe, à l'heure actuelle aucun modèle théorique n'est encore en mesure de prédire avec une précision suffisante les rendements des produits de fission.

Pourtant la connaissance de ces données reste indispensable pour les applications nucléaires, quelles qu'elles soient :

- Aujourd'hui par exemple la gestion des déchets radioactifs est au coeur des études nucléaires. Le choix entre la vitrification ou l'incinération des différents produits de fission repose en partie sur leur rendement et leur durée de vie (figure 1.1) [1]. De nombreux travaux sont menés dans ce domaine et étudient les différentes méthodes de transmutation selon la nature des produits de fission [2].

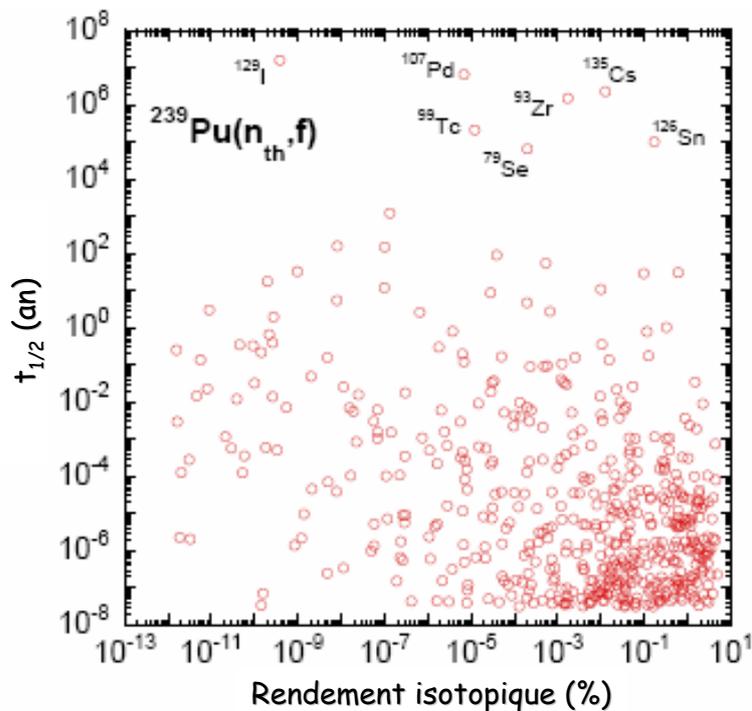


FIG. 1.1 – Temps de demie-vie des produits de fission en fonction de leur rendement indépendant.

- La chaleur de décroissance qui correspond à l'énergie libérée par les rayonnements

β et γ émis au cours de la désintégration des produits de fission est directement liée aux rendements indépendants des produits de fission. Sa valeur est utile à de nombreuses applications :

- déterminer la puissance résiduelle d'un combustible après l'arrêt du réacteur,
- gérer le transport et le stockage des combustibles,
- pour les études de sûreté nucléaire,
- ...

• De même l'évaluation du taux de fission dans un réacteur nécessite une connaissance très précise de certains rendements. Cette évaluation peut par exemple reposer sur la mesure des raies γ émises au cours de la désintégration des produits de fission. L'intensité du pic γ de 1,6 MeV qui provient de la décroissance du ^{140}La est ainsi utilisée pour estimer le taux de fission d'un combustible nucléaire. Les rendements des noyaux de cette masse ont alors besoin d'être très bien connus :



Cependant ces données souffrent encore d'incertitudes trop élevées. De plus leurs valeurs ne sont pas parfaitement cohérentes entre les différentes évaluations (tableau 1.1).

| Système fissionnant | Rider (1981) | JEFF-3.1 | ENDF/B-VI.8 |
|---|-------------------|-------------------|-------------------|
| $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ | $6,202 \pm 1,4\%$ | $6,314 \pm 1,5\%$ | $6,215 \pm 1,0\%$ |
| $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ | $5,393 \pm 2,0\%$ | $5,322 \pm 1,1\%$ | $5,355 \pm 1,4\%$ |

TAB. 1.1 – Rendements cumulés du ^{140}Ba selon différentes évaluations pour les réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ et $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$. Les incertitudes sur ces rendements sont encore trop grandes au vue de l'importance de leurs applications (calcul du taux de fission d'un combustible). L'accord à 1σ n'est pas entièrement satisfaisant entre les différentes mesures et évaluations.

• Les produits de fission dont le produit "section efficace de capture par rendement" est important jouent un grand rôle dans la réactivité des réacteurs nucléaires. Afin de mieux gérer ces effets les sections efficaces de ces noyaux ainsi que leurs rendements ont encore besoin d'être améliorés : le tableau 1.2 donne les vingt produits de fission qui représentent 85% de l'antiréactivité pour un combustible de type UOX à 40GWj/t.

• Le calcul du nombre total moyen $\bar{\nu}_d$ de neutrons retardés peut se faire soit par des mesures intégrales soit par la somme sur tous les produits de fission du produit de "leur rendement (Y) par leur probabilité d'émission de neutrons retardés (Pn)" :

$$\bar{\nu}_d = \sum_i Y_i Pn_i.$$

Les valeurs du $\bar{\nu}_d$ peuvent varier de +10% à -25% en fonction de la méthode avec laquelle elles sont estimées. Même s'ils n'en sont pas les seuls responsables, les rendements indépendants des produits de fission jouent un rôle important dans ces erreurs.

De nombreuses mesures ont déjà été réalisées afin de déterminer les rendements de fission pour un grand nombre d'actinides. Cependant, comme nous venons de le voir, les demandes actuelles des applications nucléaires sont de plus en plus exigeantes. Aujourd'hui les récents progrès faits dans différents domaines (par exemple dans celui des

| Noyau | JEF-2.2 | JEFF-3.1 | ENDF/B-VI.8 | écart JEFF-3.1 / JEF-2.2 | écart ENDF/B- VI.8 / JEFF-3.1 |
|------------------------|------------------------------|------------------------------|------------------------------|--------------------------------|--|
| ^{135}I | $(6,2 \pm 0,4) \text{ E-02}$ | $(6,3 \pm 0,2) \text{ E-02}$ | $(6,5 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | 2,1% | 3,4% |
| $^{135}\text{Xe}^{**}$ | $(7,2 \pm 0,2) \text{ E-02}$ | $(7,4 \pm 0,2) \text{ E-02}$ | $(7,6 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | 1,8% | 3,4% |
| $^{103}\text{Rh}^{**}$ | $(6,9 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(6,9 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(6,9 \pm 0,1) \text{ E-03}$ | -0,1% | 0,7% |
| $^{143}\text{Nd}^{**}$ | $(4,5 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(4,5 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(4,4 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | 0,2% | -1,4% |
| $^{133}\text{Cs}^*$ | $(6,9 \pm 0,0) \text{ E-02}$ | $(6,9 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(7,0 \pm 0,1) \text{ E-04}$ | 1,3% | 0,3% |
| $^{131}\text{Xe}^*$ | $(3,9 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(3,7 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(3,9 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | -3,7% | 3,6% |
| $^{149}\text{Sm}^{**}$ | $(1,3 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(1,3 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(1,2 \pm 0,0) \text{ E-02}$ | 0,8% | -3,6% |
| $^{99}\text{Tc}^*$ | $(6,2 \pm 0,4) \text{ E-02}$ | $(6,2 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(6,2 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | 0,1% | 0,4% |
| $^{155}\text{Eu}^{**}$ | $(2,1 \pm 0,3) \text{ E-03}$ | $(1,7 \pm 0,3) \text{ E-03}$ | $(1,6 \pm 0,2) \text{ E-04}$ | -16,3% | -4,8% |
| $^{151}\text{Sm}^{**}$ | $(7,6 \pm 0,2) \text{ E-03}$ | $(7,8 \pm 0,2) \text{ E-03}$ | $(7,4 \pm 0,1) \text{ E-03}$ | 1,8% | -4,8% |
| $^{153}\text{Eu}^*$ | $(3,9 \pm 0,3) \text{ E-03}$ | $(3,8 \pm 0,3) \text{ E-03}$ | $(3,6 \pm 0,2) \text{ E-03}$ | -3,6% | -5,0% |
| $^{152}\text{Sm}^{**}$ | $(5,9 \pm 0,2) \text{ E-03}$ | $(6,1 \pm 0,2) \text{ E-03}$ | $(5,8 \pm 0,1) \text{ E-03}$ | 3,8% | -5,2% |
| $^{154}\text{Eu}^*$ | $(2,8 \pm 1,0) \text{ E-07}$ | $(4,9 \pm 1,2) \text{ E-07}$ | $(2,8 \pm 1,8) \text{ E-07}$ | 73,1% | -42,8% |
| ^{145}Nd | $(3,1 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(3,0 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(2,9 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | -0,6% | -1,6% |
| ^{147}Pm | $(2,1 \pm 0,2) \text{ E-02}$ | $(2,0 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(2,0 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | -0,4% | -2,0% |
| ^{109}Ag | $(1,5 \pm 0,2) \text{ E-02}$ | $(1,7 \pm 0,3) \text{ E-02}$ | $(1,5 \pm 0,9) \text{ E-02}$ | 11,7% | -11,7% |
| ^{101}Ru | $(6,2 \pm 0,2) \text{ E-02}$ | $(6,2 \pm 0,3) \text{ E-02}$ | $(6,0 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | -0,2% | -2,6% |
| $^{95}\text{Mo}^{**}$ | $(4,9 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(4,9 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | $(4,8 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | 0,5% | -2,6% |
| ^{150}Sm | $(1,6 \pm 0,6) \text{ E-05}$ | $(2,3 \pm 0,8) \text{ E-05}$ | $(1,2 \pm 0,7) \text{ E-05}$ | 38,2% | -49,1% |
| ^{105}Pd | $(5,8 \pm 0,2) \text{ E-02}$ | $(5,7 \pm 0,2) \text{ E-02}$ | $(5,6 \pm 0,1) \text{ E-02}$ | 0,0% | -2,0% |
| ^{148m}Pm | $(6,4 \pm 2,4) \text{ E-08}$ | $(1,2 \pm 0,4) \text{ E-07}$ | $(4,5 \pm 2,9) \text{ E-08}$ | 85,5% | -61,8% |

TAB. 1.2 – Rendements cumulés pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ des 20 produits de fission qui représentent 85% de l’antiréactivité d’un assemblage UOX à 40GWj/t. L’indice “***” signifie que l’incertitude sur la section efficace de capture ou l’intégrale de résonance du produit de fission considérée est de 5% ou plus (10% ou plus d’incertitude pour l’indice “*”). Les rendements des noyaux écrits en gras présentent plus de 10% de différence suivant les bibliothèques [1].

détecteurs) permettent d'entreprendre sur des noyaux qui ont déjà été mesurés auparavant de nouvelles expériences plus précises et complètes, mais ils permettent également d'étudier de nouveaux domaines de fission.

| Système fissionnant | $\bar{\nu}_d$ (C) | $\bar{\nu}_d$ (M) | (C-M)/M |
|--|-------------------|-------------------|---------|
| $^{233}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 7,47E-03 | 6,73E-0 | +11% |
| $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 1,53E-02 | 1,62E-02 | -2% |
| $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 6,37E-03 | 6,50E-03 | -6% |
| $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 1,30E-02 | 1,60E-02 | -19% |
| $^{242m}\text{Am}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 6,08E-03 | 6,50E-03 | -6% |
| $^{243}\text{Cm}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 2,32E-03 | 3,01E-03 | -23% |
| $^{245}\text{Cm}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 5,44E-03 | 6,40E-03 | -15% |

TAB. 1.3 – Comparaison de la valeur du $\bar{\nu}_d$ en fonction de la méthode de détermination : par évaluation (M : mesures intégrales, exemple pour JEFF-3.1) ou par calcul (C : calculs, équation $\sum_i Y_i P n_i$ [3]).

1.2 Les différentes bases de données

La plupart des données de rendements sont disponibles dans les bibliothèques nucléaires. Ces bases jouent un rôle très important dans de nombreuses applications, elles représentent par exemple les données d'entrée dans les codes de simulation des réacteurs nucléaires.

Il existe trois types de bibliothèques :

- les bases de données nucléaires bibliographiques (CINDA) ;
- les bases de données nucléaires expérimentales (EXFOR) ;
- les bases de données nucléaires évaluées (EVA).

Le nombre de leurs données est considérable. A titre indicatif la NEA (Nuclear Energy Agency) a introduit dans la base EXFOR 80 mesures de réactions induites par des neutrons et plus de 110 mesures de réactions induites par des particules chargées. La base de données CINDA comprenait en 2007 plus de 55 000 références.

Les bases de données les plus utilisées dans les applications restent cependant les évaluations telles que JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion, Européenne), ENDF (Evaluated Nuclear Data File, Américaine) et JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Japonaise).

Elles comprennent les temps de vie des actinides et des produits de fission, les sections efficaces pour différentes réactions nucléaires, les rendements de fission indépendants et cumulés, le nombre d'émission de neutrons retardés par produits de fission, leurs énergies cinétiques, ...

Elles sont le résultat de compilations et évaluations entre les différentes expériences et modèles disponibles et se présentent toutes sous le même format (format ENDF).

Les bases de données existantes sont assez complètes en ce qui concerne les données directement liées aux réacteurs actuels, mais elles possèdent en revanche relativement peu d'informations pour les nouvelles applications (GEN IV, réacteurs hybrides, transmutation des déchets ...).

Cependant même pour des noyaux très étudiés comme l' ^{235}U ou le ^{239}Pu qui jouent un rôle très important dans le fonctionnement des réacteurs actuels, les différentes bases de données ne sont pas toujours en accord les unes avec les autres. De plus les barres d'erreur sont beaucoup trop importantes compte tenu des exigences actuelles pour les applications nucléaires. Les figures 1.2 et 1.3 montrent que si l'accord pour les rendements isobariques

entre les trois bases JEFF-3.1, ENDF/B-VI.8 et JENDL-3.3 est satisfaisant pour les produits de fission à fort rendement, en revanche pour les régions de la fission moins peuplées (zones symétrique ou très asymétrique) les résultats ne sont plus satisfaisants. Bien que les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ aient été très étudiées, les mêmes constatations peuvent être faites pour les rendements isotopiques.

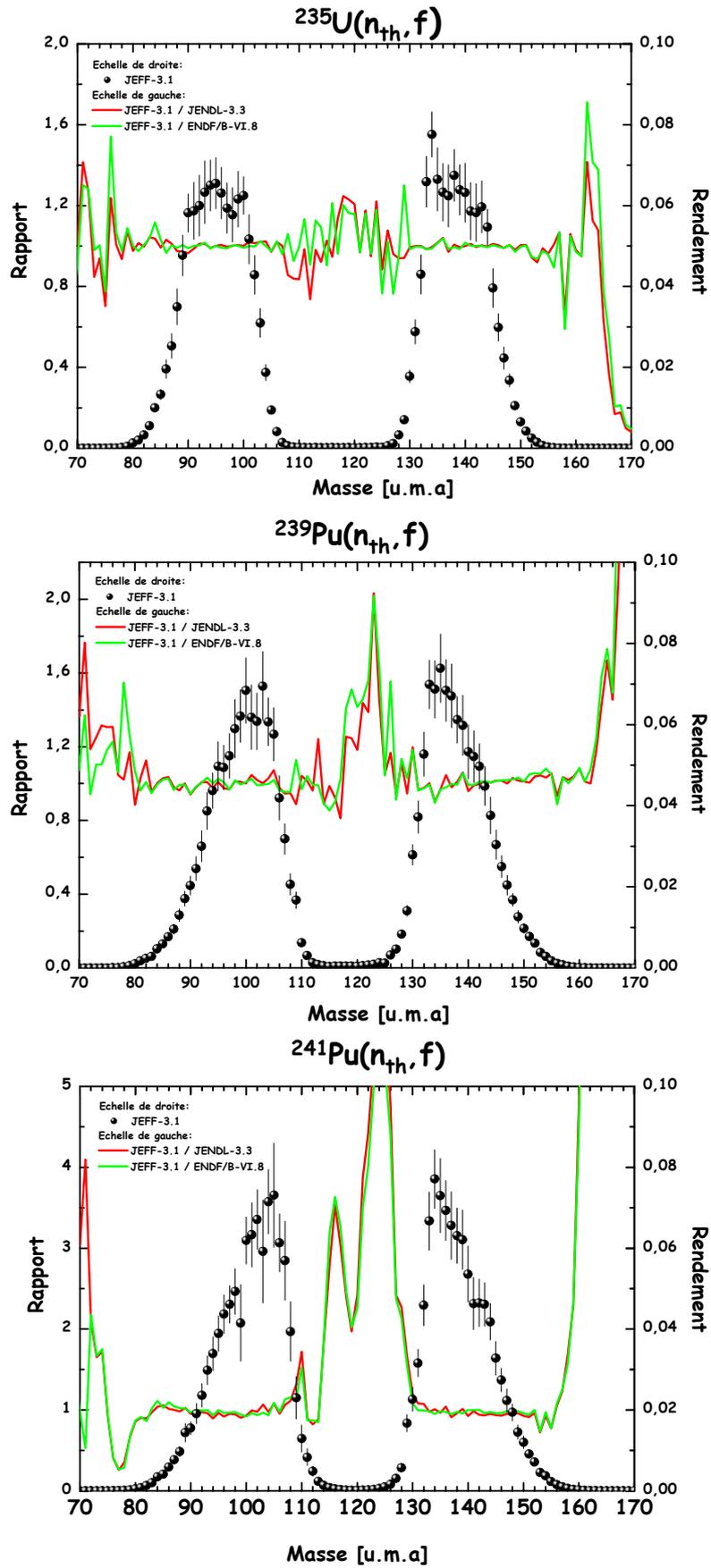


FIG. 1.2 – Rendements isobariques pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ de la base de données JEFF-3.1 (échelle de droite) comparées avec les rapports des évaluations JEFF-3.1 sur JENDL-3.3 (rouge) et JEFF-3.1 sur ENDF/B-VI.8 (vert) (échelle de gauche) [4].

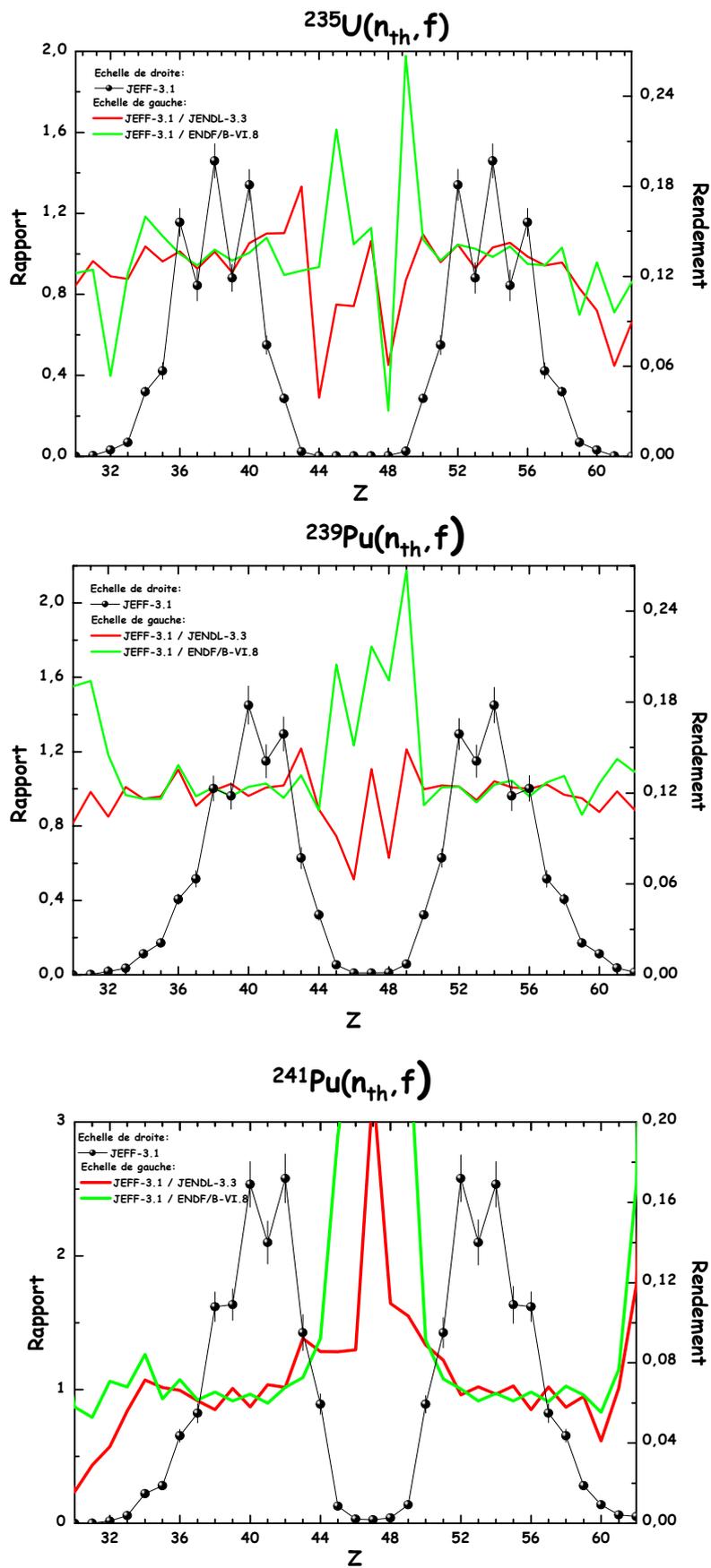


FIG. 1.3 – Rendements isotopiques pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ de la base de données JEFF-3.1 (échelle de droite) comparées avec les rapports des évaluations JEFF-3.1 sur JENDL-3.3 (rouge) et JEFF-3.1 sur ENDF/B-VI.8 (vert) (échelle de gauche) [4].

1.3 Le spectromètre Lohengrin et les mesures de rendements

De nombreuses mesures de rendements de fission ont été effectuées sur le spectromètre de masse Lohengrin de l'Institut Laue-Langevin de Grenoble. C'est un instrument incontournable dans la mesure des rendements de fission puisque sa résolution permet à l'heure actuelle les mesures de distributions en masse et en isotope les plus précises. Comme l'illustre la figure 1.4 de nombreux noyaux y ont déjà été étudiés.

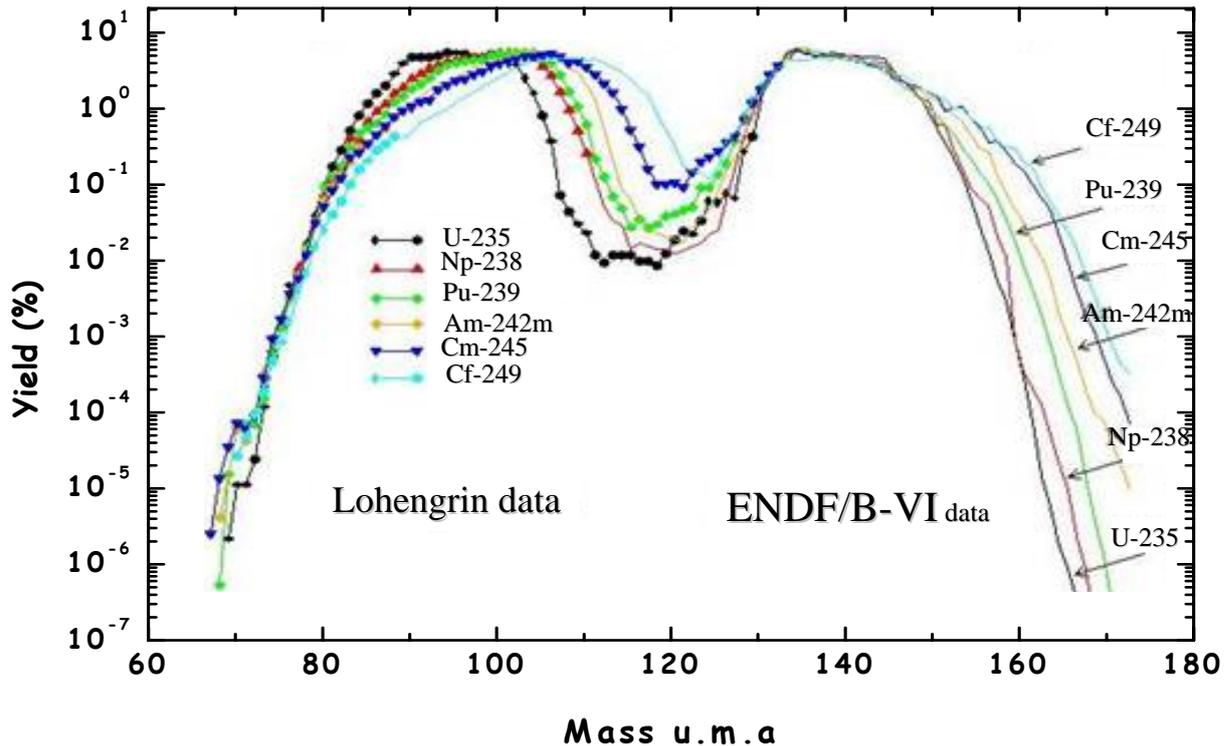


FIG. 1.4 – Rendements en masse des produits de fission légers pour certains noyaux mesurés sur Lohengrin.

Bien que cet instrument ait grandement contribué à alimenter les bibliothèques de données nucléaires dans la région des produits de fission légers et symétriques [5], jusqu'à présent, faute de méthode expérimentale, les rendements isotopiques des produits de fission lourds n'ont jamais pu être mesurés sur cet instrument. En effet, la séparation des différents isotopes à l'aide d'une chambre à ionisation ne permettait pas de séparation isotopique pour les noyaux de $Z > 42$. C'est donc dans ce cadre que s'inscrit le travail de cette thèse. Elle a dans un premier temps pour objectif de valider la méthode expérimentale déjà utilisée pour mesurer les rendements isobariques dans la région des produits de fission légers à celle des masses lourdes, mais aussi de mettre en place une toute nouvelle méthode qui permette de déterminer les rendements isotopiques de cette même région. Il était en effet dommageable au vu de la résolution de cet instrument de ne pas pouvoir étendre les mesures de rendements sur le spectromètre de masse Lohengrin à la région des produits de fission lourds.

Mais en plus de l'intérêt majeur qu'ont les mesures sur le spectromètre de masse Lohengrin pour les bases de données nucléaires, la possibilité sur cet instrument de regarder dans le détail les distributions en énergie cinétique et en charge ionique permet des études plus théoriques du processus même de fission.

Par exemple la fission à faible énergie d'excitation a pu être étudiée sur cet instrument pour plusieurs actinides [6, 7, 8]. Elle correspond aux événements de fission pour des fragments dont l'énergie d'excitation très faible ne permet presque plus l'émission des particules promptes. Ces événements permettent de regarder le rendement des fragments de fission sans avoir besoin de corriger les produits de fission de l'évaporation des neutrons prompts. Ils mettent ainsi en évidence des structures dans la distribution en masse qui proviennent directement du processus de fission. Les figures 1.5 présentent dans les légères les distributions en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurées sur le spectromètre Lohengrin pour les énergies cinétiques des produits de fission de 88,5 MeV, 98,5 MeV et 108,5 MeV. La fission à faible énergie d'excitation correspond aux produits qui ont une forte énergie cinétique (108,5 MeV). On observe clairement des structures qui apparaissent autour de certaines masses ($A=91, 98, 100$ et 102). Ces structures sont directement liées au processus de fission.

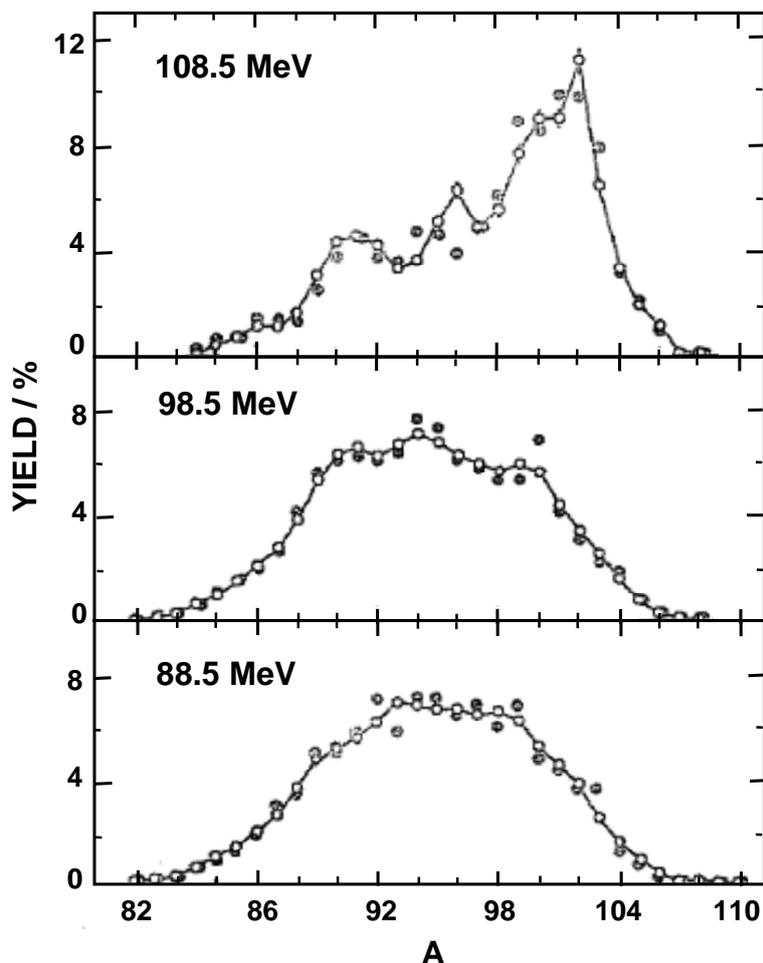


FIG. 1.5 – Rendements en masse pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ des produits de fission légers aux énergies cinétiques de 88,5 MeV (en bas), 98,5 MeV (au milieu) et 108,5 MeV (en haut). Les rendements en masse pour l'énergie cinétique la plus élevée représentent les événements de la fission à faible énergie d'excitation (fission \sim sans émission de particules prompts) pour laquelle se dessine des structures directement liées au processus de fission [9].

Chapitre 2

La fission nucléaire, état de l'art

2.1 Rappels sur quelques termes de fission

Découverte en 1939 par L. Meitner, O. Hahn et F. Strassman [10], la fission nucléaire n'a pas cessé d'être au coeur de nombreuses études. Les soixante-dix années qui se sont écoulées depuis sa découverte ont vu un grand nombre de modèles théoriques voir le jour, sans qu'aujourd'hui aucun d'entre eux n'arrivent à modéliser complètement ce phénomène. Processus très complexe, la fission, qui met en jeu des propriétés de structures nucléaires auxquelles il faut associer des considérations dynamiques, représente un véritable défi théorique.

Bien que très rapidement après sa mise en évidence expérimentale ses principales caractéristiques aient été décrites par les tous premiers modèles, les nombreux progrès faits depuis lors, notamment par traitement dynamique du processus, ne permettent toujours pas une description complète de ce phénomène.

Ce chapitre présente dans une première partie différents modèles théoriques, puis dans une seconde quelques méthodes expérimentales pour déterminer les rendements de fission. Les modèles brièvement décrits ainsi que les techniques expérimentales abordées ne sont pas exhaustifs mais présentent une bonne idée de l'état de l'art de cette discipline.

Afin de mieux comprendre les termes propres à la fission employés dans ce chapitre et tout au long de la thèse, les principaux termes de ce phénomène sont expliqués dès ce paragraphe. Une représentation schématique de la fission est donnée à la figure 2.1.

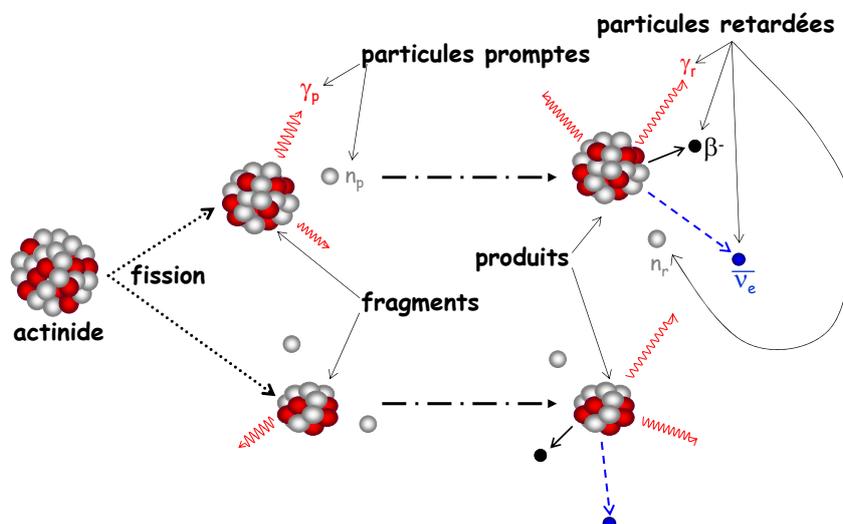


FIG. 2.1 – Schéma de la réaction de fission.

La **fission nucléaire** est un processus au cours duquel (A_{NC}, Z_{NC}) est divisé en deux¹ noyaux plus légers (l'indice "CN" signifie qu'il s'agit du noyau fissionnant ("Compound Nucleus")).

Les **fragments de fission** (A'_i, Z_i) sont les noyaux émis directement par la fission. Parce qu'ils sont très excités, ils vont rapidement émettre des **particules promptes**, gamma et neutrons, afin de libérer leur énergie et atteindre leur état fondamental.

Une fois ces particules émises, on parle de **produits de fission** (A_i, Z_i) . Ils sont excédentaires en neutrons, et pour rejoindre la vallée de la stabilité, subissent une série de désintégrations β^- au cours desquelles ils émettent des **particules retardées**, électrons, gamma, neutrons et antineutrinos électroniques.

Si le nombre de neutrons prompts émis par fragment de fission est noté ν_{pi} , alors $A'_i = A_i + \nu_{pi}$.

Le **rendement indépendant** de masse A ou de charge nucléaire Z correspond au nombre de produits de masse A ou de charge nucléaire Z directement émis par la fission juste après l'émission des neutrons prompts et avant les désintégrations β^- .

En revanche, les **rendements cumulés** correspondent aux rendements des produits de fission de masse A ou de charge nucléaire Z après les désintégrations retardées.

Dans la plupart des cas la fission est **binaire** et **asymétrique**, c'est à dire que le noyau père se scinde en deux fragments de masse différente, (A'_1, Z_1) et (A'_2, Z_2) tels que $A'_1 + A'_2 = A_{NC}$ et $Z_1 + Z_2 = Z_{NC}$.

Les échelles de temps pour la scission et l'émission des particules prompts et retardées sont données à la figure 2.2.

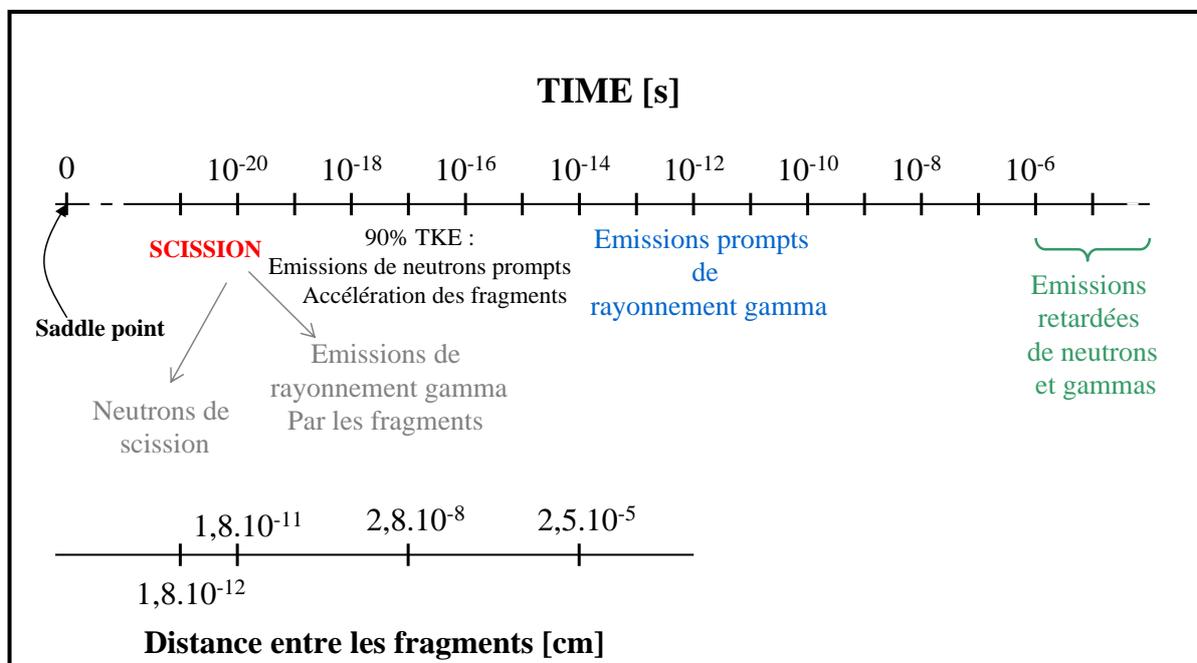


FIG. 2.2 – Echelle de temps pour le processus de fission, [11].

¹La fission ternaire représente entre 2 et 4 fissions pour 1000 fissions binaires. Ce nombre dépend du noyau fissionnant et de son énergie d'excitation.

2.2 Modèles de fission

2.2.1 Modèle de la goutte liquide

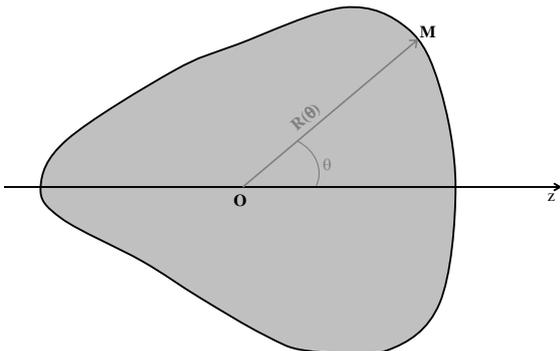
Le modèle de la goutte liquide a été le premier modèle de fission nucléaire. Développé en 1928 par G. Gamow, il considère le noyau comme une goutte homogène de fluide incompressible chargée uniformément. Le phénomène de saturation des forces nucléaires donne pratiquement à tous les noyaux la même densité avec un rayon proportionnel à $A^{1/3}$. Il permet ainsi d'exprimer la variation de l'énergie d'un noyau en fonction de sa déformation nucléaire sans prendre en compte sa composition interne. L'équation semi empirique de Bethe-Weizäcker décrit les différentes forces qui interviennent dans la stabilité d'un noyau, stabilité qui résulte d'un équilibre entre la tension de surface de la goutte et les forces de répulsion coulombienne :

$$E = \underbrace{-\alpha A}_{E_{vol}} + \underbrace{\beta A^{2/3}}_{E_{surf}} + \underbrace{\gamma Z(Z-1)A^{-1/3}}_{E_{coulomb}} + \underbrace{\delta \frac{(N-Z)^2}{A}}_{E_{asym}} + \delta_{app} \quad (2.1)$$

Les termes E_{vol} (énergie de volume), E_{asym} (énergie d'asymétrie) et δ_{app} (terme d'appariement) ne dépendent pas de la déformation du noyau. Ils sont proportionnels au volume nucléaire qui est supposé constant par l'hypothèse d'incompressibilité de la matière nucléaire. L'énergie de volume E_{vol} indique que l'énergie de cohésion du noyau est proportionnelle au nombre de nucléon. L'énergie d'asymétrie E_{asym} ainsi que le terme d'appariement δ_{app} dépendent du nombre de protons par rapport au nombre de neutrons. Dans l'équation 2.1, les deux seuls termes sensibles à la déformation du noyau sont les termes d'énergie de surface E_{surf} et d'énergie coulombienne $E_{coulomb}$. L'énergie de surface est de signe négatif. Proportionnelle à la surface du noyau, elle prend en compte les variations de l'énergie de liaison des nucléons périphériques selon la déformation. Ce terme reste faible dans le cas d'un noyau sphérique et augmente avec la déformation nucléaire. L'énergie coulombienne est de signe positif et est due à la répulsion coulombienne entre les protons. Plus les protons seront éloignés les uns des autres et plus ce terme sera faible. Cette modélisation ne prend en compte ni les effets de couches à l'intérieur du noyau ni les interactions individuelles entre les nucléons, mais elle décrit de façon simple les variations de l'énergie potentielle en fonction de la déformation du noyau.

C'est la distance $R(\Omega) = |\overrightarrow{OM}|$ qui caractérise la forme de la goutte, elle correspond à la distance entre le centre de masse O de la goutte et un point M arbitraire de sa surface dans la direction $\Omega = (\theta, \phi)$.

Si l'on considère une goutte axiale autour de l'axe O_z , alors la distance $R(\Omega)$ ne dépend pas de l'angle azimutal et $R(\theta)$ peut être écrit comme étant :



$$R(\theta) = R_0 \left(1 + \sum_{l=0}^{\infty} a_l P_l(\cos\theta) \right)$$

avec $R_0 = r_0 A^{1/3}$ le rayon de la goutte lorsqu'elle est sphérique.

P_l représente les polynômes de Legendre.

Les paramètres a_l caractérisent la déformation de la goutte :

a_0 contrôle le volume,

a_1 la position du centre de masse,

a_2 la déformation quadrupolaire (rapport entre l'élongation le long de l'axe O_z et le long d'un axe transverse)

a_3 la déformation octupolaire (asymétrie droite/gauche par rapport à un plan perpendiculaire en O à O_z),

a_4 sa déformation hexadécapolaire,

...

Soit $x = \frac{|\Delta E_{coulomb}|}{\Delta E_{surf}}$ le paramètre de fissilité, avec $\Delta E_{coulomb}$ (et ΔE_{surf}) la différence de l'énergie coulombienne (de l'énergie de surface) pour un noyau de déformation b avec un noyau sphérique. Ce terme est directement lié à la possibilité pour un noyau de fissionner ou pas. Plus sa valeur est grande et plus la répulsion coulombienne l'emportera sur la tension de surface, augmentant ainsi la probabilité de la goutte à fissionner spontanément (condition qui ne se rencontre que pour les noyaux lourds).

L'existence d'une barrière de fission (mise en évidence lorsque les polynômes de Legendre nécessaires à l'équation du rayon du noyau sont développés au minimum jusqu'à l'ordre 4) permet d'expliquer la fission de noyaux tels que les actinides ($x < 1$). Cette étude a pour la première fois été faite par Bohr et Wheeler en 1939. Ils menèrent le calcul de l'énergie de déformation jusqu'à l'ordre 4 pour les paramètres a_2 et a_4 . En minimisant cette énergie par rapport au paramètre a_4 pour chacune des valeurs de a_2 , ils distinguèrent dans les variations de l'énergie potentielle de déformation E_{def} l'équation $a_4 = a_4(a_2)$ qui met en évidence la fragmentation du noyau par l'apparition d'un maximum de cette énergie de déformation, barrière de potentielle appelée barrière de fission. Elle est représentée schématiquement sur la figure 2.3 [12]. Le point selle au niveau de la barrière de fission indique le moment à partir duquel le noyau va irrémédiablement fissionner.

Sans cette barrière de fission il est impossible d'expliquer la fission de noyaux tels que l'Uranium.

La simplicité de ce modèle n'en a pas empêché son succès, il est d'ailleurs remarquable de constater que les estimations faites par Bohr et Wheeler quant aux hauteurs des barrières de fission sont d'un point de vue quantitatif tout à fait réalistes.

Ce modèle a depuis bénéficié de nombreuses améliorations qui lui permettent ainsi d'être la base de plusieurs modèles récents, comme par exemple le "Finite Range Drop Model" qui est développé à Los Alamos [13].

Cependant le modèle de la goutte liquide est loin de reproduire les résultats expérimentaux. En effet il prédit une probabilité de fission symétrique beaucoup trop importante pour tous les noyaux, alors que la plupart d'entre eux fissionnent en général de manière asymétrique.

Les lacunes de ce modèle viennent notamment du fait que les effets de couche persistent lors de la déformation des noyaux mais qu'ils ne sont pas pris en compte dans ce modèle.

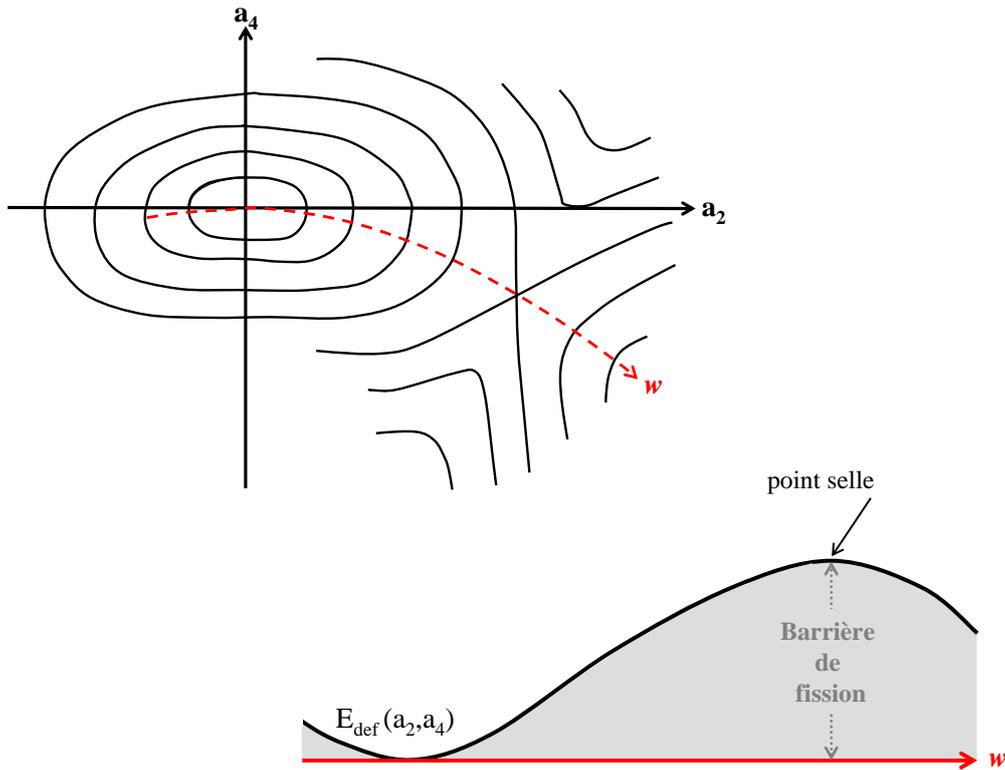


FIG. 2.3 – Mise en évidence de l'existence d'une barrière de fission pour des valeurs de fissilité < 1 .

La figure du haut représente la variation de l'énergie de déformation en fonction des paramètres a_2 et a_4 , alors que la figure du bas représente cette variation obtenue par minimisation de l'énergie potentielle de déformation.

2.2.2 Modèle de Strutinsky

Le modèle de Strutinsky est une extension du modèle de la goutte liquide. Il incorpore dans ce dernier les effets de la structure en couche des nucléons lors de la déformation de la matière nucléaire. Il propose ainsi en 1967 une méthode simple pour prendre en compte les effets de structure dans l'énergie de liaison et de déformation des noyaux [14, 15]. Pour cela, le noyau est considéré comme une goutte liquide incompressible et chargée à l'exception des nucléons des couches supérieures. On parle donc d'un modèle microscopique-macroscopique.

L'énergie totale de déformation pour un noyau à N particules s'écrit alors comme la somme de deux composantes :

$$E = E_{LDM} + \delta U \quad (2.2)$$

où E_{LDM} représente l'énergie du noyau calculée selon le modèle de la goutte liquide et δU la correction de couche :

$$\delta U = U - \tilde{U}$$

avec

$$U = \sum_{\nu} 2n_{\nu} \epsilon_{\nu}$$

l'énergie totale d'un noyau calculée selon le modèle des particules indépendantes. Le terme n_ν représente le nombre des états occupés d'énergie ϵ_ν .

$$\tilde{U} = 2 \int_{-\infty}^{\tilde{\lambda}} \epsilon \tilde{g}(\epsilon) d\epsilon$$

l'énergie totale du noyau calculée selon le modèle des particules indépendantes mais pour lequel les niveaux d'énergie sont remplacés par une densité de niveaux $\tilde{g}(\epsilon)$.

Cette densité de niveaux représente une moyenne sur les niveaux d'énergie estimée à l'aide d'une gaussienne de largeur γ de l'ordre de 10 MeV :

$$\tilde{g}(\epsilon) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\gamma} \sum_{\nu} \exp[-(\epsilon - \epsilon_\nu)^2/\gamma^2]$$

Elle est définie de l'état fondamental jusqu'au niveau $\tilde{\lambda}$, avec $\tilde{\lambda}$ défini par

$$N = \int_{-\infty}^{\tilde{\lambda}} \tilde{g}(\epsilon) d\epsilon$$

N le nombre total de particules.

Le terme δU permet donc de prendre en compte les effets associés à la structure locale des niveaux d'énergie des nucléons. De la même manière une correction δP sur les effets de parité peut être prise en compte. L'énergie totale de déformation s'écrit alors de la façon suivante (équation 2.3) :

$$E = E_{LDM} + \delta U + \delta P \quad (2.3)$$

La prise en compte de ces effets dans l'étude de la fission des noyaux a permis de mettre en évidence des barrières de fission à deux bosses, qui expliquent l'existence d'isomères de fission, figure 2.4.

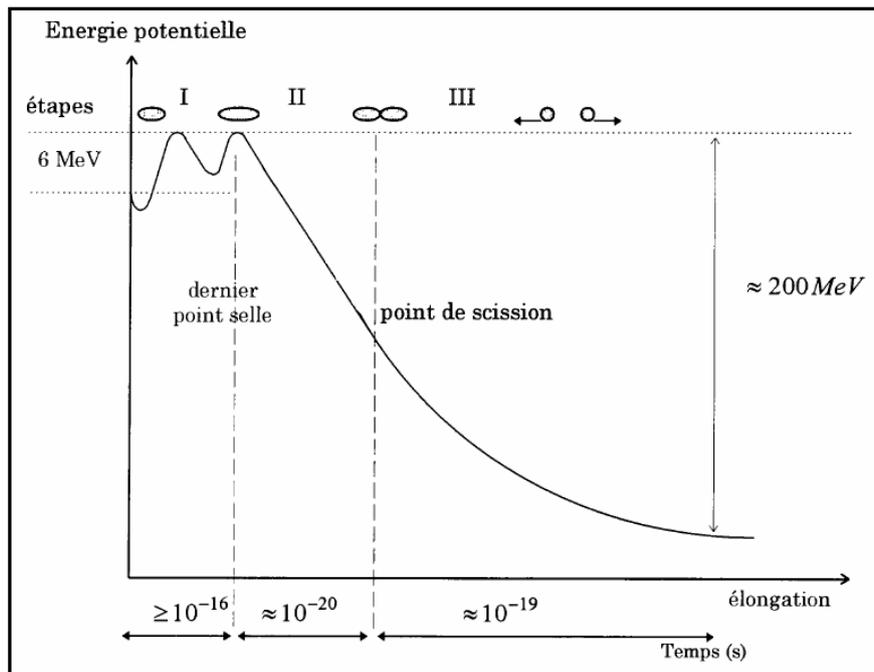


FIG. 2.4 – Barrière de fission pour un noyau d'actinide [11].

2.2.3 “Finite range liquid-drop model”

De la même manière que dans le modèle de Strutinsky, le “finite range liquid-drop model” est un modèle microscopique-macroscopique développé au Laboratoire National de Los Alamos [16] qui considère le noyau comme une goutte liquide à laquelle s’ajoute des corrections de couches [13, 17]. La surface d’énergie potentielle est décrite selon cinq paramètres : l’élongation (Q_2), l’asymétrie de masse ($\alpha_g = \frac{M_1 - M_2}{M_1 + M_2}$, avec M_1 et M_2 les masses des fragments naissants), les déformations des fragments gauche et droit (ε_1 et ε_2 respectivement), et le diamètre du col (d), figure 2.5. Dans ce modèle le noyau fissionnant évolue entre deux configurations limites qui correspondent la première à l’état fondamental du noyau et la seconde à la scission de celui-ci représentée par deux fragments adjacents.

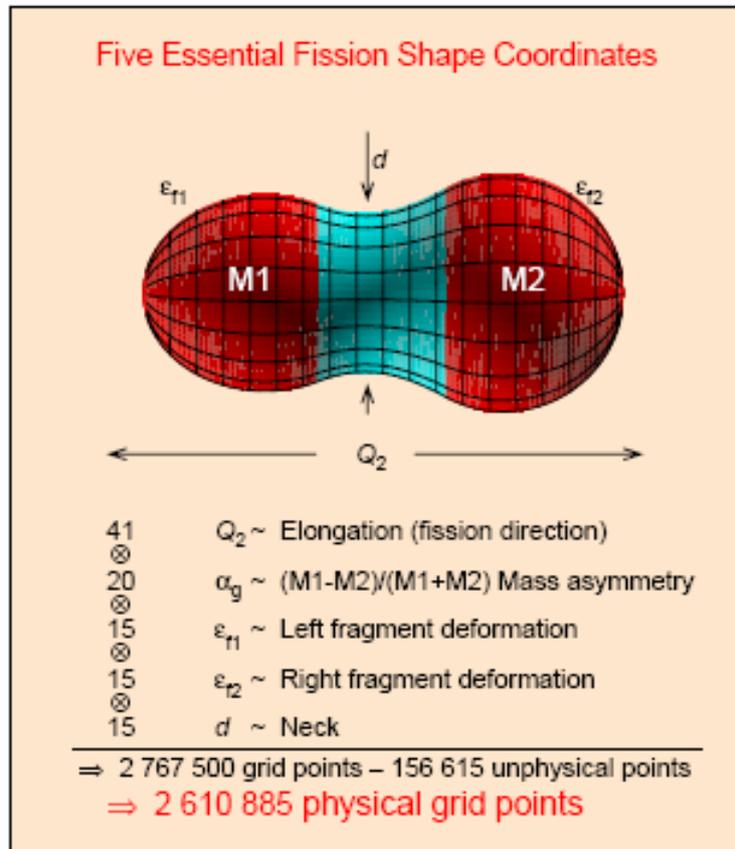


FIG. 2.5 – Paramétrisation d’un noyau selon les cinq paramètres du “finite range liquid-drop model” [18].

Les différentes couleurs indiquent les trois différentes surfaces prises en compte dans les calculs.

Les produits tensoriels des points pour les cinq espaces à une dimension montrent qu’il y a 2 767 500 points à considérer sur la grille. Cependant un certain nombre de ces points correspondent à des cas non-physique (156 615). Au final il est donc nécessaire de prendre en compte de 2 610 885 points qui ont une signification physique sur la grille.

Dans le paysage énergétique à cinq dimensions du noyau fissionnant, le point de scission est difficile à déterminer. Il correspond à la vallée la plus basse. Pour la déterminer, un algorithme développé par le groupe de Los Alamos permet de repérer les minima locaux et défini ainsi les voies de fission les plus probables [19, 20]. Par cette méthode le point de scission peut être déterminé très précisément. Ce modèle est également à même de calculer les masses moyennes des pics légers et lourds pour différents systèmes fissionnant

(figure 2.6). En revanche il ne peut pas prédire la distribution totale des rendements en masse (valeurs moyennes et largeurs de distribution) car il ne prend pas en compte la dynamique du processus de fission.

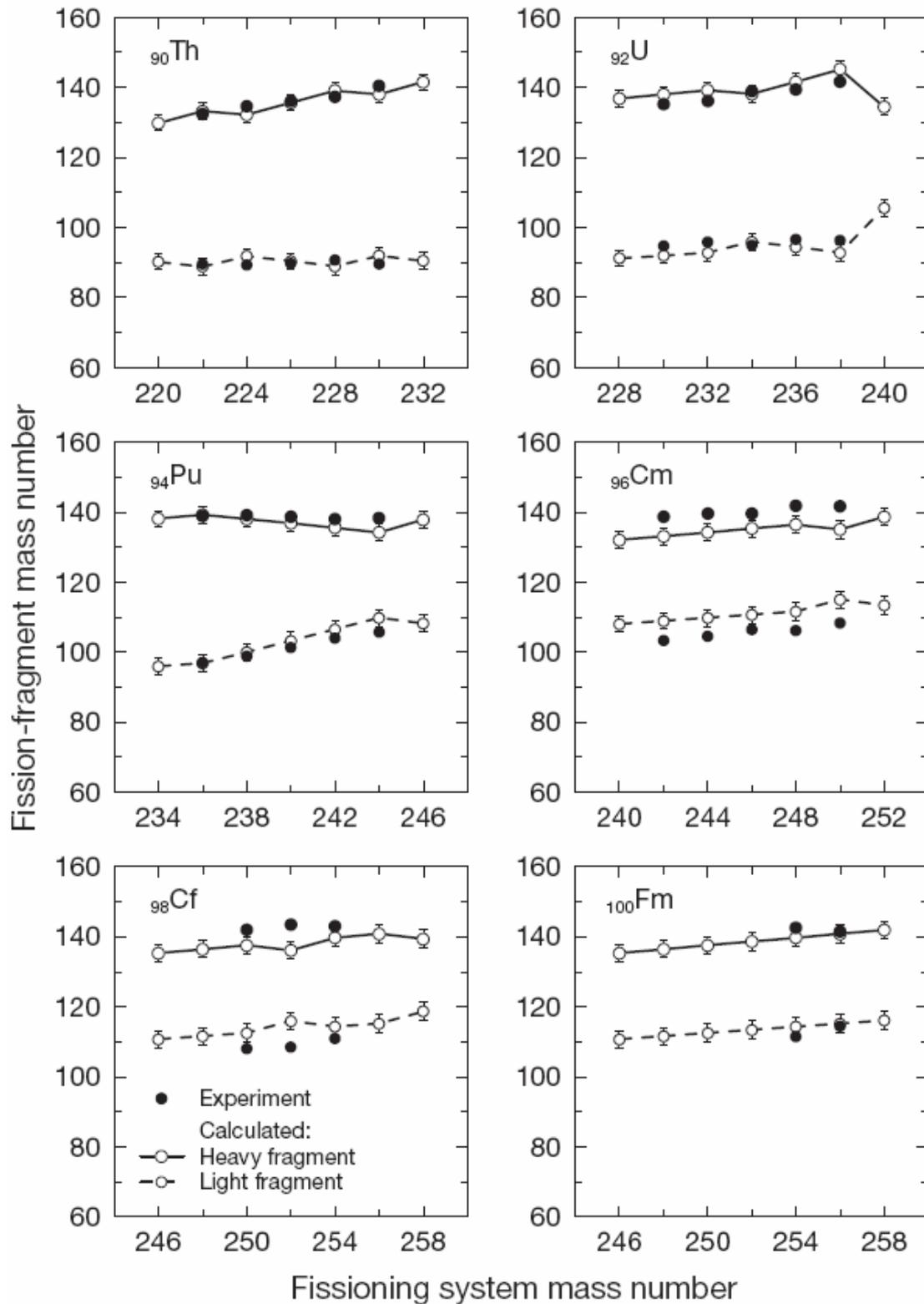


FIG. 2.6 – Masses moyennes pour la fission asymétrique calculée selon le “finite range liquid-drop model” [16].

2.2.4 Modèle de Brosa

Le “*multi-modal random neck-rupture*”, ou modèle de Brosa, vise à reproduire les distributions en masse pour la fission à basse énergie [21, 22]. Pour cela, les variations de l'énergie potentielle en fonction de la déformation du système sont calculées de l'état fondamental jusqu'au point de scission.

Le noyau fissionnant est décrit comme une goutte liquide avec les 5 paramètres de la représentation de Lawrence (figure 2.7). Ses coordonnées cylindriques sont :

$$\rho^2(\zeta) = (l^2 - \zeta^2) \sum_{n=0}^N a_n (\zeta - z)^2 \quad (2.4)$$

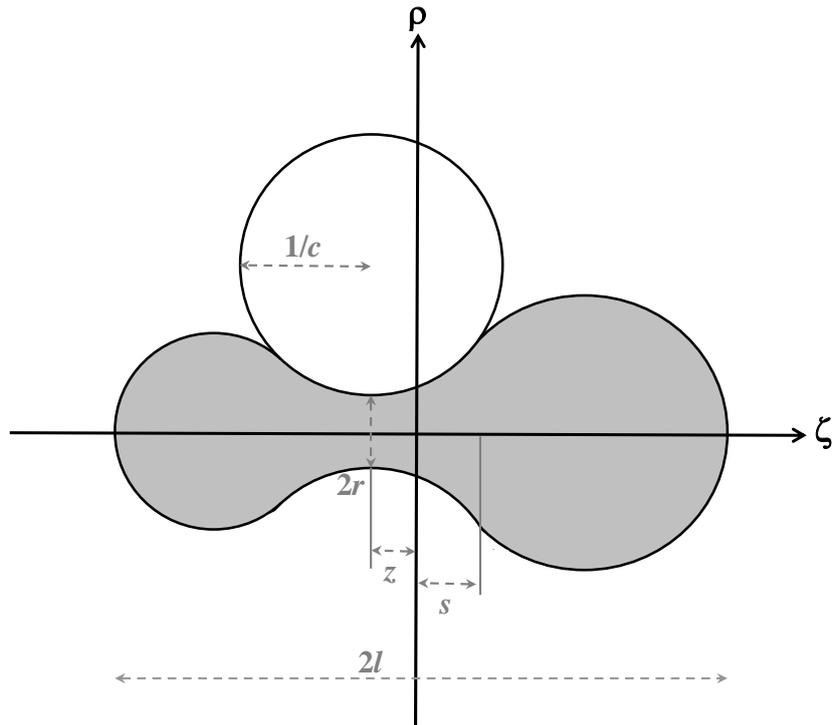


FIG. 2.7 – Représentation d'un noyau selon les paramètres de Lawrence. La moitié de la longueur du noyau est notée l , r correspond au rayon du cou, z à sa position et c à sa courbure. La position du centre de masse est indiquée par la distance axe ρ/s .

L'énergie potentielle de déformation de ce système est égale à la somme d'un terme provenant du modèle de la goutte liquide (E_{LDM}) avec un second terme (E_{shell}) qui prend en compte les corrections du modèle en couche de Strutinsky (équation 2.5) :

$$E = E_{LDM} + E_{shell} \quad (2.5)$$

Dans ce modèle le terme E_{LDM} est calculé selon les équations de Myers-Swiatecki [23] alors que les corrections de couche sont prises en compte par le potentiel à une particule de Wood-Saxon. Dans ce paysage énergétique le chemin de fission est défini comme étant les trajectoires d'énergie minimum qui relient l'état fondamental du noyau au point de scission. Il apparaît le long de cette trajectoire des points de bifurcation qui permettent au noyau d'emprunter plusieurs chemins différents appelés mode de fission. Ceci implique alors l'existence de plusieurs configurations du noyau au point de scission. U. Brosa a ainsi mis en évidence trois principaux modes de fission apparaissant pour la plupart des

noyaux. Les modes **standard I** et **standard II** correspondent tous les deux à une fission asymétrique. Le mode **standard I** est, pour le pic lourd, représenté par une gaussienne centrée sur le noyau de masse (fermeture de couche $Z = 50$ et $N = 82$). Le pic léger sera donc centré sur la masse complémentaire de la masse 132 pour le système fissionnant considéré. C'est un mode dit à haute énergie cinétique, contrairement au mode **standard II** qui favorise les fissions de faible énergie. La gaussienne du pic lourd correspondante à ce mode est centrée autour des noyaux de $N = 88$ (fermeture de couche déformée).

Plus l'énergie cinétique des fragments augmente et plus la contribution des termes de corrections de couches diminue. C'est pourquoi les fissions symétriques, décrites par le mode **Super-long**, sont calculées quasiment exclusivement par le modèle de la goutte liquide.

Les rendements ainsi que les énergies cinétiques moyennes sont déterminées par la somme de ces différentes contributions pondérées par leur poids.

Les figures 2.8 montrent la distribution en masse de l' $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ calculée avec le modèle de Brosa (courbes) et comparée avec des valeurs expérimentales (points).

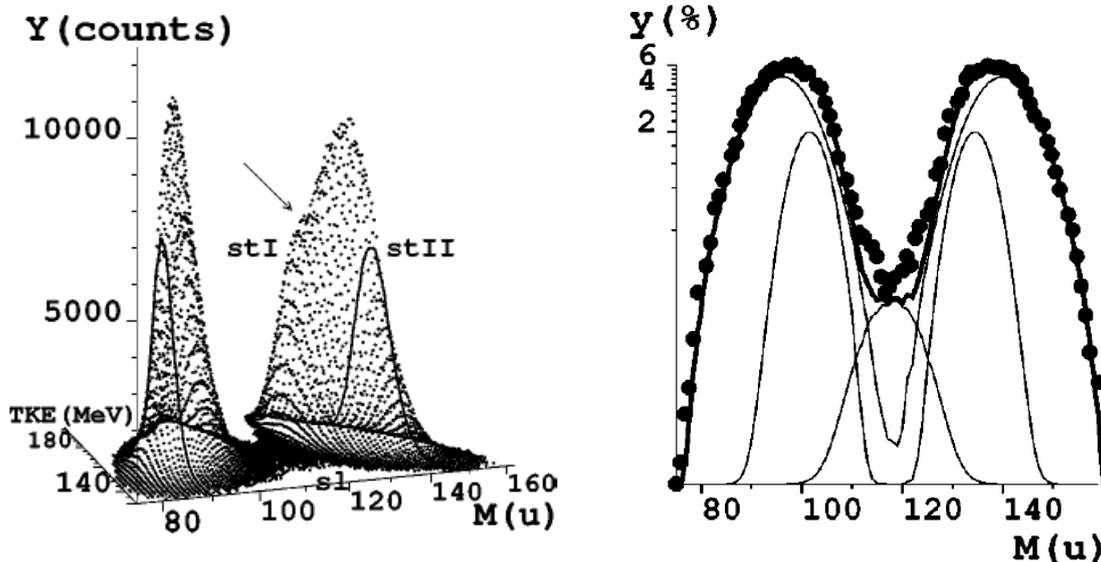


FIG. 2.8 – Rendements des fragments de fission pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$. Les modes standard I, standard II et superlong calculés selon le modèle de Brosa sont représentés par les courbes continues en noir [24]. Les points en noir représentent des valeurs expérimentales.

On peut remarquer que la forme générale des distributions est très bien reproduite par ces calculs.

2.2.5 Modèle de Wilkins

Le modèle de Wilkins est aussi connu sous le nom de *modèle thermodynamique du point de scission*. Il permet de déterminer la distribution des fragments de fission en fonction de leur énergie potentielle au point de scission. Pour cela il s'appuie sur l'hypothèse forte d'un état de quasi-équilibre du système au niveau du point de scission. Cette hypothèse impose alors que le processus de fission soit un processus lent ce qui implique également une faible dissipation de l'énergie. Le terme d' "état de quasi-équilibre" signifie qu'il existe un équilibre entre les degrés de liberté collectifs des fragments naissants et les degrés de liberté individuels. Dans ce modèle les distributions en masse des fragments de fission sont

supposées être entièrement définies au point de scission. Ce qui se passe entre le point selle et le point de scission n'a donc aucune influence sur les rendements des fragments puisque la forme de ces distributions a été décidée à la scission. A ce moment là les fragments sont décrits comme deux sphéroïdes coaxiaux de déformations β_1 et β_2 séparées par une distance d et soumis à une influence mutuelle. L'énergie potentielle totale de ce système au point de scission est alors la somme de l'énergie potentielle de chaque fragment à laquelle s'ajoute un terme d'énergie coulombienne et d'énergie nucléaire :

$$\begin{aligned}
V(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, T_{int}, d) = & \\
\sum_{i=1}^2 V_{LDM_i}(N_i, Z_i, \beta_i) + S_i(N_i, \beta_i, T_{int}) + S_i(Z_i, \beta_i, T_{int}) + P_i(N_i, \beta_i, \tau) + P_i(Z_i, \beta_i, T_{int}) & \\
+ V_c(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, d) & \\
+ V_n(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, d) & \quad (2.6)
\end{aligned}$$

L'énergie potentielle pour chaque fragment $V(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, T_{int}, d)$ correspond à la somme des termes suivant :

- V_{LDM} : terme collectif calculé d'après le modèle de la goutte liquide en fonction de la déformation des fragments ;
- S : terme de correction des effets de couches pour les protons ($S_i(Z_i, \beta_i, T_{int})$) et les neutrons ($S_i(N_i, \beta_i, T_{int})$) calculé à partir de la méthode de Strutinsky ;
- P : terme de parité des nucléons pour chaque fragment. Ce terme relatif à l'énergie dite de pairing est calculé à partir de la méthode de Moretto [25].

L'interaction coulombienne est donnée par $V_c = \frac{Z_1 Z_2 e^2 F}{D}$.

F , le facteur de forme, représente la différence entre l'interaction coulombienne de deux sphéroïdes uniformément chargés et celle de deux charges ponctuelles séparées par une distance D .

L'interaction nucléaire V_n décrit les interactions entre ces deux sphéroïdes, elle est calculée selon Krappe [26].

La fragmentation la plus probable pour ce modèle correspond à celle qui minimise l'énergie potentielle (équation 2.6) au point de scission. Les probabilités relatives des différentes configurations pour les fragments de fission sont données à partir du facteur de Boltzman :

$$P(N, Z, \tau, d) = \int_{\beta_1=0}^{\beta_{max}} \int_{\beta_2=0}^{\beta_{max}} \exp^{-\frac{V(N, Z, \beta, \tau, d)}{T_{coll}}} d\beta_1 d\beta_2$$

Le couplage entre les excitations collectives est décrit par le terme T_{coll} . Cette température caractérise l'équilibre entre les différents degrés de liberté collectifs et a pour valeur 1 MeV pour toutes les fragmentations de tous les systèmes fissionnant à basse énergie. De la même manière est définie une température intrinsèque T_{int} qui détermine la population des niveaux de particules individuels. Wilkins lui a donné la valeur de 0,75 MeV dans le but de reproduire la dépendance des distributions par rapport à l'énergie d'excitation. Pour faciliter les calculs, ces deux températures sont considérées comme constantes.

Le modèle de Wilkins considère ainsi un couplage intermédiaire entre les degrés de liberté des états purement collectifs et de ceux purement individuels. Les valeurs de ces deux

températures peuvent être prises constantes, mais doivent être différentes ($T_{coll} = T_{int}$: équilibre statistique) avec impérativement $T_{int} \neq 0$ (modèle adiabatique).

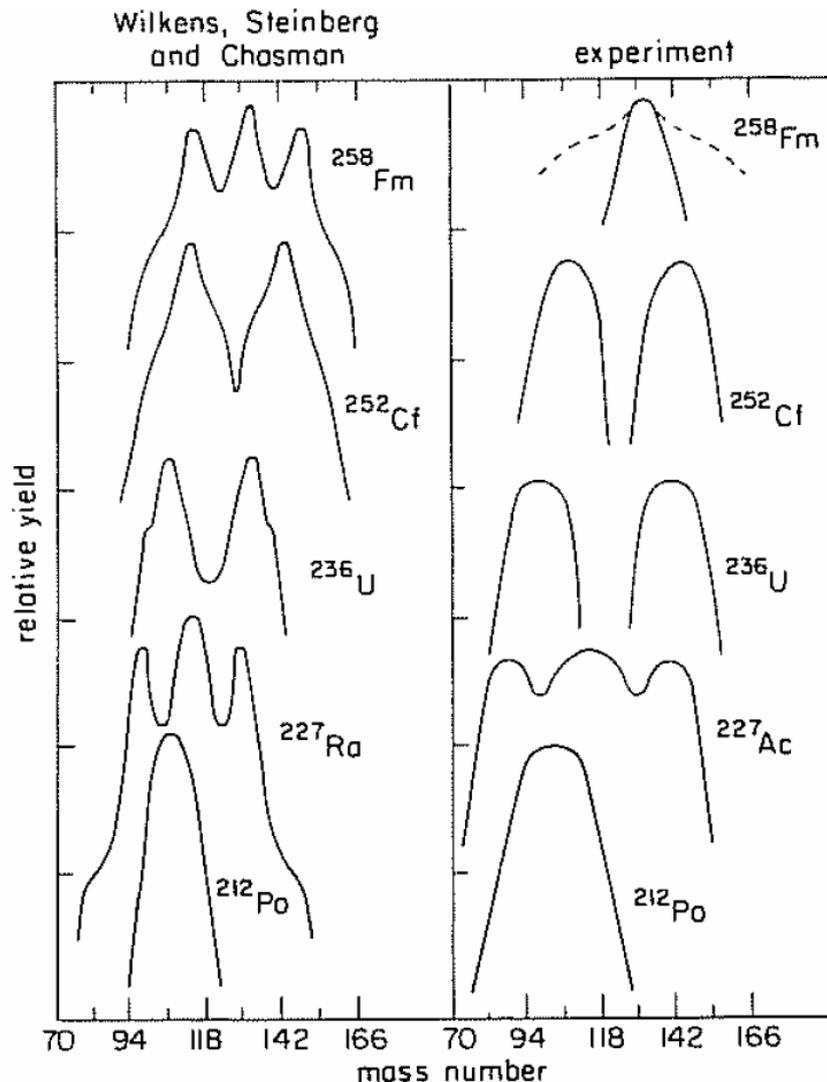


FIG. 2.9 – Distributions en masse pour la fission thermique calculée par le modèle de Wilkins à gauche et données expérimentales à droite, [27].

La figure 2.9 compare les rendements en masse du Polonium jusqu'au Fermium calculés par le modèle de Wilkins avec des résultats expérimentaux. Même si ce modèle ne cherche pas à ajuster ses différents paramètres en fonction des valeurs expérimentales, on peut toutefois remarquer sur la figure 2.9 que l'allure générale des distributions en masse est bien reproduite. Ce modèle reproduit par exemple très bien la stabilité du pic lourd autour de la masse 140 (fermeture de couche déformée : $N=88$, $Z=50$). Il en va de même pour les distributions en charge et en énergie cinétique moyenne. En revanche, les structures plus fines des distributions sont mal reproduites. Les rendements calculés présentent des distributions trop étroites et les positions des pics asymétriques ne sont pas toujours exactes. De même, le rapport pic/vallée est sous-estimé. Les erreurs sur les corrections de couches, les valeurs des déformations multipolaires pas assez précises, ou bien encore les incertitudes sur les paramètres du modèle de la goutte liquide peuvent expliquer les différences par rapport à l'expérience de la position des pics légers et lourds des fragments de fission. De plus une mauvaise estimation des paramètres d et T_{coll} vont avoir une

influence directe sur les largeurs des distributions, et par conséquent également sur les rapports pic/vallée.

Cependant, malgré ces défauts, le modèle de Wilkins reste encore aujourd'hui le modèle le plus utilisé pour prédire les distributions des fragments de fission.

2.2.6 Modèle de Bruyères-le-Châtel

Le modèle de Bruyères-le-Châtel tend à reproduire les distributions en masse des fragments de fission, les corrections de pairs, l'énergie de déformation des fragments, l'émission des neutrons prompts ainsi que les énergies cinétiques moyennes des fragments avant et après émission des neutrons prompts pour la fission à basse énergie [28].

La fission est pour cela décrite à l'aide d'un formalisme microscopique et est considérée comme dépendante du temps [29].

Dans un premier temps, la surface d'énergie potentielle du noyau fissionnant entre le premier puit de potentiel et le point de scission est déterminée en fonction des degrés de liberté de déformation (variables collectives q_{20} pour exprimer l'élongation et q_{30} pour l'asymétrie). Cette surface énergétique est déterminée par des calculs Hartree-Fock-Bogoliubov avec la force effective de Gogny [30]. La figure 2.10 représente la surface d'énergie potentielle du noyau d' ^{238}U calculée avec cette méthode.

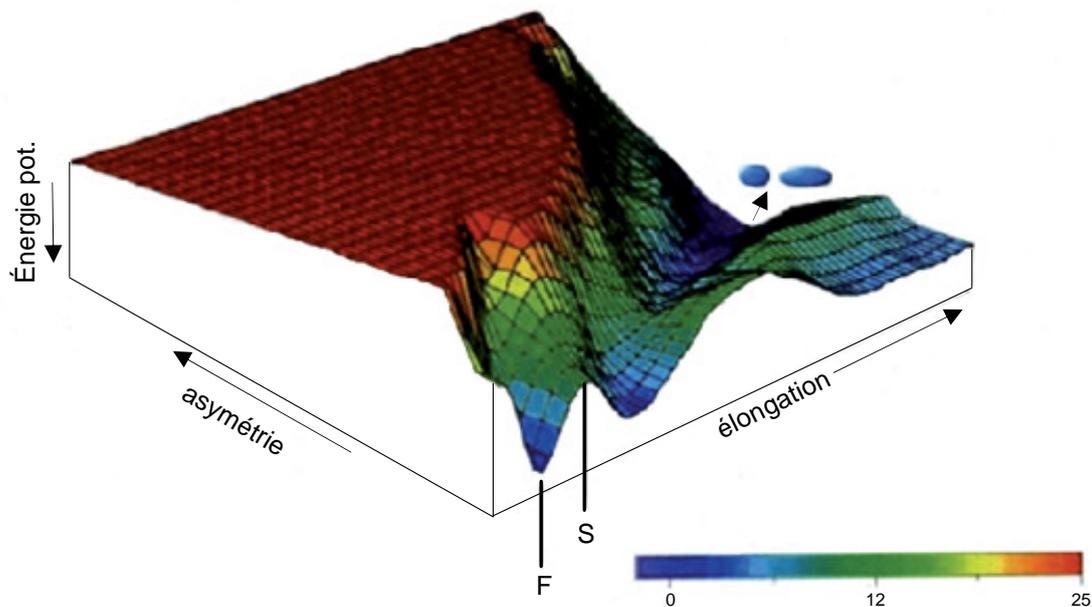


FIG. 2.10 – Surface d'énergie potentielle calculée pour un noyau d' ^{238}U selon le modèle de Bruyères-le-Châtel [31].

Le traitement dynamique de la fission est ensuite effectué selon la méthode de la coordonnée génératrice dépendante du temps à l'approximation du recouvrement gaussien (TGGCM + GOA). Cette méthode permet de simplifier la séparation des variables collectives et intrinsèques dans la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps [32].

Ce modèle présente le grand avantage de proposer un traitement dynamique de la fission, et même s'il est encore aujourd'hui loin de reproduire les rendements de fission de nombreux actinides (figure 2.11), il reste un modèle très prometteur.

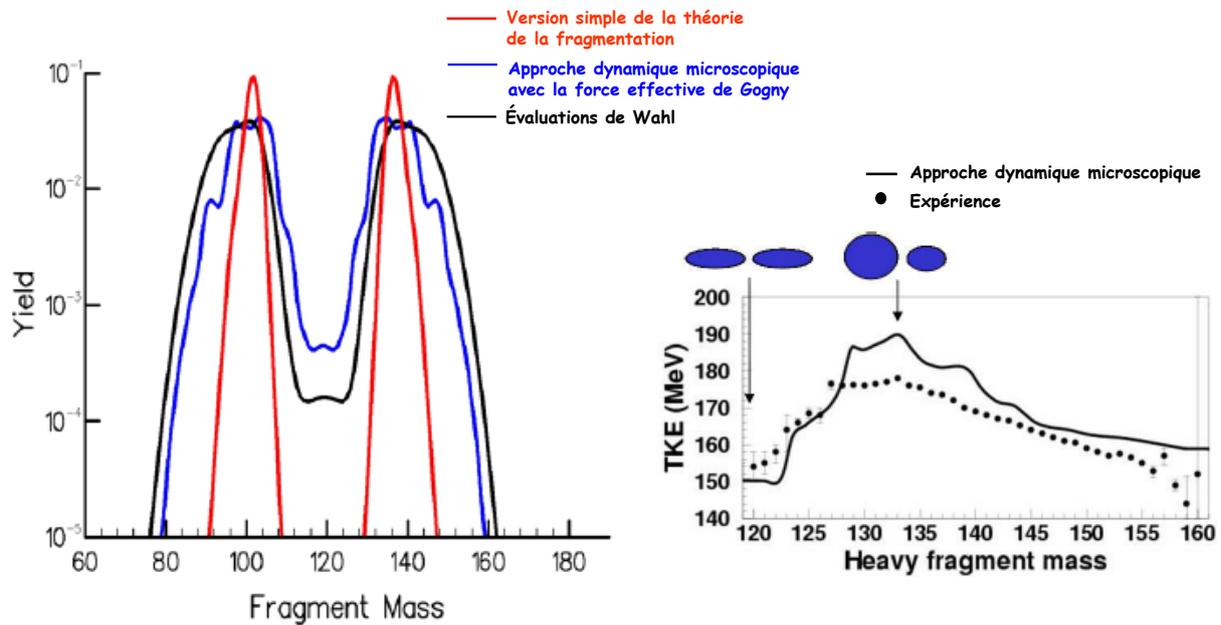


FIG. 2.11 – Distribution en masse et énergies cinétiques moyennes pour le système fissionnant ^{238}U calculées selon le modèle de Bruyères-le-Châtel [31].

2.2.7 Modèle semi-empirique de Wahl

Depuis sa découverte en 1939, la fission a fait l'objet de nombreuses études et les distributions en masse et charge nucléaire d'un grand nombre de noyaux ont été mesurées. Tous ces résultats ont permis de mettre en exergue certaines propriétés redondantes de la fission nucléaire, dont les deux principales sont énumérées ci-dessous :

- La fission reste dans la plupart des cas un processus binaire, c'est à dire que le noyau fissionnant se divise uniquement en deux fragments. Cependant la fission ternaire n'est pas totalement négligeable puisqu'elle représente 0,2 à 0,4% de la fission binaire. Dans 90% des cas de la fission ternaire, le troisième fragment se révèle être une particule α . C'est seulement dans un peu plus de 7% des cas que l'on trouve un troisième noyau plus lourd.
- Le rapport N/Z est pratiquement conservé entre le noyau fissionnant et les fragments, c'est l'hypothèse de la conservation de la densité de charge UCD ("unchanged charge density"). Néanmoins comme les fragments de fission sont beaucoup plus légers que le noyau père, ils vont peupler la zone des noyaux très riches en neutrons, ayant en moyenne un excédent de 6 neutrons par rapport à leur isotope le plus stable.

Partant de toutes ces données, A. Wahl a développé autour des années 90 deux modèles cherchant, l'un à prédire les distributions en charge nucléaire (le modèle Z_p) [33], l'autre à prédire les distributions en masse (le modèle A_p).

Modèle Z_p

Pour un noyau de masse A et de charge nucléaire Z , la méthode Z_p consiste à calculer les rendements indépendants par la formule :

$$Y_Z(A, Z) = \frac{1}{2} F(A) \cdot N(A) \cdot [\text{erf}(V) - \text{erf}(W)] \quad (2.7)$$

erf étant la fonction erreur définie par : $\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp^{-t^2} dt$

- Les termes V et W représentent des distributions en charges nucléaires gaussiennes de largeur σ_Z et de maximum Z_p :

$$\begin{cases} V = \frac{Z(A) - Z_p(A) + 0,5}{\sigma_Z(A) \sqrt{2}} \\ W = \frac{Z(A) - Z_p(A) - 0,5}{\sigma_Z(A) \sqrt{2}} \end{cases} \quad (2.8)$$

Dans ce modèle, les données évaluées des rendements pour les pics légers et lourds sont analysées par la méthode des moindres carrés. Pour une masse A donnée, la distribution des charges nucléaires est représentée par une gaussienne. Les valeurs ainsi obtenues sont comparées aux valeurs calculées avec l'hypothèse de la conservation de la densité de charge :

$$Z_{UCD} = A' \left(\frac{Z_{C.N.}}{A_{C.N.}} \right)$$

On aura de même pour les masses :

$$A'_{UCD} = Z \left(\frac{Z_{C.N.}}{A_{C.N.}} \right)$$

On obtient ainsi les équations suivantes, avec les indices H et L qui signifient que l'on considère tantôt le fragment lourd (*Heavy*), tantôt le fragment léger (*Light*) :

$$\Delta Z = (Z_p - Z_{UCD})_H = (Z_p - Z_{UCD})_L \quad (2.9)$$

et de même pour les masses :

$$\Delta A' = (A'_p - A'_{UCD})_H = (A'_p - A'_{UCD})_L \quad (2.10)$$

Les valeurs de $Z_p(A)$ sont calculées d'après l'équation 2.9.

- Le coefficient $F(A)$ permet d'introduire les corrections dues aux effets de parité entre le nombre de protons et de neutrons qui sont la cause de variations locales par rapport à la gaussienne initiale. Ses valeurs sont données dans le tableau 2.1.

| proton | neutron | $F(A)$ |
|--------|---------|--|
| pair | pair | $\overline{F}_Z \cdot \overline{F}_N$ |
| pair | impair | $\overline{F}_Z / \overline{F}_N$ |
| impair | pair | $\overline{F}_N / \overline{F}_Z$ |
| impair | impair | $(\overline{F}_Z \cdot \overline{F}_N)^{-1}$ |

TAB. 2.1 – Valeurs de $F(A)$ selon la parité des neutrons et des protons.

Avec \overline{F}_Z le facteur correctif de parité pour les protons, et \overline{F}_N celui pour les neutrons. Un exemple de leurs valeurs est donné dans le tableau 2.2.

| Isotopes | \bar{F}_Z | \bar{F}_N |
|---|-------------|-------------|
| $^{232}\text{Th}(\text{n}_{rap}, \text{f})$ | 1,25 | 1,08 |
| $^{233}\text{U}(\text{n}_{th}, \text{f})$ | 1,30 | 1,07 |
| $^{233}\text{U}(\text{n}_{rap}, \text{f})$ | 1,10 | 1,05 |
| $^{235}\text{U}(\text{n}_{th}, \text{f})$ | 1,26 | 1,07 |
| $^{235}\text{U}(\text{n}_{rap}, \text{f})$ | 1,15 | 1,05 |
| $^{238}\text{U}(\text{n}_{rap}, \text{f})$ | 1,10 | 1,05 |
| $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th}, \text{f})$ | 1,07 | 1 |
| $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{rap}, \text{f})$ | 1 | 1 |
| $^{240}\text{Pu}(\text{n}_{rap}, \text{f})$ | 1 | 1 |
| $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th}, \text{f})$ | 1 | 1 |
| $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{rap}, \text{f})$ | 1 | 1 |
| $^{242}\text{Pu}(\text{n}_{rap}, \text{f})$ | 1 | 1 |

TAB. 2.2 – Tableau récapitulatif des valeurs de \bar{F}_Z et \bar{F}_N prises pour 12 systèmes fissiles étudiés [34].

- $N(A)$ est un facteur de normalisation. Il est différent de 1 lorsque $F(A)$ est lui-même différent de 1.

C'est par la méthode des moindres carrés qui est déterminée la valeur de tous les paramètres de ce modèle : ΔZ , $\sigma Z(A)$, \bar{F}_N , \bar{F}_Z , ...

Modèle A'_p

Les équations de ce modèle sont de la même forme que celles du modèle précédent, mais considèrent les distributions de masse autour d'une valeur moyenne de A :

$$Y_N(A, Z) = \frac{1}{2} Y(Z) F_N(Z) \cdot N(Z) \cdot [\text{erf}(V_A) - \text{erf}(W_A)]$$

On remarque que la valeur de $Y(Z)$ est nécessaire au calcul des rendements en masse alors qu'elle ne l'était pas pour les rendements isotopiques. Elle doit être la même pour tous les produits de fission complémentaires ($Z_H + Z_L = Z_{CN}$).

Les équations du système 2.8 deviennent dans ce cas :

$$\begin{cases} V_A = \frac{A'(Z) - A'_p(Z) + 0,5 + \delta}{\sigma_{A'}(Z) \sqrt{2}} \\ W_A = \frac{A'(Z) - A'_p(Z) - 0,5 - \delta}{\sigma_{A'}(Z) \sqrt{2}} \end{cases} \quad (2.11)$$

Pour ce modèle, le terme de correction des effets de paires $F_N(Z)$ ne prend en compte que la parité des neutrons. Il est égal à \bar{F}_N dans le cas d'un nombre pair de neutron, et à $1/\bar{F}_N$ pour le cas contraire.

Ainsi que dans le modèle précédent, un terme de normalisation $N(Z)$ est nécessaire pour obtenir les rendements des deux fragments complémentaires égaux, puisque le terme correctif qui est associé à la correction des effets de parité change la normalisation des gaussiennes.

2.3 Méthode de mesures de rendements

A défaut de disposer de modèles prédictifs fiables et face à l'important besoin de données nucléaires, un grand nombre de mesures ont été entreprises pour déterminer les propriétés de la fission nucléaire. Cependant les applications nucléaires sont de plus en plus exigeantes quant à la précision des données, et les nouvelles générations de réacteurs repoussent continuellement les limites des connaissances. C'est pourquoi encore aujourd'hui les mesures nucléaires sont indispensables et ne cessent de s'améliorer.

Ce paragraphe présente brièvement les principales méthodes expérimentales utilisées pour déterminer les rendements de fission.

2.3.1 Mesures de radiochimie

La détermination par radiochimie des rendements de fission est la méthode la plus ancienne pour ce type de mesure [27].

Le principe de cette méthode consiste à dissoudre un échantillon de matière fissible irradié afin de pouvoir séparer par des méthodes chimiques les différents isobares. La distribution isotopique des produits de fission est ensuite établie par des mesures de radioactivité β et γ . Cette méthode reste donc tributaire des connaissances en cours des données de décroissance (besoin de connaître les temps de vie, les énergies de désexcitation et les rapports d'embranchement de la désintégration β^- de chaque noyau) [35]. La mesure des noyaux non émetteurs de γ ou de β n'est donc pas possible avec cette méthode. Cependant ces deux problèmes sont récurrents à toutes les méthodes qui reposent sur la mesure des rayonnements de décroissance pour la détermination des rendements.

Néanmoins les principales limites de ces mesures viennent du temps nécessaire à la séparation chimique des différents noyaux. Elle peut être très rapide (quelques secondes) mais varie selon l'élément sélectionné.

Malgré cela la détermination des rendements de fission par des mesures de radiochimie reste une méthode très intéressante, d'une part à cause de la précision de ces mesures, mais aussi parce qu'elles permettent de mesurer les produits de fission à faible rendement.

2.3.2 Mesures par activation

La méthode par activation permet de déterminer les rendements isotopiques indépendants des produits de fission. Au cours de ces mesures l'échantillon de matière fissile est irradié pendant un certain temps. Les γ issus de la décroissance radioactive des produits de fission sont ensuite mesurés. Afin de pouvoir déterminer le rendement de tous les noyaux qui peuvent avoir des temps de vie très différents, cette opération est répétée plusieurs fois en faisant varier les temps d'irradiation de l'échantillon [27].

Cette méthode présente deux avantages majeurs. Tout d'abord peu de matière fissile est nécessaire pour ces mesures. Elles sont donc préconisées pour l'étude des noyaux exotiques pour lesquels il est difficile de se procurer des échantillons qui en plus coûtent très cher. Elle permet enfin de déterminer la distribution totale des rendements de façon relativement rapide.

Même si les incertitudes associées à ces mesures ne peuvent pas être inférieures à 5%, ces expériences sont toujours très répandues.

2.3.3 Mesures par chambre à fission

Les mesures par chambre à fission consistent à détecter simultanément les deux produits de fission (léger et lourd) en plaçant directement dans une chambre deux systèmes

de détection de part et d'autre d'une cible de matière fissile.

Grâce aux lois de conservation des moments ces expériences permettent d'évaluer les rendements de fission ainsi que les énergies cinétiques des fragments avant l'évaporation des neutrons prompts.

Pour cela deux différents types d'expériences sont possible :

La méthode de la double énergie. Les énergies des deux fragments complémentaires sont mesurées simultanément à l'aide de détecteurs (détecteurs à barrière de surface ou chambre à ionisation) placés près de la cible pour optimiser l'angle solide de détection. Les relations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement permettent alors de remonter aux distributions en masse et en énergie cinétique des fragments de fission.

La méthode du double temps de vol, qui permet de mesurer les temps de vol des deux fragments complémentaires. Les rendements et les énergies cinétiques moyennes des fragments sont alors déterminés par la mesure de la vitesse des produits de fission. Contrairement à l'énergie cinétique des produits de fission, leur vitesse dans le laboratoire varie très peu après l'émission des neutrons prompts. Cette méthode est donc plus précise que la précédente, mais elle présente l'inconvénient de nécessité des bases de temps de vol conséquentes pour être précise.

Ces méthodes nécessitent toutes les deux des cibles très fines afin de ne pas altérer la distribution en énergie cinétique des produits de fission.

Pour la fission à basse énergie, la loi de conservation des moments s'écrit de la forme suivante (équations 2.12) :

$$\begin{cases} A'_1 + A'_2 = A_{NC} \\ A'_1 \cdot E'_{k1} = A'_2 \cdot E'_{k2} \end{cases} \Rightarrow A'_1 = \frac{A_{NC}}{1 + \frac{E'_{k1}}{E'_{k2}}} \quad (2.12)$$

A'_1 et A'_2 , E'_{k1} et E'_{k2} représentent les masses et les énergies cinétiques des fragments 1 et 2 de fission.

Cependant parce que ce sont les énergies cinétiques des produits de fission qui sont mesurées, il faut les corriger de l'évaporation des particules promptes.

En effet, une partie de l'énergie totale des fragments est dissipée par l'émission des neutrons prompts. Le nombre moyen de neutrons évaporés ($\bar{\nu}$) dépend de la masse du fragment de fission A' , de son énergie d'excitation et de l'énergie cinétique totale (TKE) [36] (équation 2.13).

$$\nu(A, TKE) = \bar{\nu}(A) + \frac{\bar{\nu}(A)}{\bar{\nu}(A) + \bar{\nu}(A_{NC} - A)} \cdot \frac{\langle TKE(A) \rangle - \langle TKE \rangle}{E_{sep}} \quad (2.13)$$

$E_{sep} = 8,6 \text{ MeV}$, elle correspond à l'énergie nécessaire par les fragments pour émettre un neutron [37].

L'énergie du produit de fission après l'évaporation d'un neutron prompt est donnée par l'équation 2.14.

$$E_{k lab} = \frac{A E'_{k lab}}{A'} + \frac{m_n E_{CM,n}}{A} - 2\sqrt{\frac{m_n E_{CM,n} E_{k lab}}{A}} \cos\theta_{CM,n} \quad (2.14)$$

$\theta_{CM,n}$ représente l'angle d'émission du neutron par rapport à la trajectoire des fragments de fission dans le référentiel du centre de masse (CM) du fragment émetteur.

Si l'on considère que les neutrons sont émis isotropiquement dans ce référentiel, alors

$$\langle \theta_{CM,n} \rangle = 0.$$

Le terme $\frac{m_n}{m} E_{CM,n}$ peut être négligé par rapport à la valeur de l'énergie $E_{k\text{lab}}$, puisque pour l'évaporation typique d'un neutron de 2 MeV $\frac{m_n}{m} E_{CM,n} = 0,03 \text{ MeV}$, alors que $E_{k\text{lab}} \sim 100 \text{ MeV}$.

Au vue de ces approximations, l'énergie des fragments de fission avant évaporation des neutrons prompts dans le référentiel du laboratoire est donnée par l'équation 2.15.

$$E'_{k\text{lab}} = \frac{A'}{A' - \nu(A, TKE)} E_{k\text{lab}} \quad (2.15)$$

Les expériences qui s'appuient sur la mesure de la vitesse des produits de fission pour déterminer les rendements sont en général plus précises que celles qui mesurent leur énergie cinétique, car contrairement à ces dernières elles ne sont pas affectées par la perte d'énergie des fragments de fission suite à l'évaporation des neutrons prompts.

Ce type de mesures présente l'avantage considérable de pouvoir déterminer, au cours d'une seule expérience, toute la distribution des fragments de fission avant émission des neutrons prompts. Elles donnent de cette manière des résultats qui peuvent être directement comparés aux valeurs calculées par les modèles de fission.

2.3.4 Mesures par spectrométrie de masse

C'est par exemple le principe de séparation du spectromètre de masse Lohengrin pour lequel le principe de fonctionnement sera développé de manière plus approfondie dans le chapitre 3.

Soumis à un important flux de neutrons, les atomes d'une cible d'actinide vont fissionner. Ils donnent dans la majeure partie des cas naissance à deux fragments de fission qui, encore dans la cible, vont émettre des particules promptes. A leur sortie les produits de fission sont ionisés et émis selon un angle d'environ 180° . Seuls ceux qui sont émis dans la direction du spectromètre pourront être détectés. Un système de déflexion à champ électrique permet de différencier les produits de fission ayant des rapport E_k/q différents (E_k l'énergie cinétique du produit de fission et q sa charge ionique).

Le spectromètre de masse Hiawatha de l'université de l'Illinois associe à cet instrument un système de temps de vol qui permet de déterminer la masse des fragments. Pour le spectromètre de masse Lohengrin, c'est à un champ magnétique couplé au champ électrique qui permet de séparer les produits de fission selon leurs rapport A/q et E_k/q . La détermination des masses se fait à la sortie du spectromètre par la détermination de l'énergie cinétique des produits de fission grâce à une chambre à ionisation.

Si pour les mesures de rendements par chambre à fission toutes les masses peuvent être déterminées dans un laps de temps court, en revanche les mesures par spectrométrie de masse sont beaucoup moins directes. La détermination d'une distribution complète pour un système fissionnant donné est très longue. Chaque mesure consiste à déterminer le rendement d'une masse pour une énergie cinétique et une charge ionique données. La détermination du rendement d'une seule masse demande donc la mesure de cette masse pour tout un jeu de combinaisons d'énergies cinétiques et de charges ioniques. Il faut ensuite réitérer ces mesures pour toutes les masses.

Cependant ce principe de fonctionnement permet une étude beaucoup plus profonde du phénomène de fission puisqu'il est possible de mesurer toute la distribution en énergie cinétique des masses et des isotopes. Cette méthode permet ainsi de mettre en évidence des effets physiques directement liés à la réaction de fission qui ne pourraient pas être étudiés avec d'autres types d'expériences.

2.3.5 Mesures de fission induite par cinématique inverse

Cette nouvelle méthode de mesure a été développée à GSI, Darmstadt [38, 39, 40, 41, 42]. Contrairement à la fission induite par neutron, comme par exemple dans le cas du spectromètre Lohengrin, où des neutrons sont projetés sur les noyaux d'une cible d'actinide, c'est l'actinide qui est projeté sur de la matière et qui va fissionner par interaction coulombienne et nucléaire.

Cette technique offre l'avantage d'une très bonne résolution en charge nucléaire, puisque l'énergie cinétique des fragments à laquelle vient s'ajouter vectoriellement l'énergie du projectile leur confère une énergie de l'ordre de 1GeV/nucléon.

C'est selon ce principe qu'est développé au GSI le nouveau spectromètre de masse dédié à la mesure de rendements de fission via le projet FELISE.

Chapitre 3

Dispositif expérimental

3.1 L’Institut Laue-Langevin

L’Institut Laue-Langevin est un organisme de recherche international qui est situé sur le centre ILL-ESRF-EMBL (Institut Laue-Langevin-European Synchrotron Research Facility-European Molecular Biology Laboratory) de Grenoble en France. Il comprend un réacteur à haut flux qui représente aujourd’hui la source de neutrons thermiques la plus intense au monde.

Ces trois instituts internationaux constituent un site incontournable pour l’étude de la matière : les faisceaux d’électrons délivrés par l’ESRF ainsi que ceux de neutrons fournis par l’ILL offrent grâce à différents instruments de larges possibilités pour sonder la matière. Bien que la plupart des instruments de l’ILL soient dédiés à la physique de la matière (diffractomètres, spectromètres à temps de vol, à trois axes...) quelques instruments permettent d’étudier la physique nucléaire ainsi que la physique des particules (figure 3.1). Grâce à des faisceaux de neutrons froids (VCN) et ultra-froids (UCN) l’ILL est le site idéal pour des expériences très pointues de physique fondamentale (par exemple l’expérience GRANIT [43, 44]).

La physique nucléaire est en grande partie représentée par le spectromètre de masse Lohengrin. Il permet d’étudier avec une grande précision la distribution des produits de fission ainsi que la spectroscopie des noyaux riches en neutrons.

Le réacteur de l’institut fonctionne comme un REP (réacteur à eau pressurisée). Il utilise l’eau lourde pour caloporteur et modérateur. Le flux maximum de neutrons fournit pour une puissance maximale de 58 MW est de $1,5 \cdot 10^{15}$ neutrons.cm⁻².s⁻¹. Le combustible est formé d’un élément unique de 8,56 kg d’Uranium métallique enrichi (²³⁵U à 93%) de 40 cm de diamètre et de 80 cm de hauteur.

Le réacteur fonctionne en alternance selon des cycles de 50 jours suivis par une période d’arrêt d’au moins 2 semaines. Il y a en général 4 cycles par an.

C’est grâce à des éléments supplémentaires (sources chaudes, froides ou turbines) que les faisceaux des neutrons fournis par l’ILL sont à même de balayer un large spectre en énergie : de quelques neV (UCN) à 1 eV.

3.2 Les cibles

3.2.1 Introduction

La difficulté pour se procurer des cibles de matière fissile reste un des problèmes récurrents en physique nucléaire expérimentale.

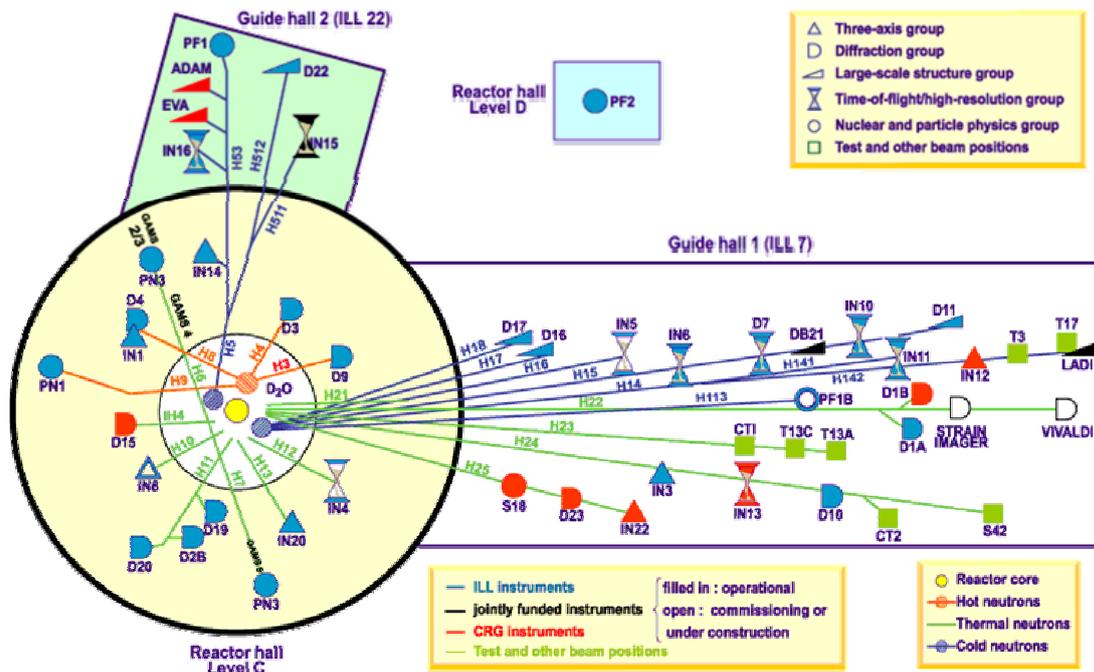


FIG. 3.1 – Vue schématique en coupe de l’Institut Laue-Langevin représentant les lignes de faisceau de neutrons ainsi que les différents instruments.

A cela s’ajoute le fait que les cibles utilisées sur le spectromètre de masse Lohengrin doivent répondre à plusieurs critères.

Elles doivent à la fois permettre un taux de comptage satisfaisant (quantité de matière suffisante) tout en assurant une faible dispersion en énergie, et ont également à satisfaire certaines contraintes géométriques. Elles doivent en effet pouvoir s’emboîter sur le support du chariot du spectromètre (figure 3.2). Ce chariot sera ensuite automatiquement placé près du coeur du réacteur, c’est la zone où le flux de neutrons est le plus important. Cette délicate opération est effectuée par les techniciens de l’ILL, mais elle nécessite au préalable que les cibles aient une forme rectangulaire de 8,8 cm de long sur 2 cm de large.

Seuls quelques Instituts dans le monde sont en mesure de fournir de telles cibles.

À cause de ce problème une collaboration entre Ilham Almahamid de l’Université d’Albany (New-York), Tatiana Kuzmina de Saint Petersburg et l’ILL a été mise en place pour fabriquer sur place des cibles d’ ^{235}U . Un certain nombre de cibles a donc été fabriqué au laboratoire des faibles activités de l’ILL, soit par électrodéposition avec I. Almahamid, soit par peinture avec T. Kuzmanina.

3.2.2 Fabrication de cibles d’Uranium

3.2.2.1 La matière première

Une seule feuille métallique de 200 mg d’Uranium (U), provenant du laboratoire technologique de l’université de Munich, a servi à la préparation de toutes les cibles fabriquées à l’ILL.

Sa composition était de :

- 0.001% d' ^{233}U , soit de $2 \mu\text{g}$, pour une activité de $7,11 \cdot 10^2 \text{ Bq}$,
- 0.038% d' ^{234}U , soit de $76 \mu\text{g}$, pour une activité de $1,74 \cdot 10^4 \text{ Bq}$,
- 99.698% d' ^{235}U , soit de $199,396 \text{ mg}$, pour une activité de $1,59 \cdot 10^4 \text{ Bq}$,
- 0.011% d' ^{236}U , soit de $22 \mu\text{g}$, pour une activité de $5,25 \cdot 10^1 \text{ Bq}$,
- 0.252% d' ^{238}U , soit de $504 \mu\text{g}$, pour une activité de $6,25 \text{ Bq}$.

Les cibles qui sont utilisées sur le Lohengrin sont composées d'une plaque de titane (Ti) sur laquelle est déposée la matière fissile. Le choix de ce matériau pour support de la cible vient de ses propriétés mécaniques et chimiques qui lui permettent à la fois de résister aux températures élevées auxquelles il est soumis mais également à la matière fissile de s'absorber dessus. Ces plaques ont une longueur de 9 cm et une largeur de 2 cm pour une épaisseur de 0,25 cm.

L'Uranium disponible était initialement sous la forme d'une feuille métallique. Afin de pouvoir le déposer sur une plaque de Ti, soit par électrodéposition, soit par peinture, il a dans un premier temps été nécessaire de le dissoudre.

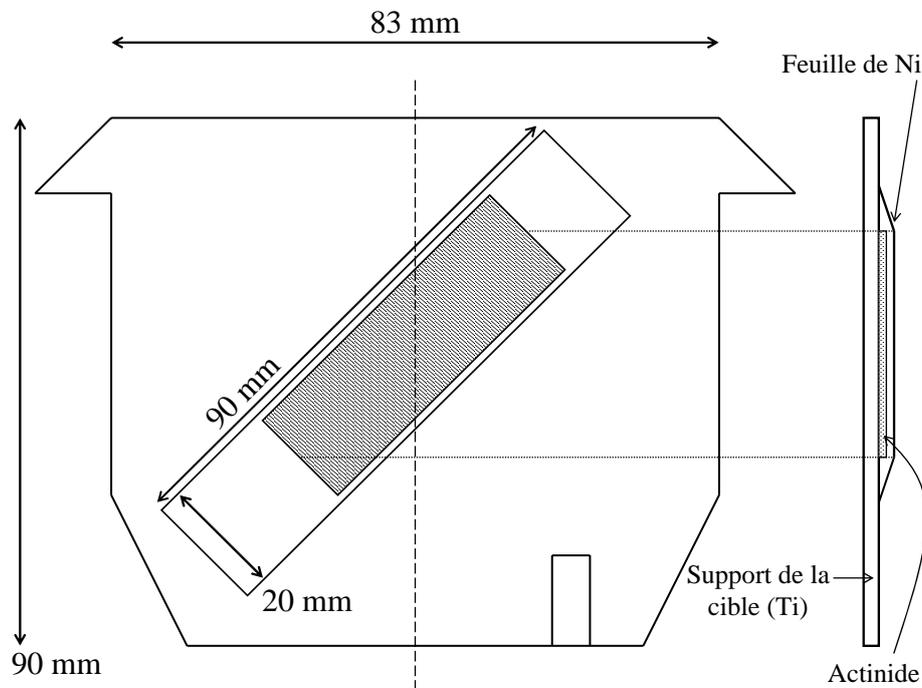


FIG. 3.2 – Vue en coupe (gauche) et vue de profil (droite) d'une cible et de son support. La cible consiste en un actinide (matière fissile) déposé sur une plaque de Ti. L'actinide est lui même recouvert par une feuille de Ni pour limiter les pertes de matière.

Dissolution de l'Uranium métallique, fabrication de la solution mère

- La feuille d'Uranium de 200 mg est déposée dans un bécher de 200 ml, avant d'y verser 4 ml d'acide nitrique HNO_3 à 3 mol.l^{-1} .

La dissolution de l'Uranium dans l'acide nitrique génère la formation de nitrate d'uranyle à partir de la réaction suivante :



- La solution est chauffée à 70°C et prend alors une coloration jaune.

- Elle est ensuite complétée jusqu'à 4 ml avec de l'acide nitrique de 3 mol.l^{-1} . Ces 4 ml de solution contiennent alors les 200 mg d'U.

3.2.2.2 La méthode d'électrodéposition

L'électrodéposition est une technique qui va consister à recouvrir des objets, appelés substrats, (la plaque de Ti dans notre cas) par une couche mince et régulière d'un hydroxyde de métal (l'U dans notre cas).

Le matériel expérimental utilisé a été fabriqué au laboratoire de Berkeley par le groupe d'Ilham Almahamid (fig. 3.3). Il est constitué d'une cellule de téflon dans laquelle est versée la solution organique ($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 + \text{C}_3\text{H}_8\text{O}$). Cette cellule est fixée sur un bloc d'aluminium (Al) qui va jouer le rôle de la cathode. Un fil de platine (Pt) est placé dans la solution organique pour servir d'anode.

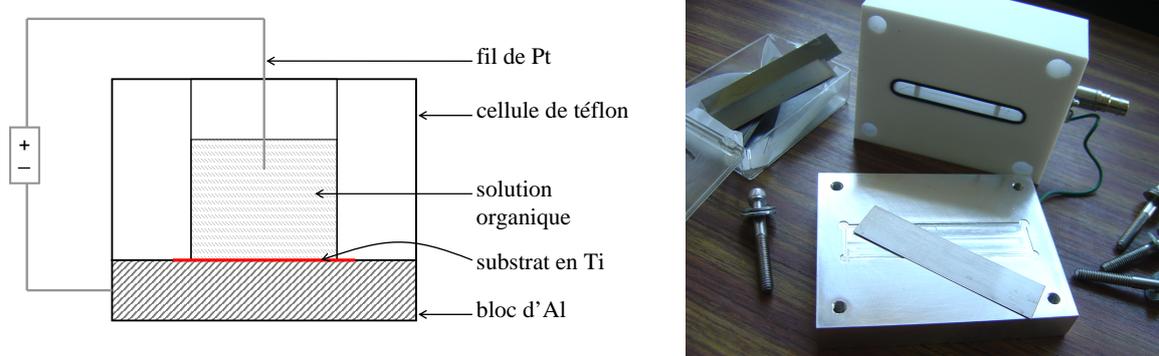


FIG. 3.3 – Schéma (gauche) et photographie (droite) du matériel d'électrodéposition.

Calculs préliminaires

La quantité choisie d'Uranium à déposer était de $400 \mu\text{g.cm}^{-2}$ par cible. Pour optimiser le procédé, il est préférable de ne pas déposer plus de $100 \mu\text{g.cm}^{-2}$ d'U par électrodéposition [45]. Quatre électrodépositions successives ont donc été nécessaires pour chaque cible afin de pouvoir déposer les $400 \mu\text{g.cm}^{-2}$. Comme la surface de la matière fissile des cibles doit être d'environ 7 cm^2 , il faut utiliser $700 \mu\text{g}$ d'U par électrodéposition. Mais parce que la réaction n'est pas parfaitement totale, il a été décidé d'électrodéposer $750 \mu\text{g}$ d'U par électrodéposition.

Électrodéposition

Afin de ne pas polluer la solution mère, seule la quantité nécessaire pour la fabrication de 10 cibles a été prélevée et utilisée en zone expérimentale.

La quantité à prélever est donc de 0,6 ml de solution mère (Pour chaque cible : $750 \times 4 = 3 \text{ mg}$ d'U. Pour 10 cibles $3 \times 10 = 30 \text{ mg}$ d'Uranium, soit un volume de $30 \times 4/200 = 0,6 \text{ ml}$). Elle sera appelée solution fille.

Un solvant organique, l'isopropanol de formule chimique $\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$, rajouté dans la solution permet de casser la molécule d' $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ en un cation d'uranyl UO_2^{2+} et deux anions de NO_3^- . Au cours de l'électrodéposition, les ions uranyl alors présents dans la solution vont venir se déposer sur la plaque de Ti au moyen d'un courant électrique.

- On ajoute à la solution fille 4 ml d'isopropanol. Cette solution contient les 30 mg d'U.

- Une électrodéposition nécessite seulement 0,75 mg d’U. On va alors prélever, à l’aide d’une pipette, un volume de 0,1 μl de cette solution pour le verser ensuite dans la cellule avec 10 ml d’isopropanol.
- Via un générateur de tension connecté à la cellule d’électrodéposition, on fait passer un courant dans la solution. Au cours de la réaction, le courant doit augmenter avec la tension délivrée. Lorsque le courant diminue, la réaction est terminée. L’intensité du courant nécessaire pour une électrodéposition est de 0,5 mA par cm^2 , soit de 3,5 mA pour 7 cm^2 . La tension maximale nécessaire à la réaction a été de 600 V.
- Après avoir vidé la cellule à l’aide d’une pipette, on retire la plaque de Ti et on vient la placer dans un four à 600°C. Cette opération permet de calciner la cible.
- Une fois la cible refroidie, on peut alors renouveler l’expérience autant de fois que nécessaire pour déposer la quantité d’actinide choisie, c’est à dire 3 fois dans notre cas.

3.2.2.3 La méthode de peinture

La solution déposée sur la plaque de Ti lors d’une peinture de cible est la même que celle utilisée au cours d’une électrodéposition à laquelle a été rajouté un liant [46]. Le liant qui a été utilisé consiste en une solution de 3% de cellulose de nitrate dans de l’isoamylacetate. Sa nature importe peu à partir du moment où il va brûler complètement dans le traitement thermique qui suit.

Pour ces deux méthodes de fabrication de cible, les quantités et les exigences restent les mêmes, c’est à dire qu’au maximum 100 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ d’U seront déposés sur la cible lors d’une opération.

- On ajoute à la solution fille 4 ml d’isopropanol. Cette solution contient les 30 mg d’U.
- On va prélever un volume de 0,1 μl de cette solution pour le verser ensuite dans un bécher avec 10 ml d’isopropanol.
- A l’aide d’un pinceau, on balaye de façon régulière et homogène la plaque de Ti autant de fois que nécessaire pour y déposer les 0,1 μl de solution.
- La plaque de Ti doit ensuite être chauffée dans un four à 600°C.
- Une fois la cible refroidie, on peut alors renouveler l’expérience autant de fois que nécessaire pour déposer la quantité d’actinide choisie, c’est à dire 3 fois dans notre cas.

3.2.3 Caractéristiques des cibles utilisées pour les différentes expériences

Les cibles utilisées lors de nos différentes expériences à Lohengrin étaient composées d’un support de Ti sur lequel était déposé la matière fissile, elle même recouverte par une feuille de Nickel (Ni). Cette feuille a pour but de limiter la perte de matière, d’une part à cause des noyaux de recul qui peuvent quitter la cible suite à de la diffusion neutronique (très faible contribution) mais surtout lorsque les produits de fission, très énergétiques, sortent de la cible en arrachant des atomes sur leur chemin. Ce processus s’appelle perte de matière par sputtering.

Les différentes cibles utilisées au cours de ce travail, ainsi que leurs propriétés, sont répertoriées dans le tableau 3.1.

| Expérience | Cible | Caractéristiques | | | |
|--|--|--|---|-----------------------------|---------------------------|
| | | $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ d'actinide | épaisseur de la feuille de Ni [μm] | Diaphragme | Méthode de fabrication |
| Mesure de rendements en masse | $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ | 100 (99,7%) | 0,25 | $70 \times 5 \text{ mm}^2$ | peinture |
| | $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ | 137 (99,0%) | 0,25 | $70 \times 5 \text{ mm}^2$ | spray- painting |
| | $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ | 109 | 0,25 | $70 \times 10 \text{ mm}^2$ | électro- déposition |
| | $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ | 161 | 0,25 | $70 \times 8 \text{ mm}^2$ | |
| Etude des E_k - distributions | $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ | 113 (99,0%) | 0 | $70 \times 5 \text{ mm}^2$ | spray- painting |
| Mesure de rendements isotopiques | $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ | 300 (99,5%) | 0,25 | $70 \times 10 \text{ mm}^2$ | |
| | $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ | 300 (99,5%) | 0,25 | $70 \times 10 \text{ mm}^2$ | |

TAB. 3.1 – Caractéristiques des cibles utilisées au cours des différentes expériences

3.3 Le spectromètre de masse Lohengrin

Le spectromètre de masse Lohengrin est un instrument qui est dédié à l'étude de la fission et à la spectroscopie des noyaux riches en neutrons [47]. Il se situe sur l'aire expérimentale PN1 (fig. 3.1).

Une vue d'ensemble de l'instrument est donnée à la figure 3.4.

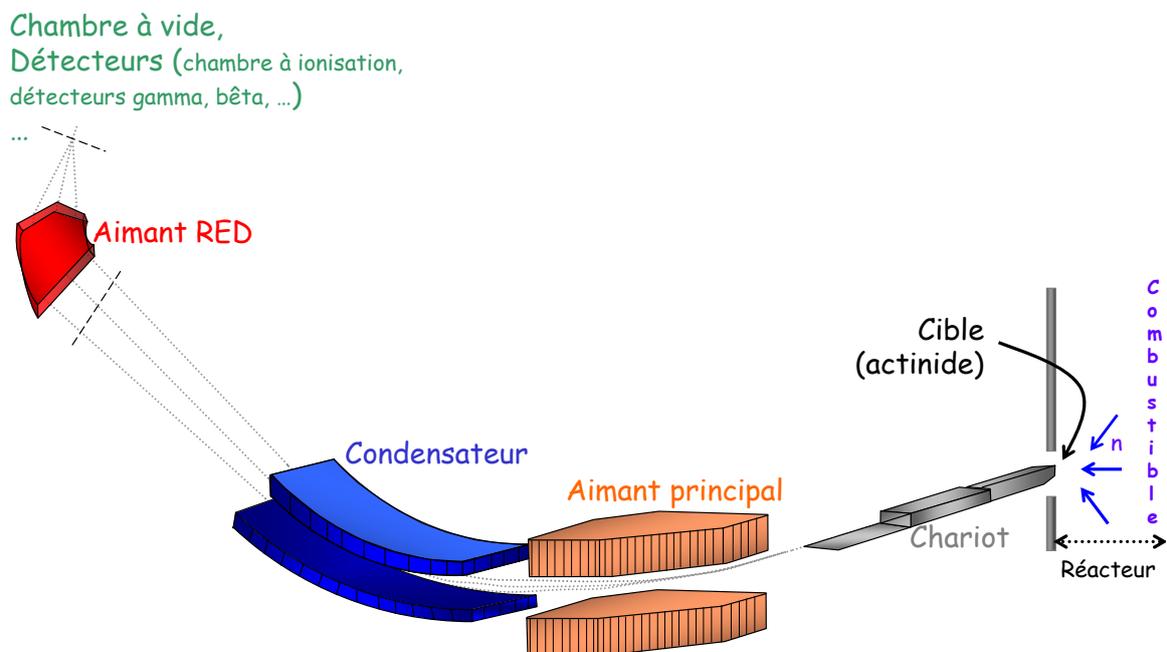


FIG. 3.4 – Représentation schématique du spectromètre Lohengrin.

Les cibles sont placées près du coeur du réacteur grâce à un système de chariot automatisé. De la cible au système de détection, le spectromètre fait environ 23 m de long.

3.3.1 Principe de séparation

En traversant la cible les produits de fission perdent, avec une partie de leur énergie cinétique, un peu plus d'une vingtaine d'électrons. Une fois ionisés ils peuvent alors être séparés par déflexion électromagnétique [48]. La combinaison du champ magnétique \vec{B} de l'aimant principal du spectromètre et du champ électrique \vec{U} du condensateur permet de sélectionner les produits de fission selon leur masse atomique A , énergie cinétique E_k et charge ionique q . Un second aimant (Reduction of Energy Dispersion) placé derrière le condensateur refocalise le faisceau sélectionné [49].

Soient ρ_M et ρ_{E_k} les rayons de courbures des trajectoires des ions dans les champs magnétique \vec{B} et électrique \vec{U} . On obtient alors pour des ions de masse atomique A , d'énergie cinétique E_k , de charge ionique q et de vitesse v les équations suivantes :

$$qvB = \frac{Av^2}{\rho_M} \quad \text{et} \quad qU = \frac{Av^2}{\rho_{E_k}}$$

d'où :

$$v = \frac{U \rho_{E_k}}{B \rho_M} \quad (\text{constant}) \quad \text{et} \quad \begin{cases} \frac{A}{q} = \frac{B^2 \rho_M^2}{U \rho_{E_k}} \\ \frac{E_k}{q} = \frac{Av^2}{2q} = \frac{U \rho_{E_k}}{2} \end{cases} \quad (3.2)$$

Soit V la tension électrique fournit par le condensateur et d la distance entre les plaques, alors $U = V/d$.

Les équations 3.2 peuvent alors s'écrire de la façon suivante :

$$\begin{cases} \frac{A}{q} = \frac{B^2}{V \chi} \\ \frac{E_k}{q} = V \phi \end{cases} \quad (3.3)$$

Si la tension est donnée en kV, alors ϕ prend la valeur de 0,02245.

χ est un paramètre constant du spectromètre Lohengrin. Il est calculé au début de chaque expérience en réglant le champ magnétique de façon à ce que le taux de comptage soit optimal.

Les équations 3.3 montrent que pour un couple donné de champs magnétique et électrique, les produits de fission sont séparés selon la valeur de leur rapports A/q et E_k/q .

Soit x la déviation due au champ magnétique et y celle liée au champ électrique. Ces deux déviations sont au premier ordre proportionnelles à l'inverse du rayon de courbure de chacune des déflexions. Les paraboles décrites par les ions sont alors données par les relations 3.3 :

$$x \propto \frac{1}{\rho_M} = \frac{qB}{\sqrt{2E_k A}} \quad \text{et} \quad y \propto \frac{1}{\rho_{E_k}} = \frac{qU}{2E_k}$$

d'où :

$$y \propto \left(\frac{U}{B^2} \right) \frac{A}{q} x^2 \quad (3.4)$$

Ces équations montrent que plusieurs masses peuvent être observées dans le plan focal du spectromètre. Elles correspondent à toutes les masses A qui ont un rendement non nul à la charge ionique q pour la même valeur du rapport A/q (figure 3.5).

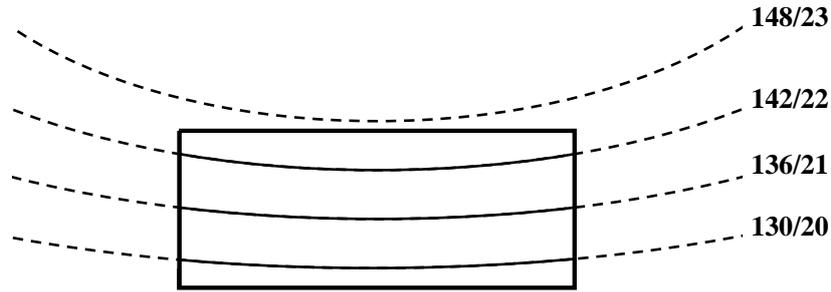


FIG. 3.5 – Vue du plan focal du Lohengrin. La trajectoire centrale du spectromètre correspond aux valeurs de $A=136$, $q=21$ et $E_k=65$ MeV. Les lignes A/q voisines (130/20, 142/22) sont séparées grâce au caractère discret de A et de q .

3.3.2 Caractéristiques techniques

La dispersion en énergie D_E du spectromètre est constante et est égale à 7,2 m. De même la dispersion en masse D_A est une constante, elle vaut 3,24m. Elles sont liées à l'optique du spectromètre (figure 3.6).

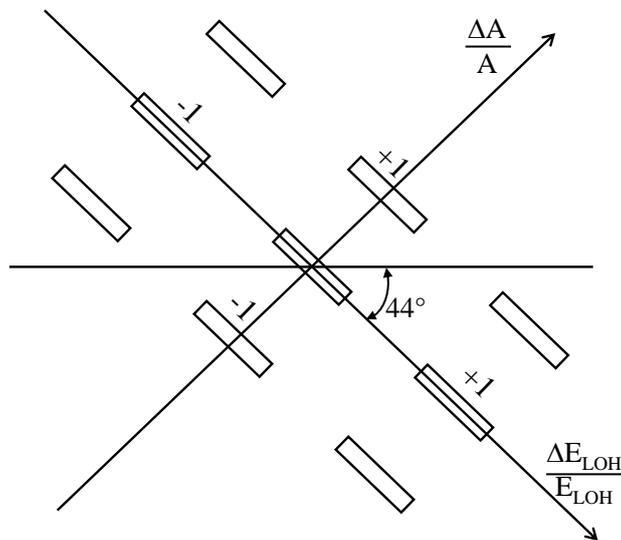
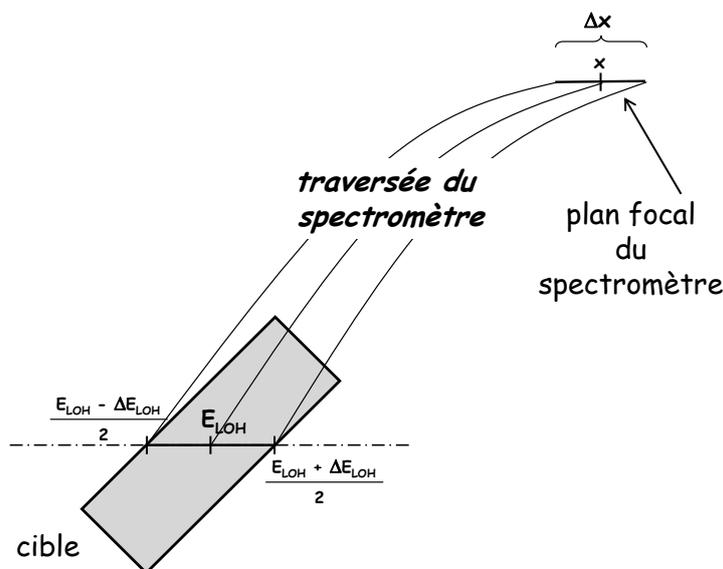


FIG. 3.6 – Schéma du plan focal du spectromètre Lohengrin. La dispersion en énergie (en masse) signifie qu'un déplacement de 7,2 cm (3,24 cm) dans le plan focal du spectromètre correspond à une variation en énergie cinétique (en masse) de 1%. Le rectangle central du schéma correspond à l'image de la source dans le plan focal du Lohengrin. Les rectangles +1 et -1 sont les images de cette même source pour des variations en masse ou en énergie cinétique de 1% par rapport à la masse et à l'énergie cinétique de la trajectoire centrale.

En revanche les dispersions en x ($\Delta x = \frac{\Delta E_{LOH}}{E_{LOH}} D_E$) et en y ($\Delta y = \frac{\Delta A}{A} D_A$) dépendent de la taille de la cible. Plus celle-ci sera étendue et plus ces dispersions seront importantes (figure 3.7). Pour remédier à ce problème un diaphragme est placé juste après la cible. Il permet d'obtenir une résolution en énergie de 1%.

FIG. 3.7 – Représentation schématique de la dispersion en x (Δx).

L'aimant principal, huit mètres derrière la cible et deux avant le condensateur, dévie les produits de fission de 44° dans un plan horizontal. Il délivre un champ magnétique qui peut aller de 0 à 2000 Gauss.

Le condensateur dévie le faisceau de $35,3^\circ$ dans un plan vertical. Les tensions symétriques appliquées sur chacune des deux plaques peuvent varier de 0 à 370 kV, ce qui permet d'obtenir une tension électrique maximale de 740 kV.

Les caractéristiques techniques du réacteur et du spectromètre Lohengrin sont résumées dans le tableau 3.2.

| | |
|--|---|
| Puissance de la pile | : 58 MW |
| Flux de neutrons au niveau de la cible du Lohengrin | : $5,3 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ |
| Ouverture angulaire horizontale | : $2,3^\circ$ |
| Ouverture angulaire verticale | : $\leq 0,57^\circ$ |
| Angle solide ($\frac{\Omega}{4\pi}$) | : $\leq 3,2 \cdot 10^{-5}$ |
| Longueur du rayon principal | : 23,1 m |
| Longueur de la fente de sortie | : 40 cm |
| Dispersion en masse $\frac{\Delta A}{A} = 1\%$ | : 3,24 cm |
| Dispersion en énergie $\frac{\Delta E_{LOH}}{E_{LOH}} = 1\%$ | : 7,2 cm |
| Résolution en masse | |
| diaphragme-source de 0,8 cm \times 7,5 cm | : 400 |
| diaphragme-source de 0,16 cm \times 4 cm | : 1000 |

TAB. 3.2 – Caractéristiques techniques du réacteur et du spectromètre.

3.3.3 La fission nucléaire et le spectromètre Lohengrin

Le spectromètre de masse Lohengrin permet, avec un dispositif de détection adéquat, de mesurer les produits de fission ainsi que les particules émises au cours de leurs dés-

intégrations radioactives. Compte tenu des échelles de temps inhérentes au processus de fission (figure 3.8) il n'est pas possible d'accéder aux informations sur les fragments de fission avant émission des neutrons prompts.

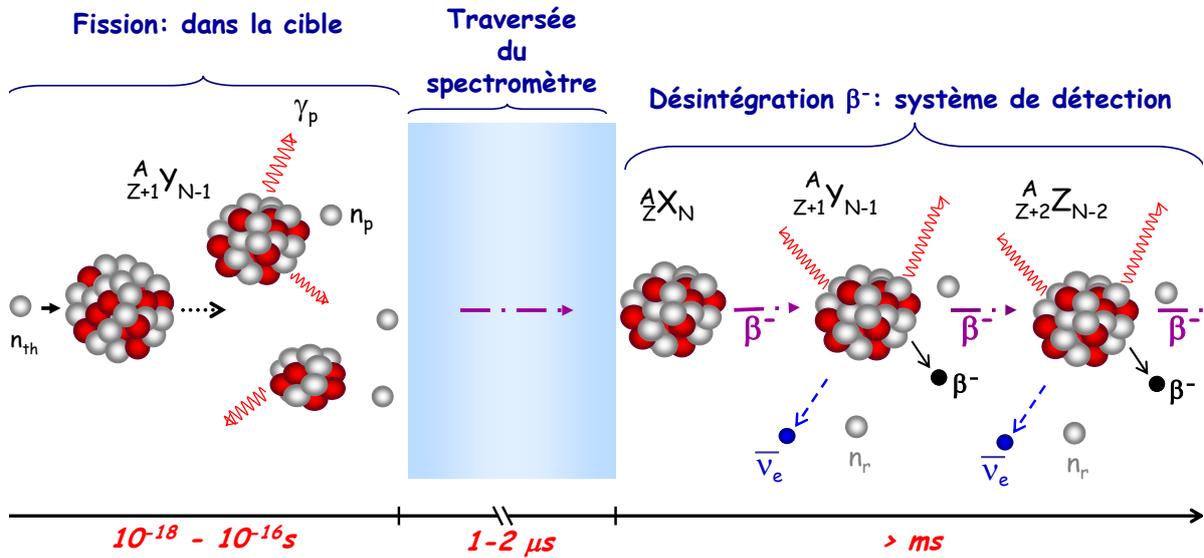


FIG. 3.8 – Echelle de temps de la fission et spectromètre Lohengrin.

3.3.4 Les différents domaines de physique étudiés sur le Lohengrin

Le spectromètre de masse Lohengrin a été conçu principalement pour l'étude de la fission nucléaire et les rendements d'un grand nombre d'actinides y ont été déterminés :

- ${}^{229}Th(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [50].
- ${}^{233}U(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [51, 52].
- ${}^{235}U(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [53, 9, 54, 55].
- ${}^{235}U(n_{th}, f)$: rendements isobariques dans la région des masses très asymétriques, [56].
- ${}^{238}Np(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [57].
- ${}^{238}Np(n_{th}, f)$: rendements isobariques dans la région des masses très asymétriques, [58].
- ${}^{239}Pu(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [59].
- ${}^{241}Pu(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [60].
- ${}^{242m,g}Am(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères. [61]
- ${}^{245}Cm(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [60].
- ${}^{245}Cm(n_{th}, f)$: rendements isobariques dans la région des masses lourdes et isotopiques

dans la région des masses légères,

[62].

$^{249}\text{Cf}(n_{th}, f)$: rendements isobariques et isotopiques dans la région des masses légères, [63].

Malgré sa faible probabilité (entre 2 et 4 évènements pour 1000 fissions), l'étude de la fission ternaire est accessible sur le Lohengrin grâce au flux très élevé de neutrons thermiques délivré par le réacteur [64, 65, 66].

Toujours dans cette même problématique la mesure des rapports d'embranchement $\beta^- - n$ vient s'ajouter aux mesures de rendements. Ces mesures en cours sont principalement menées par L. Mathieu du CEA Cadarache [3].

En utilisant la fission comme source de noyaux exotiques une grande partie des expériences sur le spectromètre Lohengrin se concentrent aussi sur la structure nucléaire des noyaux riches en neutrons. Ces mesures permettent, par spectroscopie γ , d'accéder aux schémas de niveaux des noyaux de cette région indispensables pour l'étude de la structure nucléaire [67, 68].

Enfin, le flux élevé du réacteur permet d'étudier la diffusion des actinides à très haute température dans différents matériaux.

3.4 La mesure des rendements en masse

Les mesures de rendement en masse présentent l'avantage d'utiliser un dispositif expérimental très simple. Le spectromètre de masse Lohengrin sélectionne les ions en fonction de leurs rapports A/q et E_k/q . Une "simple" chambre à ionisation permet, une fois le spectromètre étalonné en énergie, l'identification des masses.

3.4.1 Chambre à ionisation

Principe de fonctionnement

Une fois sélectionnés par le spectromètre, les produits de fission vont déposer leur énergie en traversant la chambre à ionisation.

Un schéma de la chambre est représenté figure 3.9.

Lors de leur parcours dans la chambre, les produits de fission vont perdre une partie de leur énergie cinétique par collision avec les molécules du gaz. Une tension appliquée à la chambre à ionisation permet de collecter les électrons résultant de l'ionisation des molécules de gaz. Grâce à l'électronique associée, ces électrons fournissent un signal proportionnel à l'énergie déposée par les produits de fission. Seul le signal détecté sur l'anode est enregistré puisque les cations des molécules de gaz ionisées migrent vers la cathode avec une vitesse 1000 fois inférieure à celle des électrons, ce qui leur laisse plus de temps pour d'éventuelles recombinaisons avec les autres molécules. La vitesse de migration des électrons dans de l'isobutane est de l'ordre de la microseconde, alors qu'elle est de l'ordre de la milliseconde pour les ions positifs.

L'anode

Elle est composée de deux parties :

- une première anode collecte l'énergie ΔE déposée dans la chambre avant la grille de séparation,

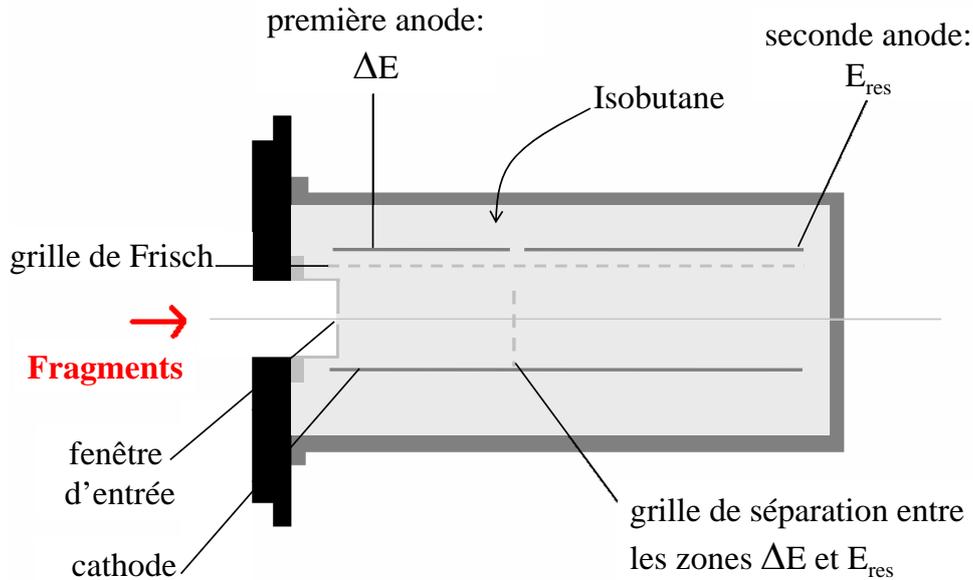


FIG. 3.9 – Vue schématique de la chambre à ionisation.

- la seconde anode récupère la valeur restante de l'énergie déposée, l'énergie résiduelle, E_{res} .

L'énergie totale E_{tot} déposée dans la chambre est alors la somme de ΔE et de E_{res} .

Le choix d'une chambre à ionisation à double anode permet dans les masses légères de séparer les différents isotopes, mais également de faciliter la séparation à l'intérieur de la chambre des différentes masses pour toute la distribution. Un exemple de spectres obtenus par le logiciel MPAWIN [69] est donné figure 3.10 où la perte d'énergie dans la première partie de la chambre ΔE est tracée en fonction de la perte totale d'énergie E_{tot} .

Le spectre du haut représente un cas pour lequel A/q est dégénéré. Il illustre bien le principe de séparation du Lohengrin qui se fait selon la valeur des rapports A/q et E_k/q et non directement selon les valeurs de A , E_k et q . On peut en effet sur ce spectre identifier différentes "tâches" qui correspondent aux différentes combinaisons de A , E_k et q pour les valeurs $A/q=5$ et $E_k/q=5$ MeV. Les intensités de ces tâches sont proportionnelles aux rendements des masses A pour les charges ioniques q_i aux énergies cinétiques E_{k_j} correspondantes : $Y_{exp}(A, q_i, E_{k_j})$.

L'exemple du bas représente un cas où A/q est non dégénéré : $A = 136$, $q = 21$ et $E_k = 64$ MeV (valeurs des rapports A/q et E_k/q non entiers). Dans ce cas, seule la masse "principale" correspondante aux valeurs $A/q/E_k$ égales à $136/21/64$ sera entièrement sélectionnée. Les autres masses "parasites" ayant des rapports A/q et E_k/q voisins de la masse principale auront une admittance d'autant plus grande que leurs valeurs seront proches de celle-ci. Les intensités des tâches pour les masses parasites ne seront donc pas directement proportionnelles aux rendements de ces masses, mais elles devront être pondérées par leur pourcentage d'admission du spectromètre.

Dans la région des produits de fission légers, une séparation isotopique en plus de la détermination des masses est possible avec ce même dispositif. Cette séparation s'appuie sur la formule de Bethe qui exprime la perte d'énergie d'un ion en fonction de sa charge nucléaire Z [70] :

$$\frac{dE}{dx} \sim \frac{Z^2}{v^2}$$

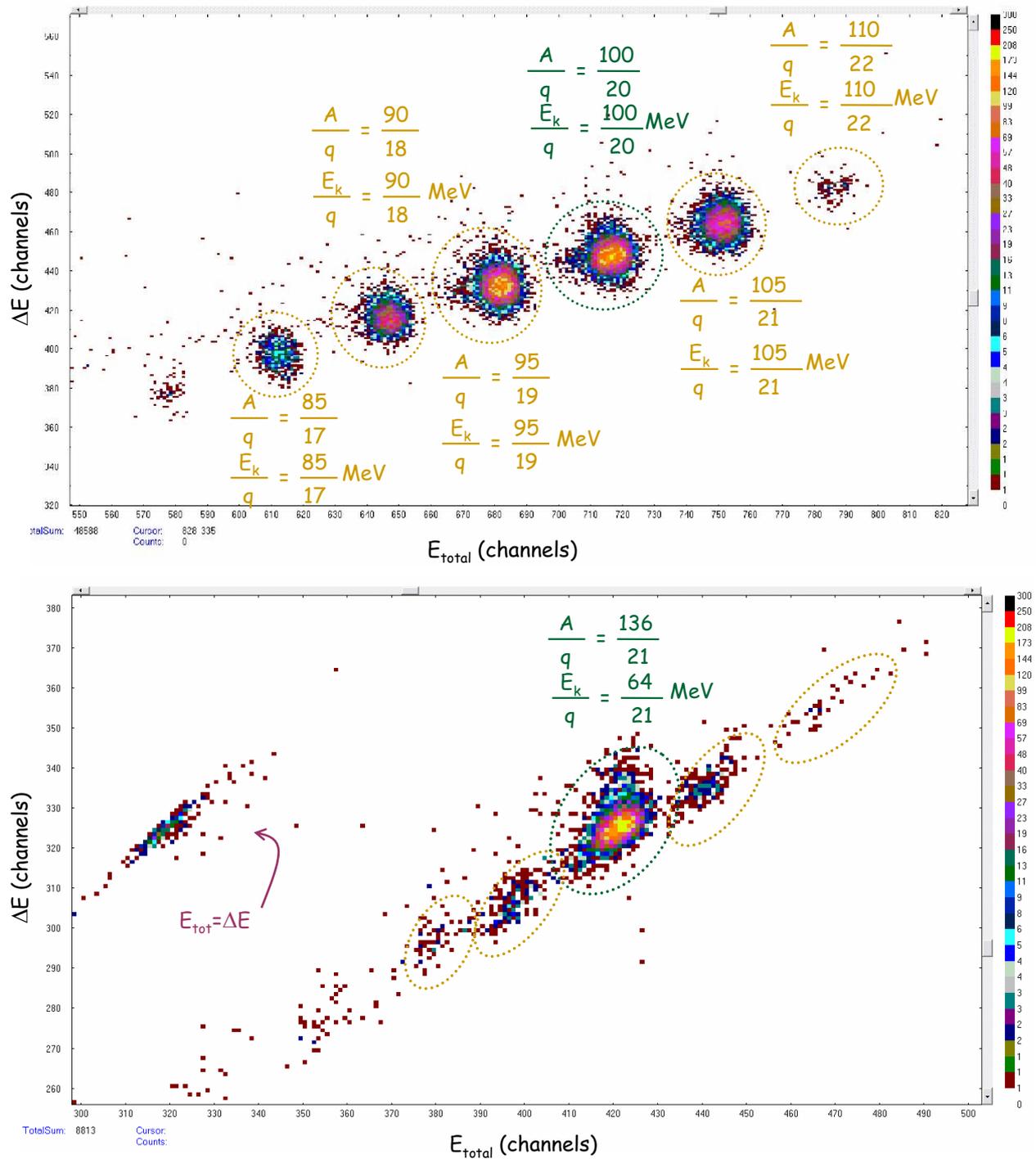


FIG. 3.10 – Exemples de spectres obtenus pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$.

La figure du haut correspond aux paramètres $A = 100$, $q = 20$ et $E_k = 100 \text{ MeV}$, alors que celle du bas correspond aux valeurs $A = 136$, $q = 21$ et $E_k = 64 \text{ MeV}$.

La tâche à gauche de la figure du bas annotée $E_{\text{tot}} = \Delta E$ correspond aux produits de fission qui sont restés bloqués dans la grille de séparation.

Cependant, ce type de mesure n'est envisageable que jusqu'à la charge nucléaire $Z=38$. Au delà de cette charge il devient impossible de séparer les différents isotopes pour lesquels les distributions en énergie sont de plus en plus difficiles à séparer au fur et à mesure que Z augmente. L'utilisation d'un absorbeur passif [62] a permis de repousser cette limite de séparation isotopique jusqu'à $Z=42$, mais n'est plus efficace dans la région des masses lourdes.

La grille de séparation

Sa fonction est de séparer les charges électriques provenant des deux parties ΔE et E_{res} de la chambre. Elle évite ainsi que des électrons créés dans la zone E_{res} ne soient collectés dans celle de ΔE , et vice-versa [71]. Sa présence n'est justifiée que par l'utilisation d'une double anode.

La grille de Frisch

La grille de Frisch évite que le temps de collection des électrons, donc la charge enregistrée par l'électronique de détection, soit dépendante de la position à laquelle le produit de fission va déposer son énergie.

En effet, si un produit de fission ionise une molécule de gaz près de l'anode, la distance à parcourir pour les électrons sera alors plus courte que pour une ionisation près de la cathode. Ainsi, pour éviter que le signal collecté sur l'anode ne varie avec la position où a eu lieu l'ionisation de la molécule de gaz, l'adjonction de cette grille contraint ce signal à être toujours dépendant de la même distance de parcours des électrons, soit la distance qui sépare la grille de Frisch de l'anode. Ce qui se passe entre la cathode et la grille de Frisch ne peut pas être perçu par l'anode.

Pour cela, les tensions appliquées sont de 0 V pour la cathode, 400 V pour la grille de Frisch et 800 V pour l'anode.

Gaz de la chambre

Le gaz de remplissage de la chambre est de l'isobutane, C_4H_{10} . C'est un gaz couramment utilisé pour l'ionisation des particules chargées.

La pression choisie est d'environ 40 mbar. Cette valeur doit répondre à deux critères. Elle ne doit pas être trop élevée pour laisser aux produits de fission un libre parcours moyen dans la chambre suffisamment grand pour permettre une séparation des masses satisfaisante. Mais elle doit, dans un même temps, être suffisante pour stopper complètement les produits de fission dans la chambre, afin de ne pas perdre d'informations sur les ions de plus haute énergie.

Fenêtre d'entrée

Le rôle de la fenêtre à l'entrée de la chambre à ionisation est d'assurer l'étanchéité entre le gaz de la chambre et le vide du spectromètre, qui est d'environ 10^{-6} mbar.

Dans le but de ne pas altérer la résolution de la chambre, elle doit modifier au minimum les caractéristiques des ions entrants (perte d'énergie, dispersion en énergie et dispersion angulaire). C'est pourquoi il est indispensable qu'elle soit la plus homogène et la plus mince possible, tout en respectant les contraintes mécaniques.

Pour cela, le choix de la fenêtre s'est porté sur une feuille de polypropylène de $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ supportée par une grille de métallique ayant une transmission supérieure à 90%.

La technique de réalisation de ces feuilles est présentée par D.W. Hetherington dans la référence [72].

3.4.2 Electronique d'acquisition

Les électrons collectés sur l'anode doivent être convertis en signal électrique. L'électronique doit traiter le signal délivré par les deux anodes. Elle doit conserver le signal correspondant à la perte d'énergie ΔE dans la première partie de la chambre, et, afin d'obtenir la valeur de l'énergie totale déposée, sommer ce signal à celui correspondant à la perte d'énergie dans la seconde partie ($E_{tot} = \Delta E + E_{res}$). Pour cela, les signaux des deux anodes sont amplifiés d'abord dans un préamplificateur (PA), puis dans un amplificateur (A). Ils sont ensuite sommés, puis convertis en signaux numériques afin de pouvoir être stockés puis traités par un ordinateur, via le logiciel MPAWIN. La conversion de ces deux signaux analogiques se fait à l'aide d'un convertisseur analogique numérique (CAN). Cette électronique d'acquisition est schématisée figure 3.11.

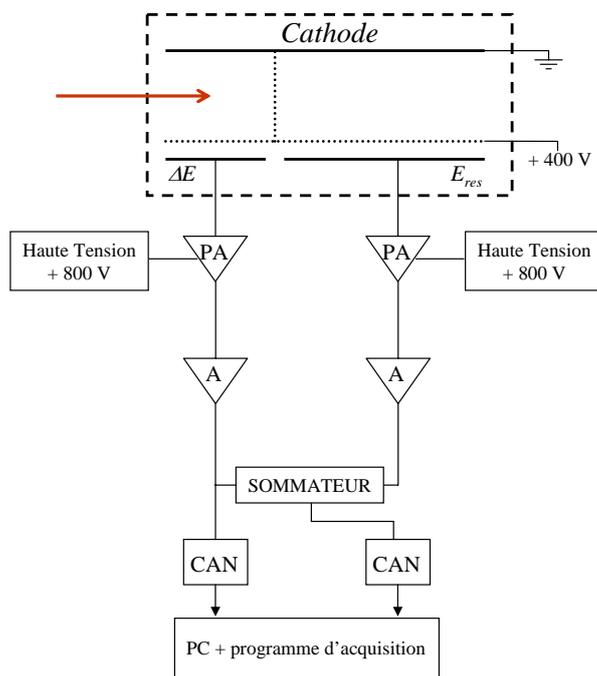


FIG. 3.11 – Système d'acquisition en sortie de la chambre à ionisation. Le module de sommation assure la coïncidence entre les deux signaux ΔE et E_{res} .

3.5 La mesure des rendements isotopiques

3.5.1 Principe de la méthode

Si les rendements isotopiques de plusieurs actinides ont déjà été mesurés par le passé sur le spectromètre de masse Lohengrin, jamais encore la région des produits de fission lourds n'avaient été investiguée¹. La raison en est que pour les produits de fission légers, le même dispositif expérimental reste adéquat pour la mesure des rendements en masse ainsi que pour celle des rendements isotopiques.

Néanmoins, ce principe de séparation des différents isotopes au sein d'une même ligne de masse ne peut s'appliquer que pour des noyaux ayant un $Z < 42$ (Molybdène). Rappelons

¹Les distributions en masse et en énergie cinétique du $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ ont été mesurés dans la région des produits de fission lourds mais aucun rendement isotopique n'a été déterminé dans cette région sur le spectromètre Lohengrin [73].

en effet que le spectromètre Lohengrin couplé uniquement à une chambre à ionisation ne permet en fait qu'une séparation isotopique des produits de fission dont $Z < 38$ (Strontium). L'ajout d'un absorbeur passif est indispensable pour pousser cette séparation jusqu'aux isotopes du Molybdène, mais n'est malheureusement plus performant au-delà. C'est pourquoi, une nouvelle méthode basée sur la spectrométrie des γ de décroissance des produits de fission a été développée pour mesurer les rendements isotopiques dans la région des masses lourdes. Elle associe au spectromètre de masse une chambre à vide ainsi que des détecteurs γ et β .

Le principe de la méthode est le suivant.

De la même manière que pour la mesure des rendements en masse, le spectromètre sépare les produits de fission selon la valeur de leurs rapports A/q et E_k/q . Mais si pour les mesures de rendements isobariques l'identification des masses se faisait par la mesure de l'énergie cinétique des ions via la chambre à ionisation, au cours des mesures de rendements isotopiques la charge nucléaire Z et la masse A des noyaux sont identifiés grâce à leurs rayonnements γ caractéristiques. Ces signatures γ permettent de remonter à la valeur de leur charge nucléaire Z , ainsi que leur masse atomique A . Ce sont les paramètres donnés au spectromètre qui nous permettent de connaître des valeurs de l'énergie cinétique E_k et de la charge ionique q correspondantes afin de pouvoir déterminer les valeurs des rendements $Y(A, Z)$.

Un schéma du dispositif expérimental est représenté sur la figure 3.12. Il comprend une chambre à vide à l'intérieur de laquelle circule une bande passante. Deux clovers Germanium placés de part et d'autre de la chambre permettent l'identification des isotopes en détectant les γ retardés émis au cours des désintégrations β^- . Le scintillateur détecte les électrons émis lors de ces mêmes désintégrations et permet par des mesures en coïncidences $\beta - \gamma$ de laver les spectres du bruit de fond γ extérieur.

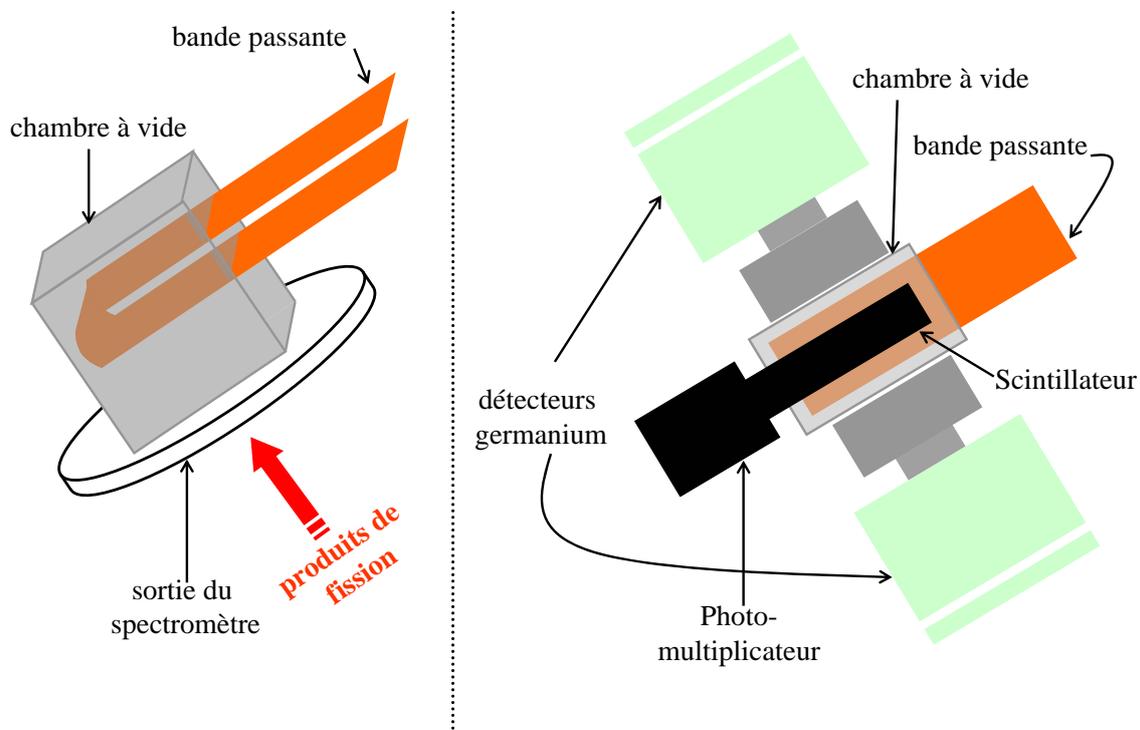


FIG. 3.12 – A gauche : vue de profil de la chambre à vide placée à la sortie du spectromètre. Elle est traversée par une bande passante qui a pour rôle de stopper les produits de fission. A droite : vue de dessus de la chambre à vide, ainsi que des deux clovers Germanium et du scintillateur.

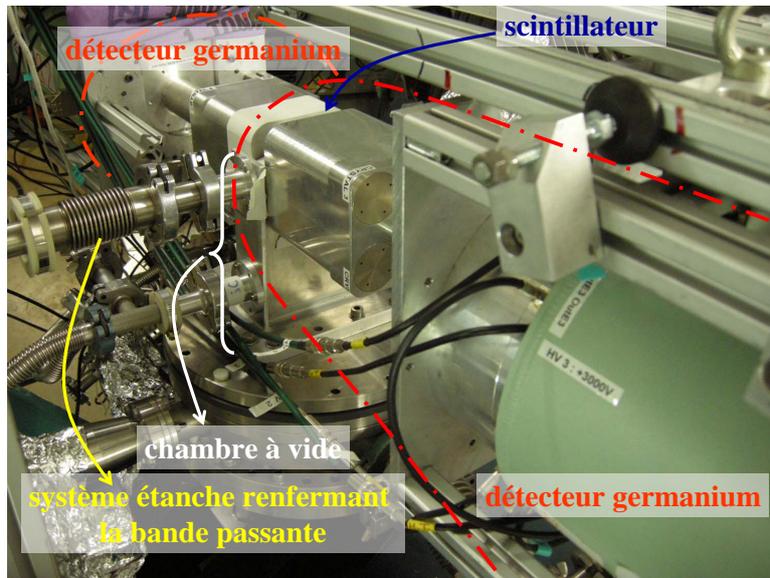


FIG. 3.13 – Photographie du système de détection lors de la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

3.5.2 Chambre à vide

L'unique particularité de la chambre à vide utilisée au cours de la mesure des rendements isotopiques consiste à faire passer à l'intérieur de celle-ci une bande passante (figure 3.14).

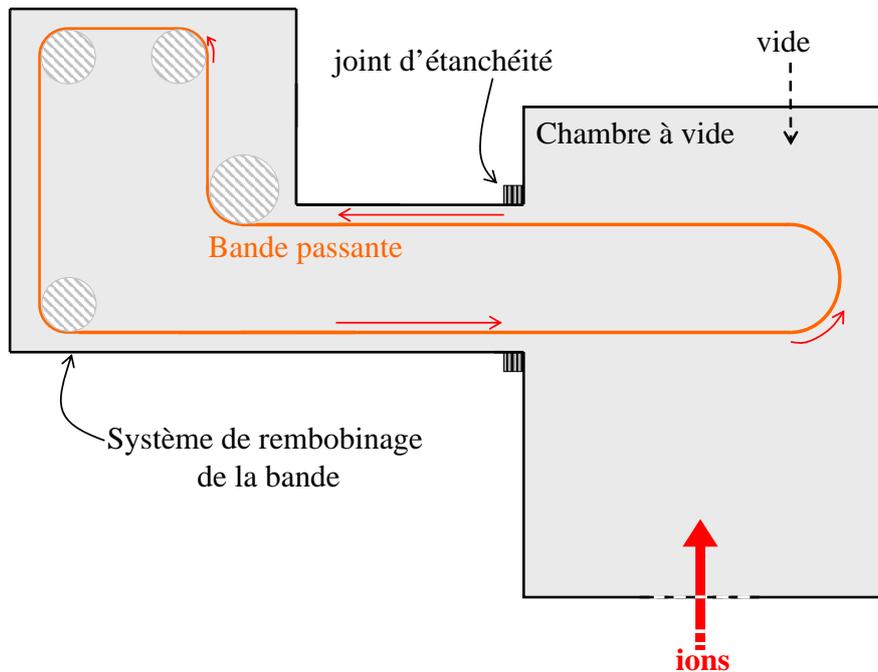


FIG. 3.14 – Représentation schématique de la chambre à vide et de la bande passante.

Le vide de la chambre est de l'ordre de 1 mbar. Sans la bande passante, les produits de fission la traverseraient. Le rôle de celle-ci est d'arrêter les ions sur une position précise et connue, afin d'optimiser le positionnement des détecteurs autour de la chambre. A la fin de

chaque mesure, un système automatisé permet de faire circuler la bande, déplaçant ainsi la radioactivité restante des produits de fission de vie longue à une distance suffisamment éloignée des détecteurs afin que ces rayonnements ne viennent pas polluer les mesures suivantes. Par conséquent, et la chambre et le système de rembobinage de la bande ont besoin d'être sous vide tout au long de l'expérience.

3.5.3 Détecteurs

Détection γ

Pour détecter le rayonnement γ émis lors de la désintégration des produits de fission, deux "clovers" ont été placés de part et d'autre de la chambre à vide. Ils sont tous deux constitués de quatre détecteurs Germanium disposés en forme de "trèfle", ce qui leur confère une efficacité géométrique plus importante.

Un détecteur semi-conducteur, détecteur Silicium ou Germanium pour les plus couramment utilisés, s'apparente à une chambre à ionisation solide. Les charges créées par un rayonnement ionisant sont séparées sous l'action d'un champ électrique, et la valeur mesurée, proportionnelle à l'énergie déposée, est le courant induit.

Les semi-conducteurs les plus utilisés pour les détecteurs sont des éléments tétravalents (c'est le cas du Si ou du Ge).

Ils possèdent une conductivité située entre celle des conducteurs, et celle des isolants (figure 3.15). De la même manière, le gap entre la bande de valence et la bande de conduction dans le cas d'un cristal semi-conducteur ($\simeq 1$ eV) prend une valeur intermédiaire entre la valeur d'un conducteur ($= 0$ eV) ou celle d'un isolant ($\simeq 6$ eV).

Les porteurs de charge dans la bande de conduction sont les électrons, et les trous dans la bande de valence. Un semi-conducteur intrinsèque est caractérisé par une concentration d'électrons égale à sa concentration de trous.

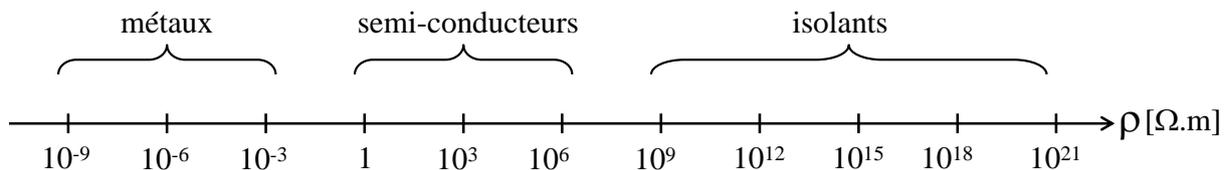


FIG. 3.15 – Résistivité (*inverse de la conductivité*) pour différents types de matériaux.

Afin de favoriser la création des porteurs, les semi-conducteurs sont la plupart du temps dopés. Ce dopage, ou adjonction volontaire d'impureté dans le cristal, peut être de deux types. On parle de semi-conducteur de type N lorsque le dopage favorise comme porteurs les électrons, alors qu'un dopage au profit des porteurs trous sera dit de type P.

Les détecteurs Germanium de type P sont plus sensibles aux dégâts causés par les neutrons rapides. L'environnement neutronique au niveau du système de détection du Lohengrin reste cependant très faible pour tenir compte de ces effets. Au cours des différentes expériences, les deux types de détecteurs Germanium ont été utilisés.

L'existence d'un courant inverse à température ambiante impose à ce type de détecteur un fonctionnement à basse température. L'azote liquide est généralement utilisé pour refroidir les détecteurs, leur permettant de fonctionner à environ 77 K. La photographie de sept détecteurs Germanium placés de part et d'autre d'une chambre à ionisation est montrée figure 3.16.

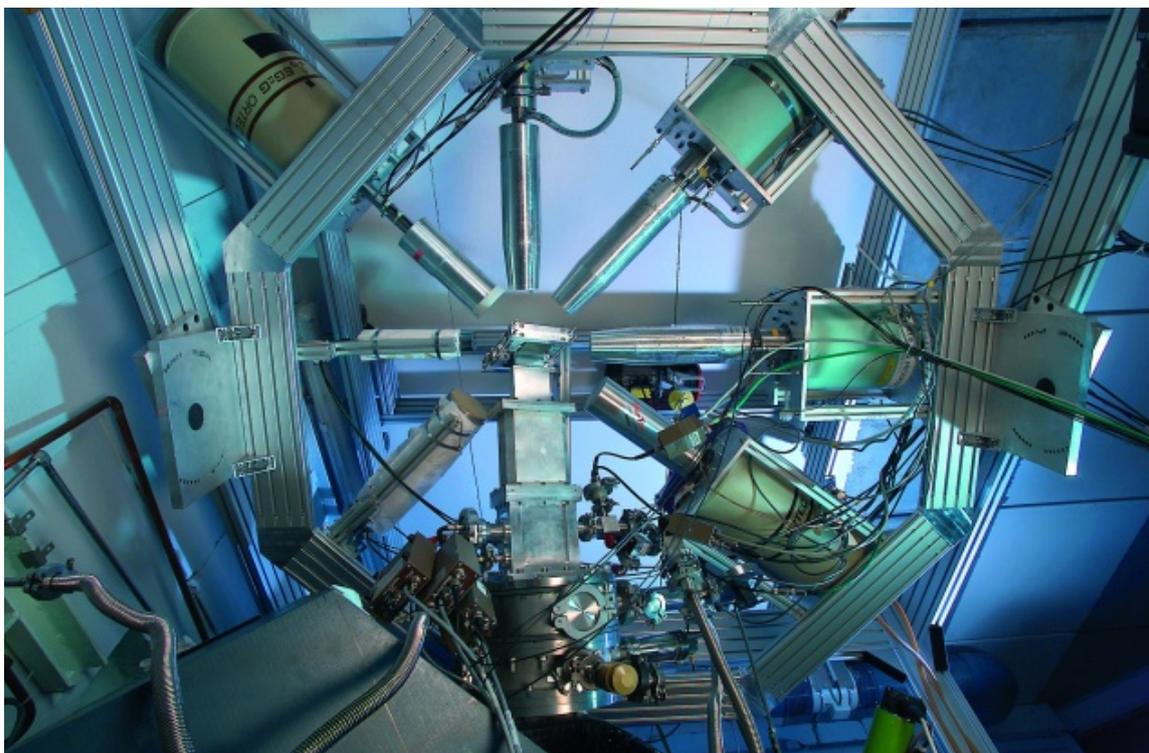


FIG. 3.16 – Photographie du système de détection lors d’une expérience sur le Lohengrin.

Détection β

Des mesures en coïncidences $\beta-\gamma$ permettent de s’affranchir du bruit de fond γ qui est, bien que ne résultant pas de la désintégration des produits de fission sélectionnés, détecté par les clovers. Ces γ , qui proviennent du réacteur à cause de l’activation des matériaux environnant par le bruit de fond neutronique, polluent les spectres et en rendent leur analyse plus difficile.

Une façon efficace de contourner cette contamination est de ne sélectionner uniquement que les γ de désexcitation des produits de fission qui suivent les électrons émis lors des désintégrations β^- . Pour cela, seuls les γ qui suivent immédiatement la détection d’un β seront enregistrés.

La détection de ces électrons se fait via un scintillateur plastique et un photomultiplicateur.

Le plastique de ce détecteur, chimiquement traité, contient des molécules fluorescentes qui vont être excitées par l’énergie déposée par les électrons au cours de leur traversée. En se désexcitant, ces molécules émettent de la lumière dont l’intensité émise est proportionnelle à l’énergie laissée par les électrons dans le scintillateur. Les photons ainsi créés vont, par effet photoélectrique sur le métal de la photocathode du photomultiplicateur, être convertis en un faible signal électrique. Celui-ci, accéléré et multiplié par une série de dynodes, pourra ensuite atteindre la cathode du photomultiplicateur et créer une impulsion de courant correspondant à la détection d’un photon.

La détection $\beta-\gamma$ en coïncidence s’est avérée difficile à utiliser pour des raisons évoquées au chapitre 4.

Chapitre 4

Méthode d'analyse

4.1 Introduction

Les méthodes d'analyse des différentes expériences qui ont été menées sur le spectromètre Lohengrin au cours de ce travail sont développées dans ce chapitre.

Les mesures de rendement en masse ont nécessité l'utilisation d'une chambre à ionisation alors que les rendements isotopiques ont été déterminés par spectrométrie γ (chapitre 3). Ces deux méthodes auraient pu être présentées séparément dans les chapitres 6 (rendements isobariques) et 7 (rendements isotopiques), et ce choix aurait vraisemblablement allégé la lecture. Cependant parce que le chapitre 5, qui propose une étude des distributions en charge ionique et en énergie cinétique, s'appuie sur des mesures provenant de ces deux différents types d'expériences, il été nécessaire d'expliquer au préalable comment ces résultats ont été obtenus.

4.2 Principe général de la méthode

Mesurer le rendement d'un noyau X au cours d'une réaction revient simplement à compter le nombre de noyaux X émis au cours de cette réaction.

Ainsi déterminer les rendements de fission isobariques (ou isotopiques) consiste à évaluer combien de noyaux de masse A (ou de charge nucléaire Z) sont émis au cours de la fission. Cependant le spectromètre Lohengrin ne permet pas de mesurer directement la distribution totale d'une masse (ou d'un isotope) puisqu'il sélectionne les masses à une charge ionique et une énergie cinétique données (chapitre 3).

Lors de la fission la masse A (ou la charge nucléaire Z) est produite selon une distribution en énergie cinétique E_k . Ces ions vont ensuite sortir de la cible selon une distribution en charge ionique établie au cours de la traversée de celle-ci. Ces deux distributions seront discutées au chapitre 5.

Une mesure exhaustive du rendement $Y(A)$ de la masse A ($Y(A, Z)$ pour la charge nucléaire Z) consisterait à sommer les rendements de cette masse (ou de cette charge) pour chaque combinaison d'énergie cinétique et d'état de charge. Cependant cette méthode est beaucoup trop coûteuse en temps d'expérience pour pouvoir être réalisée telle quelle.

Il est nécessaire d'introduire au préalable un certain nombre de notations dans le but de bien comprendre comment sont déterminés les rendements de fission isobariques (ou isotopiques) sur le spectromètre de masse Lohengrin en fonction des distributions en énergie cinétique et en charge ionique.

4.2.1 Notations

Remarque : Dans un souci de simplification, les démonstrations qui suivent ne sont effectuées que pour les rendements en masse. Toutes ces équations sont identiques pour les rendements isotopiques en remplaçant la masse A par la charge nucléaire Z pour une masse donnée.

Rendement indépendant du produit de fission de masse A à la charge ionique q_i et à l'énergie cinétique E_{k_j} : $Y(A, q_i, E_{k_j})$

C'est la probabilité pour qu'un noyau de masse atomique A à la charge ionique q_i et l'énergie cinétique E_{k_j} soit formé par fission après l'émission des neutrons prompts et avant sa décroissance radioactive. Elle correspond à la somme des charges nucléaires Z de cette masse.

Remarque : Dans la suite de ce chapitre, et toutes les fois où il sera question de rendement en masse, la sommation sur les charges nucléaires sera implicite, et le terme de "rendement" sera utilisé pour parler des "rendements indépendants".

Rendement du produit de fission de masse A à l'énergie cinétique E_{k_j} : $Y(A, E_{k_j})$

C'est la somme sur toutes les charges ioniques des produits de fission de masse A à l'énergie cinétique E_{k_j} .

Rendement du produit de fission de masse A à la charge ionique q_i : $Y(A, q_i)$

C'est la somme sur toutes les énergies cinétiques des produits de fission de masse A à la charge ionique q_i .

Rendement du produit de fission de masse A : $Y(A)$

C'est la somme sur toutes les charges ioniques et toutes les énergies cinétiques des produits de fission de masse A .

Par convention, les rendements sont normalisés à 2 pour la somme de tous les produits de fission. La somme des produits de fission légers est ainsi égale à la somme des produits de fission lourds, soit à 1.

4.3 Méthode de détermination des rendements

Rendement $Y(A)$ de la masse A :

$$Y(A) = \sum_Z \sum_i \int_{E_k} Y(A, Z, q_i, E_k) dE_k$$

Rendement isotopique :

$$Y(A, Z) = \sum_i \int_{E_k} Y(A, Z, q_i, E_k) dE_k$$

Le rendement $Y(A)$ de la masse A qui correspond à l'intégrale sur les charges ioniques et les énergies cinétiques de la distribution de la masse A est donné par son volume. La distribution de la masse 136 ($^{235}\text{U}(\text{nth}, \text{f})$) est montrée figure 4.1. Un quadrillage complet en énergie cinétique et charge ionique de cette distribution a été effectué uniquement pour les masses 98 et 136 (discussion chapitre 5 paragraphe 5.3).

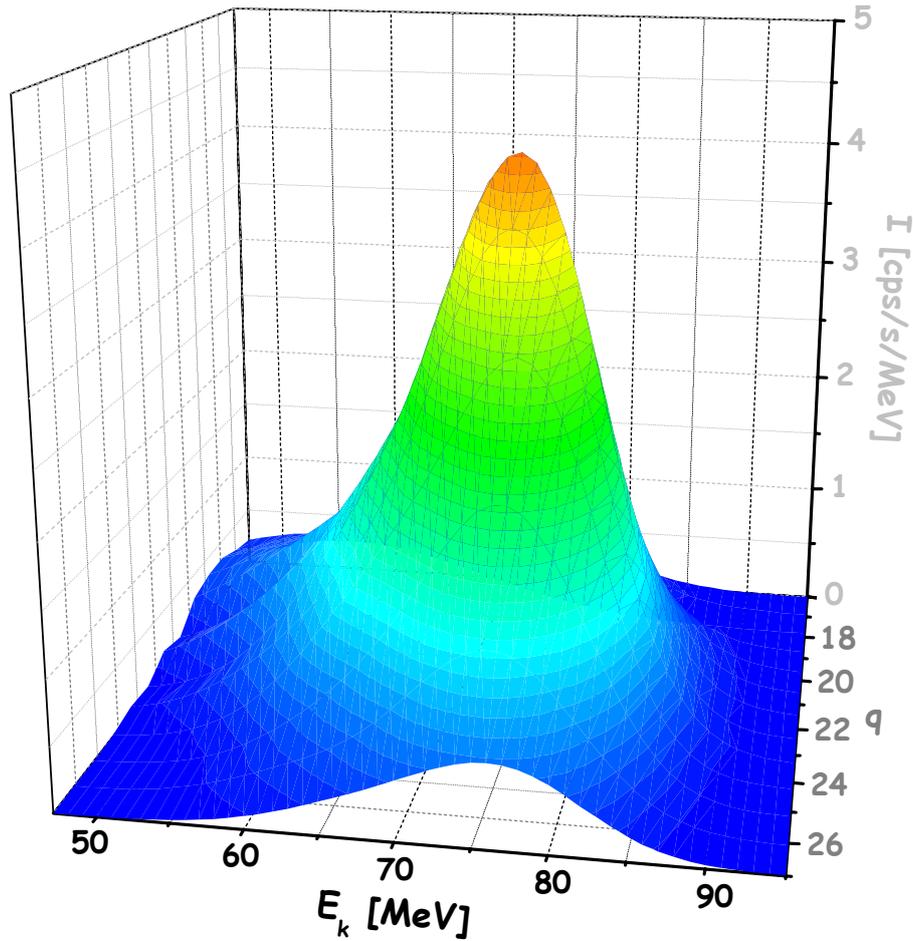


FIG. 4.1 – Mesure du rendement de la masse 136 pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ en fonction de E_k et q . Le rendement de cette masse est proportionnel au volume de la distribution.

A cause de la combustion de la cible, c'est à dire de la perte de noyaux due aux réactions de fission, la durée de vie des cibles est d'environ deux semaines. Au-delà de cette durée, le taux de comptage devient insuffisant pour continuer les mesures.

Une distribution en charge ionique à l'énergie cinétique E_{k_j} peut nécessiter la mesure de plus de quinze charges, alors qu'une distribution en énergie cinétique à la charge ionique q_i couvre une quarantaine de MeV. Avec des temps de mesure qui peuvent aller de la minute pour les noyaux au sommet des distributions, à plus d'une heure pour ceux qui ont un rendement plus faible, la détermination d'une seule masse avec cette méthode nécessite presque un jour entier de mesures. Ce problème est encore plus important pour la détermination des rendements isotopiques où le temps minimum d'acquisition d'un spectre est de 20 min, et peut aller jusqu'à plusieurs heures pour les points en queue de distribution.

Pour cette raison les rendements de fission sur le spectromètre Lohengrin sont déterminés à partir de la mesure d'une seule distribution en charge ionique à l'énergie cinétique E_{k_j} et d'une seule distribution en énergie cinétique à la charge ionique q_i uniquement.

Dans ces conditions, en posant $R(q_i)$ et $S(E_{k_j})$ l'intégrale des distributions en charge et en énergie, le rendement de la masse A est alors égal à :

$$Y(A) = \frac{R(A, q_i) \times S(A, E_{k_j})}{Y(A, q_i, E_{k_j})} \quad (4.1)$$

Une discussion sur la validité de cette équation est menée dans l'Annexe A.

4.4 Rendements $Y_{\text{exp}}(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})$ et $Y_{\text{exp}}(\mathbf{A}, \mathbf{Z}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})$

Les rendements $Y(A, q_i, E_{k_j})$ et $Y(A, Z, q_i, E_{k_j})$ pour une charge ionique q_i et une énergie cinétique E_{k_j} données sont déterminés à partir des mesures expérimentales. Ils correspondent aux valeurs mesurées $Y_{\text{exp}}(A, q_i, E_{k_j})$ ou $Y_{\text{exp}}(A, Z, q_i, E_{k_j})$ auxquelles un certain nombre de corrections ont été faites (Chapitre 4 paragraphe 4.5).

Pour les mesures avec la chambre à ionisation, le rendement $Y_{\text{exp}}(A, q_i, E_{k_j})$ est obtenu en sommant tous les ions de masse A , de charge ionique q_i et d'énergie cinétique E_{k_j} . Cette sommation se fait en intégrant la tâche correspondante à la masse étudiée sur les spectres obtenus par le logiciel d'acquisition MPAWIN. La figure 4.2 montre un exemple de spectre obtenu pour la masse 136 à la charge ionique 21 et l'énergie cinétique 64 MeV pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$. Le rendement $Y_{\text{exp}}(136, 21, 64)$ est donné par le nombre d'ions de la tâche qui correspond à cette masse (cercle en rouge).

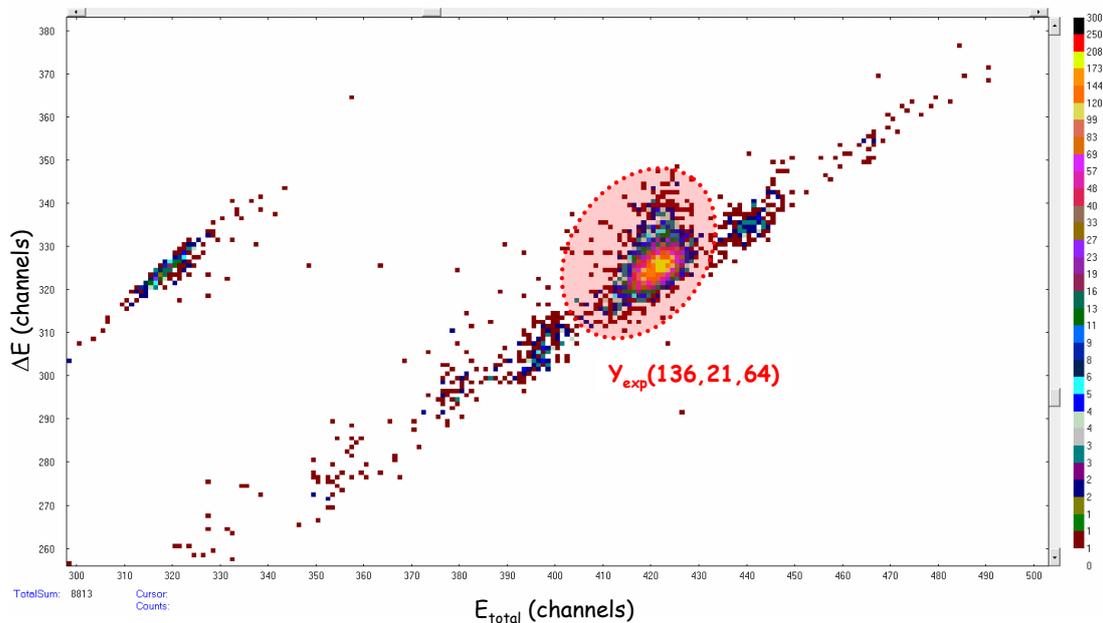


FIG. 4.2 – Exemple de spectre obtenu pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$. Le rendement $Y_{\text{exp}}(136, 21, 64)$ correspond aux nombre d'ions de la tâche en rouge.

Pour les mesures par spectrométrie γ , le rendement $Y_{\text{exp}}(A, Z, q_i, E_{k_j})$ correspond à l'intégrale de la raie γ de l'isotope Z mesuré.

Des exemples de spectres sont donnés sur les figures 4.3, 4.4, 4.5 et 4.6. Ils sont analysés grâce au logiciel TV qui a été conçu à Mayence et qui permet de visualiser les spectres ainsi que de fitter les pics. Optimisé dans les fits “multi pics”, il permet de fitter des pics qui se recouvrent en leur imposant comme contrainte une seule et même largeur. Le choix pour la fonction du fit peut se faire entre une distribution gaussienne ou une fonction gamma. Au cours de nos mesures, tous les pics ont été ajustés par des fonctions gaussiennes. Elles correspondent à la distribution qui reproduit le mieux la majorité des pics γ mesurés. L'intégrale de ces fits ainsi que les erreurs associées, erreurs dues à la statistique et au fit, sont directement évaluées par le programme TV. L'intégrale du pic γ correspond au rendement $Y_{\text{exp}}(A, Z, q_i, E_{k_j})$.

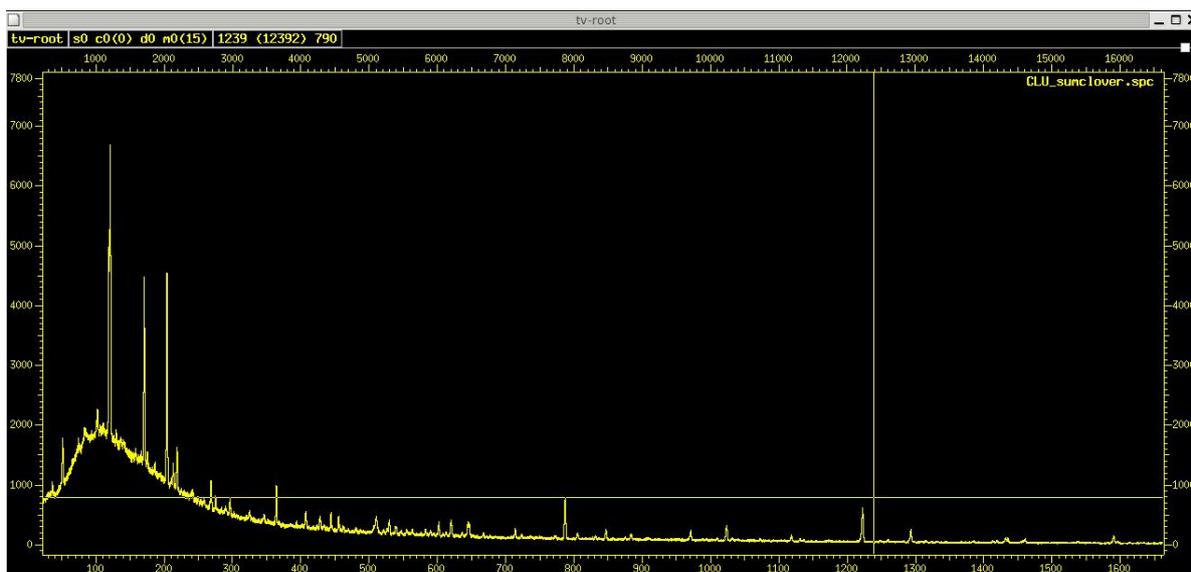


FIG. 4.3 – Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 137$, la charge ionique $q = 21$ et l'énergie cinétique $E_k = 52$ MeV. Temps d'acquisition du spectre : 1800 s.



FIG. 4.4 – Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 140$, la charge ionique $q = 23$ et l'énergie cinétique $E_k = 67$ MeV. Temps d'acquisition du spectre : 1200 s. On peut voir sur ce spectre trois régions sélectionnées. Les deux régions les plus extrêmes, les plus à gauche et à droite, permettent d'évaluer le bruit de fond qui est donné par la ligne verte. La région du milieu représente les pics γ à fitter. Leur nombre est choisi par l'utilisateur au vue de la contamination de cette région par des raies γ parasites. L'isotope mesuré sur cet exemple correspond au pic d'énergie 602,3 keV du Césium ($Z=55$).

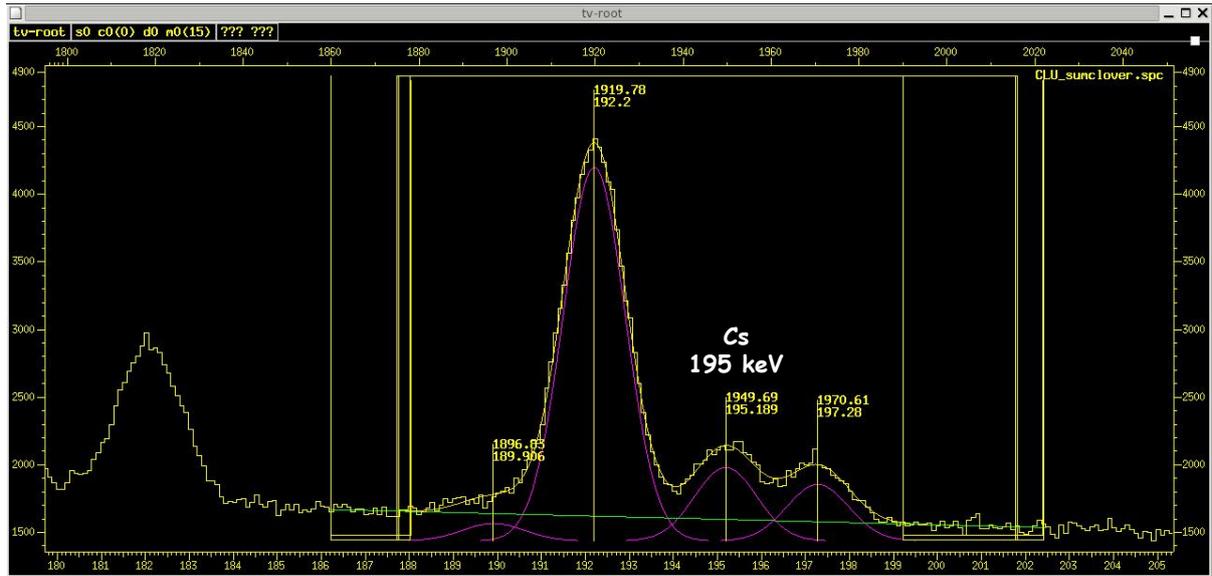


FIG. 4.5 – Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 143$, la charge ionique $q = 22$ et l'énergie cinétique $E_k = 62$ MeV. Temps d'acquisition du spectre : 1200 s. Sur ce spectre la courbe en jaune correspond au fit total des trois pics γ , chacun représenté séparément par une gaussienne en violet.

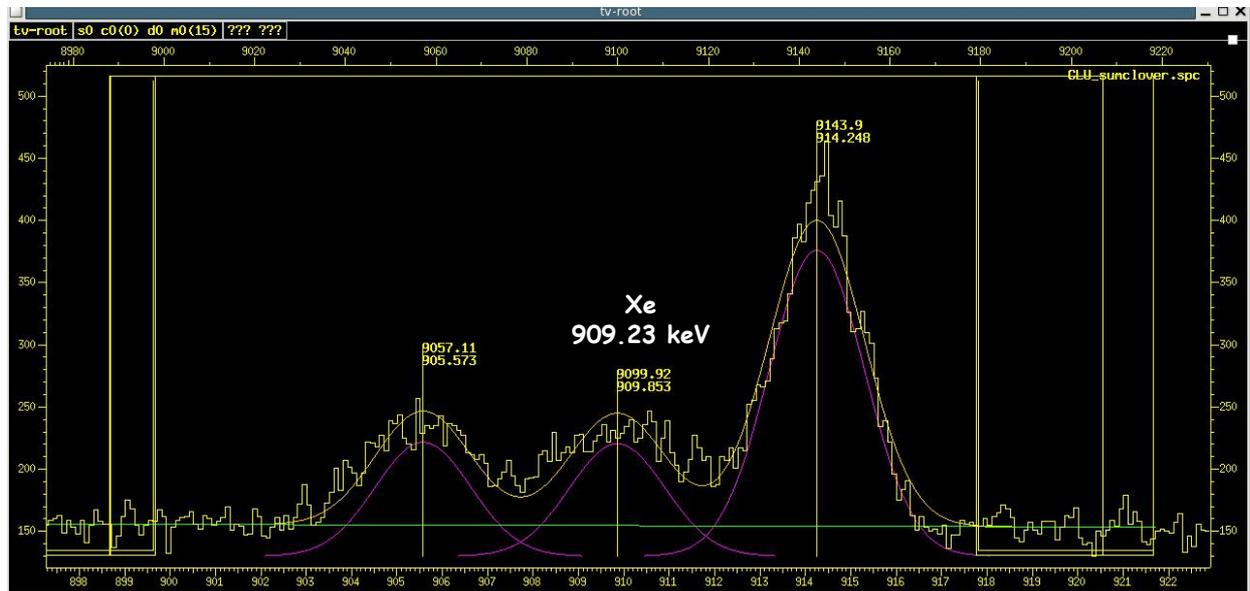


FIG. 4.6 – Exemple d'un spectre γ pour la masse $A = 141$, la charge ionique $q = 22$ et l'énergie cinétique $E_k = 53$ MeV. Temps d'acquisition du spectre : 1200 s.

4.5 Corrections expérimentales systématiques

Afin de déterminer les rendements isobariques $Y(A, q_i, E_{k_j})$ et les rendements isotopiques $Y(A, Z, q_i, E_{k_j})$, un certain nombre de corrections sont à prendre en compte sur les mesures $Y_{exp}(A, q_i, E_{k_j})$ et $Y_{exp}(A, Z, q_i, E_{k_j})$.

Ce paragraphe énumère toutes les corrections communes aux expériences avec la chambre à ionisation et par spectrométrie γ .

4.5.1 Temps d'acquisition des spectres

La première correction qu'il faut prendre en compte pour pouvoir comparer les différents résultats entre eux est le temps d'acquisition des spectres. Il suffit pour cela de diviser les rendements $Y_{exp}(A, q_i, E_{k_j})$ et $Y_{exp}(A, Z, q_i, E_{k_j})$ par les temps de mesure T_{mes} .

4.5.2 Acceptance en énergie du spectromètre

La relation entre l'énergie $E_{k_{LOH}}$ mesurée par le spectromètre et son acceptance en énergie $\Delta E_{k_{LOH}}$ est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{\Delta E_{k_{LOH}}}{E_{k_{LOH}}} = \frac{\Delta x}{D_E}$$

Pour une cible donnée la dispersion Δx ne change pas, le rapport $\Delta x/D_E$ est alors constant et l'acceptance en énergie devient directement proportionnelle à l'énergie Lohengrin. Pour corriger cet effet il faut diviser chaque intensité mesurée par la valeur de $E_{k_{LOH}}$.

4.5.3 Perte d'énergie cinétique dans la cible et la feuille de Nickel

Lorsque les produits de fission pénètrent dans le spectromètre de masse, ils ont perdu une partie de leur énergie cinétique en traversant la cible et la feuille de Nickel.

La valeur de leur énergie juste après l'émission des neutrons prompts correspond à l'énergie $E_{k_{LOH}}$ mesurée par le spectromètre à laquelle il faut ajouter l'énergie déposée dans la cible et dans la feuille de Nickel. La perte de cette énergie est calculée par le logiciel TRIM [74]. Pour cela, on suppose que les ions traversent en moyenne la moitié de la cible et toute la feuille de Nickel.

Par exemple au cours des mesures de rendement en masse (cible d' $\simeq 150 \mu\text{g}$ d'actinide + feuille de Nickel de $0,25 \mu\text{m}$) environ 25% de la perte en énergie des produits de fission ($\gtrsim 2 \text{ MeV}$) est du à la traversée de la cible, le reste ($\simeq 6 \text{ MeV}$) vient de la traversée de la feuille de Nickel.

4.5.4 Flux du réacteur

En condition de fonctionnement normal du réacteur le flux de neutrons est relativement stable. Cependant nos mesures n'ont pas toujours été réalisées dans de telles conditions, et ces instabilités ont dues être prises en compte.

Comme le flux de neutrons thermiques à l'entrée du spectromètre n'est pas directement mesuré, une correction précise de ces variations est difficile à prendre en compte. Cependant la puissance thermique du réacteur est mesurée à chaque instant. Elle est proportionnelle au flux de neutrons global au niveau du coeur du réacteur. Même si celui-ci peut varier localement, au premier ordre ces différences peuvent être négligées. Les corrections sur les fluctuations du flux ont donc été prises en compte par rapport aux fluctuations de la puissance thermique du réacteur.

La figure 4.7 montre les variations de la puissance thermique du réacteur pendant la mesure des rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ (septembre 2007). En condition normale de fonctionnement le réacteur est très stable. Ce cycle représente un cas extrême auquel on a du faire face.

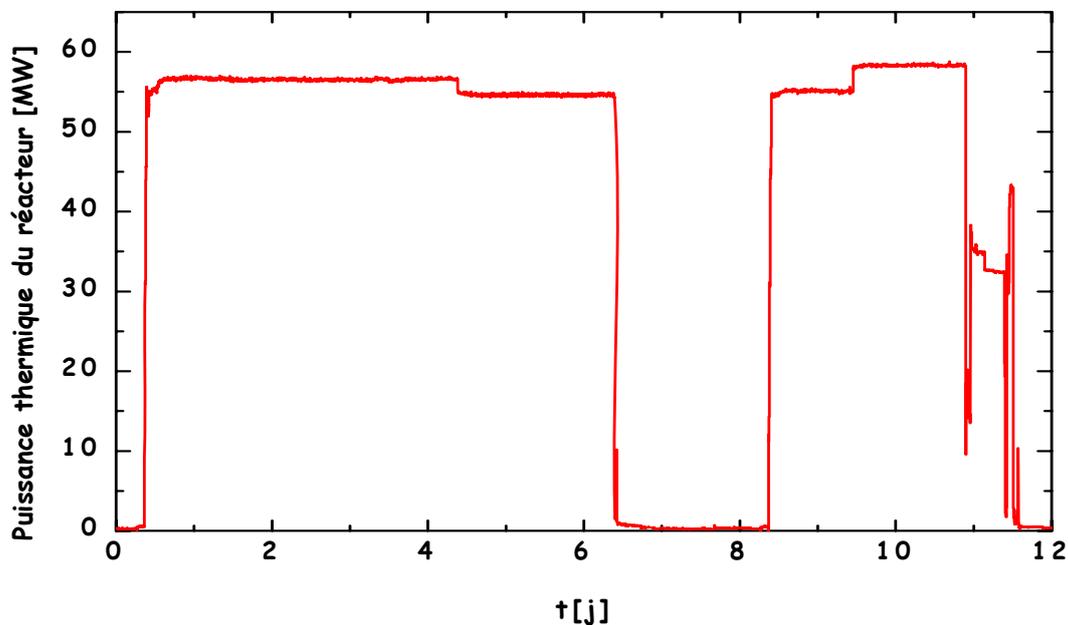


FIG. 4.7 – Variation de la puissance thermique du réacteur au cours de la mesure des rendements en masse de l' $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$.

Afin d'améliorer la prise en compte de ce phénomène, des mesures du flux en continu par chambres à fission placées dans le canal du spectromètre sont prévues dans les cycles qui viennent.

4.5.5 Combustion de la cible

Lorsqu'une cible d'actinide est soumise à un important flux de neutrons, elle perd au cours du temps une quantité de matière non négligeable.

Une cible peut perdre au cours d'une mesure jusqu'à 80% de sa matière initiale en une semaine.

Pour tenir compte de ce phénomène, la perte d'actinide est évaluée en mesurant régulièrement une masse de référence. Tracée en fonction du temps, l'intensité de cette masse correspond à la courbe dite de "burn-up". La perte de matière est alors estimée à l'aide d'un fit sur les points mesurés.

La combustion strictement nucléaire de la cible suit une exponentielle décroissante (équation 4.2).

$$I(t) = I_0 \exp^{-\lambda_1 t} \quad (4.2)$$

$$\text{avec } \lambda_1 = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} = \sigma \phi$$

$\phi \sim 5,4.10^{14} \text{n.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$ représente le flux de neutrons thermiques au niveau de la cible du Lohengrin et σ la section efficace d'absorption de l'actinide considéré.

À celle-ci vient s'ajouter un fort échauffement de la cible au cours des premières heures qui engendre des pertes de matière importantes. Des morceaux d'actinide se décrochent alors de la cible ponctuellement. Pour représenter rigoureusement ce phénomène (fonction en escalier) il faudrait mesurer le burn-up en continu durant les premières heures de la cible, c'est pourquoi il est préférable de ne pas mesurer de masse pendant cette période. Cependant, afin d'ajuster tous les points expérimentaux et de représenter au mieux la combustion de la cible d'après les mesures prises, chacun des burn-up ont été ajustés par deux exponentielles décroissantes (équation 4.3) [75].

$$I(t) = I_0 e^{-\lambda_0 t} + I_1 e^{-\lambda_1 t} \quad (4.3)$$

Le terme de courte durée de vie tend à représenter les pertes de matière au cours des premières heures de la cible alors que celui de longue durée de vie représente la combustion nucléaire de l'actinide ainsi que la perte de matière par "sputtering" : en sortant de la cible, les produits de fission peuvent éjecter de celle-ci un nombre X d'atomes d'actinide. Malgré la présence de la feuille de Nickel et juste après la combustion nucléaire, le sputtering représente l'effet qui contribue le plus à la perte de matière de la cible. C'est un effet microscopique qui est proportionnel au flux des produits de fission puisque le nombre X d'atomes d'actinide éjectés de la cible par les produits de fission reste relativement constant.

Les paramètres de fit pour les trois noyaux mesurés sont donnés dans le tableau 4.2.

| Réaction | I_0 | λ_0 (j^{-1}) | I_1 | λ_1 (j^{-1}) |
|---|-----------------------|---------------------------------|-----------------------|---------------------------------|
| $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 0,38 ($\pm 0,05\%$) | 0,79 ($\pm 0,06\%$) | 0,64 ($\pm 0,05\%$) | 0,07 ($\pm 0,06\%$) |
| $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 0,25 ($\pm 0,03\%$) | 1,47 ($\pm 0,04\%$) | 0,77 ($\pm 0,03\%$) | 0,23 ($\pm 0,04\%$) |
| $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ | 0,21 ($\pm 0,02\%$) | 6,67 ($\pm 0,02\%$) | 0,85 ($\pm 0,02\%$) | 0,24 ($\pm 0,02\%$) |

TAB. 4.1 – Paramètres des équations utilisées pour ajuster le burn-up des réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$.

La référence choisie pour les mesures de burn-up avec la chambre à ionisation correspond à l'intégrale de la distribution en énergie cinétique de la masse 136 à la charge ionique 21. Pour les rendements isotopiques c'est la raie γ du noyau $^{136}_{52}\text{Te}$ ($T_{1/2} = 17,5\text{s} \pm 0,2\%$) de $334,00 \text{keV} \pm 0,02\%$ qui a été prise comme référence.

Les différents burn-up pour les mesures de rendements en masses des trois noyaux $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ sont tracés figure 4.8.

A cause des contraintes de temps de faisceau, deux expériences différentes ont été nécessaires à la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$. Les courbes de burn-up de ces deux cibles sont données figure 4.9.

En plus de la perte d'intensité de la cible deux phénomènes doivent être étudiés :

- La variation de l'énergie cinétique moyenne en fonction du temps.
- La variation des largeurs de distribution.

Deux phénomènes entrent alors en compétition pour la variation de ces deux quantités. Tout d'abord la perte de matière de la cible aurait tendance à les faire décroître alors que la diffusion de l'actinide dans le support ou dans la feuille de Nickel aurait plutôt l'effet inverse. Cependant, pour des temps de mesure de l'ordre de la semaine, les variations de l'énergie cinétique moyenne et des largeurs de distribution peuvent être négligées. Le tableau 4.2 qui présente leurs valeurs en fonction du temps pour la masse de référence de la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ montre que ces variations sont inférieures au pourcent.

| tps [min] | Y [cps/s] | $\langle E_k \rangle$ [MeV] | σ_{E_k} [MeV] |
|-----------|-----------------------------|-----------------------------|----------------------|
| 82 | $1,000 \pm 1,6 \text{ E-}2$ | $74,7 \pm 0,2$ | $5,6 \pm 0,24$ |
| 1046 | $0,813 \pm 1,2 \text{ E-}2$ | $74,4 \pm 0,2$ | $5,6 \pm 0,20$ |
| 1713 | $0,733 \pm 1,3 \text{ E-}2$ | $74,2 \pm 0,1$ | $5,5 \pm 0,12$ |
| 2355 | $0,671 \pm 1,1 \text{ E-}2$ | $74,3 \pm 0,1$ | $5,6 \pm 0,11$ |
| 3260 | $0,618 \pm 1,1 \text{ E-}2$ | $74,4 \pm 0,1$ | $5,5 \pm 0,05$ |
| 3778 | $0,582 \pm 1,0 \text{ E-}2$ | $74,5 \pm 0,1$ | $5,6 \pm 0,11$ |
| 4527 | $0,545 \pm 0,9 \text{ E-}2$ | $74,2 \pm 0,1$ | $5,6 \pm 0,10$ |
| 5214 | $0,518 \pm 0,9 \text{ E-}2$ | $74,2 \pm 0,1$ | $5,5 \pm 0,11$ |
| 6140 | $0,482 \pm 0,2 \text{ E-}2$ | $74,2 \pm 0,1$ | $5,6 \pm 0,10$ |
| 6640 | $0,464 \pm 0,2 \text{ E-}2$ | $74,4 \pm 0,1$ | $5,7 \pm 0,10$ |
| 6873 | $0,436 \pm 0,3 \text{ E-}2$ | $74,3 \pm 0,1$ | $5,5 \pm 0,11$ |
| 8217 | $0,416 \pm 0,2 \text{ E-}2$ | $74,2 \pm 0,1$ | $5,8 \pm 0,13$ |
| 9545 | $0,436 \pm 0,1 \text{ E-}2$ | $74,3 \pm 0,2$ | $5,7 \pm 0,11$ |
| 10448 | $0,380 \pm 0,1 \text{ E-}2$ | $74,3 \pm 0,1$ | $5,8 \pm 0,12$ |

TAB. 4.2 – Intensités, énergies cinétiques moyennes et largeurs de distribution pour les différentes distributions en énergie de la masse 136 à la charge ionique 21 pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ en fonction du temps.

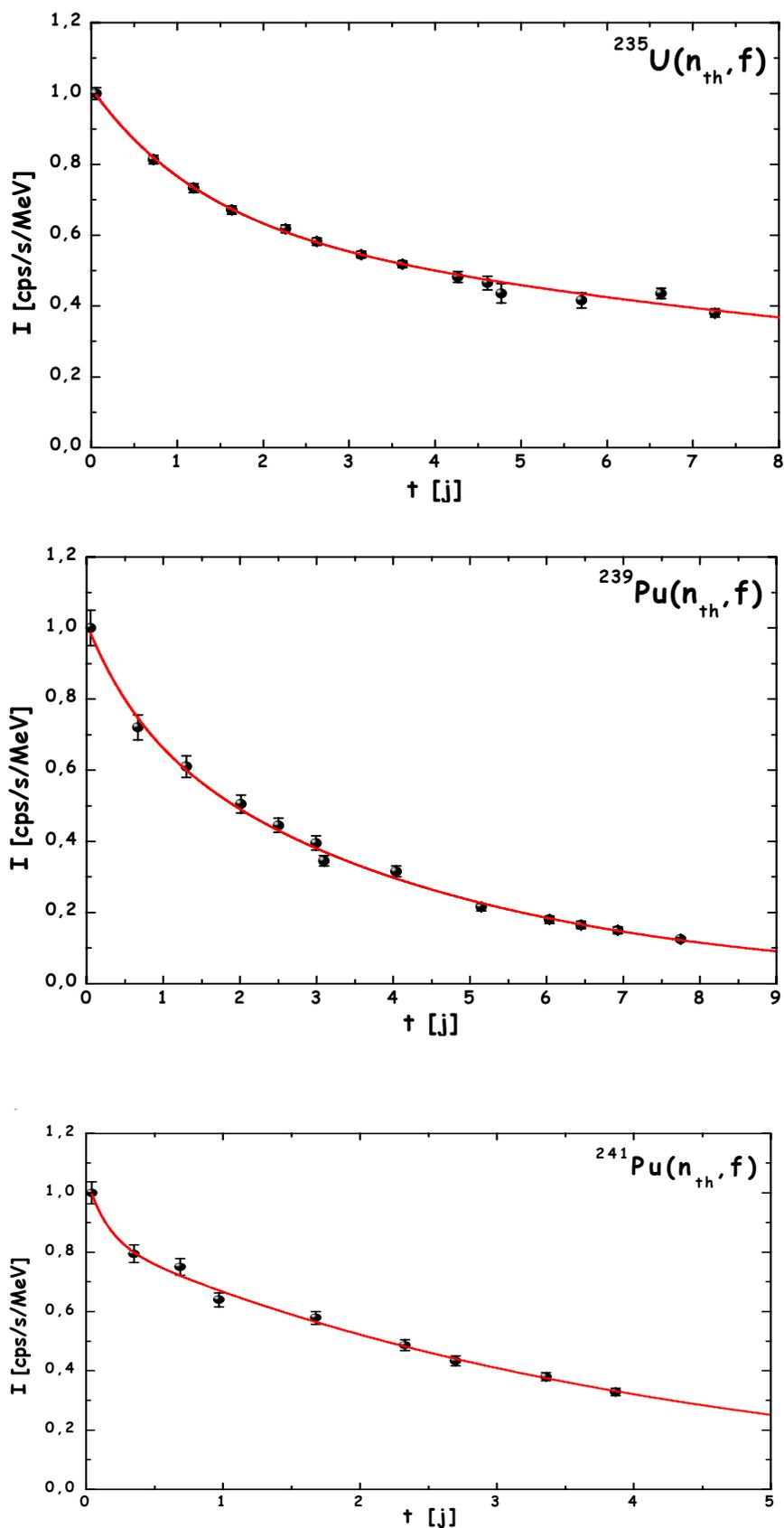


FIG. 4.8 – L'intégrale de la distribution en énergie cinétique de la masse 136 à la charge 21 est tracée en fonction du temps pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$. Elles correspondent aux burn-up de ces trois cibles.

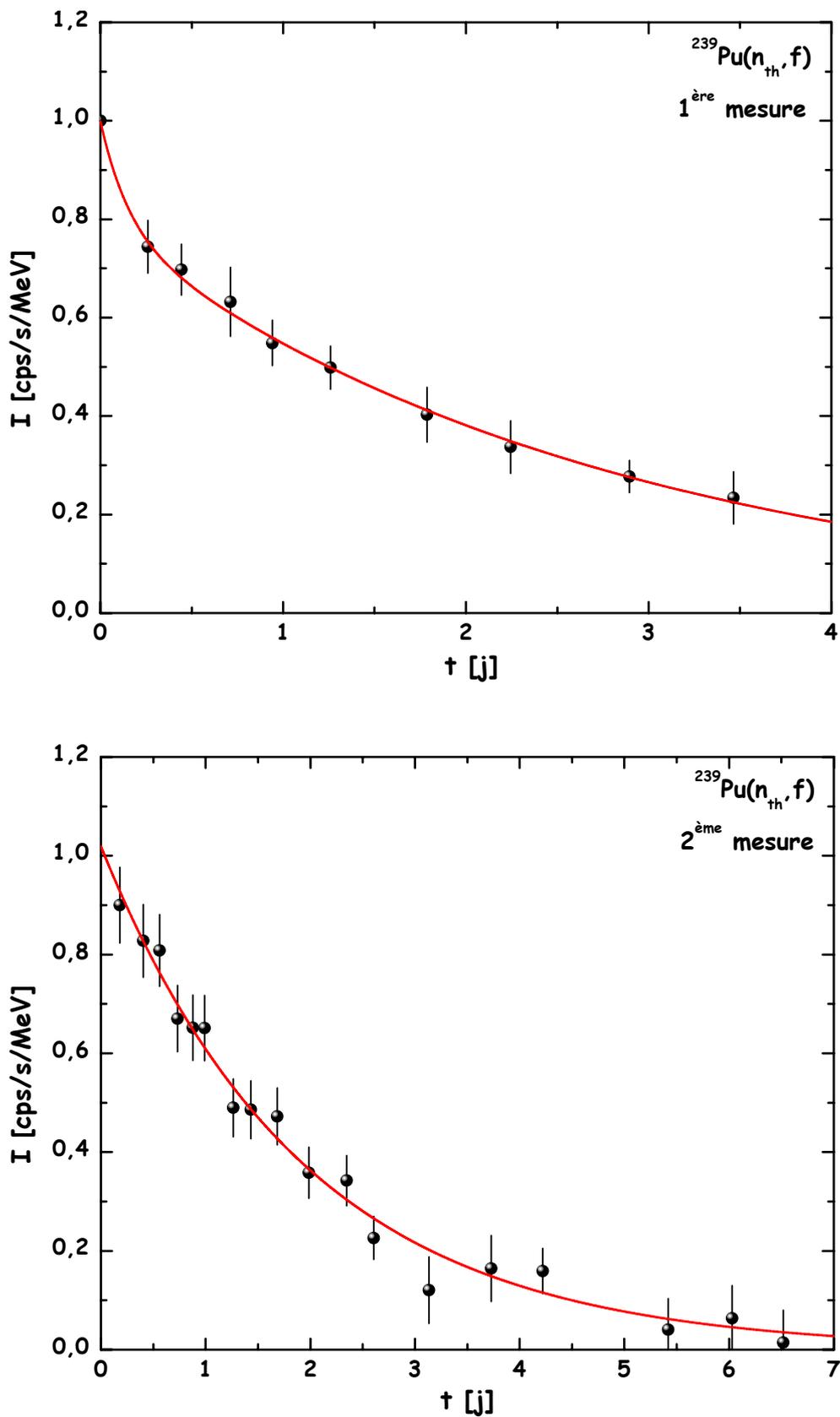


FIG. 4.9 – Burn-up des deux différentes mesures dans la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$: raie γ de 334 keV du noyau $^{136}_{52}\text{Te}$ en fonction du temps.

4.5.6 Conclusion

En tenant compte de toutes les corrections décrites précédemment le rendement $Y(A, q_i, E_{k_j})$ de la masse A à la charge ionique q_i et l'énergie cinétique E_{k_j} est égale à :

$$Y(A, q_i, E_{k_j}) = \frac{Y_{exp}(A, q_i, E_{k_j})}{E_{LOH} \times t_{mes} \times C_{BU+flux}}$$

La figure 4.10 présente l'impact des différentes corrections sur une distribution en énergie cinétique pour la masse 133 à la charge ionique 21 de la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

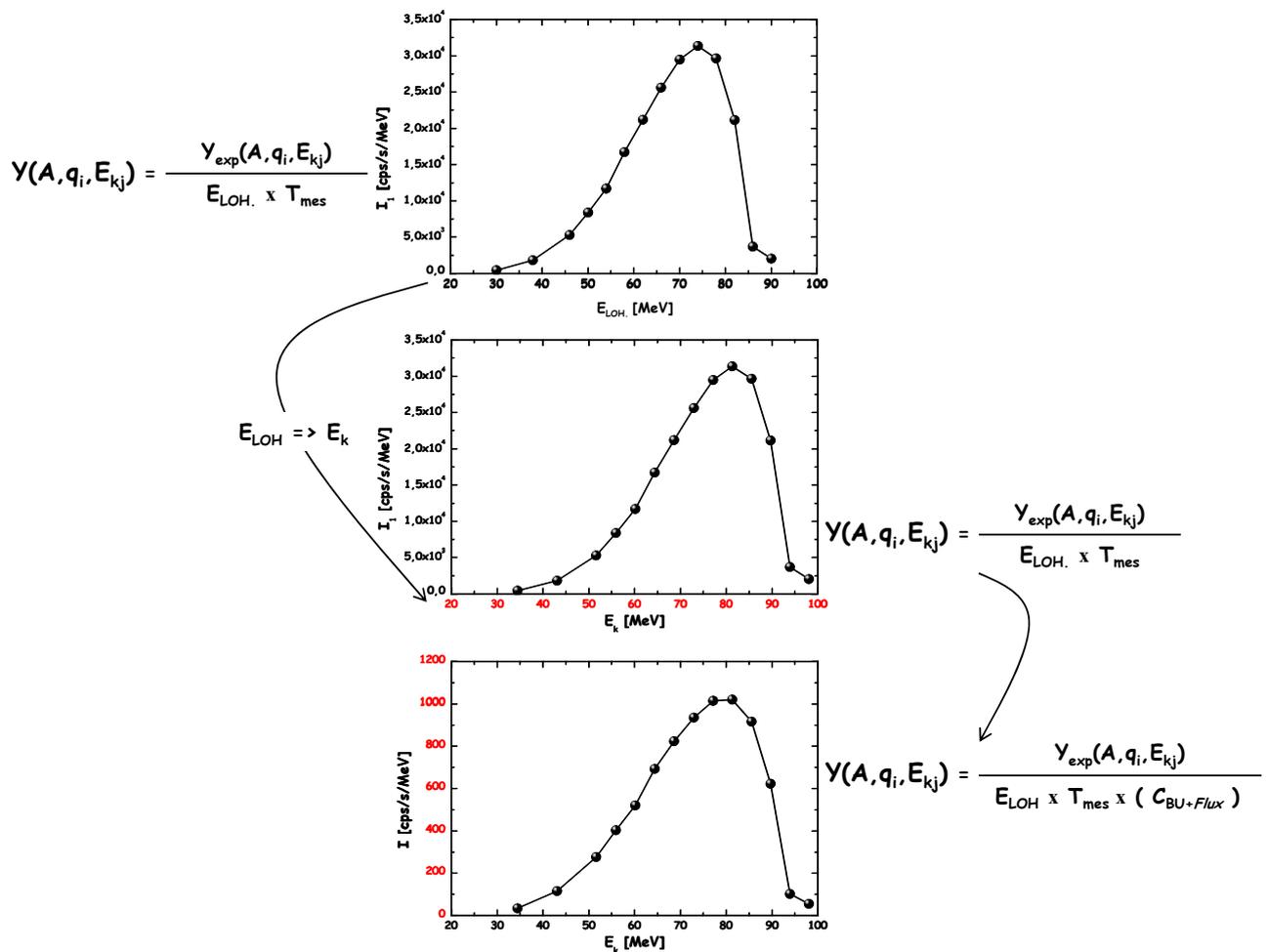


FIG. 4.10 – Impact des différentes corrections sur une distribution en énergie cinétique ($A=133$, $q=21$ pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$). La figure du milieu correspond à la distribution du haut après la prise en compte de la perte d'énergie des produits de fission dans la cible et la feuille de Nickel, alors que celle du bas montre l'effet des corrections du burn-up et du flux du réacteur. Ces dernières restent faibles en fonctionnement normal : le flux varie peu et la combustion de la cible est négligeable le temps de la mesure d'une distribution.

Les mesures par spectrométrie demandent un nombre de corrections plus important du à la présence des détecteurs Germanium.

4.6 Corrections expérimentales dûes aux détecteurs Germanium

La détermination du rendement $Y(A, Z, q_i, E_{k_j})$ consiste à mesurer l'intensité d'une des raies γ du noyau (A, Z) issues de sa décroissance β^- . Il faut donc normaliser cette valeur sur le rapport d'embranchement du pic γ considéré. Les données sur les rapports d'embranchement proviennent des bibliothèques nucléaires. Une discussion sur l'impact du choix de la bibliothèque sera abordée au chapitre 7.

En plus de cette renormalisation et des corrections énumérées dans le paragraphe précédent, il faut tenir compte de l'efficacité des détecteurs Germanium pour les énergies considérées.

4.6.1 Etalonnage des détecteurs Germanium

Avant d'évaluer la courbe d'efficacité des détecteurs il faut au préalable les étalonner en énergie.

La courbe d'étalonnage d'un détecteur Germanium, c'est à dire la correspondance canal-énergie, n'est jamais parfaitement linéaire. L'équation qui relie les énergies des gammas aux canaux du détecteur est généralement donnée selon une loi polynomiale [76] :

$$E_{\gamma_i} = \sum_{n=0}^N a_n C_i^n$$

Cependant, le degré de non linéarité de l'énergie en fonction du canal est dans la plupart des cas très faible, et au vue de la précision de nos mesures cette dépendance a pu être négligée.

La courbe d'étalonnage des détecteurs pour chacune des expériences a été tracée pour une seule et même masse A et charge nucléaire Z choisie telle que les énergies de ses niveaux de décroissance soient très bien connues dans la littérature.

4.6.2 Efficacité des détecteurs Germanium

L'efficacité d'un détecteur Germanium peut être exprimée en fonction de son coefficient d'absorption photoélectrique τ et Compton σ à l'énergie E_γ [76] (équation 4.4).

$$\epsilon = \frac{K[\tau + \sigma Q e^{(-RE_\gamma)}]}{\tau + \sigma} \{1 - \exp[-P(\tau + \sigma)]\} \quad (4.4)$$

Les valeurs des paramètres K , Q , R et P sont déduits d'un fit des points expérimentaux à partir de l'équation 4.4 (figure 4.11).

Cependant la gamme en énergie des γ mesurés au cours des décroissances β^- des produits de fission est beaucoup moins étendue : elle va de la centaine de keV jusqu'à 1,2 MeV. Il n'est donc pas nécessaire d'ajuster les points expérimentaux par une formule aussi complexe et complète, un fit tel que celui proposé par [77] est suffisant :

$$\epsilon(E_\gamma) = A.E_\gamma^B$$

La figure 4.12 montre la courbe d'efficacité de la mesure du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ de juin 2008. Parce que le faisceau d'ions en sortie du spectromètre n'est pas ponctuel, cette courbe n'a pas été ajustée sur les raies γ de désintégration des sources ponctuelles étalons utilisées habituellement. Elle a été tracée à l'aide des différentes raies γ de la décroissance β^- du noyau d' $^{96}\text{Y}(8+)$. Cet isomère présente l'avantage d'émettre des γ facilement identifiables sur une large plage en d'énergie. Les raies choisies vont en effet de 146,7 keV à 2226,2 keV (tableau 4.3). Cette méthode permet uniquement de tracer l'efficacité photopic relative des détecteurs. Une calibration en efficacité avec des sources étalons aurait permis de déterminer l'efficacité absolue des détecteurs en s'affranchissant des erreurs sur le rapport d'embranchement de la décroissance β^- de l' ^{96m}Y , mais les erreurs engendrées par la différence de symétrie entre le faisceau à la sortie du spectromètre et les sources ponctuelles auraient été plus importantes.

4.6.3 Coïncidences β - γ

Il a été dans un premier temps envisagé d'effectuer toutes les mesures en coïncidences β - γ .

Cependant à cause de l'efficacité du détecteur β (scintillateur plastique) les temps de mesure nécessaires à l'acquisition d'un spectre se sont avérés beaucoup trop longs. En effet sa position, à l'extérieur de la chambre à vide (figure 3.12), n'est pas optimum pour une bonne détection des électrons.

Il est donc envisagé pour les expériences futures de construire une chambre à vide à l'intérieur de laquelle sera fixé le détecteur.

Un tel dispositif devrait améliorer considérablement les conditions de l'expérience. En améliorant l'efficacité de la détection des électrons, il permettra des mesures en coïncidences β - γ , permettant de nettoyer les spectres γ du bruit de fond extérieur (seuls les γ qui proviennent de la décroissance β^- des produits de fission seront sélectionnés).

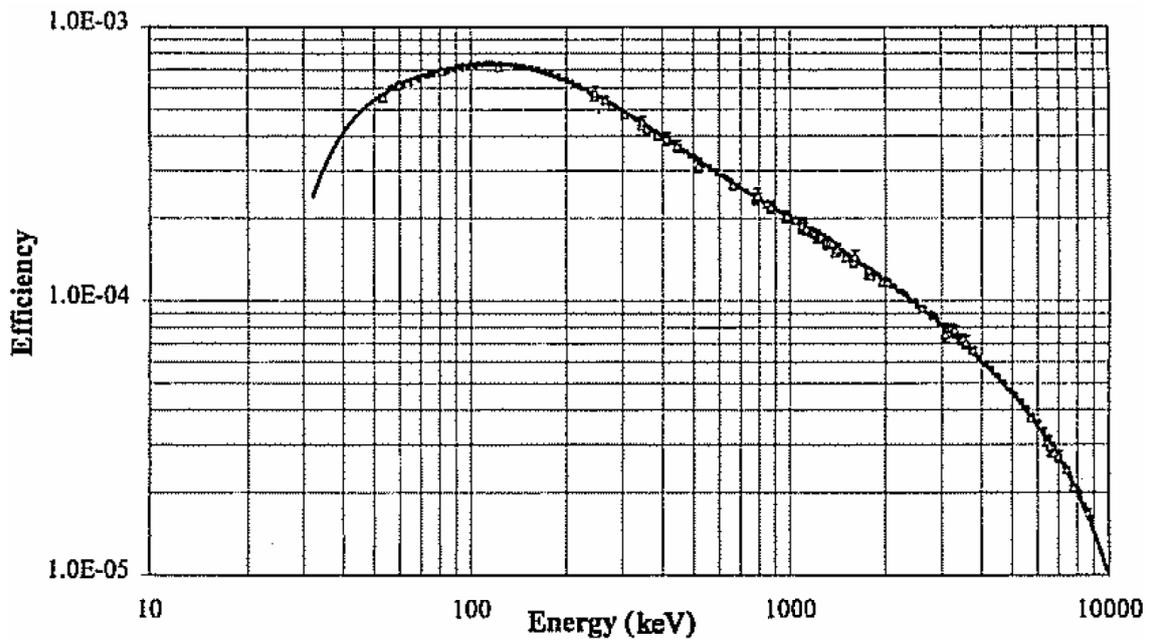


FIG. 4.11 – Courbe d'efficacité typique pour un détecteur Germanium. Les points représentent les valeurs expérimentales alors que le fit est donné par la courbe continue [76].

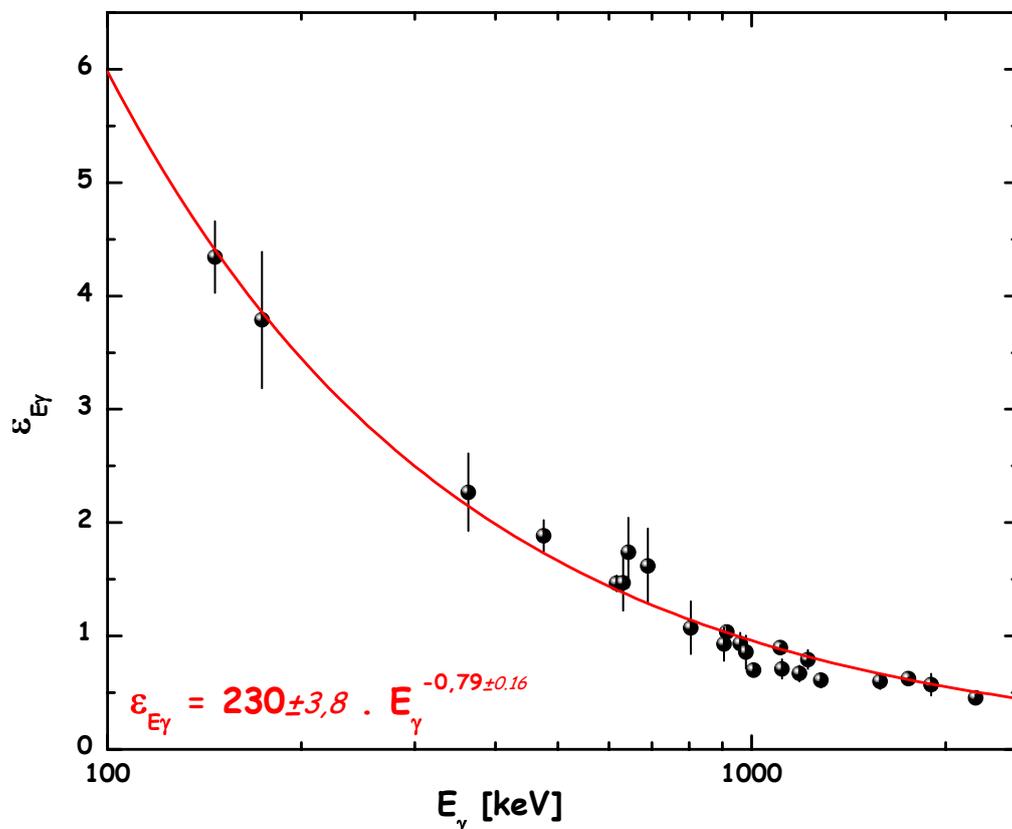


FIG. 4.12 – Efficacité photopic relative des détecteurs Germanium pour la mesure des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ de juin 2008. Les points en noir représentent les valeurs expérimentales, le fit est donné par la courbe continue en rouge.

| E_γ [keV] | JEFF-3.1 B.R. (%) |
|------------------|----------------------|
| 146,7 | $36,4 \pm 2,6$ |
| 173,7 | $2,4 \pm 0,4$ |
| 363,1 | $28,5 \pm 5,1$ |
| 475,6 | $3,1 \pm 0,1$ |
| 617,2 | $57,9 \pm 2,6$ |
| 631,5 | $10,5 \pm 1,7$ |
| 643,7 | $1,5 \pm 0,1$ |
| 690,0 | $1,6 \pm 0,1$ |
| 804,7 | $1,6 \pm 0,1$ |
| 906,2 | $27,6 \pm 4,4$ |
| 914,8 | $59,7 \pm 2,6$ |
| 960,2 | $3,5 \pm 0,3$ |
| 979,2 | $3,6 \pm 0,3$ |
| 1006,4 | $1,1 \pm 0,1$ |
| 1107,2 | $47,0 \pm 1,0$ |
| 1114,6 | $1,8 \pm 0,1$ |
| 1185,0 | $3,4 \pm 0,3$ |
| 1222,9 | $33,4 \pm 3,5$ |
| 1279,4 | $0,9 \pm 0,1$ |
| 1592,9 | $1,5 \pm 0,2$ |
| 1750,6 | $87,8 \pm 0,8$ |
| 1897,6 | $5,1 \pm 0,1$ |
| 2226,2 | $5,5 \pm 0,3$ |

TAB. 4.3 – Raies γ de la décroissance du ^{96m}Y utilisées pour ajuster la courbe d'efficacité photopic relative des détecteurs Germanium.

Chapitre 5

Distributions en énergie cinétique et charge ionique

5.1 Etude des distributions en charge ionique

Le spectromètre de masse Lohengin permet de mesurer directement les distributions en charge ionique et en énergie cinétique des produits de fission. Ces mesures ne sont pas possibles avec d'autre type d'expérience comme les mesures par chambre à fission où seuls les rendements et les énergie cinétiques moyennes sont déterminables. C'est pourquoi une étude plus approfondie sur la forme de ces distributions a été menée, et une discussion sur ces résultats est donnée dans ce chapitre.

La première partie est consacrée aux distributions en charge ionique. Elles ont permis de mettre en évidence l'existence d'isomères nanosecondes pour certains noyaux. La seconde partie propose une étude sur les distributions en énergie cinétique ainsi que quelques hypothèses pour expliquer leur forme fortement asymétrique.

5.1.1 Forme typique des distributions

La forme de la distribution en charge ionique trouve son explication en physique atomique.

En traversant la cible et la feuille de Nickel placée devant, les produits de fission échangent des électrons avec la matière. Pour les cibles utilisées sur le Lohengrin l'épaisseur du milieu traversé est toujours suffisamment élevée pour que les ions atteignent une distribution d'équilibre appelée ECSD (Equilibrium Charge-State Distribution). La forme de cette distribution résulte de plusieurs effets aléatoires, comme la capture électronique, la perte d'électrons et des effets de surface [78]. L'état de charge final est donc déterminé par ces différentes contributions. Cet équilibre dépend du milieu traversé, mais aussi de la charge nucléaire et de l'énergie cinétique de l'ion [79]. Compte tenu des énergies typiques des produits de fission lourds, les études de Y. Baudinet-Robinet montrent que la distribution d'équilibre des charges peut être correctement décrite par une fonction gaussienne [78, 80]. Un exemple de distribution en charge ionique pour une énergie cinétique donnée obtenue pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ est donné figures 5.1. Ils confirment bien les travaux de Y. Baudinet-Robinet qui prédisent une distribution gaussienne.

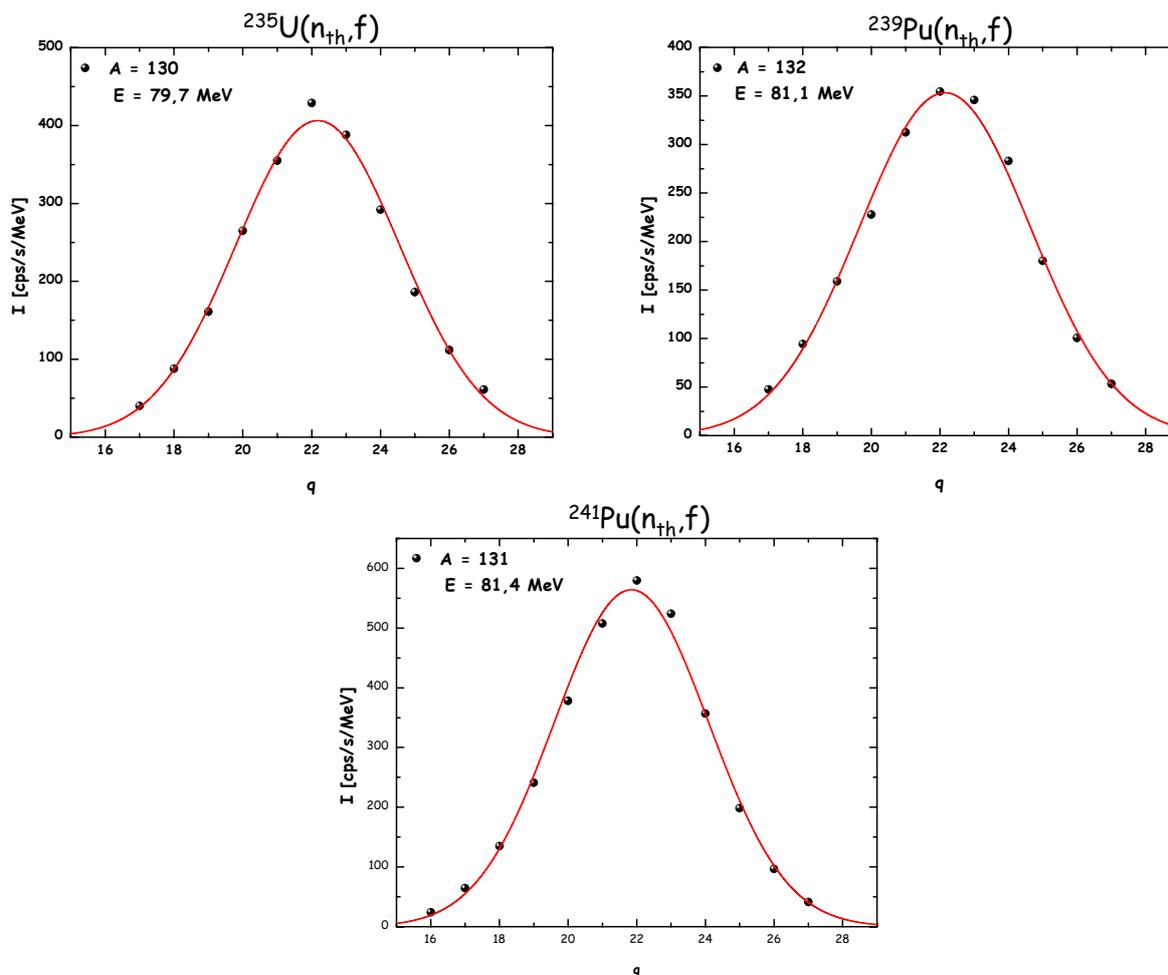


FIG. 5.1 – Exemples de distributions typiques en charge ionique ajustées par une distribution gaussienne pour les trois noyaux mesurés.

5.1.2 Mise en évidence d'isomères nanosecondes

La forme typique des distributions en charge ionique correspond donc à une simple gaussienne (figures 5.1). Nos mesures ont cependant mis en évidence un certain nombre de masses pour lesquelles les distributions en charge ionique étaient fortement asymétriques. Les distributions de ces noyaux ont souvent pu être reproduites par 2 gaussiennes : une première gaussienne centrée autour de la charge 22 et une seconde gaussienne fluctuant autour de charges ioniques plus élevées, jusqu'à la charge 27 (figures 5.2).

Cette asymétrie a été observée aussi bien pour les distributions en charge ionique des masses que pour celles des isotopes (figures 5.3). Comme ces structures ont été mises en évidence par deux dispositifs expérimentaux différents, chambre à ionisation pour les masses et spectrométrie γ pour les isotopes, un biais du système de détection ne peut pas expliquer la forme de ces distributions, comme par exemple un biais dans la collection des charges pour la chambre à ionisation. Il est donc justifié de donner à ces différentes structures des explications physiques. La gaussienne de gauche représente ainsi vraisemblablement la distribution en charge ionique de l'état fondamental du noyau mesuré. Le reste de la distribution qui a toujours pu être ajusté par une gaussienne centrée sur une charge ionique plus élevée correspondrait alors à la distribution en charge d'un ou de

plusieurs états isomériques du noyau considéré. Pour ces noyaux considérés le temps de demie vie des isomères doit être de quelques nanosecondes.

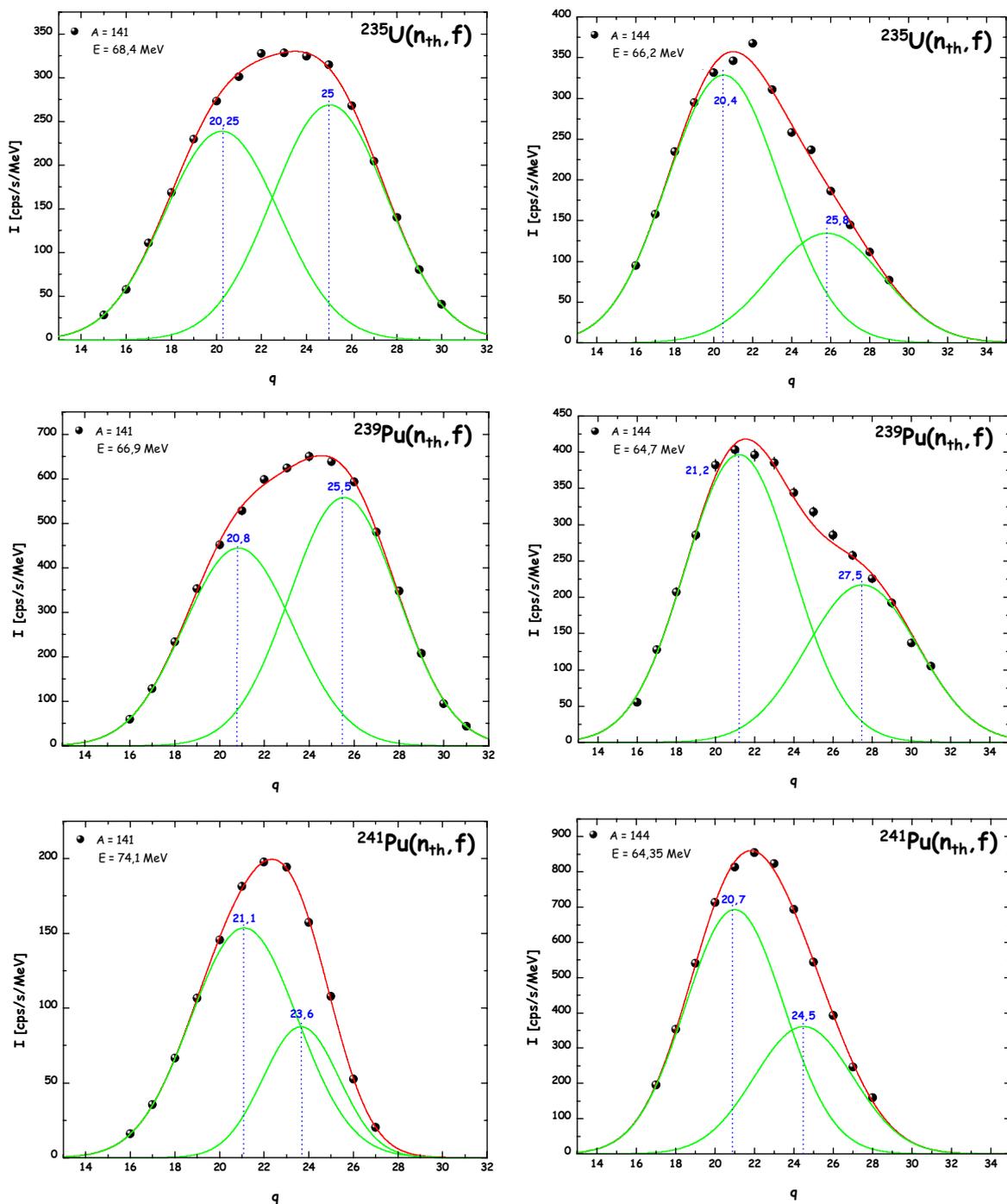


FIG. 5.2 – Exemples de distributions en charge ionique mettant en évidence la présence d'isomère nanoseconde pour les trois noyaux mesurés.

Des structures similaires ont par le passé déjà été observées dans la région des produits de fission légers [81] comme dans celle des produits de fission lourds [82] (figures 5.4).

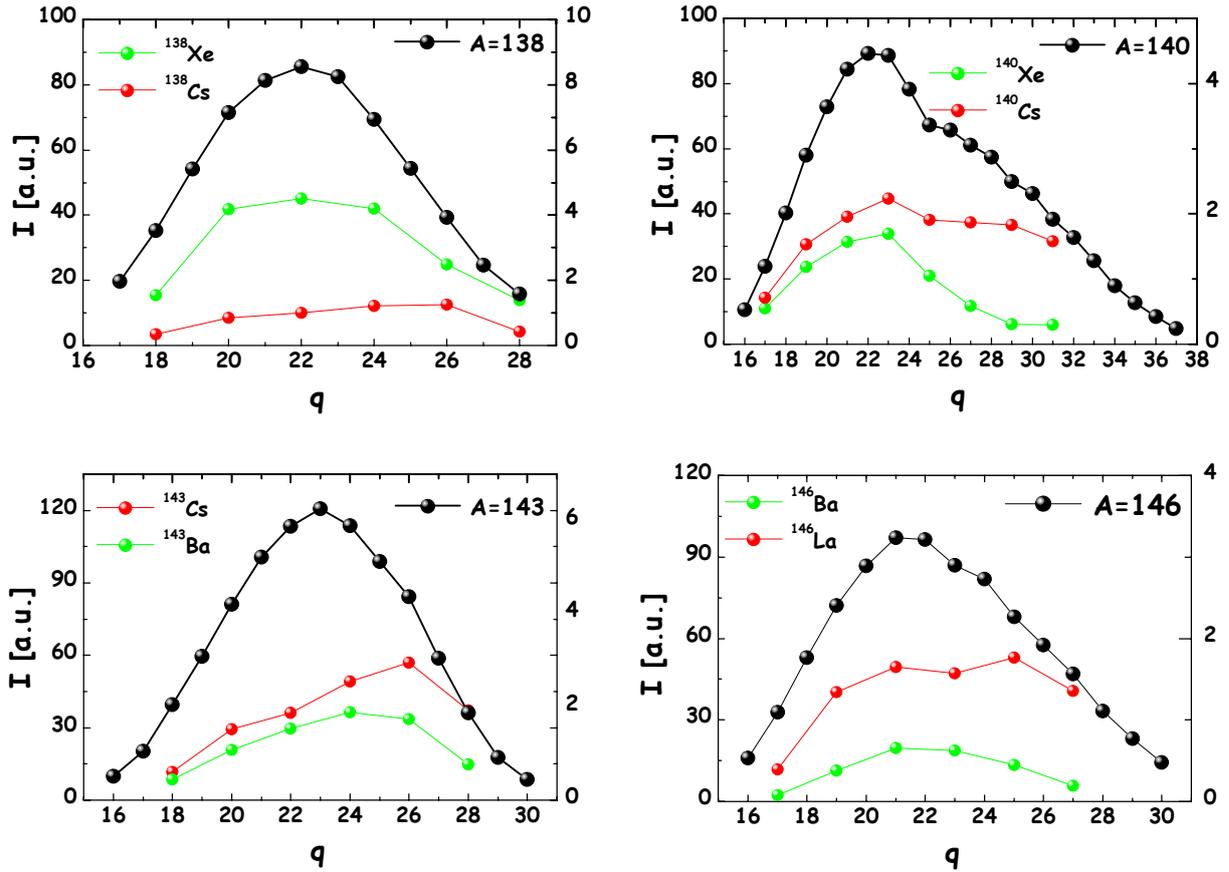


FIG. 5.3 – Mise en évidence des isomères nanosecondes pour les masses (points en noir, échelle de droite, mesures avec chambre à ionisation) et les isotopes (points en rouge et vert, échelle de gauche, mesures par spectrométrie γ) des produits de fission de la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

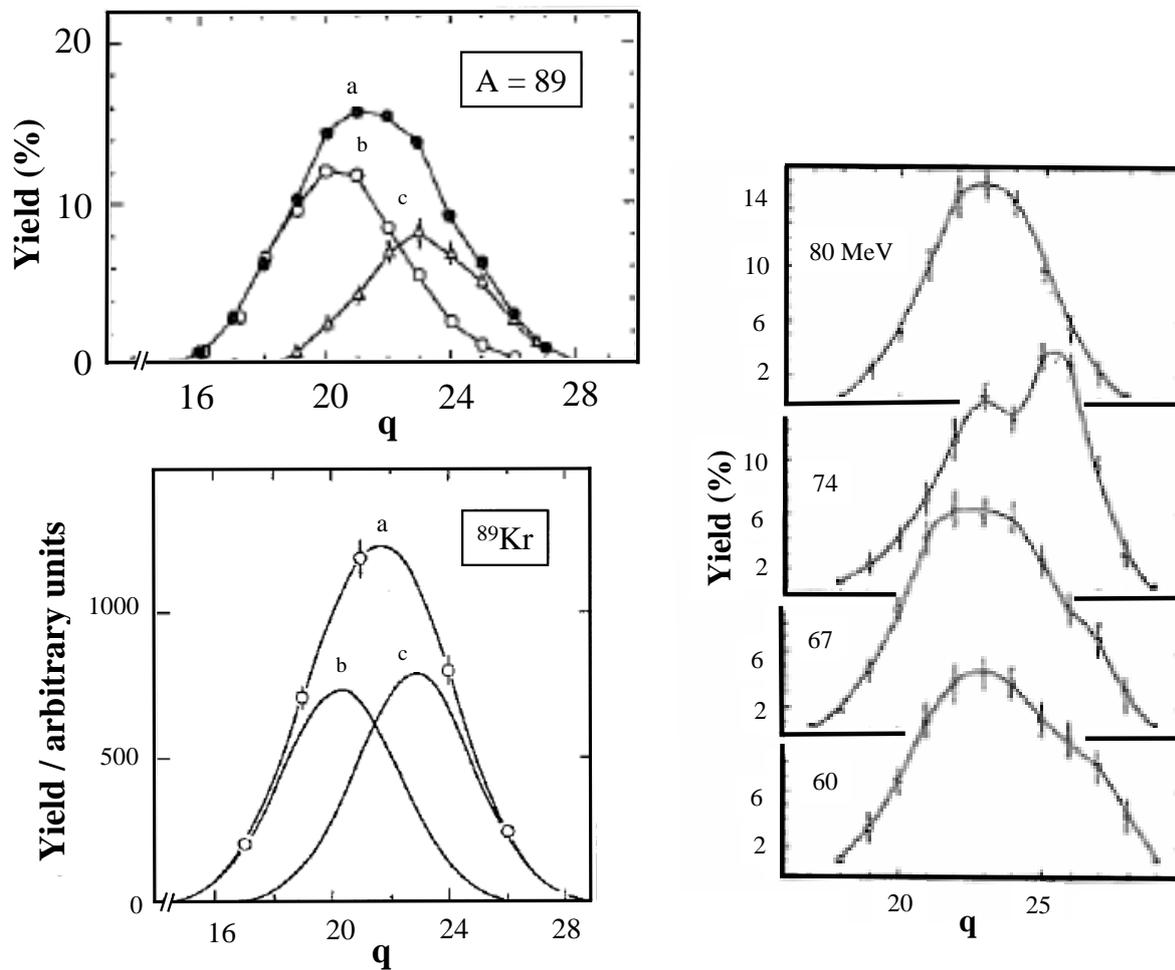


FIG. 5.4 – Distributions en charge ionique pour la région des produits de fission légers (figures de gauche [81] : $A = 89$, $E_k = 97,3 \text{ MeV}$) et pour la région des produits de fission lourds (figure de droite [82] : $A = 142$) de la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ [82]. La distribution de la masse 89 (figure en haut à gauche) : a est fittée avec deux gaussiennes, celle de gauche : b correspond à l'état fondamental du noyau alors que celle de droite : c correspond à son état isomérique. De la même façon est tracée sur la figure en bas à gauche la distribution de l'isotope de Krypton de cette même masse. La figure de droite montre la distribution en charge ionique de la masse 142 pour différentes énergies cinétiques.

Description du processus

Qu'ils soient dans leur état fondamental ou dans un état isomérique, les produits de fission atteignent tous une distribution d'équilibre en charge ionique après avoir traversé la cible d'actinide et la feuille de Nickel. Ces distributions gaussiennes sont en moyenne centrées autour de la charge ionique 22.

Pour les cas particuliers considérés dans ce chapitre (quelques exemples présentés figures 5.2), l'isomère se désexcite entre la sortie de la feuille de Nickel et l'entrée dans l'aimant principal du spectromètre. Le mode de désexcitation de ces noyaux ne se fait pas par émission de γ mais par conversion interne. Ce mode de désexcitation est privilégié lorsque les différences d'énergie entre les niveaux du noyau sont faibles. En se désexcitant l'isomère éjecte un électron d'une couche interne. Un autre électron d'une couche supérieure peut alors venir occuper la place libérée par cet électron interne. Pour cela différents processus peuvent être observés, comme l'émission de photons (transition X), d'électrons (électrons de Auger), ou encore des émissions simultanées de photons et d'électrons [83]. Dans le cas d'une transition de Auger l'énergie qui correspond au passage de l'électron de la couche supérieure à la place du premier électron éjecté peut être libérée par l'émission d'un second électron, et ainsi de suite. L'isomère peut ainsi perdre plusieurs électrons. Ce type de désexcitation s'accompagne en général de l'émission de trois électrons successifs [81]. Comme ce processus a lieu dans le vide ($\sim 10^{-5}$ mbar) les produits de fission ne pourront pas atteindre une nouvelle distribution d'équilibre en charge ionique. Ils vont alors garder un état de charge élevé.

Ainsi les structures à haute charge ionique observées dans les distributions proviennent, suite à la désexcitation d'un état isomérique, d'une conversion interne du noyau qui est suivie par une cascade de Auger.

Pour que ces états isomériques puissent être détectés sur le spectromètre de masse leur temps de demie vie doivent respecter deux contraintes (figure 5.5) :

- ils doivent être inférieurs au temps nécessaire au produit de fission pour parcourir la distance qui sépare la feuille de Nickel de l'entrée du spectromètre : si la désexcitation a lieu après l'aimant principal le noyau va être détecté à l'entrée du spectromètre comme ayant une distribution en charge ionique centrée autour de 22. Cette distribution va changer après la désexcitation du noyau et la charge ionique de l'ion ne correspondra plus à celle détectée initialement par le spectromètre. Ces produits de fission ne pourront donc pas atteindre la chambre à ionisation.
- mais supérieurs à celui qui leur est nécessaire pour traverser la cible et la feuille de Nickel : si l'isomère se désexcite alors qu'il est encore dans la cible, la traversée du reste de la matière va lui permettre de rééquilibrer son état de charge. Il sera alors détecté par le spectromètre dans son état fondamental avec une distribution en charge ionique centrée autour de 22. Son état isomérique, de durée de vie très courte, ne pourra pas être mesuré.

Compte tenu de l'énergie cinétique des produits de fission et du temps qui leur est nécessaire pour parcourir la distance "sortie de la cible-entrée du spectromètre" (8m), la durée de vie de ces isomères est de quelques nanosecondes à quelques centaines de nanosecondes.

Les distributions en charge ionique des différents isotopes montrées pour certaines d'entre elles figures 5.3 ne présentent pas toutes les mêmes structures. Par exemple le Xénon de la masse 140 possède une distribution en charge ionique typique centrée autour de la charge 22 alors que le Césium de cette même masse présente clairement un état iso-

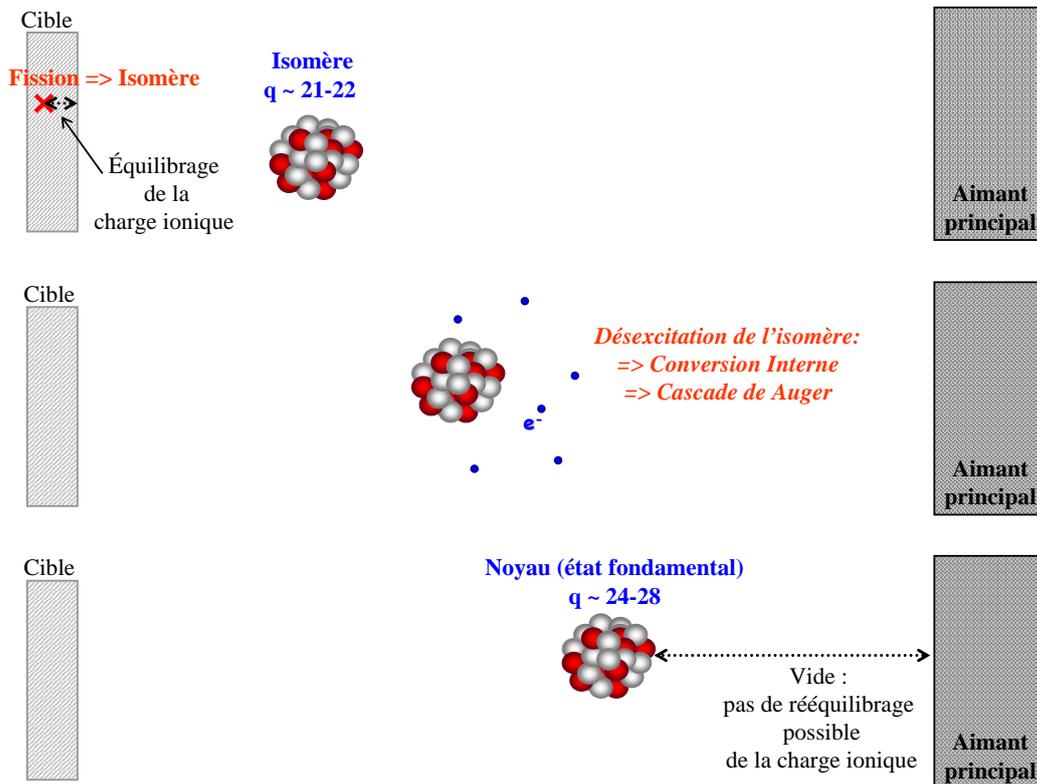


FIG. 5.5 – Représentation schématique de la désexcitation d'un isomère nanoseconde par conversion interne.

mérique. Puisque le Xénon décroît directement sur le Césium il est dans ce cas possible d'identifier avec certitude au moins un des isotopes qui possèdent un état isomérique. En revanche pour la masse 143 les deux isotopes mesurés présentent une distribution en charge fortement asymétrique. Parce que tous les isotopes n'ont pas pu être mesurés il n'est pas possible de déterminer le noyau qui possède un isomère. La gaussienne à haute charge de ces deux isotopes peut provenir du noyau considéré comme de la décroissance du noyau père, voire des deux.

Ces mesures par spectrométrie γ ne sont pas suffisantes pour caractériser pleinement les états isomériques mis en évidence pour un certain nombre de noyaux. Des mesures plus précises de spectroscopie devront être mises en place pour confirmer ces hypothèses et déterminer les temps de vie ainsi que les niveaux d'énergie de ces isomères. Il est de plus probable que certains noyaux présentent plus d'un état isomérique : le schift en charge ionique attendu est de 3 charges [81] alors que les fits des distributions donnent pour certaines masses une différence pouvant aller jusqu'à un peu plus de 7 charges entre les deux gaussiennes.

Le tableau 5.1 donne le poids des deux gaussiennes dans les distributions en charge pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$. L'asymétrie de ces distributions n'apparaît que pour des masses supérieures à la masse 135, masse à partir de laquelle le poids de l'un ou l'autre des deux états n'est négligeable que dans très peu de cas (masse 147 pour l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, masses 135, 136, 137 et 139 pour le $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et masses 135 et 137 pour le $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$). Pour toutes les autres masses des mesures supplémentaires en structure nucléaire seraient nécessaires pour confirmer ou non la présence d'isomères nanosecondes.

| | $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ W_{gs} | $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ W_m | $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ W_{gs} | $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ W_m | $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ W_{gs} | $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ W_m |
|-----|--|-------------------------------------|---|--------------------------------------|---|--------------------------------------|
| 122 | 100,0% | 0,0% | | | | |
| 123 | 100,0% | 0,0% | | | | |
| 124 | 100,0% | 0,0% | | | | |
| 125 | 100,0% | 0,0% | | | | |
| 126 | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% | | |
| 127 | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% | | |
| 128 | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% | | |
| 129 | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% | | |
| 130 | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% |
| 131 | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% |
| 132 | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% |
| 133 | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% |
| 134 | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% |
| 135 | 60,6% | 39,4% | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% |
| 136 | 30,7% | 69,3% | 100,0% | 0,0% | 28,5% | 71,5% |
| 137 | 37,0% | 63,0% | 100,0% | 0,0% | 100,0% | 0,0% |
| 138 | 82,6% | 17,4% | 69,2% | 30,8% | 69,7% | 30,3% |
| 139 | 24,5% | 75,5% | 100% | 0% | 20,7% | 79,3% |
| 140 | 82,5% | 17,5% | 57,6% | 42,4% | 58,2% | 41,8% |
| 141 | 56,1% | 43,9% | 46,3% | 53,7% | 56,8% | 43,2% |
| 142 | 59,5% | 40,5% | 50,8% | 49,2% | 64,1% | 35,9% |
| 143 | 48,9% | 51,1% | 43,7% | 56,3% | 67,5% | 32,5% |
| 144 | 54,8% | 45,2% | 61,0% | 39,0% | 71,2% | 28,8% |
| 145 | 62,9% | 37,1% | 52,2% | 47,8% | 51,2% | 48,8% |
| 146 | 66,1% | 33,9% | 60,8% | 39,2% | 58,2% | 41,8% |
| 147 | 93,5% | 6,5% | 63,2% | 36,8% | 53,2% | 46,8% |
| 148 | 84,0% | 16,0% | 43,5% | 56,5% | 41,2% | 58,8% |
| 149 | 45,3% | 54,7% | 33,7% | 66,3% | 25,9% | 74,1% |
| 150 | 17,3% | 82,7% | 73,6% | 26,4% | 72,8% | 27,2% |
| 151 | | | | | 31,6% | 68,4% |

TAB. 5.1 – Poids de l'état fondamental (W_{gs}) et de l'état isomérique (W_m) en pourcent pour les différentes masses des réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

5.1.3 Charge ionique moyenne et largeur de distribution

Les valeurs moyennes $\langle q \rangle$ et les largeurs de distribution σ_q sont calculées respectivement par les formules du premier et du second moment :

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle q \rangle = \frac{\sum_i (q_i \times Y(A, q_i, E_{k_j}))}{\sum_i Y(A, q_i, E_{k_j})} \\ \sigma_q = \frac{\sum_i Y(A, q_i, E_{k_j}) \times (q_i - \langle q \rangle)^2}{\sum_i Y(A, q_i, E_{k_j})} \end{array} \right.$$

Les charges ioniques moyennes et les largeurs des distributions (obtenues à l'énergie cinétique qui maximise le taux de comptage) en fonction des masses sont représentées sur les figures 5.6 pour les réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$, et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$.

Ces valeurs résultent de deux différents phénomènes qui se compensent l'un l'autre.

- D'une part le nombre d'électrons disponibles qui peuvent être cédés au milieu traversé est d'autant plus important que la masse de l'ion est grande. Les charges ioniques moyennes et les largeurs de distribution des produits de fission ont donc tendance à augmenter avec la masse.
- D'autre part l'énergie cinétique des produits de fission diminue lorsque la masse augmente, ce qui limite le nombre des échanges électroniques entre la matière et les ions. Ce second aspect a donc un effet contraire au précédent.

On peut cependant remarquer que pour chacun des trois noyaux mesurés les largeurs de distribution en charge ionique augmentent légèrement avec les masses. Ce résultat a déjà été observé par le passé [73].

Les valeurs de ces deux grandeurs sont comparées à deux différents modèles de physique atomique dans les paragraphes suivants. une discussion plus détaillée sera alors présentée.

5.1.4 Comparaison des distributions en charge avec quelques modèles

Modèle semi-empirique de V. Nikolaev

Le modèle de V. Nikolaev est à même de prédire les charges ioniques moyennes et les largeurs de distribution d'ions après traversée d'une feuille [84] :

$$\begin{cases} \bar{q}(A, E_k, Z) = Z \left[1 + (1,389 \frac{\sqrt{E_k/A}}{Z^\alpha})^{-\frac{1}{k}} \right]^{-k} \\ \sigma_{\bar{q}}(A, E_k, Z) = \sigma_0 \sqrt{\bar{q} \left[1 - (\frac{\bar{q}}{Z})^{\frac{1}{k}} \right]} \end{cases}$$

Dans ces équations les paramètres k , α , et σ_0 sont ajustés pour reproduire au mieux les données expérimentales. Ils sont donnés tableau 5.2 et représentés figures 5.7 pour les trois noyaux mesurés.

| | $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ | $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ | $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ |
|------------|--|---|---|
| k | 1,15 | 1,13 | 1,13 |
| α | 0,04 | 0,04 | 0,03 |
| σ_0 | 1,03 | 1,01 | 0,90 |

TAB. 5.2 – Valeurs des paramètres k , α , et σ_0 des équations de Nikolaev pour le fit des distributions en charge ionique des trois noyaux mesurés.

Les tendances des charges ioniques moyennes ainsi que celles des largeurs de distribution semblent être globalement bien reproduites par ces formules. Cependant comme les trois paramètres libres ne sont pas déterminés par des considérations physiques mais s'ajustent directement sur les données expérimentales, il est difficile de tirer des conclusions avec ce modèle.

De plus compte tenu de la présence des isomères il ne devrait pas être en mesure de retrouver ces distributions, en particulier pour les masses supérieures à 135, puisqu'il ne prend en compte que des effets statistiques de physique atomique.

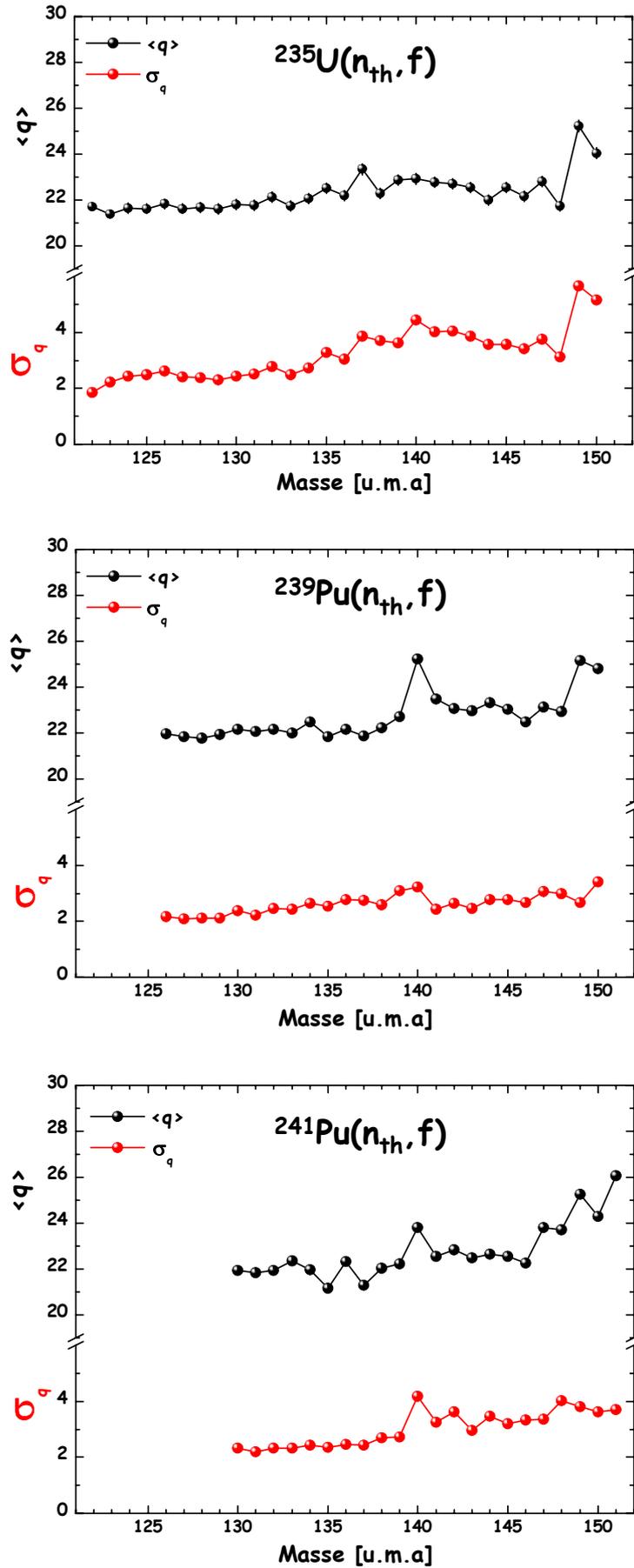


FIG. 5.6 – Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour les trois noyaux mesurés.

Il est donc délicat de s'appuyer sur ce modèle pour prédire les charges ioniques moyennes sur des régions non mesurées.

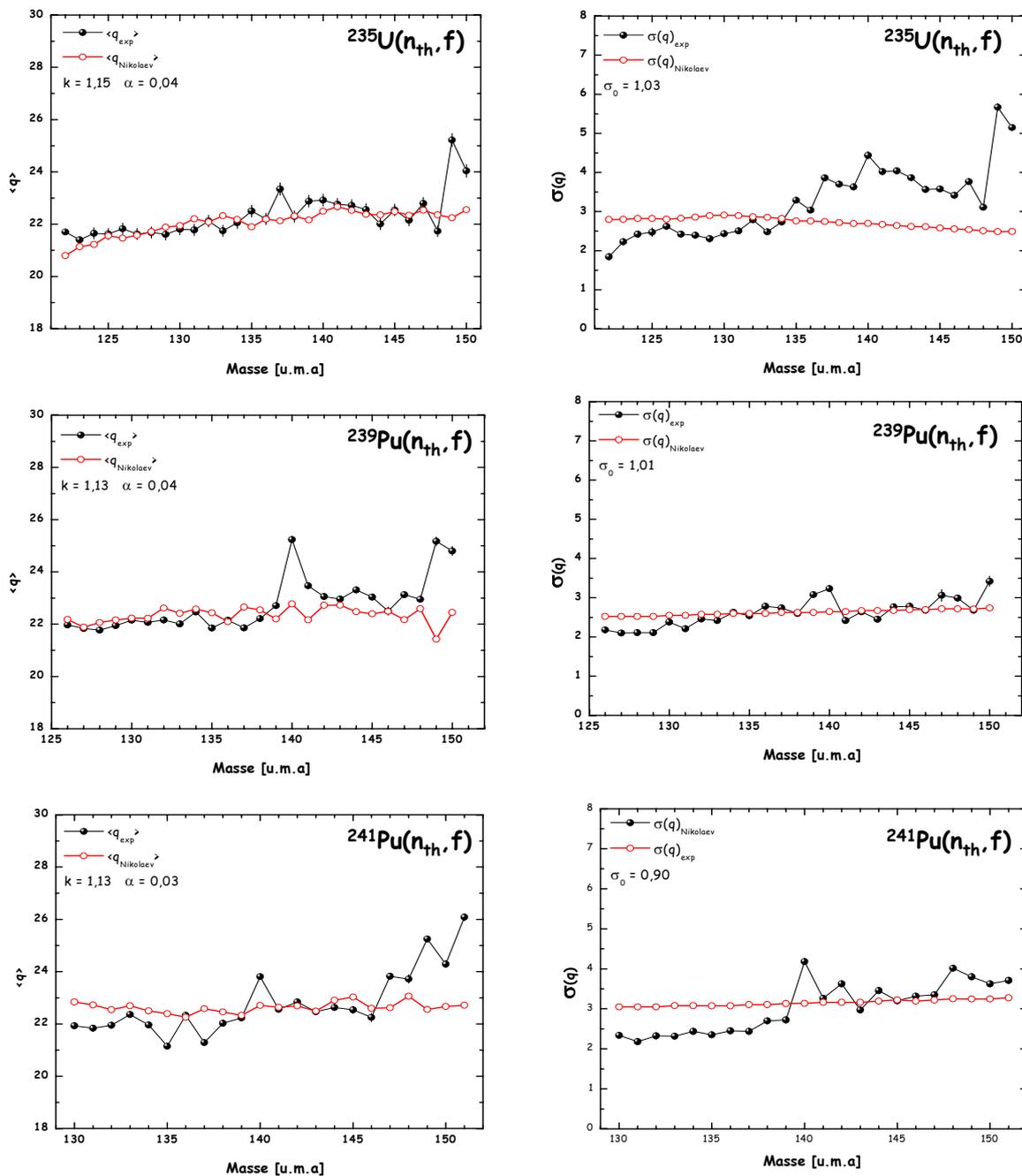


FIG. 5.7 – Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour les trois noyaux mesurés (points en noir) comparées aux prédictions de V. Nikolaev (cercles en rouge).

Modèle de K. Shima

Dans son modèle [85] K. Shima ne propose une formulation que pour les charges ioniques moyennes (équation 4.4).

$$\bar{q}(A, Z, E_k) =$$

$$Z \left[1 - \exp(-1,25(X + 0,32X^2 - 0,11X^3)) \right] \left[1 - 0,0019(Z^2 - 6)\sqrt{X} + 10^{-5}(Z_2 - 6)^2 X \right] \quad (4.4)$$

avec Z la charge nucléaire moyenne de l'ion,

$$X = \frac{v}{3,6 \times 10^8 (cm/s) Z^{0,45}},$$

v la vitesse de l'ion,

Z_2 : la charge nucléaire de la feuille traversée.

Contrairement aux formules de V. Nikolaev, cette équation prend directement en compte la charge nucléaire du matériau traversé et aucun paramètre n'est laissé libre. Il n'est donc pas nécessaire d'ajuster le modèle de K. Shima sur les données expérimentales.

Les comparaisons entre les charges moyennes mesurées pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ et les prédictions de Shima sont présentées figures 5.8 (figures de gauche).

Le modèle de Shima semble au premier abord moins bien reproduire les distributions en charge ionique mesurées que le modèle semi-empirique de Nikolaev (figures 5.7). Cependant il est plus correct d'un point de vue physique que ce dernier. En effet ces deux modèles visent à prédire pour des ions de masse A , de charge nucléaire Z et d'énergie cinétique E_k qui traversent différents matériaux les distributions en charge ionique (physique atomique). Ils ne peuvent donc pas prédire des changements d'état de charge liés à la désexcitation d'isomère après la traversée du matériaux considéré (physique nucléaire).

Afin de regarder plus en détail le modèle de Shima, les figures de droite (figures 5.8) comparent ce modèle (cercles en rouge) avec les distributions en charge ionique de l'état fondamental des produits de fission. Cet état est représenté dans les distributions mesurées par les gaussiennes de basse charge (points en rouge). Il correspond toujours à des ions qui ont atteint un équilibre statistique à la sortie de la cible et de la feuille de Nickel. Les points en vert représentent les valeurs moyennes des distributions en charge ionique des états isomériques.

On constate alors que le modèle de Shima reproduit très bien les tendances de ces valeurs moyennes (hormis pour les masses les plus hautes).

On remarque que les charges ioniques ont tendance à diminuer avec la masse.

Dans ce cas la décroissance de l'énergie cinétique avec l'augmentation de la masse joue un rôle plus important sur les distributions en charge ionique des produits de fission après traversée de la cible et de la feuille de Nickel que le nombre d'électrons qui augmente avec Z , donc avec A .

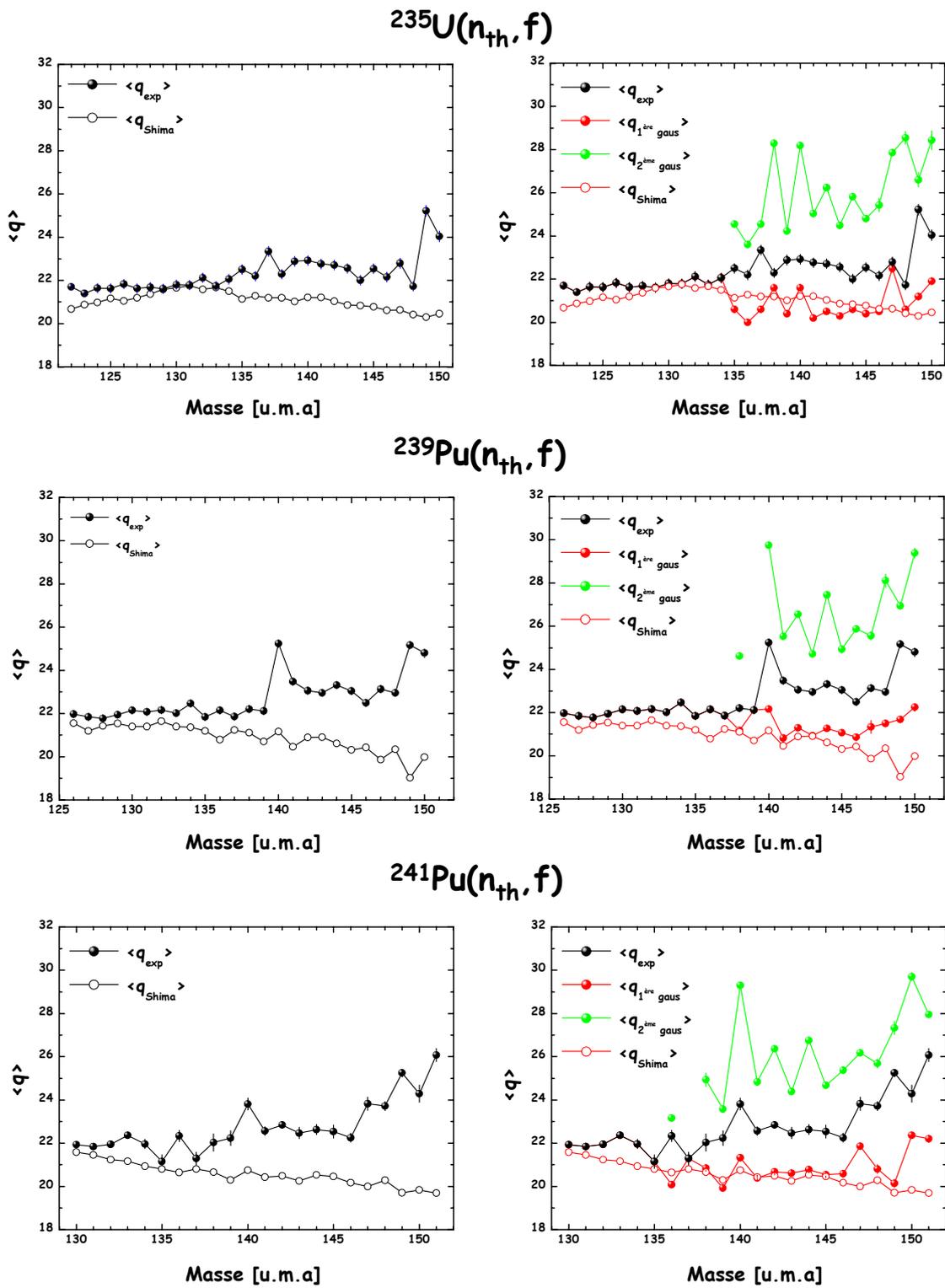


FIG. 5.8 – Charges ioniques moyennes (points) pour les trois noyaux mesurés comparées aux prédictions de K. Shima (cercles).

Les figures de gauche représentent les charges ioniques moyennes des distributions mesurées comparées aux prédictions de Shima.

Sur les figures de droite seules les valeurs des fits gaussiens de plus basse charge sont comparées avec les prédictions de Shima (rouge). Les distributions en charge ionique des états isomériques représentées par les gaussiennes de plus haute charge sont représentées en vert.

5.2 Etude des distributions en énergie cinétique

5.2.1 Formes des distributions

La présence d'une asymétrie systématiquement observée au cours des mesures de distributions en énergie cinétique, en particulier d'une queue dans les basses énergies, ne permet pas à un simple fit gaussien de les reproduire.

Comme pour déterminer les rendements de fission seule l'intégrale de ces distributions joue un rôle, elles ont toujours été ajustées par deux gaussiennes (figure 5.9). Ce choix permet de reproduire correctement les distributions en énergie de toutes les masses et d'en déterminer facilement l'intégrale, mais aucune signification physique ne doit dans un premier temps être attribuée à chacune de ces deux gaussiennes.

De telles structures ont déjà été observées dans la région des produits de fission légers (figure 5.10). Elles ont été assimilées à la perte d'énergie des produits de fission dans la cible et la feuille qui la recouvre (Tantale ou Nickel) [57], ou bien ignorées [86, 61, 58, 75]. D'après le théorème "central limit" la distribution en énergie cinétique totale doit avoir une forme gaussienne. Cependant ce résultat ne s'impose pas nécessairement aux distributions en énergie cinétique par masse qui résultent d'un choix entre différentes configurations moins important.

Une étude plus approfondie de ces distributions a été entreprise pour estimer la contribution à cette asymétrie de différents phénomènes physiques. Les résultats sont débattus dans la suite de ce chapitre (paragraphe 5.2.3).

5.2.2 Caractéristiques des énergies cinétiques moyennes

5.2.2.1 Moments des distributions en énergie cinétique

Une fois les énergies Lohengrin corrigées de la perte d'énergie dans la cible et la feuille de Nickel par simulations TRIM, les valeurs de l'énergie cinétique moyenne ainsi que des largeurs de distribution sont calculées par les deux premiers moments. Le troisième moment α_3 correspond au coefficient d'asymétrie. Il permet d'évaluer les tendances des structures de ces distributions :

- $\alpha_3 = 0$ pour une distribution symétrique
- $\alpha_3 > 0$ pour une distribution allongée vers la droite
- $\alpha_3 < 0$ pour une distribution allongée vers la gauche

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle E_k \rangle = \frac{\sum_j (E_{k_j} \times Y(A, q_i, E_{k_j}))}{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j})} \\ \sigma_{E_k} = \frac{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j}) \times (E_{k_j} - \langle E_k \rangle)^2}{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j})} \\ \alpha_3 = \left[\frac{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j}) (E_{k_j} - \langle E_k \rangle)^3}{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j})} \right] \cdot \left[\frac{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j}) (E_{k_j} - \langle E_k \rangle)^2}{\sum_j Y(A, q_i, E_{k_j})} \right]^{-\frac{3}{2}} \end{array} \right.$$

Les caractéristiques des énergies cinétiques pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ sont données figures 5.11, 5.12 et 5.13. Pour tenir compte de l'asymétrie des distributions en énergie cinétique dont l'origine n'est toujours pas claire, on a pris le parti de majorer les incertitudes liées aux valeurs moyennes.

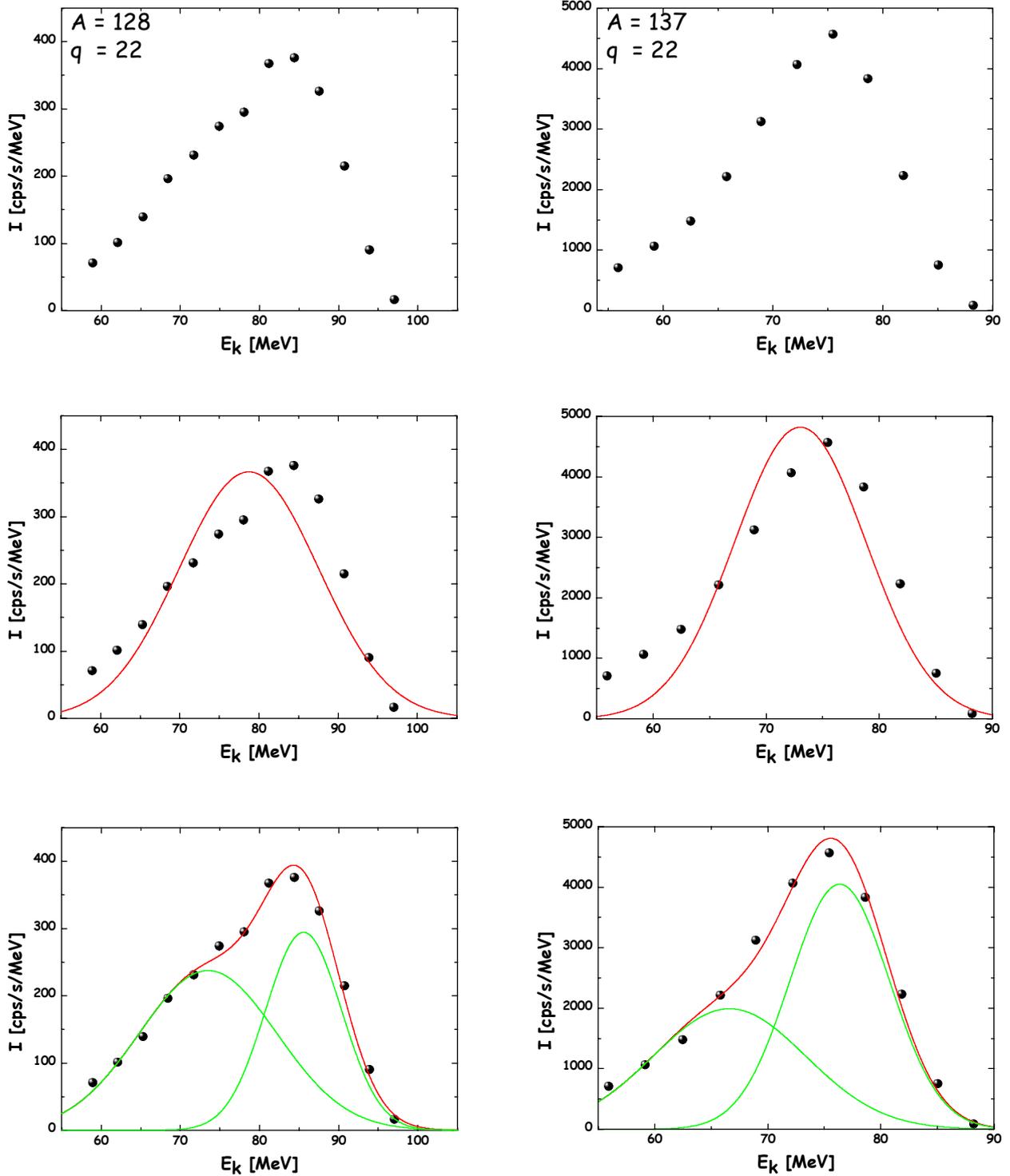


FIG. 5.9 – Exemples de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les deux figures du haut montrent les distributions en énergie cinétique des masses 128 et 137 à la charge ionique $q=22$ (points en noir). Les figures du milieu représentent ces mêmes distributions ajustées par un simple fit gaussien (courbe en rouge). Les figures du bas représentent toujours les distributions en énergies cinétiques des masse 128 et 137 mais cette fois-ci ajustées par une double gaussienne (courbes en vert, les courbes en rouge sont la somme de ces deux fonctions). Pour chaque fit tous les paramètres des gaussiennes ont été laissés indépendants.

On constate comme attendu que l'énergie cinétique des produits de fission décroît avec la masse (premiers moments).

Les incertitudes (second moment) du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ semblent trop élevées, conséquence probable d'une cible très inhomogène.

L'asymétrie des distributions en énergie cinétique par masse (troisièmes moments) semble plus prononcée pour les isotopes du Plutonium que pour la fission de l'Uranium.

Il est à noter que pour les masses 149 à 151 de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ les distributions en énergie présentent une asymétrie sur la droite alors que pour toutes les autres masses l'asymétrie se situe sur la partie des basses énergies quelque soit le système fissionnant.

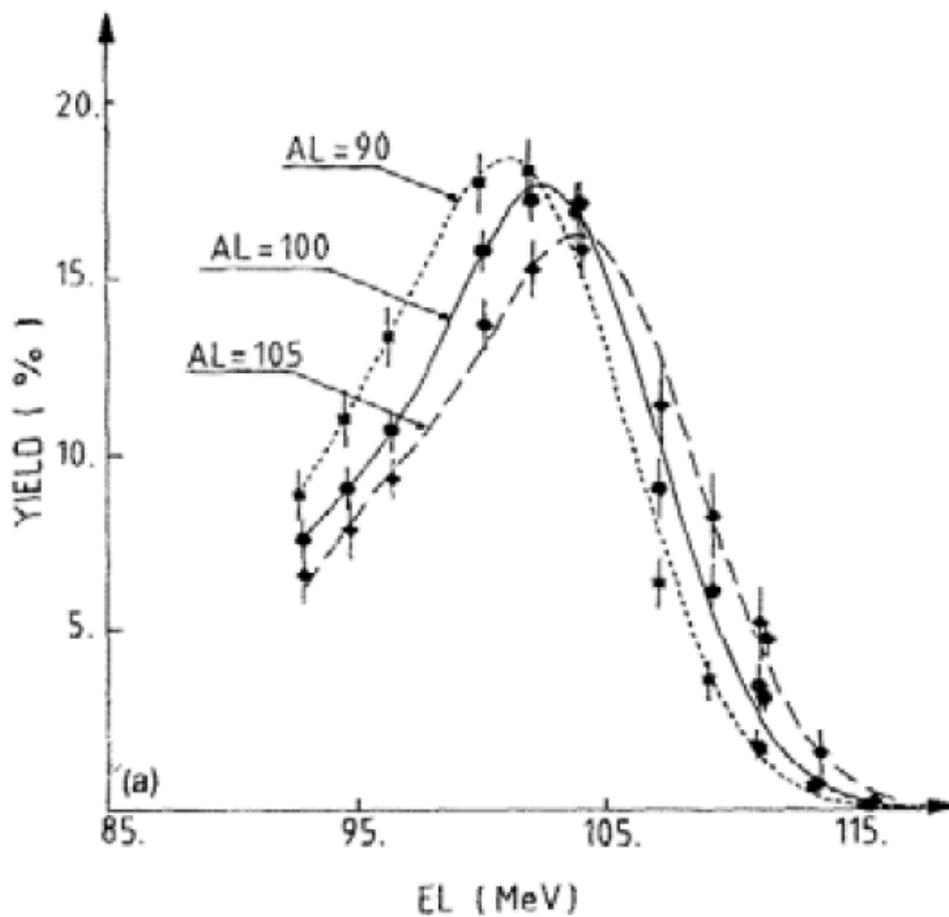


FIG. 5.10 – Distributions en énergie cinétique de la réaction $^{239}\text{Np}(n_{th},f)$ pour les masses 90, 100 et 105 [57]. De même que les masses lourdes les distributions de ces trois masses légères présentent une forte asymétrie dans les basses énergies.

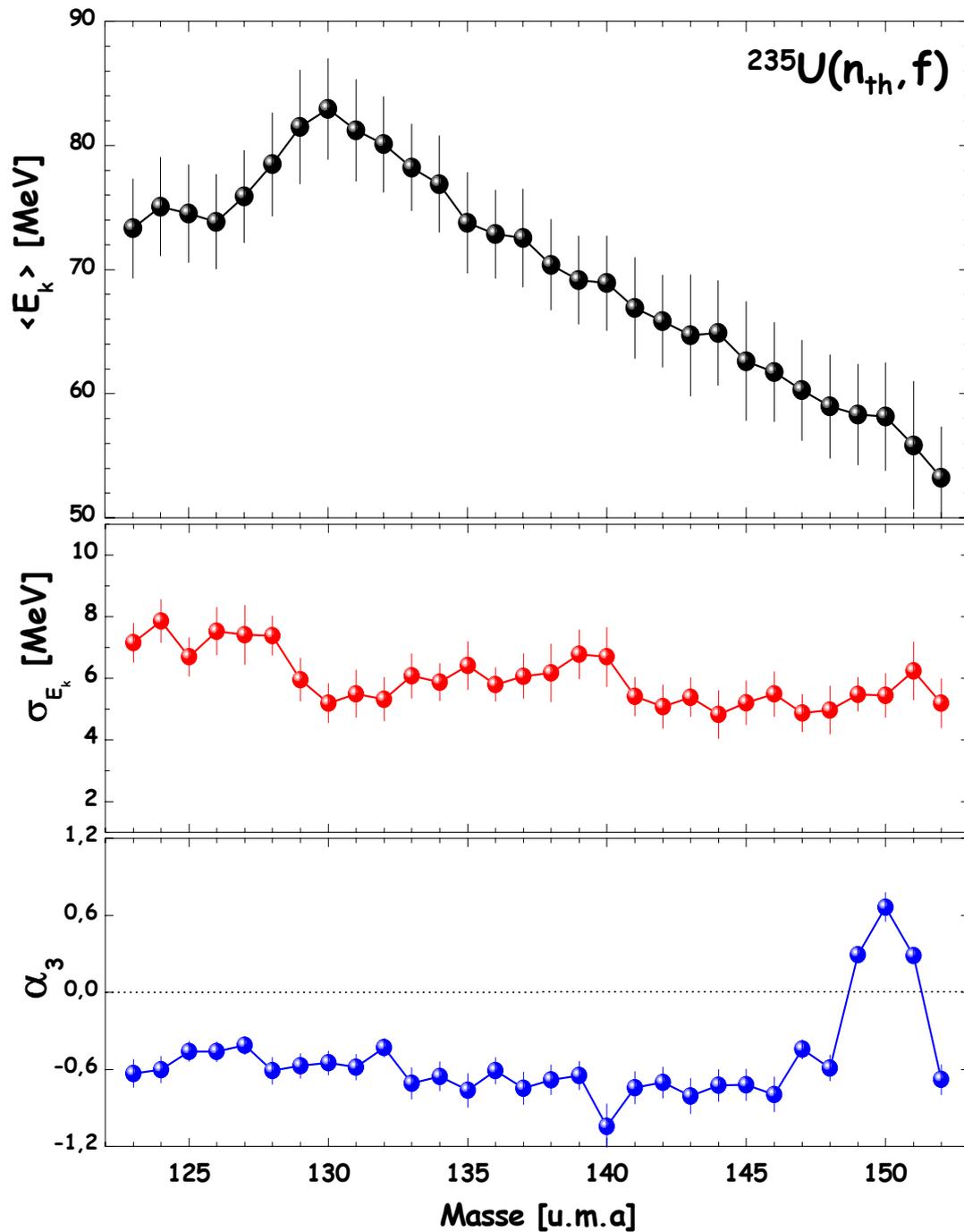


FIG. 5.11 – Valeurs moyennes (noir), largeurs de distribution (rouge) et coefficients d'asymétrie (bleu) des énergies cinétiques pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$.

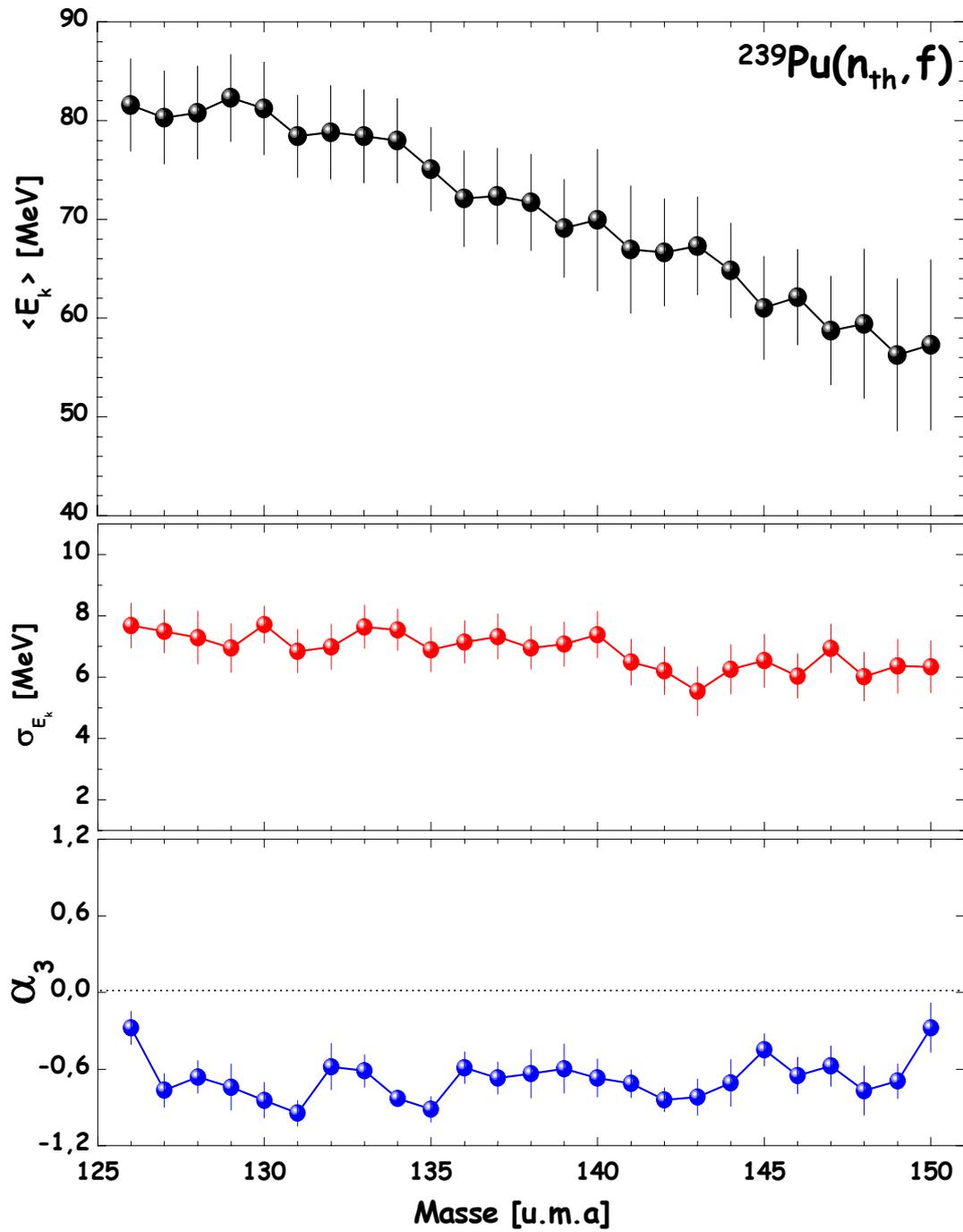


FIG. 5.12 – Valeurs moyennes (noir), largeurs de distribution (rouge) et coefficients d'asymétrie (bleu) des énergies cinétiques pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

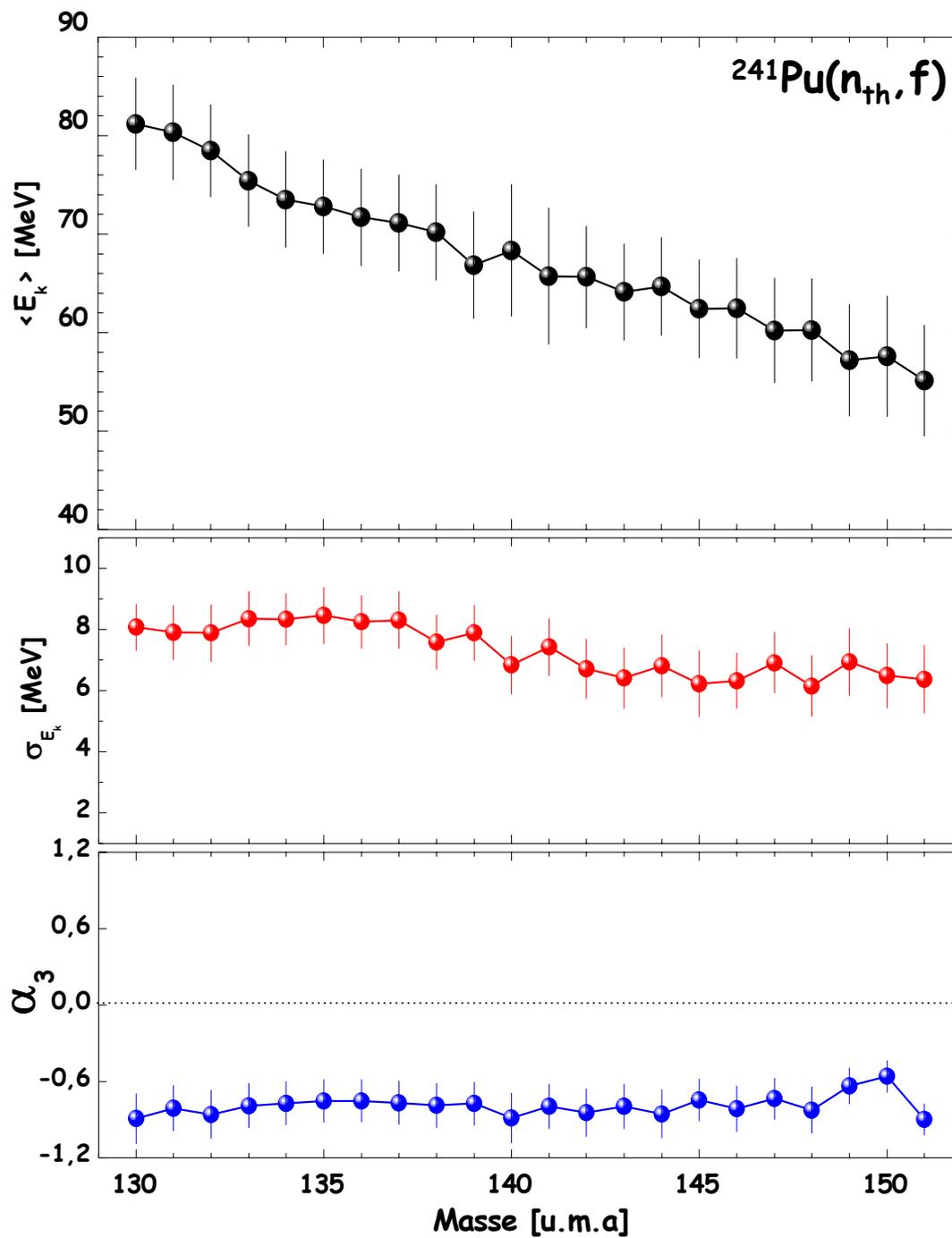


FIG. 5.13 – Valeurs moyennes (noir), largeurs de distribution (rouge) et coefficients d'asymétrie (bleu) des énergies cinétiques pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$.

5.2.2.2 Comparaison des mesures avec les données de la littérature

La plupart des données en énergie cinétique disponibles dans les bibliothèques nucléaires sont données avant évaporation des neutrons prompts. Sur le spectromètre Lohengrin seule l'énergie cinétique des produits de fission après émission des neutrons prompts peut être mesurée.

Afin de pouvoir comparer ces différentes mesures il est possible de corriger de l'émission des neutrons prompts les valeurs des énergies cinétiques mesurées sur le spectromètre de masse Lohengrin (équation 5.1) [75].

$$\begin{cases} E_{k.pre} = \frac{A_{pre}}{A_{post}} E_{k.post} \\ A_{pre} = A_{post} + \bar{\nu}(A) \end{cases} \quad (5.1)$$

Ces corrections demandent de connaître les valeurs du $\bar{\nu}(A)$ (nombre moyen de neutrons émis pour chaque masse) en fonction de la réaction étudiée. Les valeurs qui ont été utilisées pour ces corrections correspondent aux $\bar{\nu}(A)$ évalués par Wahl pour les noyaux ^{235}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu .

Les énergies cinétiques moyennes mesurées sur le spectromètre Lohengrin et corrigées de l'évaporation des neutrons prompts selon les équations 5.1 sont comparées avec différentes mesures aux figures 5.14, 5.15 et 5.16.

Les mesures des énergies cinétiques moyennes des masses lourdes pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ sont en très bon accord avec les différentes expériences effectuées par le passé. On retrouve bien les caractéristiques des énergies cinétiques attendues dans cette région : diminution de l'énergie cinétique avec l'augmentation de la masse, conséquence directe d'effets cinématiques.

Les quelques masses qui ont été mesurées dans la région des produits de fission légers montrent également un très bon accord avec les précédentes mesures.

En revanche un fort désaccord est à noter dans la symétrie. Il est probablement dû aux valeurs du $\bar{\nu}(A)$ qui sont mal connues dans cette région de la fission. On peut d'ailleurs remarquer que les précédentes mesures qui s'accordent bien entre elles pour les masses légères et lourdes montrent également dans cette région de fortes différences.

De plus comme la résolution en énergie du spectromètre de masse Lohengrin est supérieure à celle des autres expériences, les distributions mesurées sur le spectromètre Lohengrin présentent des structures plus marquées. Elles proviennent pour la plupart d'effets de parité ou d'effets de couche.

Contrairement aux énergies cinétiques moyennes des réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ et $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$, les caractéristiques en énergie cinétique du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurées sur le spectromètre sont en fort désaccord avec les mesures de Vorobyeva.

La perte d'énergie dans cette cible a vraisemblablement été sous-estimée à cause de la qualité de la cible utilisée, probablement très inhomogène. L'épaisseur traversée par les produits de fission était donc difficile à estimer.

Si cette cible n'a pas permis d'estimer correctement les énergies cinétiques moyennes et les largeurs de distribution, la détermination des rendements en masse du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ reste correcte puisque seule l'intégrale des distributions en énergie est utilisée pour ces calculs.

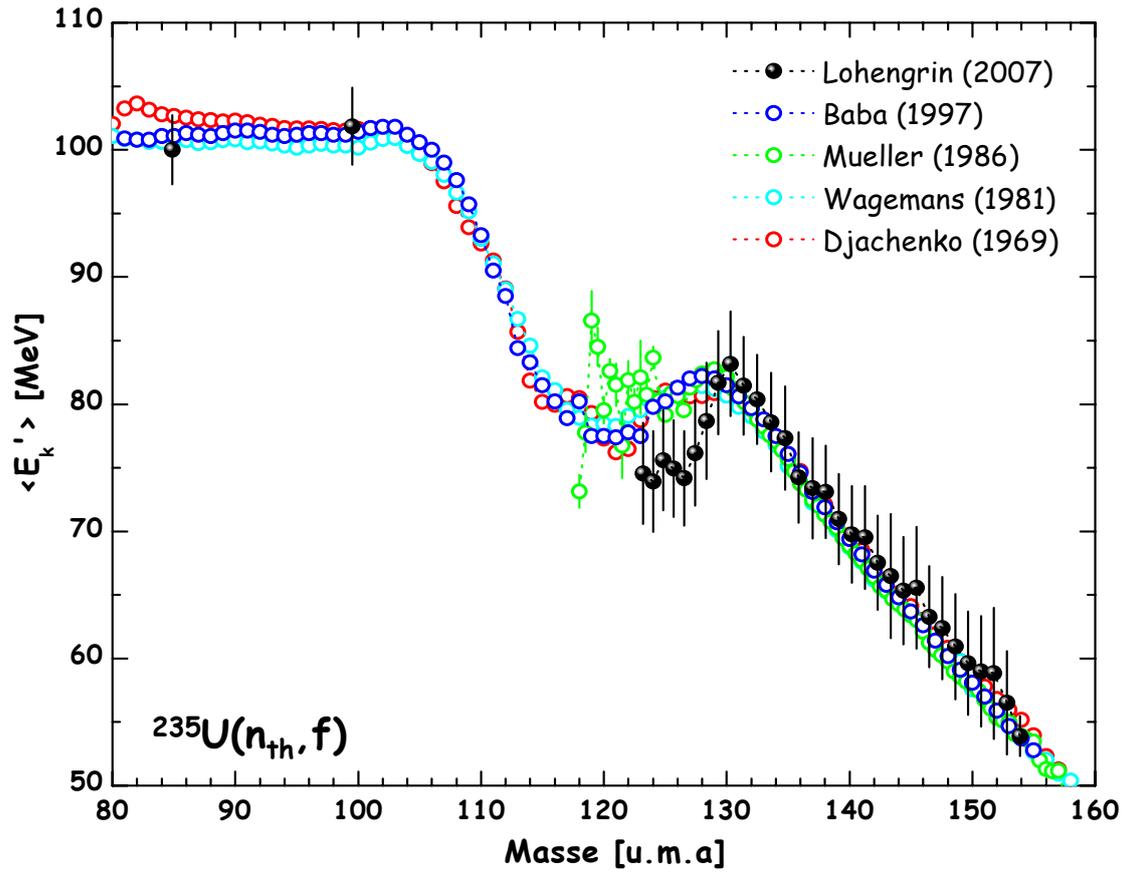


FIG. 5.14 – Différentes mesures des énergies cinétiques moyennes pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ sont comparées sur cette figure. Les cercles représentent des mesures avant évaporation des neutrons prompts ([87, 88, 89]). Les points en noir correspondent à nos données corrigées de l'émission des neutrons prompts.

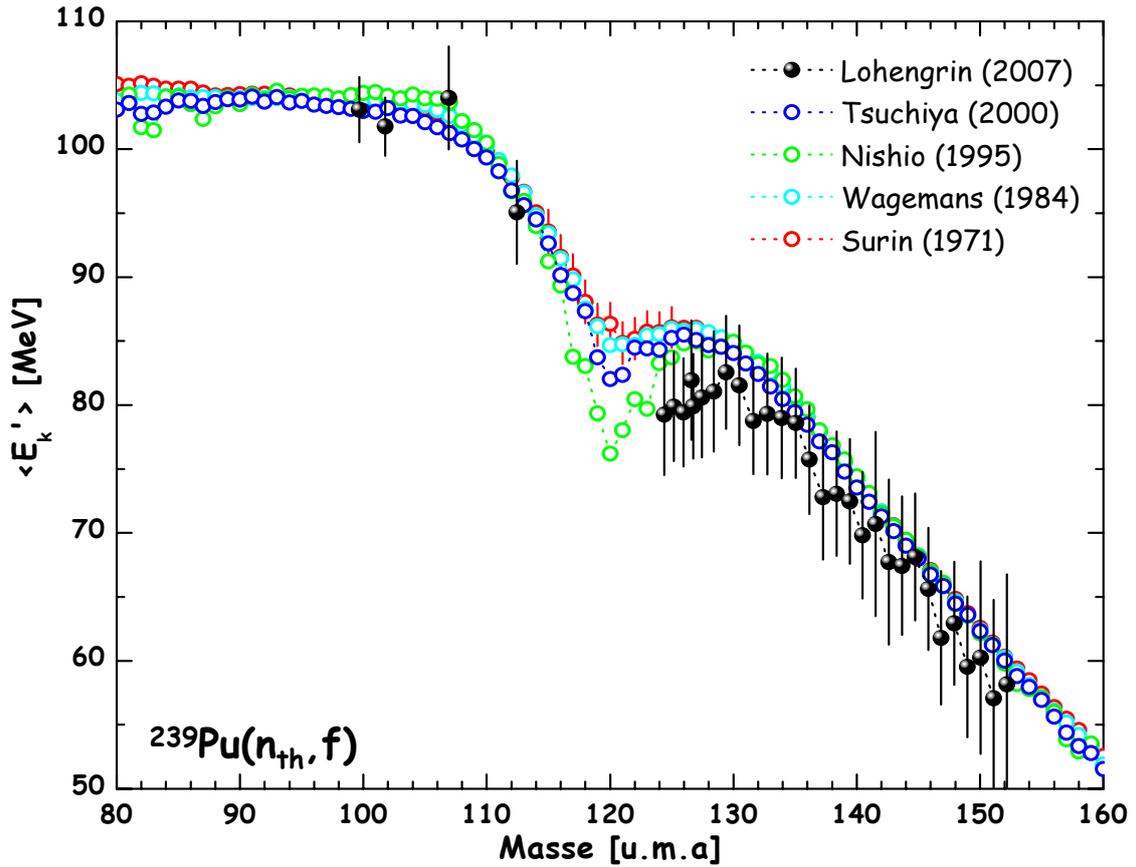


FIG. 5.15 – Différentes mesures des énergies cinétiques moyennes pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ sont comparées sur cette figure. Les cercles représentent des mesures avant évaporation des neutrons prompts ([90, 91, 92, 93]). Les points en noir correspondent à nos données corrigées de l'émission des neutrons prompts.

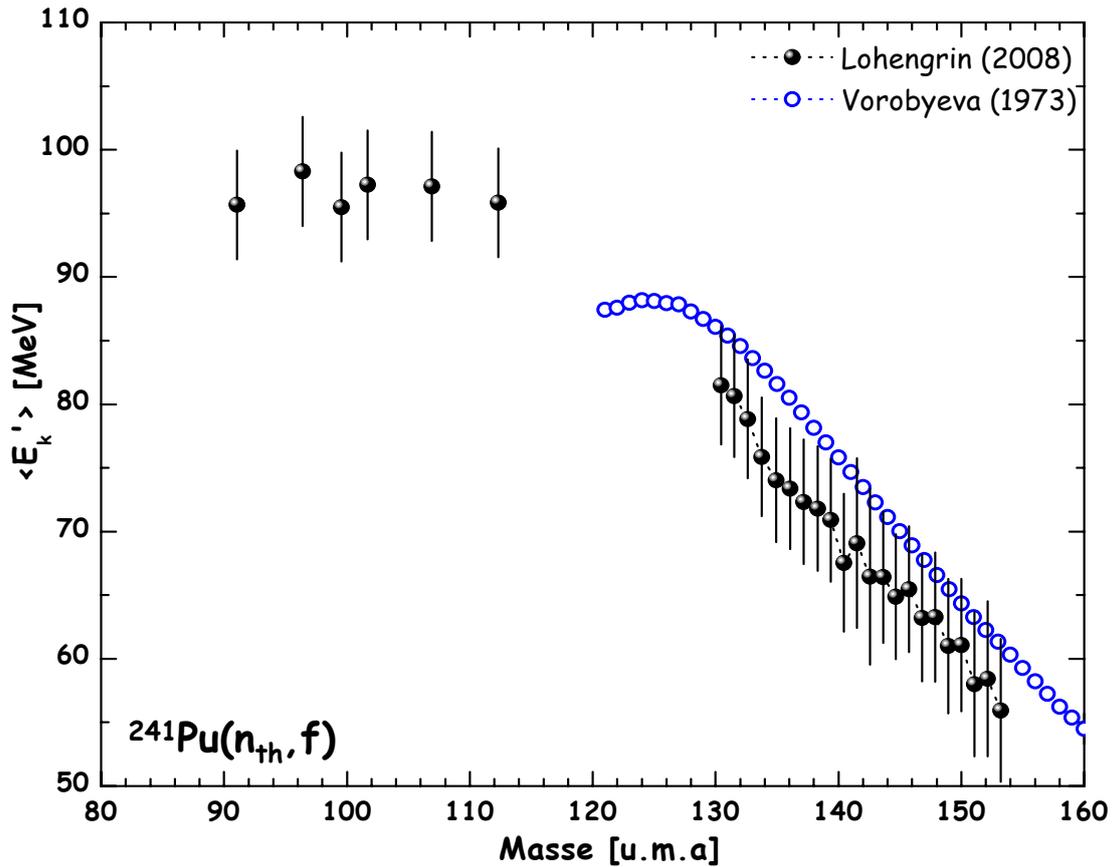


FIG. 5.16 – Différentes mesures des énergies cinétiques moyennes pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$ sont comparées sur cette figure. Les cercles représentent une mesure avant évaporation des neutrons prompts ([94]). Les points en noir correspondent à nos données corrigées de l'émission des neutrons prompts. La sous-estimation sur la correction de la perte en énergie des valeurs Lohengrin (inhomogénéité de la cible) est visible également dans la région des produits de fission légers [95].

5.2.3 Forme des distributions en énergie cinétique

Ce paragraphe avance plusieurs hypothèses pour tenter de comprendre l'asymétrie prononcée des distributions en énergie cinétique.

Perte d'énergie dans la cible

L'origine de l'asymétrie à basse énergie des distributions a souvent été attribuée à la perte d'énergie dans la cible et la feuille de Nickel des produits de fission [96, 97]. Une explication schématisée de ce phénomène est donnée figure 5.17 où l'ion pf_1 , qui est émis au moment de la fission à la même énergie cinétique que l'ion pf_2 , est détecté par le spectromètre comme ayant une énergie plus faible : ΔE_1 (perte d'énergie de pf_1 dans la cible et le Nickel) $>$ ΔE_2 . Pour une même énergie cinétique originelle l'ion pf_1 va par rapport à l'ion pf_2 renforcer la queue des faibles énergies de la distribution.

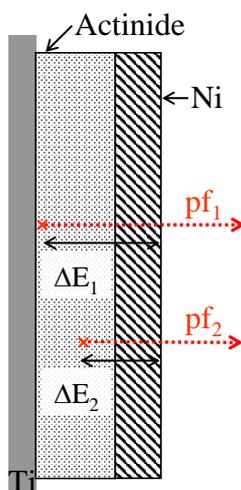


FIG. 5.17 – Schéma de la cible mettant en évidence l'influence de l'épaisseur de la matière traversée pour la perte d'énergie : $\Delta E_1 > \Delta E_2$ même si $E_{pf_1} = E_{pf_2}$ (les échelles ne sont pas respectées).

Cependant l'asymétrie qui est générée par la traversée de l'actinide et de la feuille de Nickel semble pouvoir être négligée :

- Dans un premier temps une asymétrie aussi prononcée n'est pas reproduite par simulations Monte-Carlo (TRIM) (figures 5.18). Les distributions en énergie cinétique obtenues après traversée d'une feuille de Nickel de $0,25 \mu m$ (points en vert) et différentes épaisseurs d'Uranium ($75 \mu g.cm^{-2}$ (points en rose), $150 \mu g.cm^{-2}$ (points en jaune) et $225 \mu g.cm^{-2}$ (points en cyan)) pour la distribution de la masse 136 supposée idéalement gaussienne de largeur 6 MeV centrée sur 65 MeV sont données figure du haut. Les queues dans les basses énergies des différents cas considérés restent négligeables. En moyenne au cours des expériences sur le spectromètre les produits de fission traversent en plus de la feuille de Nickel environ $75 \mu g.cm^{-2}$ d'actinide.

Ainsi si les structures des distributions étaient dues à la perte d'énergie des produits de fission dans l'actinide et la feuille de Nickel, les points en vert devraient présenter la même asymétrie que nos mesures, et celle-ci devrait se renforcer avec l'épaisseur de l'actinide traversée.

Ces simulations ont en revanche permis de mettre en évidence le rôle de l'épaisseur de la cible traversée dans les largeurs de distribution.

Soit une cible de $150 \mu\text{g.cm}^{-2}$ d'Uranium et une feuille de Nickel de $0,25 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Les produits de fission vont tous traverser la totalité de la feuille de Nickel ainsi qu'une certaine épaisseur ε_i d'Uranium. Cette épaisseur ε_i varie de 0 à $150 \mu\text{g.cm}^{-2}$ d'Uranium. La distribution finale en énergie cinétique correspond à la somme des distributions pour toutes les épaisseurs ε_i d'actinide traversées. Ces distributions ont toutes la même probabilité. Elles sont représentées figure du bas par les différentes courbes. La distribution totale est représentée par les points en rouge, elle est normalisée à 1. On remarque que sa largeur, à cause des différentes épaisseurs de cible traversées, est plus importante que les distributions en énergie données par la fission.

Les largeurs de distribution données figures 5.14, 5.15 et 5.16 ont été corrigées par des simulations Monte-Carlo de ce type.

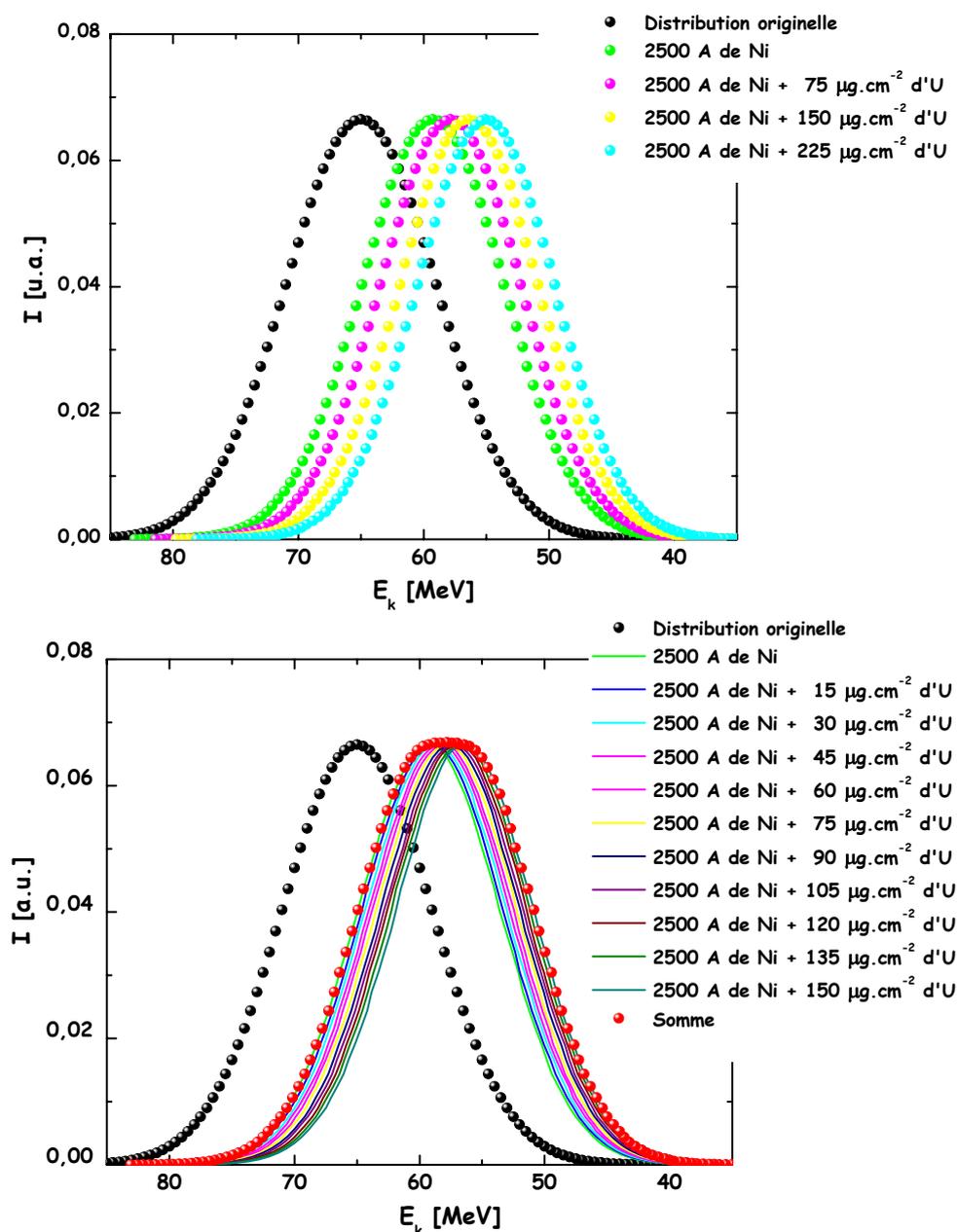


FIG. 5.18 – Contribution de la traversée de la cible et de la feuille de Nickel sur la forme des distributions en énergie cinétique des produits de fission (simulation Monte-Carlo, TRIM). Ces calculs ont été faits en supposant une cible parfaitement homogène.

• D'autre part l'asymétrie des distributions en énergie cinétique peut être très différente suivant la masse mesurée (figures 5.19). De telles différences ne peuvent pas s'expliquer en considérant uniquement la perte d'énergie des produits de fission dans l'actinide et le Nickel. Dans un tel cas les queues de distributions à basse énergie devraient toutes présenter les mêmes caractéristiques.

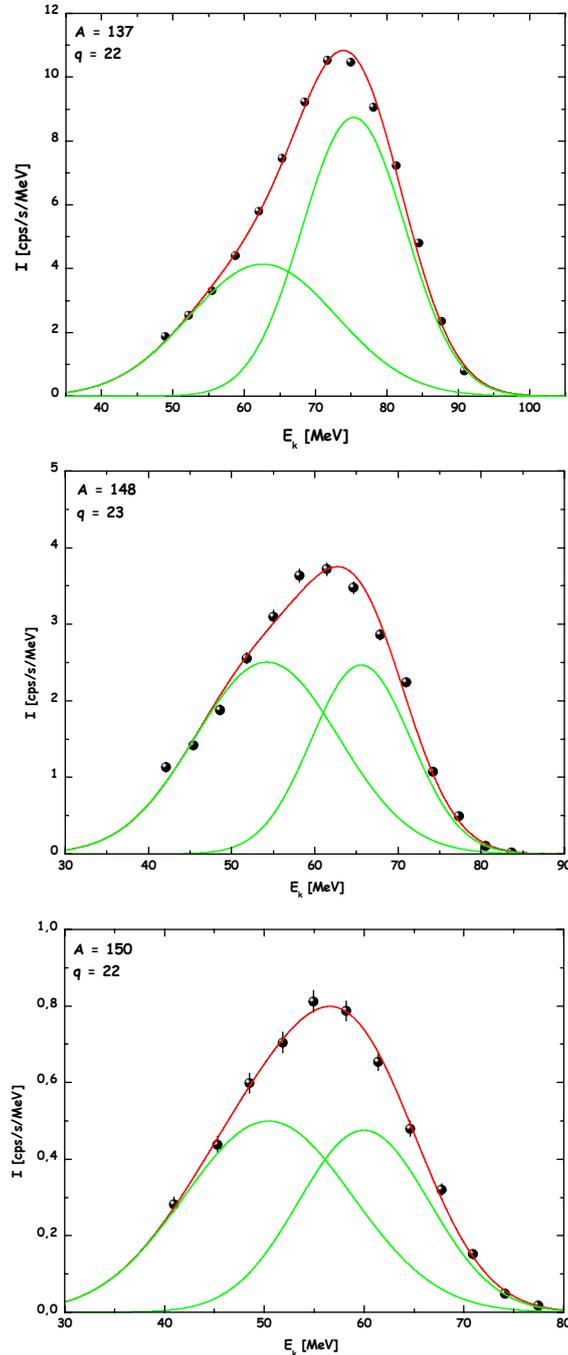


FIG. 5.19 – Exemples de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

• Enfin pour minimiser au maximum cet effet la mesure de ces distributions a été réalisée avec une cible mince d' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ sans couverture ($113 \mu\text{g.cm}^{-2}$ d'Uranium, $0 \mu\text{m}$ de Nickel). Les distributions en énergie cinétique des masses 94 (produit de fission léger) et 143 (produit de fission lourd) sont représentées figures 5.20. Ces distributions présentent toutes les deux une forte asymétrie dans les basses énergies malgré la faible

épaisseur de matière traversée par les produits de fission.

Ces conditions expérimentales montrent que l'on ne peut pas expliquer ces structures uniquement par la perte d'énergie des produits de fission dans l'actinide et la feuille de Nickel.

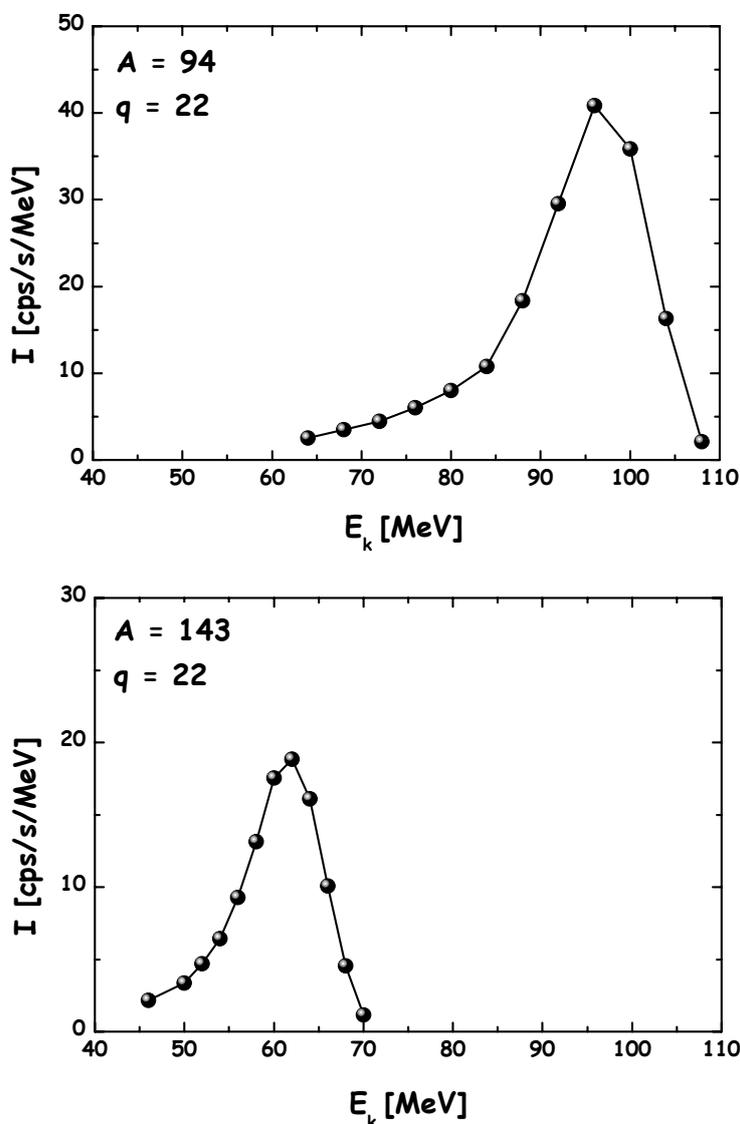


FIG. 5.20 – Exemples de distributions en énergie cinétique pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ avec une cible sans couverture de Nickel. On remarque que ces distributions conservent une forte queue dans les basses énergies. Ces mesures mettent en évidence que la perte d'énergie des produits de fission dans la cible ne peut pas expliquer l'asymétrie de ces distributions.

Cependant certaines études ont montré que la méthode de fabrication de la cible joue un rôle très important dans la qualité de celle-ci. Certaines méthodes de fabrication, comme par exemple la fabrication de cibles par peinture, fournissent des cibles très inhomogènes [98]. Ces caractéristiques sont très difficiles à simuler et à estimer mais sont probablement en partie la cause de l'asymétrie sur les distributions en énergie. Cependant il est vraisemblable que cette asymétrie ne puisse pas être complètement expliquée par cette hypothèse, en particulier parce que dans un tel cas toutes les distributions devraient présenter la même queue dans les basses énergies.

Contribution des différents isotopes

Les différents isotopes d'une même masse peuvent avoir chacun des énergies cinétiques moyennes différentes. Leurs contributions dans la distribution en énergie cinétique pour la masse considérée ont été mises en avant pour expliquer l'asymétrie de ces distributions. Mais la différence des énergies cinétiques moyennes de ces isotopes qui est au maximum de quelques MeV est insuffisante pour expliquer de si fortes asymétries (il faudrait une différence entre les énergies moyennes des isotopes de l'ordre de 10 MeV). De plus les distributions en énergie des isotopes présentent elles aussi ces mêmes structures (figures 5.21). On remarque sur ces figures que les isotopes de la région des produits de fission légers ($A=91$) comme ceux de la région des produits de fission lourds ($A=143$) possèdent une distribution en énergie cinétique avec une forte asymétrie sur la gauche. De plus si la différence des valeurs moyennes de ces distributions est plus importante pour les masses légères que pour les masses lourdes, elle n'est pas suffisante pour être prise en considération.

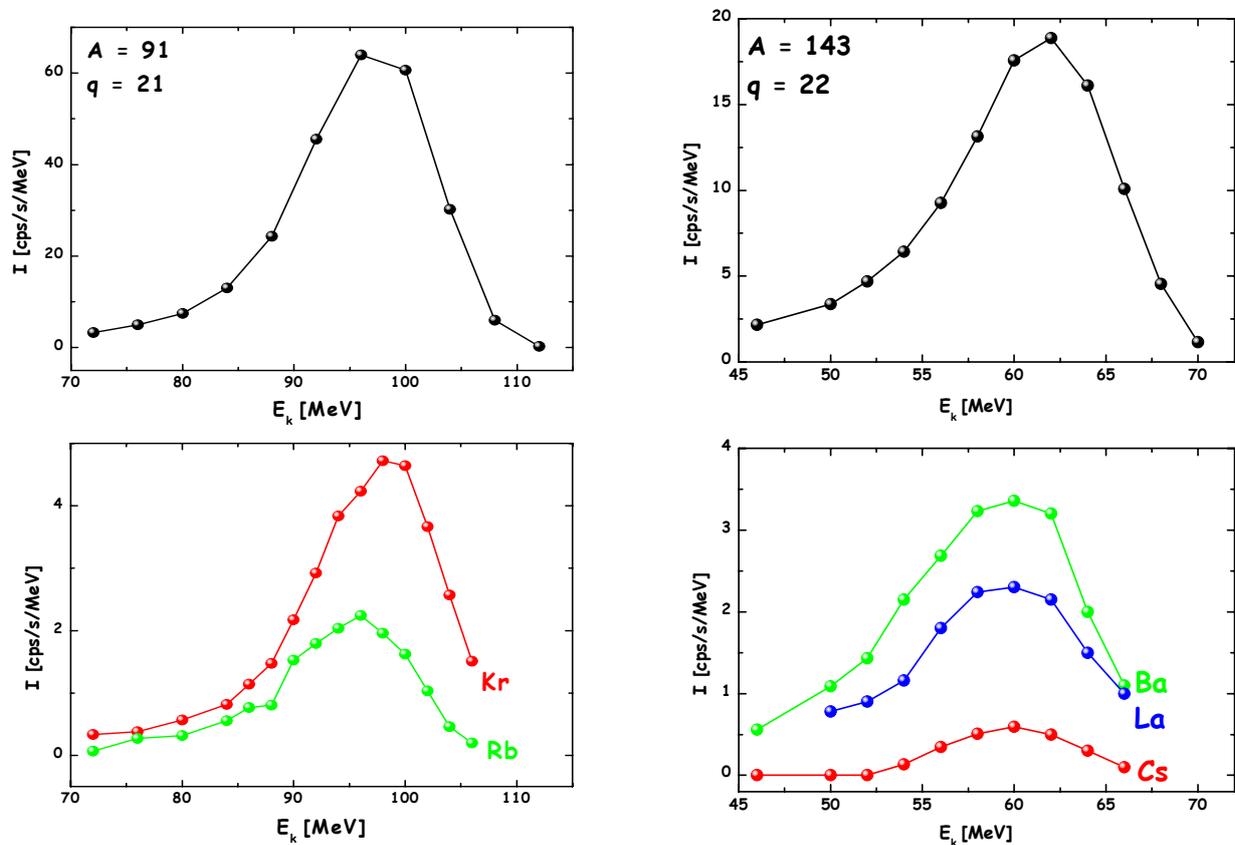


FIG. 5.21 – Exemples de distributions en énergie cinétique pour les masses (chambre à ionisation, figure du haut) et les isotopes (spectrométrie γ , figures du bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ avec une cible sans couverture de Nickel.

Modes de fission

Il est intéressant d'observer que toutes les distributions en énergie cinétique mesurées au cours des différentes expériences sont très bien représentées par la superposition de deux gaussiennes (figure 5.19). C'est pourquoi l'origine de ces deux gaussiennes pourrait être attribuée à l'existence de modes de fission.

Dans l'hypothèse du modèle de Brosa chacune des deux gaussiennes est attribuée à un mode de fission différent. La gaussienne de haute énergie correspondrait alors au mode **standard I**, mode compact avec une énergie cinétique élevée, alors que la gaussienne de gauche représenterait le mode **standard II** plus déformé et ayant moins d'énergie cinétique.

La figure 5.22 obtenue par Hamsch [99] montre la contribution de ces deux modes dans la distribution de l'énergie cinétique des fragments de fission (avant émission des neutrons prompts) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. On peut remarquer que jusqu'à la masse 142 les deux modes de fission jouent un rôle dans la distribution en énergie cinétique moyenne, mais qu'au-delà de celle-ci seul le mode **standard II** contribue à la valeur de l'énergie. Nous avons essayé de reproduire des figures similaires avec nos mesures sans perdre à l'esprit que ces considérations ne sont rigoureusement valables qu'avant émission des neutrons prompts (ce qui n'est pas le cas de nos valeurs).

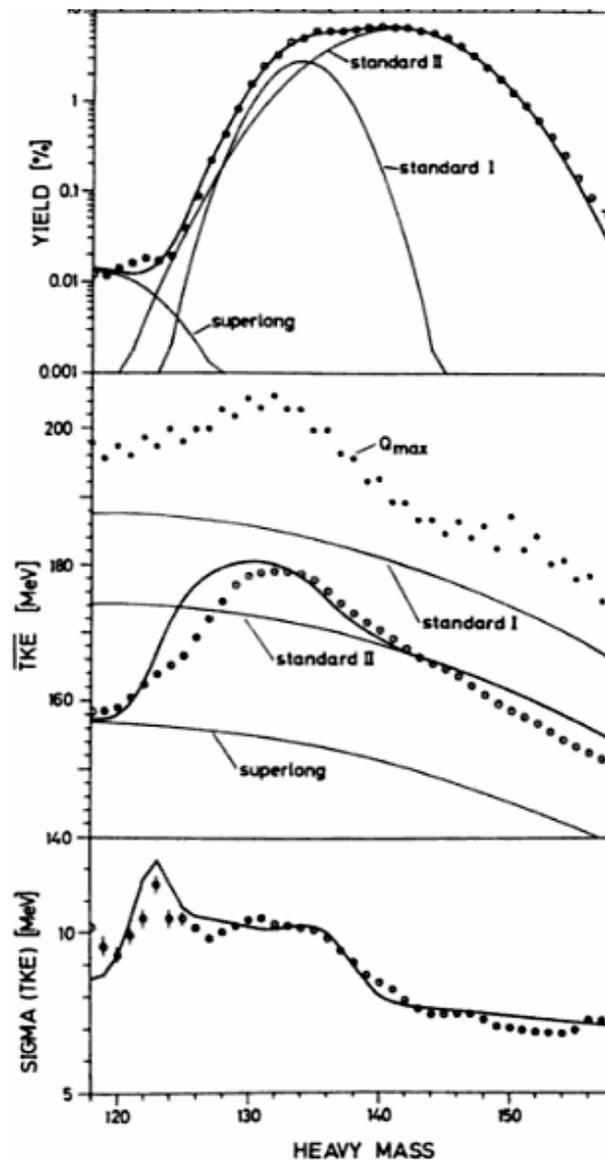


FIG. 5.22 – Rendements en masse (haut), énergies cinétiques moyennes (milieu) et leurs largeurs (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les cercles représentent les points de mesures alors que les traits pleins montrent les différentes contributions des modes de fission, [99].

La figure 5.23 représente donc les énergies cinétiques moyennes pour chacune des deux

gaussiennes qui contribuent à la distribution en énergie cinétique. Les énergies moyennes de la distribution totale sont également tracées.

Les résultats obtenus ne semblent pas aller dans le sens d'une fission selon les modes **standard I** et **standard II** puisque dans un tel cas on se serait attendu à trouver une contribution nulle du mode **standard I** après la masse 142. Prendre en compte l'émission des neutrons prompts ne suffirait pas à retrouver les tendances attendues avec le modèle de Brosa puisqu'elles sont de l'ordre de 2%.

Cependant le principal défaut de ces comparaisons vient du fait que les fits utilisés pour ajuster les distributions en énergie cinétique ne sont pas optimisés pour représenter les modes puisqu'ils sont optimisés pour reproduire au mieux l'intégrale des distributions.

De plus pour pouvoir étudier rigoureusement cette hypothèse il faudrait, non pas fitter uniquement les énergies cinétiques mais fitter à deux dimensions les énergies et les masses simultanément.

Emission de neutrons prompts

L'émission des neutrons prompts a été avancée pour tenter d'expliquer l'asymétrie des distributions en énergie cinétique.

La distribution en énergie cinétique pour une masse A donnée provient de la contribution de différents noyaux :

- Le noyau de masse A considéré pour les produits de fission qui n'émettent pas de neutrons prompts,
- Le noyau de masse $A+1$ après émission d'un neutron prompt,
- Le noyau de masse $A+2$ après émission de deux neutrons prompts...

Chaque neutron émis emporte une partie de l'énergie cinétique du produit de fission, ce qui décale alors l'énergie moyenne du noyau vers les basses énergies. Cet effet est d'autant plus prononcé dans les masses lourdes pour lesquelles l'énergie cinétique diminue lorsque la masse du noyau augmente.

Bien que cet effet ne puisse pas être négligé [100], des simulations Monte-Carlo menées par le passé ne semblent pas confirmer que ce phénomène soit à même d'expliquer à lui seul les asymétries mesurées des distributions en énergie cinétique [101].

Effet de température

Une étude menée par Y. Patin [102] a tenté d'ajuster les distributions en énergie cinétique des fragments de fission d'après le modèle de la goutte liquide à laquelle a été ajoutée des corrections de couches.

Elle a dans un premier temps montré que les distributions en énergie cinétique des fragments de fission avant émission des neutrons prompts mesurées sur un tout autre instrument que le spectromètre Lohengrin (accélérateur Van de Graff tandem du CEA de Bruyères le Châtel, France) présentaient également une asymétrie vers les basses énergies. De plus elle a permis de mettre en évidence l'influence de la température des fragments dans la forme de cette distribution : lorsque les deux fragments présentent des températures différentes l'asymétrie est plus prononcée. Cependant il reste difficile d'estimer le rôle exact de ces températures dans la forme de ces distributions.

Ces précédents paragraphes ont présentés différentes hypothèses pour tenter d'expliquer la forme des distributions en énergie cinétique. Il n'est cependant pas évident d'estimer la contribution de ces différents phénomènes dans cette asymétrie. Il est d'ailleurs vraisemblable que bon nombre d'entre eux y jouent un rôle.

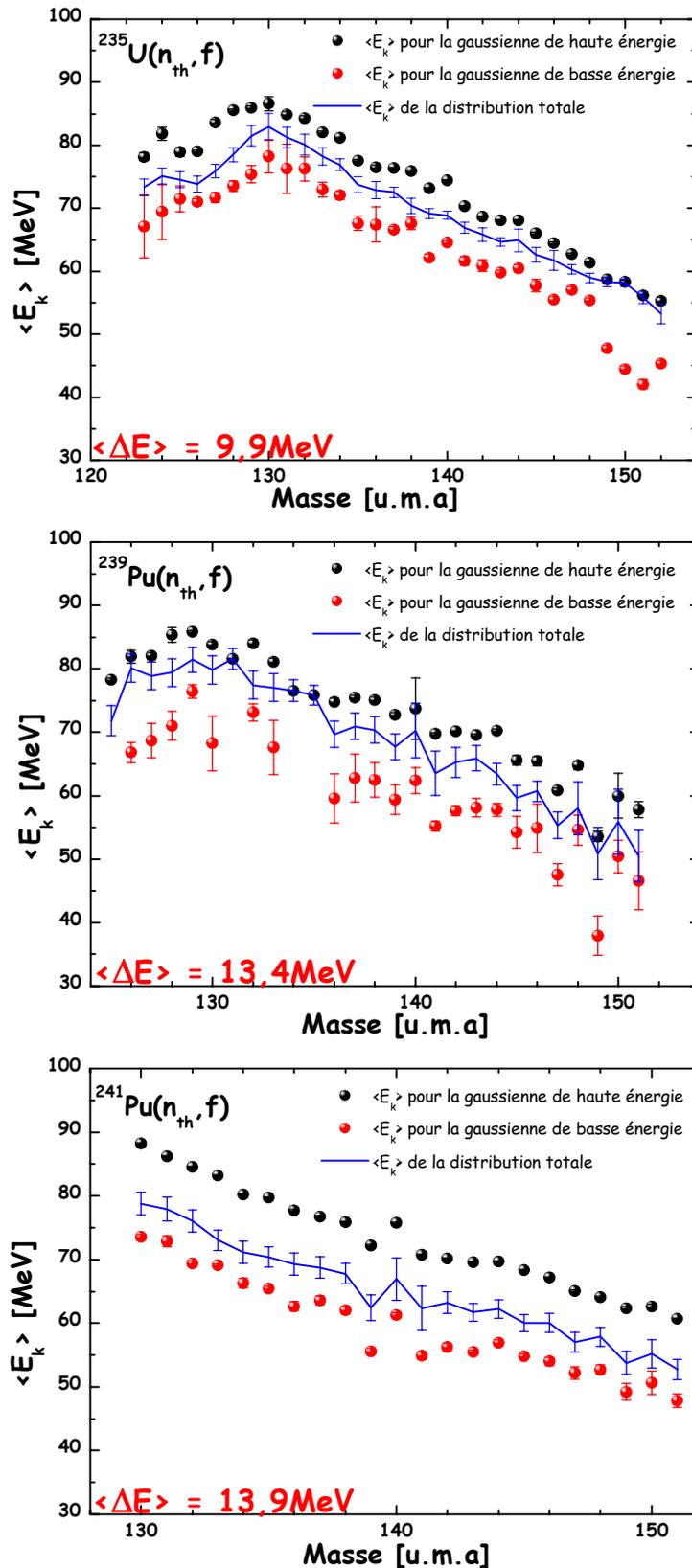


FIG. 5.23 – Energies cinétiques moyennes en fonction des masses tracées pour les 3 systèmes fissionnants étudiés. Les points en noir représentent l'énergie cinétique moyenne de la gaussienne de haute énergie dans la distribution en E_k alors que la gaussienne de basse énergie est représentée par les points en rouge. La courbe en bleu correspond à l'énergie cinétique moyenne de la distribution totale. Les valeurs $\langle \Delta E \rangle$ correspondent à la différence moyenne entre les gaussiennes de haute énergie et celles de basse énergie.

5.3 Distributions en énergie et en charge ionique pour une masse A

Pour pouvoir estimer au mieux la forme de la distribution en énergie cinétique et charge ionique d'une masse A , dont son volume ϑ représente le rendement de la masse, les distributions complètes des masses 98 et 136 ont été mesurées pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. C'est à dire que pour ces deux masses, une mesure quasi-exhaustive de toutes les combinaisons énergie cinétique E_k et charge ionique q a été réalisée. Environ deux jours de mesure ont été nécessaires pour ces deux seules masses dont les distributions sont présentées à la figure 5.24.

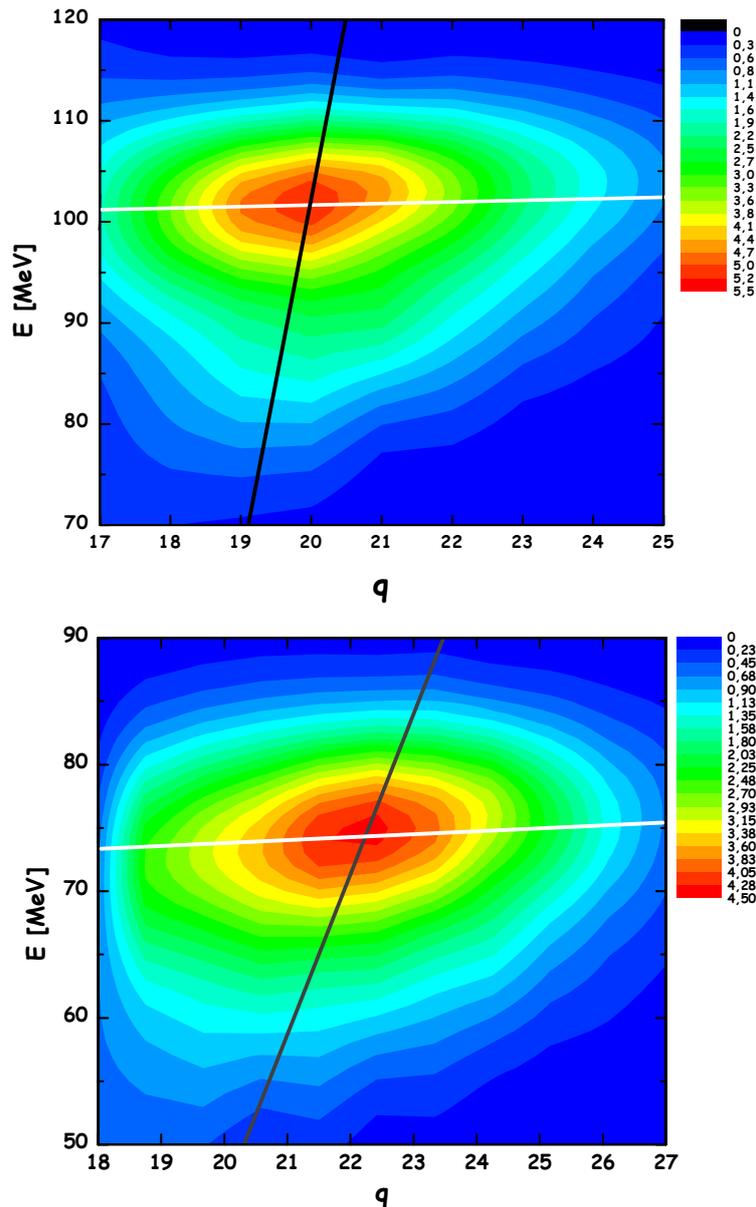


FIG. 5.24 – Des distributions en énergie cinétique et en charge ionique pour les masses 98 (haut) et 136 (bas) pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les traits blancs représentent un fit sur les énergies cinétiques moyennes des distributions alors que ceux en noir représentent un fit sur les valeurs moyennes des distributions en charge ionique.

Dans le cas idéal où l'énergie cinétique et la charge ionique seraient indépendantes, la

valeur du rendement de la masse A pourrait se calculer de façon parfaitement rigoureuse avec l'équation (4.1). Cependant, comme le modèle de Shima le laissait pressentir, la figure 5.24 met bel et bien en évidence l'existence d'une corrélation entre la charge ionique et l'énergie cinétique des produits de fission.

L'ajustement des énergies cinétiques moyennes représenté par les traits blancs de cette figure montre que l'énergie cinétique des produits de fission dépend très peu de leur charge ionique alors que la charge ionique moyenne dépend fortement de l'énergie cinétique de l'ion initial (fit en noir). Ces deux corrélations s'expliquent par le fait que plus l'énergie d'un ion traversant un matériau sera élevée, plus sa charge ionique finale sera grande.

Les figures 5.25 représentent les charges ioniques moyennes calculées selon le modèle de Shima (équation 4.4) pour différentes conditions initiales. La figure du haut représente les charges ioniques moyennes pour un produit de fission léger ($A=98$) et un produit de fission lourd ($A=136$) selon leurs énergies cinétiques. Les courbes en pointillés vert et rouge sont les tangentes au modèle de Shima pour les énergies moyennes typiques de ces produits de fission, c'est à dire 100 MeV pour la masse 98 et 72 pour la masse 136. Elles montrent que la dépendance de la charge ionique en fonction de l'énergie cinétique est plus prononcée dans la région des masses lourdes que dans celle des masses légères. Ce résultat est bien retrouvé sur les distributions complètes des masses tracées [73].

La figure du bas montre que pour une énergie constante la charge ionique moyenne est plus sensible à la nature isotopique de l'ion dans la région des produits de fission légers que dans celle des produits de fission lourds. Cet effet est surtout mis en évidence pour les produits de fission légers pour lesquels l'énergie cinétique varie très peu mais qui n'ont pas pour autant une charge ionique moyenne constante.

Afin d'estimer les incertitudes résultantes de cette approximation, les valeurs des rendements pour les masses 98 et 136, calculées par la somme des rendements de toutes les combinaisons (E_k, q) , ont été comparées à toutes les possibilités de mesure. C'est à dire que pour chacune des distributions en charges ioniques prises séparément, les rendements des deux masses ont été calculés suivant l'équation (4.4) pour toutes les distributions en énergie cinétique, et inversement. Les résultats sont reportés dans le tableau 5.3.

| | $\langle q \rangle - 3$ | $\langle q \rangle - 2$ | $\langle q \rangle - 1$ | $\langle q \rangle$ | $\langle q \rangle + 1$ | $\langle q \rangle + 2$ | $\langle q \rangle + 3$ |
|---------------------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|---------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|
| $\langle E_k \rangle - 8 \text{ MeV}$ | $> 15\%$ | $> 11\%$ | $> 7\%$ | $> 4\%$ | $> 7\%$ | $> 11\%$ | $> 15\%$ |
| $\langle E_k \rangle - 4 \text{ MeV}$ | $> 15\%$ | $> 7\%$ | $> 3\%$ | $> 2\%$ | $> 3\%$ | $> 7\%$ | $> 15\%$ |
| $\langle E_k \rangle$ | $> 15\%$ | $> 5\%$ | $> 2\%$ | $> 1\%$ | $> 2\%$ | $> 5\%$ | $> 15\%$ |
| $\langle E_k \rangle + 4 \text{ MeV}$ | $> 15\%$ | $> 7\%$ | $> 3\%$ | $> 2\%$ | $> 3\%$ | $> 7\%$ | $> 15\%$ |
| $\langle E_k \rangle + 8 \text{ MeV}$ | $> 15\%$ | $> 11\%$ | $> 7\%$ | $> 4\%$ | $> 7\%$ | $> 11\%$ | $> 15\%$ |

TAB. 5.3 – Pourcentage d'erreur généré par l'hypothèse de non-corrélation de l'énergie cinétique avec la charge ionique dans le calcul du rendement des masses. Les valeurs $\langle E_k \rangle$ et $\langle q \rangle$ représentent les valeurs moyennes des distributions respectives.

Ce tableau souligne en particulier l'importance du choix de la charge ionique q_i à laquelle sera mesurée la distribution en énergie cinétique $S_{E_k}(q_i)$, ou inversement.

Le choix de cette charge se réduit à la charge moyenne de la distribution \pm une charge pour garder des erreurs $< 5\%$, sous la condition d'un choix pertinent de l'énergie E_{k_j} pour la mesure de la distribution en charge.

En revanche, le choix de l'énergie cinétique E_{k_j} est moins délicat que celui de q_i , puisqu'il bénéficie d'une gamme de plus de 8 MeV pour des erreurs $< 5\%$, si toutefois la valeur q_i correspond à la valeur moyenne de la distribution.

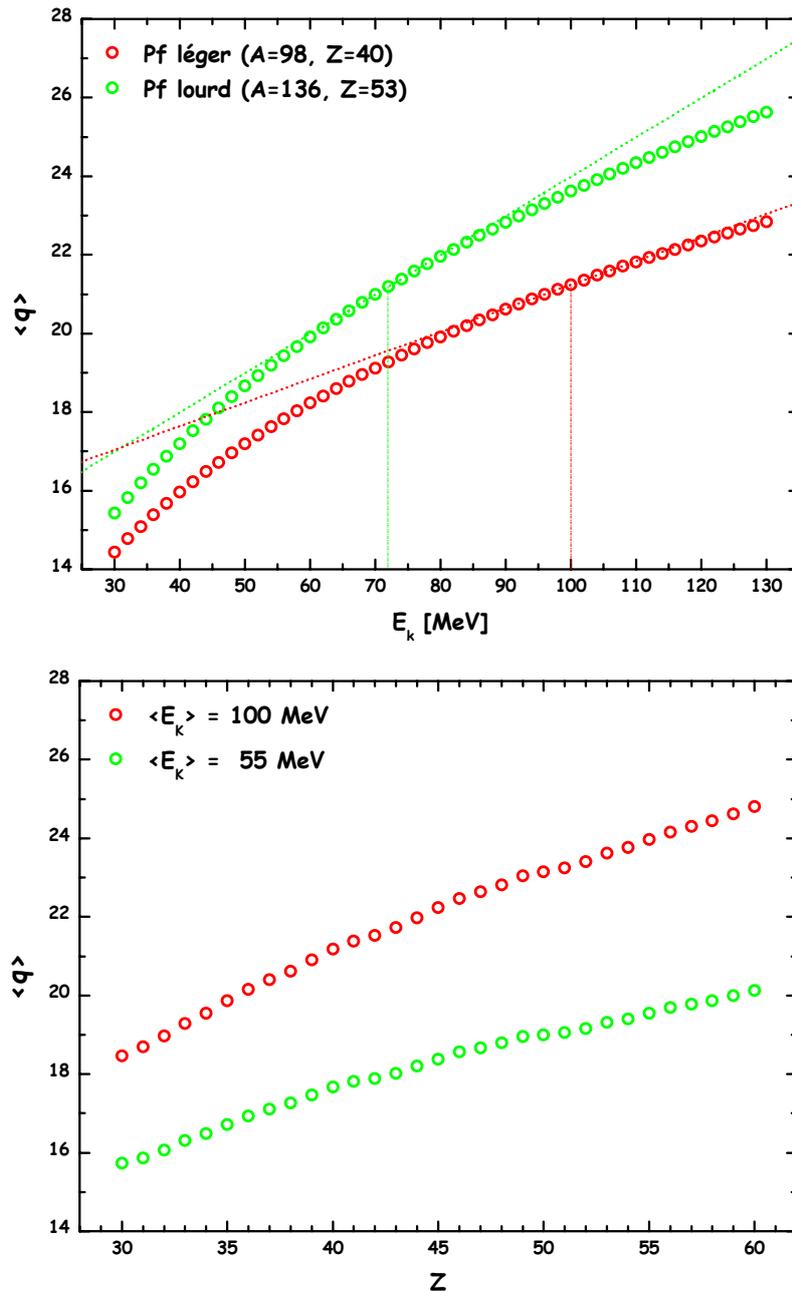


FIG. 5.25 – Charges ioniques moyennes calculées à partir du modèle de Shima pour des produits de fission après traversée d’une feuille de Nickel en fonction de leur énergie cinétique (figure du haut) et de leur charge nucléaire la plus probable (figure du bas). Sur la figure du haut les courbes en pointillés représentent les tangentes au modèle de Shima aux énergies typiques pour un produit de fission léger (en rouge : $E_k \sim 100$ MeV) et pour un produit de fission lourd (en vert : $E_k \sim 72$ MeV).

Cependant, le choix de la charge q_i ne représente pas en soi une grande difficulté puisque les variations de la charge ionique moyenne d’une masse à l’autre sont très faibles. En revanche, le problème se pose davantage lorsque la distribution en charge présente un isomère nanoseconde. Pour ces noyaux la mesure complète de la distribution en masse n’a pas pu être entreprise faute de temps. Il est donc difficile d’estimer la contribution de l’isomère dans une telle formule. Dans ces cas, les erreurs seront surestimées.

Chapitre 6

Rendements en masse

Ce chapitre présente les résultats des rendements en masse des produits de fission lourds mesurés sur le spectromètre Lohengrin pour les réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$.

6.1 Normalisation et calculs d'incertitude

6.1.1 Normalisation

Les mesures de rendement sur le spectromètre de masse Lohengrin ne sont jamais absolues.

Il est en effet impossible d'évaluer à chaque instant le nombre de fission dans la cible, puisque entre autres le flux de neutrons thermiques à l'entrée du spectromètre, la composition exacte de la cible ainsi que ses variations ne sont pas parfaitement connus en fonction du temps.

C'est pourquoi une masse de référence mesurée régulièrement permet d'évaluer à chaque instant les corrections nécessaires à prendre en compte sur chaque point mesuré (burn up : chapitre 4 paragraphe 4.5.5). Il est ainsi possible de comparer entre eux les rendements de chaque masse (rendements relatifs).

Par convention, en ne tenant compte que de la fission binaire, la somme des rendements est égale à 2. Les rendements absolus sont alors obtenus en égalisant à 1 tous les rendements en masse de la bosse lourde.

Cependant au cours de nos expériences, faute de temps de faisceau, la mesure exhaustive de toutes les masses lourdes n'a jamais pu être réalisée (que ce soit pour l' $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, le $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$, ou le $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$).

Dans ce cas deux possibilités de normalisation sont alors possibles :

- Normaliser toute la distribution sur une seule masse pour laquelle le rendement est très bien connu dans la littérature. Ce choix est pertinent lorsque la donnée de la littérature est très bien connue. Dans le cas contraire l'erreur engendrée serait alors répercutée sur toutes les autres masses.
- Normaliser la distribution en masse sur la somme des rendements.
Lorsque cette distribution n'a pas été entièrement mesurée, il suffit de l'égaliser à la somme des mêmes rendements pour une évaluation choisie (JEFF-3.1 par exemple). Cette solution a l'avantage de moyenniser les erreurs des bibliothèques. Elle reste néanmoins moins rigoureuse que la première méthode notamment lorsque seulement quelques masses ont été mesurées.

Comme au cours de nos mesures la quasi-totalité des masses de la bosse lourde ont été mesurées (tableau 6.1), c'est la seconde solution basée sur la bibliothèque JEFF-3.1 qui a

été choisie pour normaliser les rendements en masse des produits de fission.

| Réaction étudiée | Masses mesurées | Somme des PF (JEFF-3.1) sur les masses mesurées |
|-----------------------------|-----------------|--|
| $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ | 128 à 152 | 0,99 |
| $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ | 126 à 150 | 0,94 |
| $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ | 130 à 151 | 0,94 |

TAB. 6.1 – Somme des rendements des produits de fission (PF) de la bibliothèque JEFF-3.1 correspondant aux masses mesurées pour les trois réactions étudiées.

6.1.2 Incertitudes

6.1.2.1 Incertitudes statistiques

L'erreur statistique absolue ΔI est égale à la racine carrée du taux de comptage I de chaque mesure :

$$\Delta I = \sqrt{I}$$

L'erreur statistique relative $\Delta I/I$ est égale à l'inverse de la racine carrée du taux de comptage de chaque mesure :

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{1}{\sqrt{I}}$$

6.1.2.2 Incertitudes systématiques

Elles sont de trois types :

Incertitude due au dispositif expérimental,

Incertitude due à la combustion de la cible et au flux du réacteur,

Incertitude liées à la méthode de calcul.

Incertitudes systématiques dues au dispositif expérimental

Les incertitudes systématiques dues au dispositif expérimental prennent en compte les erreurs induites par le spectromètre et la chambre à ionisation.

Elles sont surtout liées à l'hystérésis du condensateur et de l'aimant principal du spectromètre. Au cours de nos mesures ces modules subissent un très grand nombre de variations. Parce que leurs réponses ne sont pas parfaitement linéaires, elles induisent des erreurs systématiques. L'hystérésis du générateur de haute tension et de l'aimant principal du spectromètre n'ont cependant jamais été mesurées. Pour évaluer l'impact de ce phénomène sur les données plusieurs masses ont été mesurées dans des conditions expérimentales différentes : variations croissantes ou décroissantes pour le condensateur et l'aimant, variation croissante pour le condensateur et décroissante pour l'aimant...

Cette étude a montré qu'en moyenne l'incertitude générée par le dispositif expérimental est pour chaque point mesuré inférieure à 1,5%.

Cependant l'incertitude finale liée à cet effet sera inférieure à 1,5% pour la valeur des rendements. En effet une erreur de 1,5% sur chaque point de mesure implique une erreur de l'ordre de 0,6% sur l'estimation par le fit de l'intégrale de la distribution.

Incertitudes systématiques dues à la combustion de la cible et au flux du réacteur

La combustion de la cible ainsi que les variations du flux du réacteur sont des effets pris en compte par les courbes du burn-up. Les incertitudes liées sont donc données par les erreurs engendrées par le fit du burn-up. Pour les trois réactions étudiées elles sont données tableau 6.2.

| Réaction étudiée | Incertitude liée à la combustion de la cible et au flux du réacteur |
|-----------------------------|---|
| $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ | 0,2% |
| $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ | 0,6% |
| $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ | 0,5% |

TAB. 6.2 – Incertitudes systématiques liées à la combustion de la cible et aux fluctuations du réacteur.

Incertitudes systématiques liées à la méthode de calcul

A cause des temps de mesure les rendements ont été déterminés uniquement à partir d'une distribution en charge ionique et d'une distribution en énergie cinétique (chapitre 4, équation 4.1).

Cependant comme nous l'avons vu au chapitre précédent cette méthode n'est exacte que dans le cas idéal où les énergies cinétiques et les charges ioniques sont indépendantes.

La mesure complète de la distribution en masse (chapitre 5 paragraphe 5.3) a mis en évidence l'importance du choix de la charge ionique pour la mesure de la distribution en énergie cinétique (et vice-versa). Ces incertitudes sont donc différentes pour chaque masse et dépendent de la charge ionique et de l'énergie cinétique auxquelles ont été mesurées les distributions.

La présence d'isomères nanosecondes peut également engendrer des incertitudes plus importantes qui sont directement liées à cette méthode.

Incertitudes liées à la normalisation

Les incertitudes qui sont liées au choix de la (des) masse(s) de normalisation sont négligeables. En effet différentes masses et bibliothèques ont été choisies comme référence et les différences engendrées peuvent être négligées par rapport aux autres incertitudes.

6.1.2.3 Incertitudes totales

Pour chaque masse l'incertitude systématique totale est égale à la somme linéaire des trois différents types d'incertitudes systématiques présentés auparavant. Leurs ordres de grandeur sont donnés tableau 6.3.

| Nature de l'erreur systématique | ordre de grandeur |
|---------------------------------|-------------------|
| dispositif expérimental | 0,6% |
| Burn-up | 0,2%-0,6% |
| Méthode de calcul | 1%-7% |

TAB. 6.3 – Ordre de grandeur des différents types d'incertitude systématique.

Les incertitudes totales qui sont représentées sur les figures suivantes correspondent pour chaque masse à la somme linéaire de l'incertitude statistique et de l'incertitude systématique totale.

6.2 Résultats

Les rendements en masse des produits de fission (après évaporation des neutrons prompts) pour les réactions $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ sont présentés dans la suite de ce chapitre.

Les résultats de ces trois noyaux mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin sont comparés avec les bibliothèques de données JEFF-3.1, ENDF/B-VI.8 et JENDL-3.3, les évaluations de Wahl et quelques mesures après émission des neutrons prompts.

Les rendements en masse sont également donnés en fonction de l'énergie cinétique des produits de fission, puis tracés pour la fission à faible énergie d'excitation : lorsque que les deux fragments de fission n'ont pas assez d'énergie d'excitation pour évaporer des neutrons prompts, on parle de fission froide. La figure 6.1 représente la répartition de l'énergie cinétique totale des fragments (due à l'interaction coulombienne E_I), de leur énergie de déformation (E_D) et de leur l'énergie totale ($E_D + E_I$) en fonction de la déformation du noyau fissionnant au point de scission pour une fragmentation donnée. Les cas physiques à considérer correspondent aux réactions pour lesquelles l'énergie totale des fragments naissants est inférieure au Q de la réaction de fission ("total available energy").

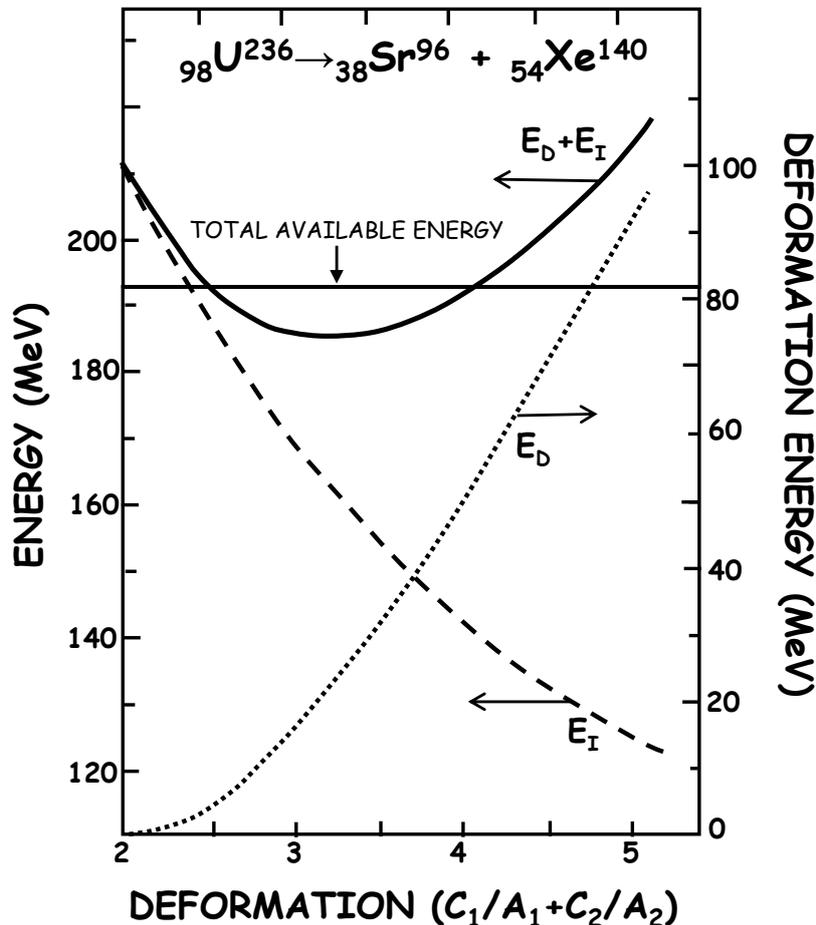


FIG. 6.1 – Energie de déformation, d'interaction coulombienne et totale au point de scission selon la déformation du noyau $C_1/A_1 + C_2/A_2$ (C_1 , C_2 , A_1 et A_2 représentent les paramètres de déformation des fragments 1 et 2 de fission) [103].

Deux cas extrêmes apparaissent :

- Lorsque l’interaction coulombienne entre les deux fragments est très importante, la quasi-totalité de l’énergie disponible au moment de la scission sera convertie en énergie cinétique des fragments de fission (partie gauche de la courbe de l’énergie totale).
- A l’inverse des fragments à faible énergie cinétique mais à très grande énergie de déformation n’auront pas non plus assez d’énergie d’excitation pour émettre des particules promptes (partie droite de la courbe de l’énergie totale).

Il n’est pas possible de mesurer la fission froide sur le spectromètre Lohengrin. Il faudrait pour cela s’assurer qu’aucun des deux fragments n’émette de neutrons prompts, or seul un produit de fission à la fois peut être mesuré. En revanche il est possible de ne considérer que les fissions à faible énergie d’excitation pour la masse mesurée (forte énergie cinétique ou forte énergie de déformation). Ainsi les rendements en masse des produits de fission à très grande énergie cinétique correspondent à une fission quasiment sans évaporation de neutrons prompts. On ne peut cependant pas parler directement de fission froide. Il faudrait pour cela être sûr que ni le fragment léger, ni le fragment lourd n’émettent de particules prompts.

6.2.1 $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$

Au cours des toutes premières mesures le spectromètre de masse s’est révélé être anormalement instable. Une série de tests a été nécessaire pour identifier la cause de ces fluctuations. C’est le générateur de haute tension qui en fait présentait de nombreuses défaillances. Il a dans un premier temps été réparé avant de finalement devoir être changé. Les réparations entreprises sur l’ancien module ainsi que les essais sur le nouveau ont été longs et laborieux (photographie 6.2).

La haute tension du Lohengrin ayant finalement été remplacée, il était nécessaire de démontrer à nouveau la fiabilité du spectromètre. Pour cette raison la fission de $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ a été mesurée à deux reprises. Les aléas du réacteur ont permis de changer les conditions expérimentales de ces deux mesures puisque la première a été effectuée pour une puissance thermique du réacteur de 35 MW (fonctionnement anormal) alors que la seconde a bénéficiée d’un faisceau de neutrons plus intense (puissance nominale du réacteur : 53 MW). Les rendements de ces deux expériences sont donnés figure 6.3. Les erreurs représentées correspondent aux incertitudes totales. Les résultats sont en très bon accord entre eux puisque en tenant compte des barres d’erreurs tous les points se recouvrent. La comparaison de ces mesures qui ont été prises dans des conditions expérimentales différentes (temps d’acquisition et combustion de cible différents) démontre le bon fonctionnement du spectromètre et la fiabilité du nouveau module de haute tension.

Les rendements en masse de $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$ pris à la puissance thermique du réacteur de 53 MW sont présentés tableau 6.4 et figure 6.4.

Parce que les distributions en énergie cinétique des masses 137, 140 et 142 n’ont pas été mesurées à la charge ionique moyenne, l’incertitude systématique sur la valeur de leur rendement est élevée (chapitre 5 paragraphe 5.3).

On peut observer sur le sommet de la distribution (figure 6.4) des structures qui semblent apparaître toutes les 2 à 3 masses : 134, 137, 139, 141 et 143. Elles sont probablement liées à des effets de parité [104].



FIG. 6.2 – Thomas Materna (gauche) et Herbert Faust (droite) pendant la réparation du générateur de haute tension.

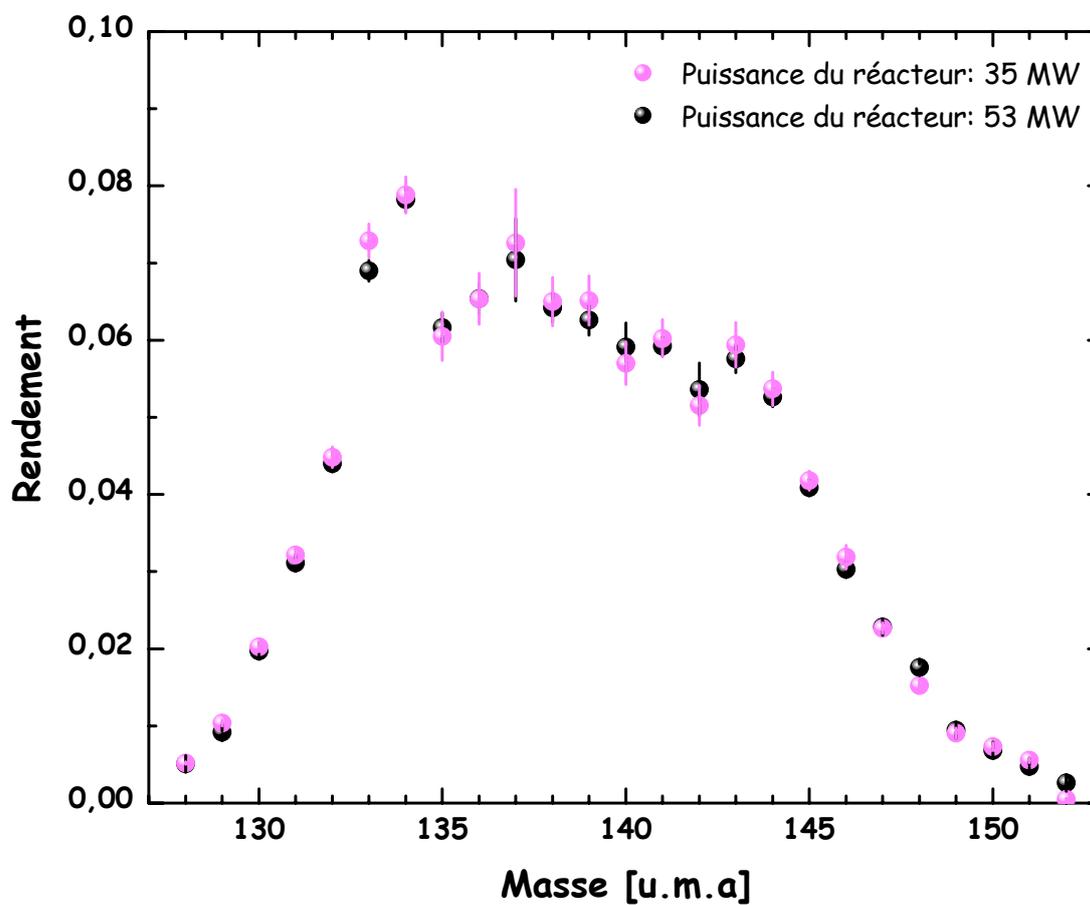


FIG. 6.3 – Rendements en masse de $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$.

| Masse A | Rendement | Incertitude statistique (%) | Incertitude systématique (%) |
|---------|-----------|-----------------------------|------------------------------|
| 123 | 1,26 E-04 | 1,5 | 3,0 |
| 124 | 2,41E-04 | 1,5 | 3,0 |
| 125 | 3,64 E-04 | 1,5 | 3,0 |
| 126 | 5,78 E-04 | 1,5 | 3,0 |
| 127 | 1,52 E-03 | 1,5 | 3,0 |
| 128 | 5,10 E-03 | 0,5 | 2,3 |
| 129 | 9,16 E-03 | 0,5 | 2,1 |
| 130 | 1,97 E-02 | 1,2 | 2,0 |
| 131 | 3,11 E-02 | 0,8 | 2,0 |
| 132 | 4,40 E-02 | 0,4 | 2,0 |
| 133 | 6,90 E-02 | 0,4 | 2,0 |
| 134 | 7,82 E-02 | 0,4 | 2,0 |
| 135 | 6,16 E-02 | 0,4 | 3,1 |
| 136 | 6,54 E-02 | 0,4 | 3,1 |
| 137 | 7,04 E-02 | 0,4 | 7,6 |
| 138 | 6,42 E-02 | 0,4 | 3,1 |
| 139 | 6,26 E-02 | 0,4 | 3,1 |
| 140 | 5,91 E-02 | 0,4 | 5,3 |
| 141 | 5,92 E-02 | 0,4 | 2,1 |
| 142 | 5,36 E-02 | 0,4 | 6,4 |
| 143 | 5,76 E-02 | 0,4 | 3,1 |
| 144 | 5,26 E-02 | 0,4 | 2,3 |
| 145 | 4,09 E-02 | 0,4 | 2,3 |
| 146 | 3,03 E-02 | 0,4 | 3,0 |
| 147 | 2,28 E-02 | 0,4 | 2,2 |
| 148 | 1,76 E-02 | 1,0 | 2,3 |
| 149 | 9,43 E-03 | 1,2 | 2,3 |
| 150 | 6,82 E-03 | 1,2 | 3,6 |
| 151 | 4,73 E-03 | 0,6 | 3,5 |
| 152 | 2,60 E-03 | 0,6 | 3,4 |

TAB. 6.4 – Rendements en masse pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$.

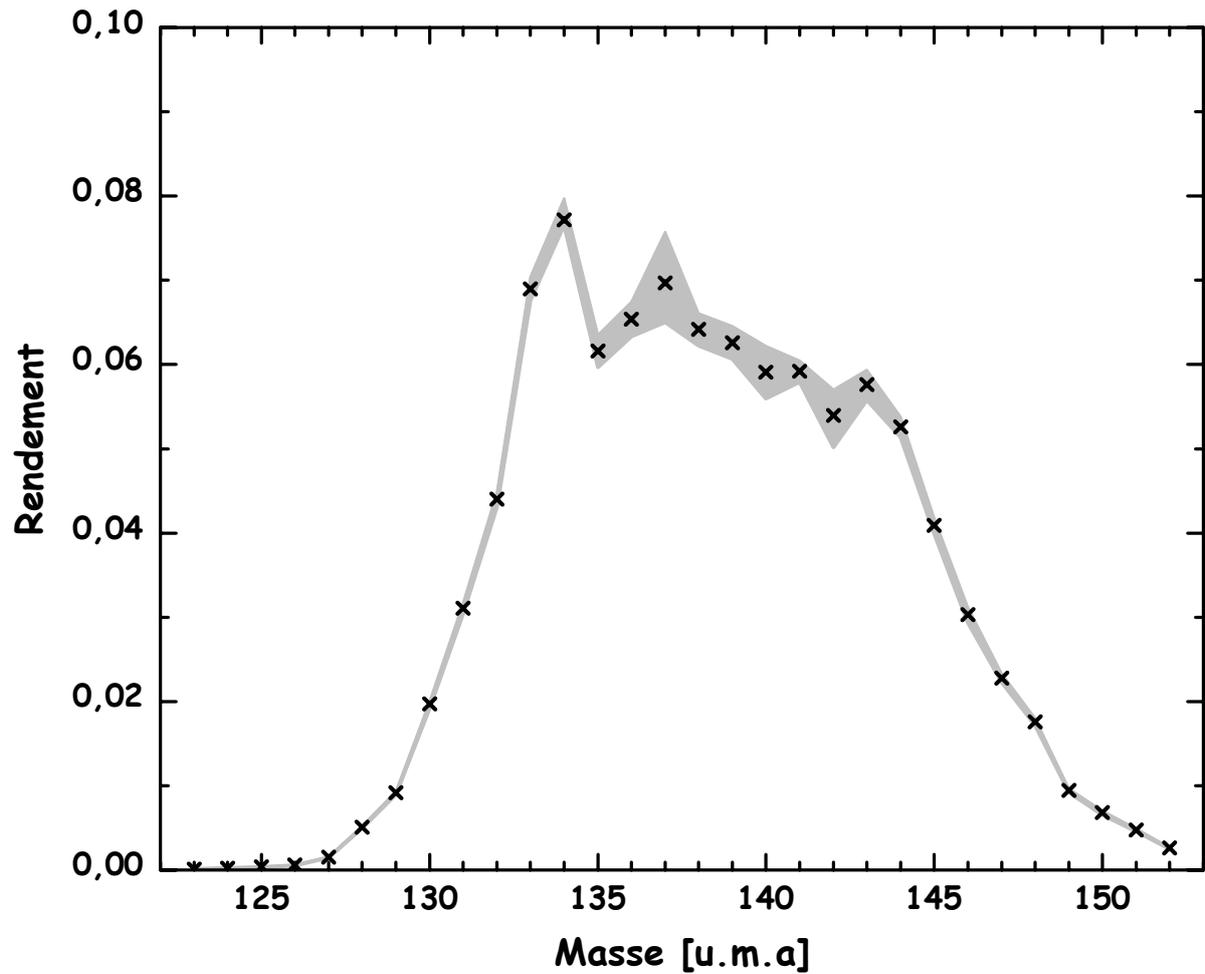


FIG. 6.4 – Rendements en masse pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques sont données par des barres verticales alors que les incertitudes systématiques sont représentées par la zone grisée.

Comparaison avec différentes bibliothèques de données nucléaires.

Les rendements de ${}^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin sont comparés avec les bibliothèques de données nucléaires JEFF-3.1 (figure 6.5), ENDF/B-VI.8 (figure 6.6), et JENDL-3.3 (figure 6.7), ainsi qu'avec les données évaluées de Wahl (figure 6.8). Les incertitudes représentées pour nos mesures correspondent aux incertitudes totales (incertitudes statistiques + incertitudes systématiques).

Seuls les rendements isotopiques sont disponibles dans les différentes bibliothèques de données. Les rendements isobariques ont donc été calculés en sommant pour chaque masse tous les isotopes considérés. Les incertitudes données pour les bibliothèques JEFF-3.1 et ENDF/B-VI.8 correspondent à la somme quadratique des incertitudes de chaque isotope. La bibliothèque JENDL-3.3 ne fournit aucune erreur sur les données.

Aux figures 6.5, 6.6 et 6.7 les deux graphiques du haut comparent directement nos mesures avec les données des bibliothèques (échelle linéaire pour les premiers graphiques et logarithmique pour les deuxièmes : ils permettent de mettre en évidence les différences des résultats pour les masses à faible rendement). Les troisièmes graphiques donnent pour chaque masse le rapport R :

$$R = 1 - \frac{\text{bibliothèque de données}}{\text{mesure Lohengrin}}$$

Les données évaluées par le modèle Z_p de Wahl [33] sont comparées avec les rendements mesurés sur le spectromètre Lohengrin figure 6.8 (échelle linéaire uniquement).

De part son importance dans les applications nucléaires, la fission thermique de ${}^{235}\text{U}$ a été à de nombreuses reprises mesurée. Les rendements en masse de ce noyau sont parmi les plus connus, c'est pourquoi le très bon accord entre nos mesures et les données des bibliothèques est très encourageant (premiers et deuxièmes graphiques des figures 6.5, 6.6 et 6.7). Cet accord est d'autant plus mis en évidence aux troisièmes graphiques où l'on peut noter que le rapport R est compatible avec la valeur 0 dans presque toutes les barres d'erreur (hormis pour les comparaisons avec la bibliothèque JENDL-3.3 qui ne fournit aucune incertitude). Quelques différences sont cependant à noter pour les rendements des masses comprises entre 125 et 130 :

- les masses 125, 127, 128 et 129 présentent des différences de rendement supérieures à 20% entre JEFF-3.1 et Lohengrin,
- entre ENDF/B-VI.8 et Lohengrin seules les masses 128 et 129 montrent un désaccord supérieur à 20%.

Pour le sommet des distributions les masses 137 et 142 semblent montrées des structures qui ne sont suivies ni par les bibliothèques ni par les données évaluées de Wahl. Il est cependant intéressant de noter que ces fluctuations ont été retrouvées au cours des deux mesures de ${}^{235}\text{U}(n_{th},f)$ sur le spectromètre Lohengrin (figure 6.3).

D'une façon générale, grâce à la résolution du spectromètre Lohengrin, les rendements mesurés sur cet instrument permettent de mettre en évidence des fluctuations fines qui ne sont pas toujours reproduites par les bibliothèques. Ces structures sont dues à des effets de parité.

Il est important de noter que les mesures sur le spectromètre ont permis de réduire de façon conséquente les incertitudes des rendements en masse de ${}^{235}\text{U}(n_{th},f)$.

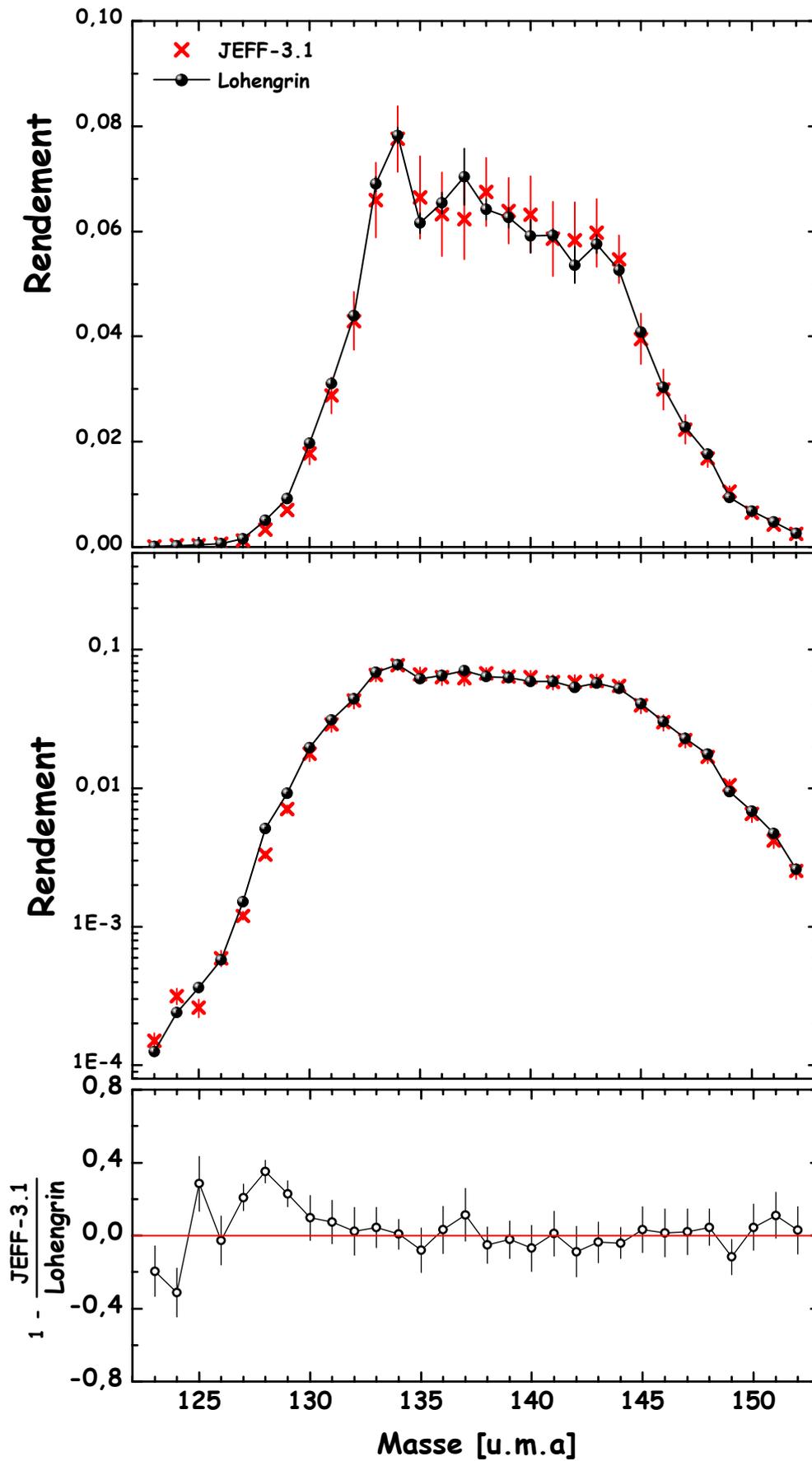


FIG. 6.5 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JEFF-3.1*.

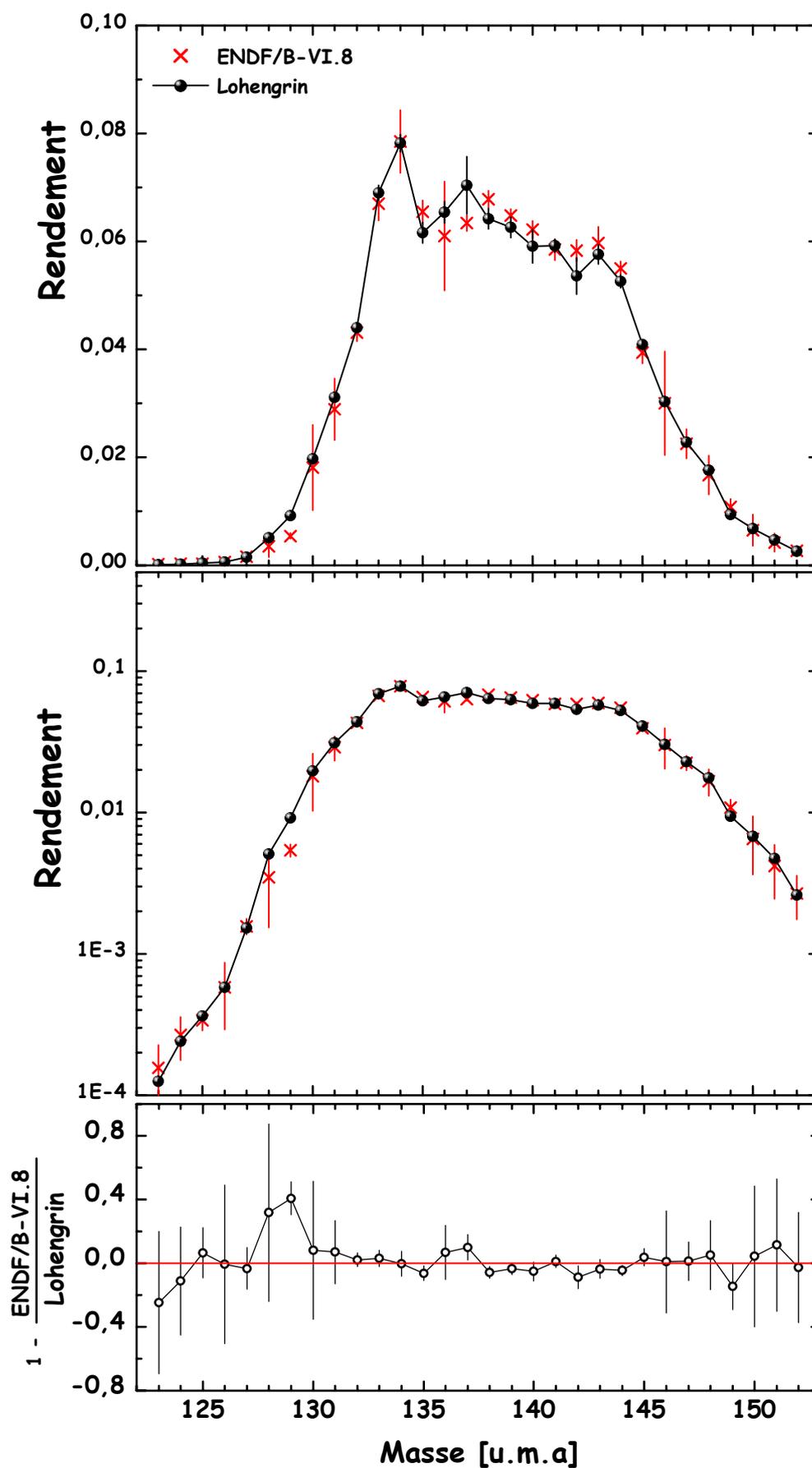


FIG. 6.6 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *ENDF/B-VI.8*.

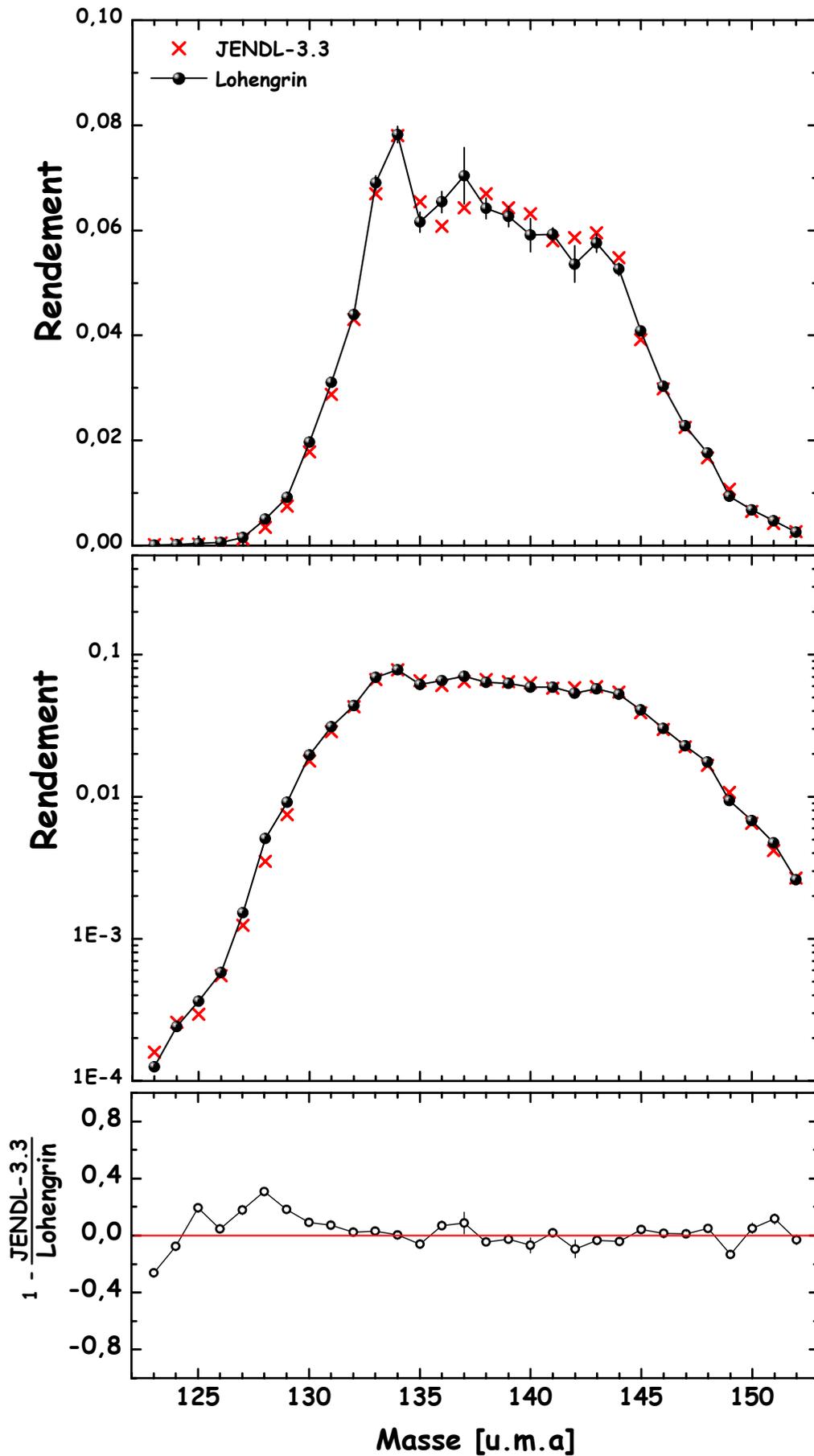


FIG. 6.7 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JENDL-3.3*.

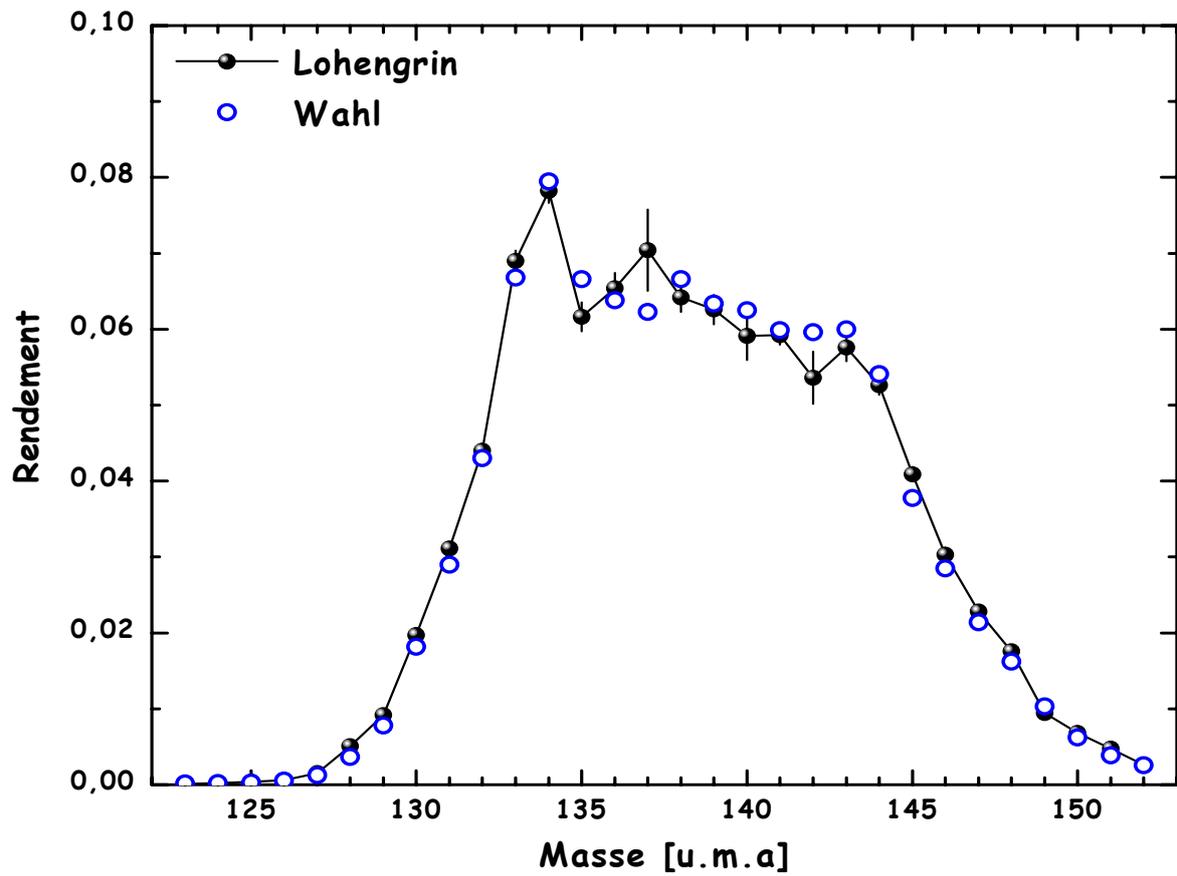


FIG. 6.8 – Rendements en masse mesurés sur le spectromètre Lohengrin comparés avec les données de Wahl évaluées par le modèle Z_p [33].

Comparaison avec d'autres mesures

Les rendements en masse des produits de fission légers pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ ont été mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin en 1980 par W. Lang [9].

La distribution en masse complète de ce même noyau a été mesurée en 1968 sur le spectromètre de masse Hiawatha (Southern Illinois University) par A. Tsoukatos [105].

Ces deux mesures sont comparées avec nos résultats (Bail(2007)) figure 6.9.

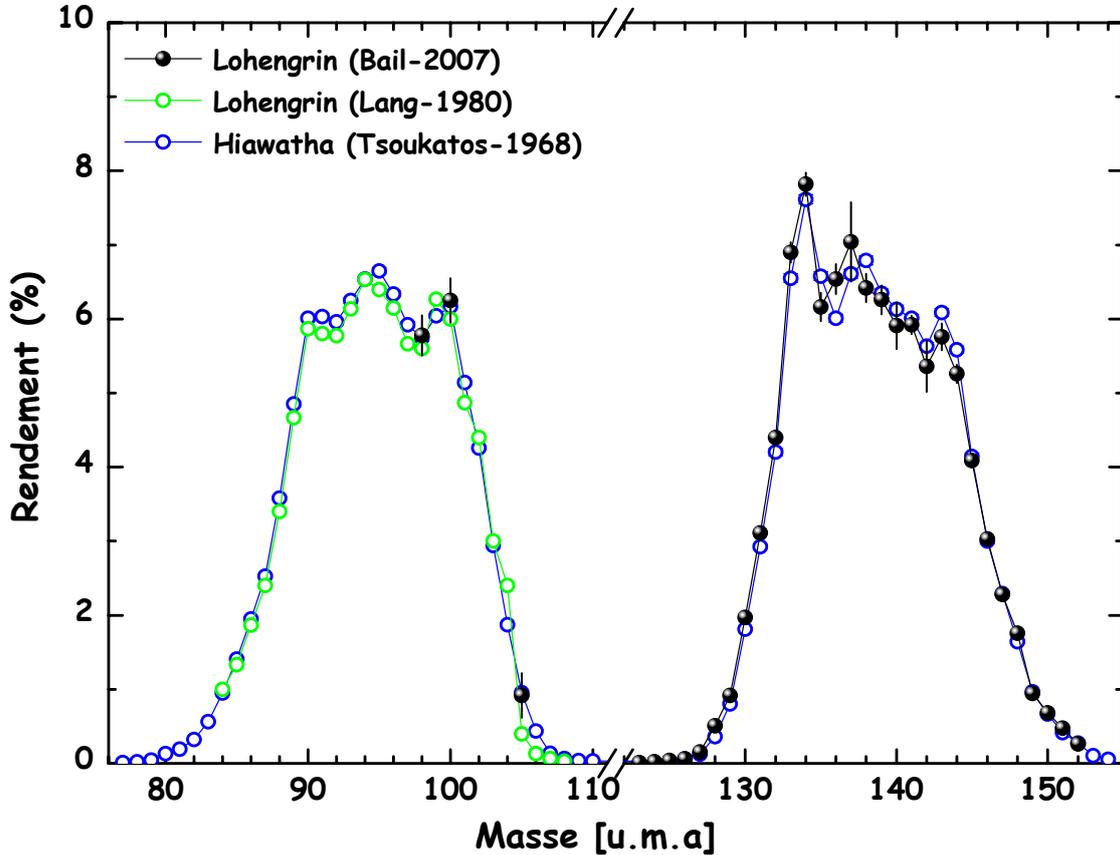


FIG. 6.9 – Comparaison des rendements en masse des produits de fission de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mesurés sur différents spectromètres de masse : Lohengrin (points en noir et cercles en vert [9]) et Hiawatha (cercles en bleu [105]).

Les trois masses mesurées dans les légers au cours de nos expériences ($A=98, 100$ et 105) sont en très bon accord avec les rendements en masse des produits de fission légers mesurés dans le passé par W. Lang sur le spectromètre Lohengrin.

De plus la distribution en masse mesurée sur le Lohengrin s'accorde très bien à celle mesurée sur le spectromètre Hiawatha. Seule la masse 136 présente des rendements significativement différents pour ces deux expériences. La structure mesurée sur Hiawatha autour des masses 136-138 semble concorder plus avec les mesures du Lohengrin que les données des bibliothèques (en particulier JEFF-3.1), à savoir que le rendement de la masse 137 est bien supérieur à celui de la masse 136. En revanche les rendements mesurés sur le spectromètre Lohengrin présentent un pic à la masse 137 qui est décalé pour tous les autres résultats à la masse 138.

Etude des rendements en fonction des énergies cinétiques

Les figures 6.10 donnent les rendements en masse de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ aux énergies cinétiques des produits de fission suivantes : 62 MeV, 68 MeV, 71 MeV, 74 MeV, 78 MeV et 84 MeV.

La décroissance de l'énergie cinétique avec l'augmentation de la masse est très bien mise en évidence sur ces figures : plus les énergies cinétiques sont faibles et plus les rendements des masses lourdes sont importants, et inversement. Les figures en haut à gauche et en bas à droite représentent particulièrement cette tendance : seules les masses lourdes sont présentes à l'énergie 62 MeV alors que ce sont les masses les plus légères qui peuplent la distribution à l'énergie plus élevée de 84 MeV.

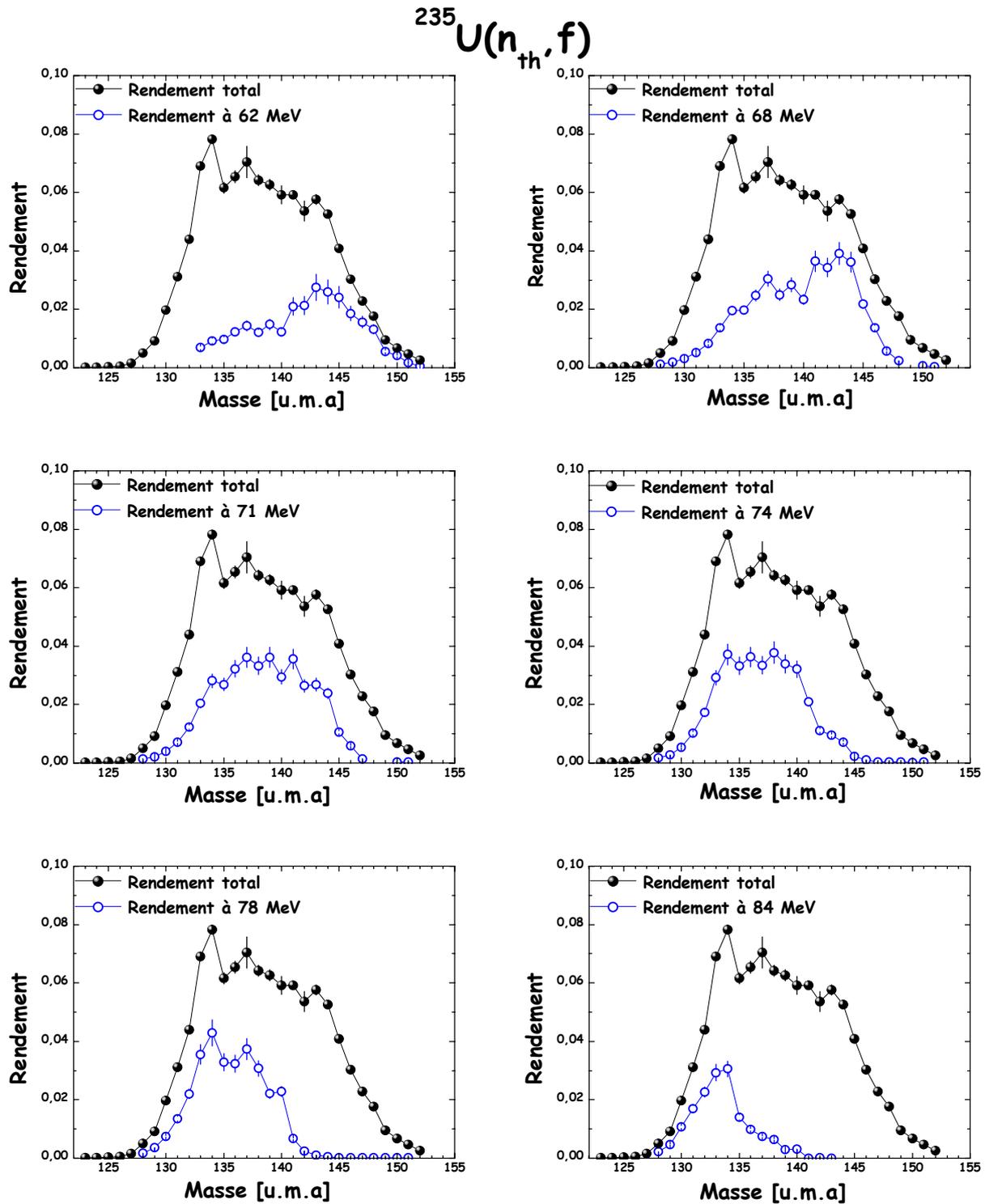


FIG. 6.10 – Rendements en masse tracés pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission.

Fission à faible énergie d'excitation

Afin de se rapprocher de plus en plus d'une fission à faible émission de neutrons prompts nos résultats sont données figures 6.11 selon quatre différents cas :

- les points en noirs représentent les rendements en masse (échelle de droite) ;
- les courbes représentent les rendements mesurés uniquement pour les produits de fission qui ont une énergie cinétique élevée. Ces points correspondent à des fissions à faible énergie d'excitation (parce que forte énergie cinétique), donc avec peu d'émission de neutrons prompts.

La courbe en rouge représente le rendement des produits de fission qui ont une énergie cinétique E_k telle que $E_k = \langle E_k \rangle + 6$ MeV.

La courbe en vert représente le rendement des produits de fission qui ont une énergie cinétique E_k telle que $E_k = \langle E_k \rangle + 8$ MeV .

La courbe en bleu représente le rendement des produits de fission qui ont une énergie cinétique E_k telle que $E_k = \langle E_k \rangle + 10$ MeV .

On peut remarquer sur la figure du haut que certaines structures observées dans les rendements en masse sont décalées par rapport à celles observées pour la fission à faible énergie d'excitation. Ces variations sont directement liées à l'émission des neutrons prompts.

Ainsi par exemple la masse 138 semble alimenter fortement les masses 137 et 136. De même la masse 140 alimente la masse 139, le pic de la masse 134 est formé en partie par la masse 135 après l'évaporation d'un neutron prompt, ...

Il semble ainsi que le sommet de la distribution piqué sur la masse 134 dans le rendements des produits de fission (après émission neutronique) n'est pas formé au moment de la fission mais s'explique par l'émission des neutrons prompts.

On observe sur ces différentes courbes des structures prononcées qui devraient normalement se retrouver dans la distribution des $\bar{\nu}$. Il est donc vraisemblable que les valeurs évaluées du $\bar{\nu}$ par Wahl soient trop lissées (les données expérimentales du $\bar{\nu}$ montrent plus de structures que celles proposées par Wahl). Il est à noter que des effets de couche et de parité ont également été mis en évidence sur des mesures de rendement des fragments de fission [87, 89].

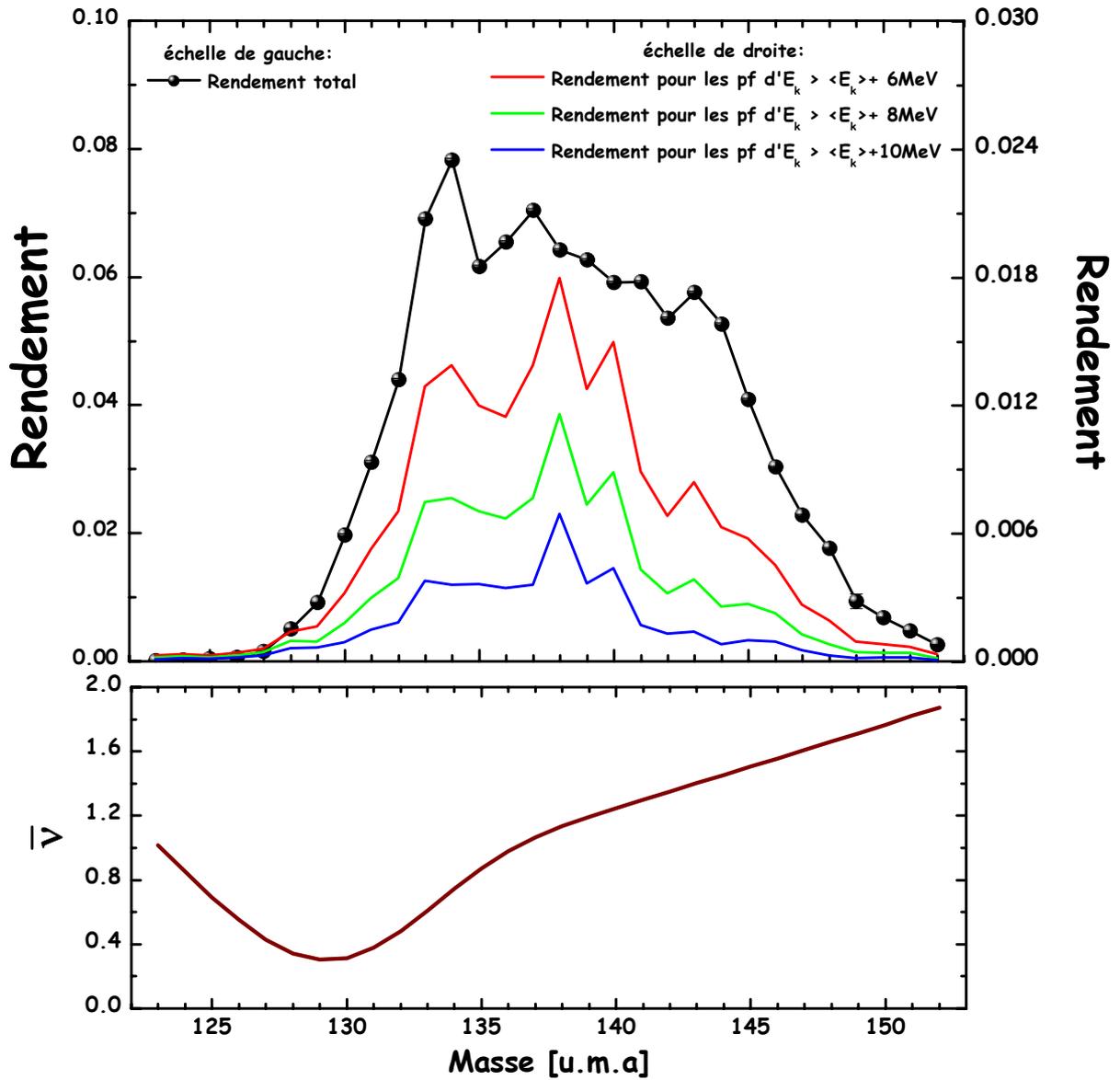


FIG. 6.11 – Fission à faible énergie d'excitation pour l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$: figure du haut. Nombre de neutrons moyen $\bar{\nu}$ émis en fonction des masses (évaluation de Wahl) : figure du bas.

6.2.2 $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$

Les rendements des masses lourdes de la fission thermique du ^{239}Pu sont donnés tableau 6.5 et figure 6.12.

| Masse A | Rendement | Incertitude statistique (%) | Incertitude systématique (%) |
|-----------|-----------|-----------------------------|------------------------------|
| 126 | 3,00 E-03 | 0,7 | 1,2 |
| 127 | 5,48 E-03 | 0,5 | 1,2 |
| 128 | 9,58 E-03 | 0,5 | 1,2 |
| 129 | 1,70 E-02 | 0,5 | 1,2 |
| 130 | 2,74 E-02 | 0,5 | 1,2 |
| 131 | 3,85 E-02 | 0,5 | 1,2 |
| 132 | 5,10 E-02 | 0,5 | 1,2 |
| 133 | 7,22 E-02 | 0,5 | 1,7 |
| 134 | 6,88 E-02 | 0,5 | 1,4 |
| 135 | 7,59 E-02 | 0,5 | 1,7 |
| 136 | 7,31 E-02 | 0,5 | 2,7 |
| 137 | 6,91 E-02 | 0,5 | 2,6 |
| 138 | 6,09 E-02 | 0,5 | 1,2 |
| 139 | 5,71 E-02 | 0,5 | 1,3 |
| 140 | 4,81 E-02 | 0,5 | 5,6 |
| 141 | 5,13 E-02 | 0,5 | 5,6 |
| 142 | 4,61 E-02 | 0,5 | 6,6 |
| 143 | 4,07 E-02 | 0,5 | 4,6 |
| 144 | 4,04 E-02 | 0,5 | 4,6 |
| 145 | 3,26 E-02 | 0,5 | 3,6 |
| 146 | 2,65 E-02 | 0,5 | 1,7 |
| 147 | 2,26 E-02 | 0,5 | 5,6 |
| 148 | 1,65 E-02 | 0,5 | 5,6 |
| 149 | 1,18 E-02 | 0,7 | 5,3 |
| 150 | 8,82 E-03 | 0,7 | 8,5 |

TAB. 6.5 – Rendements en masse pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

A cause de l'asymétrie des distributions en charge ionique les incertitudes systématiques des rendements augmentent sensiblement à partir de la masse 140 (chapitre 5 paragraphe 5.1).

Des structures probablement liées à des effets de parité sont observables toutes les 2 masses au sommet de la distribution : masses 133, 135, 137, 139 et 141. Elles semblent s'espacer toutes les trois masses en queue de distributions (masses 141-144-147).

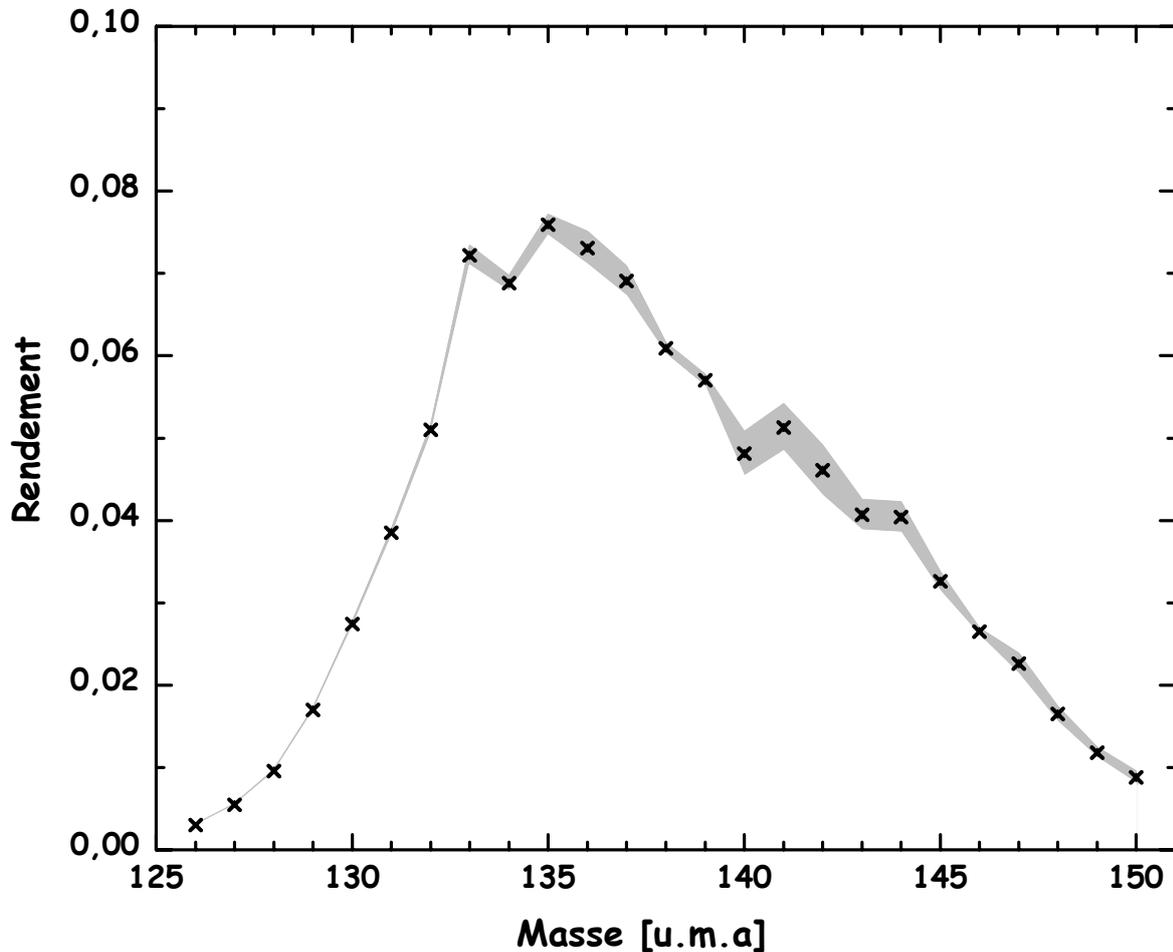


FIG. 6.12 – Rendements en masse pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques (négligeables) sont données par des barres verticales alors que les incertitudes systématiques sont représentées par la zone grisée.

Comparaison avec différentes bibliothèques de données nucléaires.

De la même manière que pour les rendements de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$, les rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin sont comparés avec les bibliothèques de données JEFF-3.1 (figures 6.13), ENDF/B-VI.8 (figures 6.14) et JENDL-3.3 (figures 6.15).

Les rendements mesurés sur le Lohengrin concordent très bien avec les données de la bibliothèque JEFF-3.1 puisque, hormis pour les masses 127 et 129, le rapport R est compatible avec la valeur 0 pour toutes les barres d'erreur. La différence entre les rendements des masses 127 et 129 mesurés sur le spectromètre et évalués par JEFF-3.1 reste inférieure à 20%.

On note pour les masses les plus légères des écarts significatifs entre les rendements du spectromètre et les données de ENDF/B-VI.8 : les rendements des masses 126, 128 et 129 diffèrent de plus de 20%.

D'une façon générale les rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ confirment que les structures sont un peu moins prononcées que les rendements de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ (figure 7.12).

Les rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ évalués par le modèle Z_p de Wahl sont comparés aux rendements mesurés sur le spectromètre Lohengrin figure 6.16.

La structure observée pour les masses 133, 134 et 135 n'est reproduite que pour la bibliothèque JEFF-3.1. Pour les autres évaluations (ENDF/B-VI.8, JENDL-3.3 et Wahl) le rendement de la masse 134 est plus important et représente le pic de la distribution.

La structure mise en évidence par nos mesures à la masse 140 n'est également pas reproduite dans les rendements évalués de Wahl.

Comparaison avec les rendements des produits de fission légers mesurés sur le spectromètre Lohengrin

Les rendements en masse des produits de fission légers pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ ont été mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin en 1984 par C. Schmitt [59]. Ces mesures (schmitt-1984) et les nôtres (bail-2007) sont comparées figure 6.17. Les quatre masses légères mesurées en 2007 s'accordent très bien avec les données de Schmitt.

Etude des rendements en fonction des énergies cinétiques

Les figures 6.18 donnent les rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ tracés aux énergies cinétiques des produits de fission suivantes : 51 MeV, 58 MeV, 64 MeV, 74 MeV, 83 MeV et 90 MeV.

Les mêmes conclusion que pour les rendements de $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ peuvent être faites, à savoir que les masses lourdes ne sont pas représentées aux énergies cinétiques élevées et vice-versa.

Fission à faible énergie d'excitation

Les rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ pour les réactions de fission à faible énergie d'excitation sont donnés figures 6.19 avec les valeurs du $\bar{\nu}$ évaluées par Wahl.

De la même manière que pour la figure 6.11 les différentes courbes représentent différentes gammes en énergie pour les produits de fission :

- les points en noirs représentent les rendements en masse (échelle de droite) ;
- La courbe en rouge représente le rendement des produits de fission qui ont une énergie cinétique E_k telle que $E_k = \langle E_k \rangle + 6$ MeV.

La courbe en vert représente le rendement des produits de fission qui ont une énergie cinétique E_k telle que $E_k = \langle E_k \rangle + 8$ MeV .

La courbe en bleu représente le rendement des produits de fission qui ont une énergie cinétique E_k telle que $E_k = \langle E_k \rangle + 10$ MeV .

Même si les rendements des fragments de fission présentent certaines structures [91, 90, 93], on peut remarquer qu'un grand nombre d'entre elles observables dans la distribution des produits de fission est causé par l'émission des neutrons prompts. Par exemple le pic à la masse 135 est alimenté par la masse 136 et celui de la masse 141 vient de l'émission neutronique de la masse 142. Inversement la structure observée pour la fission à basse énergie d'excitation à la masse 143 disparaît dans les rendements des produits de fission grâce à l'évaporation des neutrons prompts des masses 144 et 145.

Le pic de la masse 133 semble lui en revanche être formé au moment de la fission.

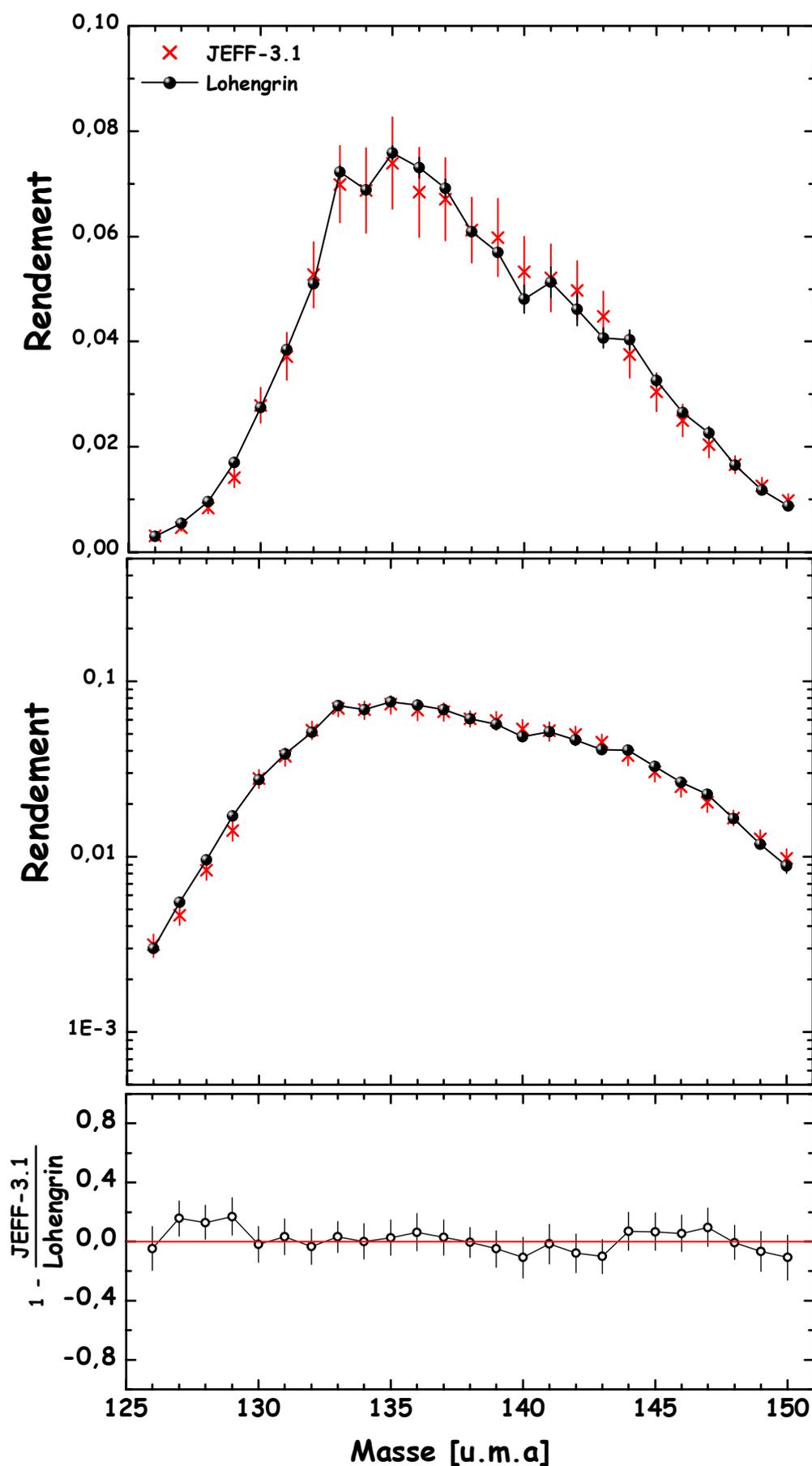


FIG. 6.13 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JEFF-3.1*.

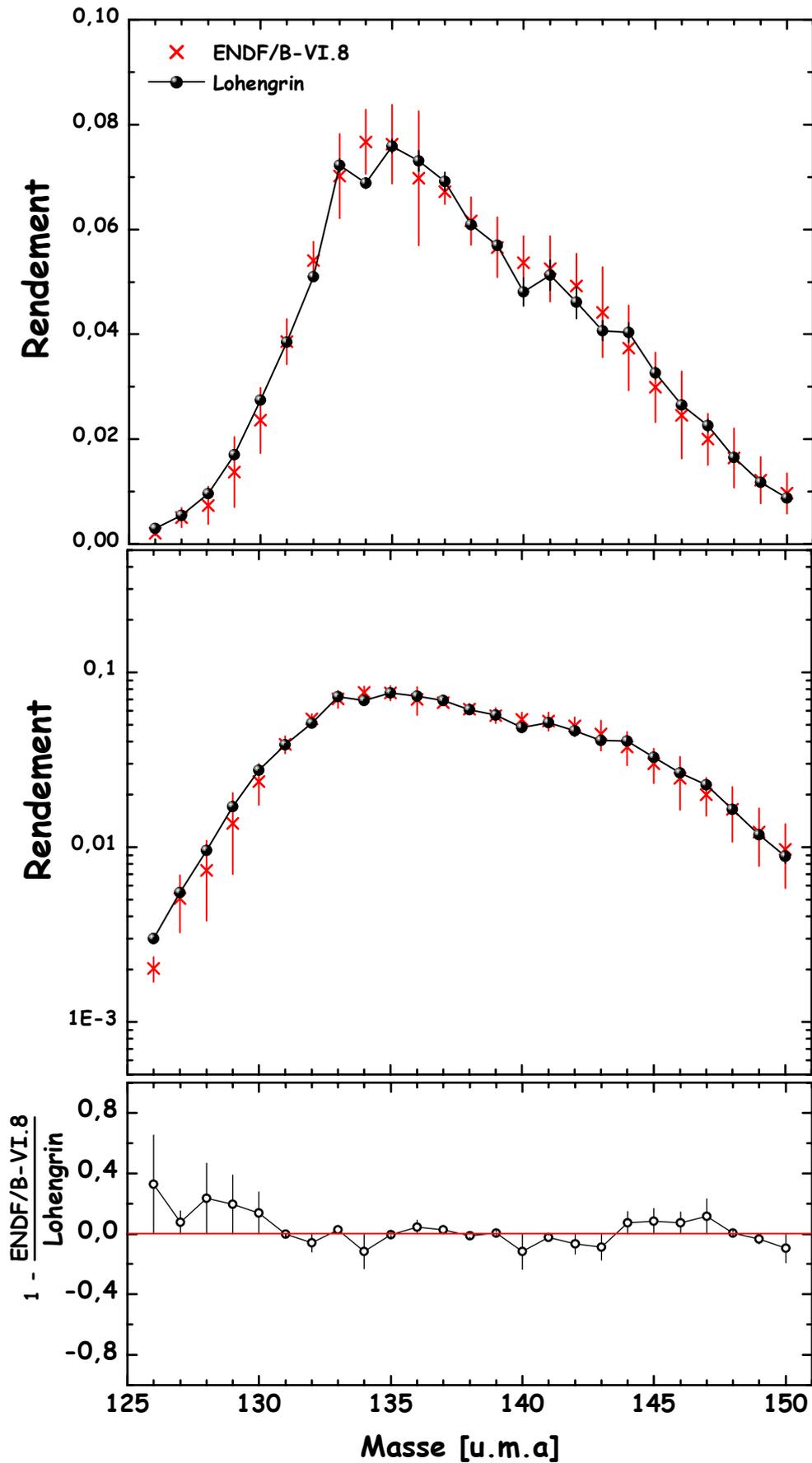


FIG. 6.14 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *ENDFB- VI*.

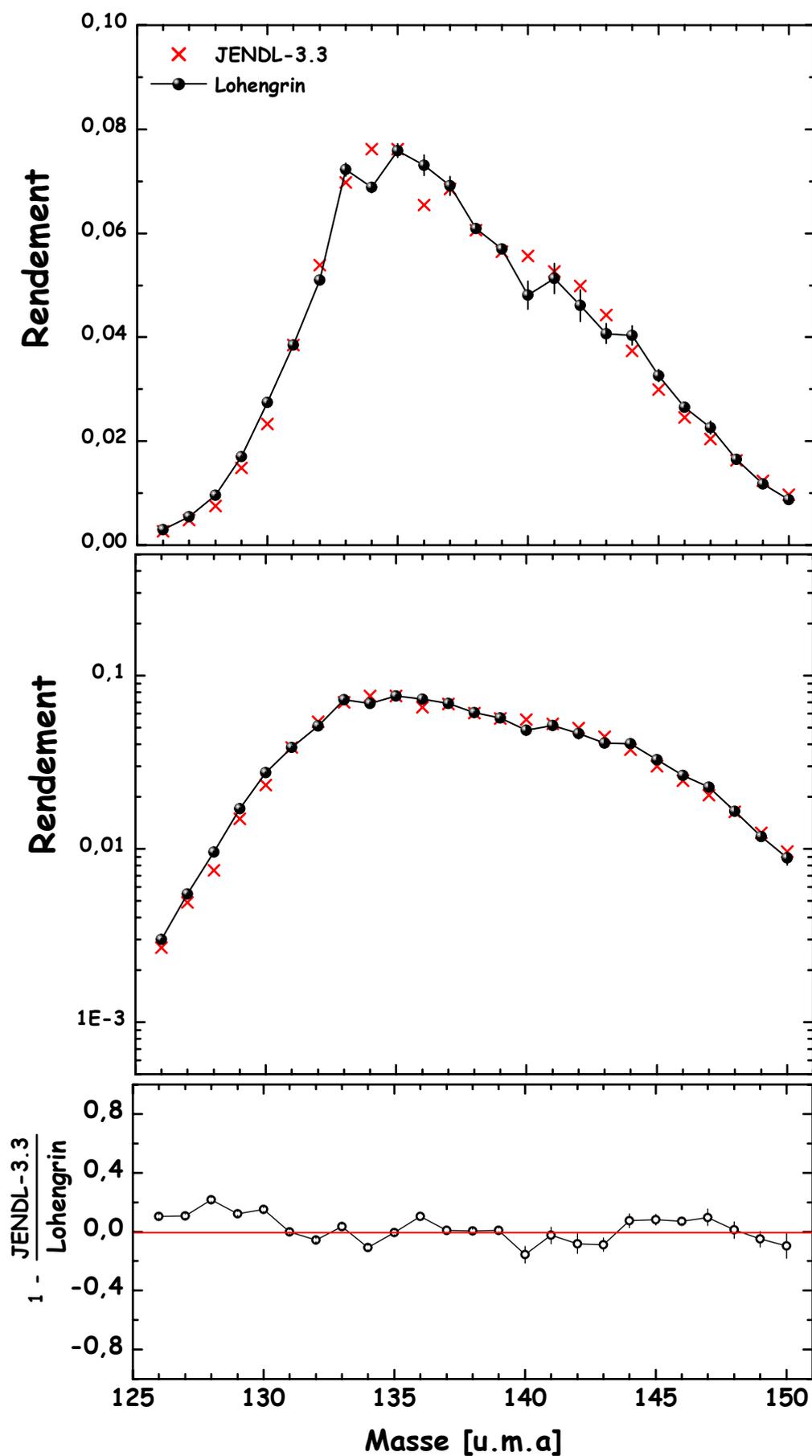


FIG. 6.15 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JENDL-3.3*.

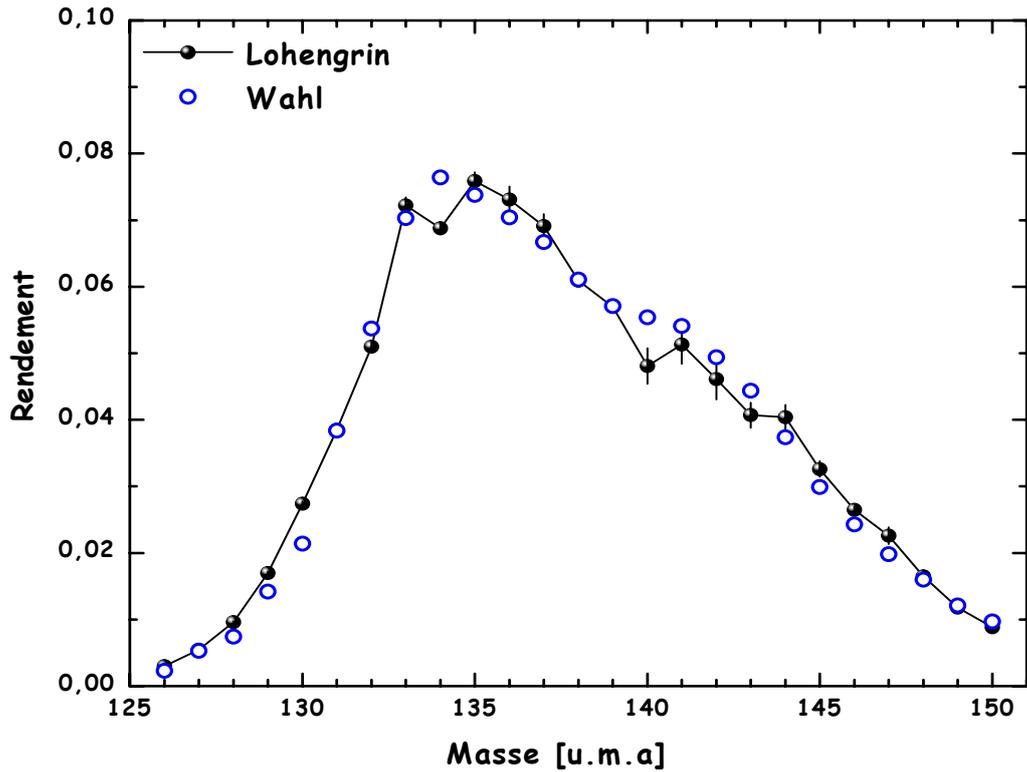


FIG. 6.16 – Rendements en masse de l' $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin comparés avec les données de Wahl évaluées par le modèle Z_p [33].

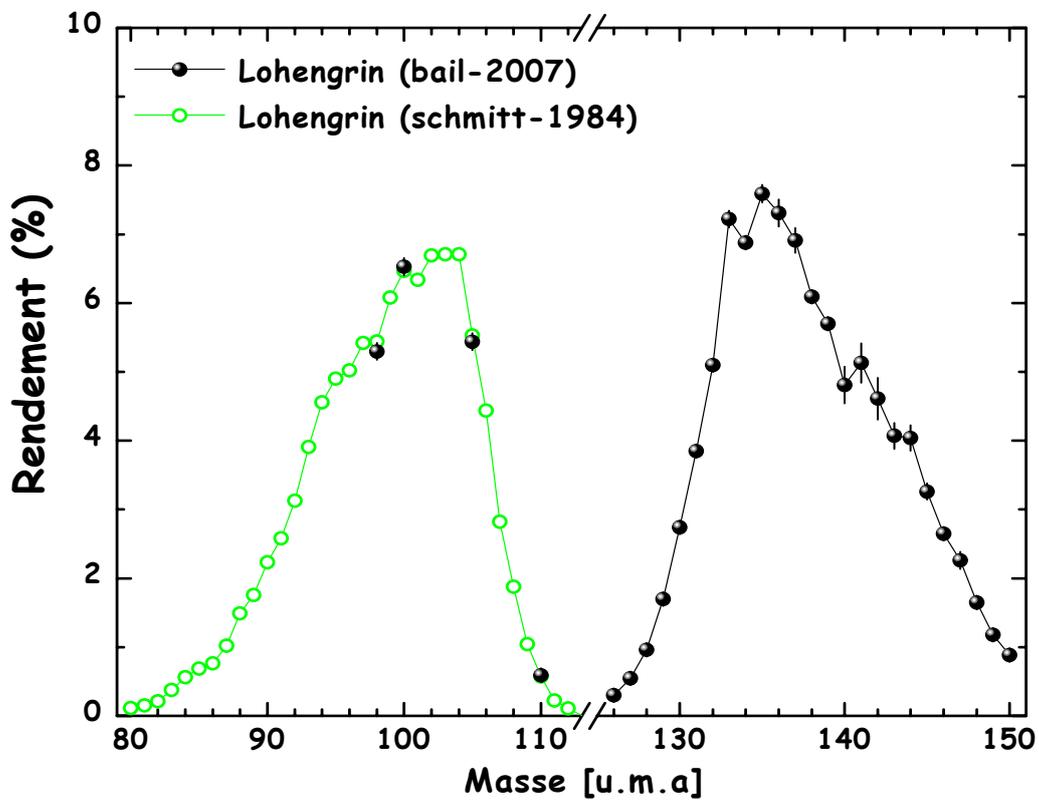


FIG. 6.17 – Rendements en masse du $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ mesurés dans les légers (cercles [59]) et dans les lourds (points).

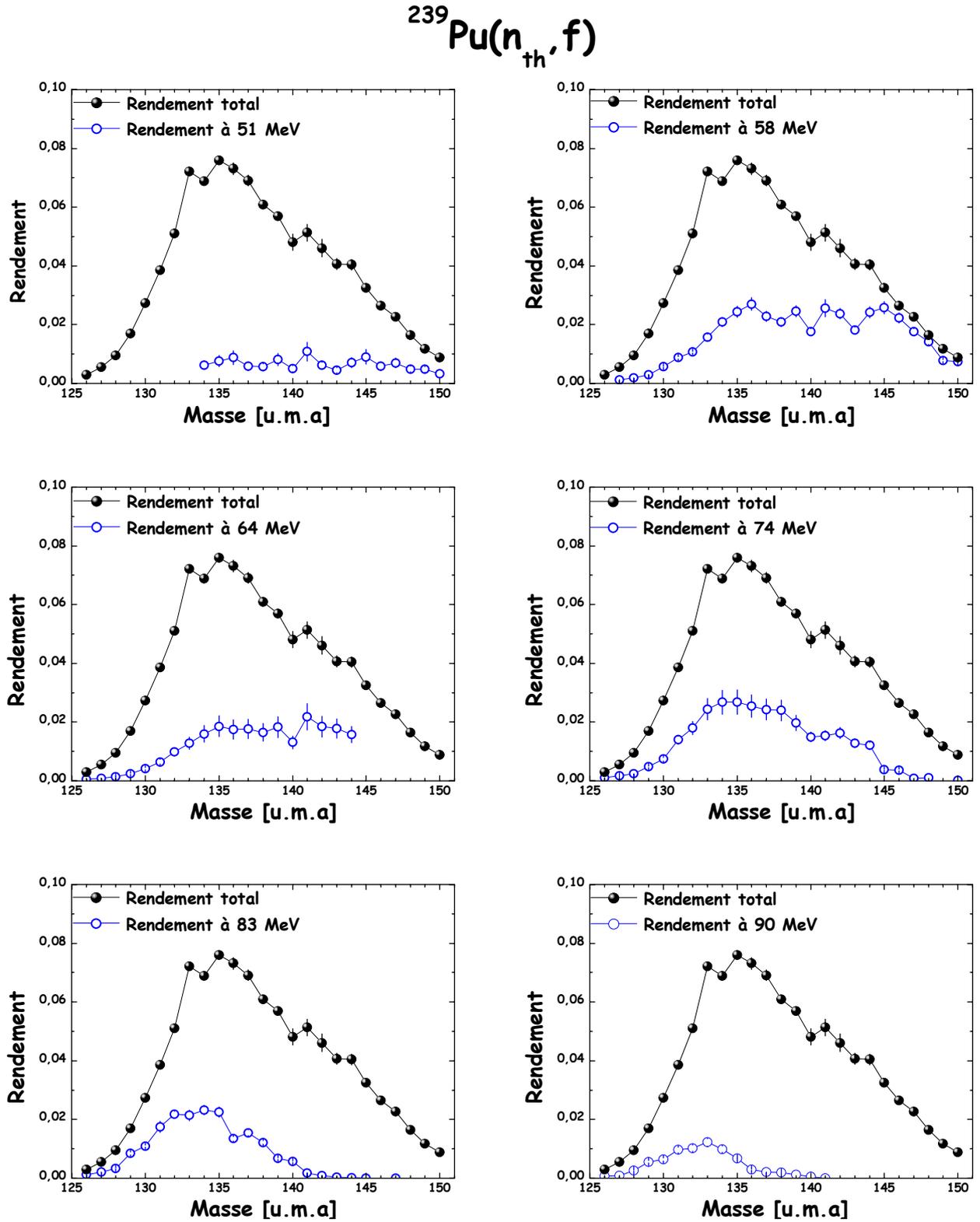


FIG. 6.18 – Rendements en masse tracés pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission.

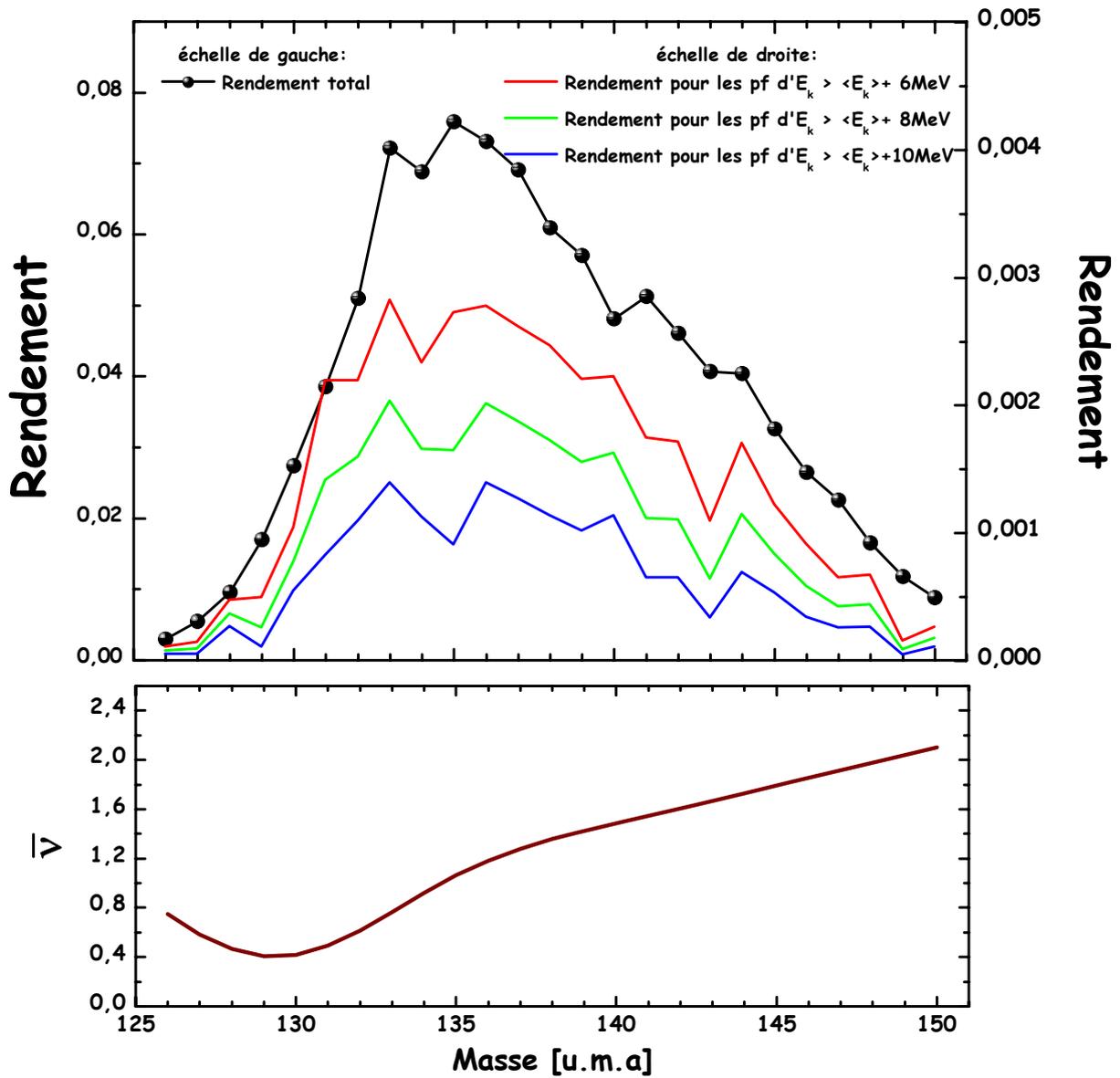


FIG. 6.19 – Fission à faible énergie d'excitation pour le $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$: figure du haut. Nombre de neutrons moyen $\bar{\nu}$ émis en fonction des masses (évaluation de Wahl) : figure du bas.

6.2.3 $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$

Les résultats de la mesure des rendements en masse pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ sont donnés tableau 6.6 et figure 6.21.

Des structures très prononcées apparaissent pour les masses 134-135-136, 140, 144, 147 et 149. La première structure rappelle fortement celle observée dans la distribution du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ pour ces mêmes masses : pics pour les masses 134 et 136. En revanche si la masse 136 possède le plus fort rendement pour la fission du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ c'est la masse 134 qui semble être au sommet de la distribution des rendements du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

| Masse A | Rendement | Incertitude statistique (%) | Incertitude systématique (%) |
|---------|-----------|-----------------------------|------------------------------|
| 130 | 1,95 E-02 | 0,4 | 1,2 |
| 131 | 3,14 E-02 | 0,4 | 1,2 |
| 132 | 4,69 E-02 | 0,4 | 1,2 |
| 133 | 7,37 E-02 | 0,4 | 2,2 |
| 134 | 8,41 E-02 | 0,4 | 4,1 |
| 135 | 6,78 E-02 | 0,4 | 1,2 |
| 136 | 7,36 E-02 | 0,4 | 2,2 |
| 137 | 6,95 E-02 | 0,4 | 2,2 |
| 138 | 5,64 E-02 | 0,4 | 4,2 |
| 139 | 5,40 E-02 | 0,4 | 2,2 |
| 140 | 5,78 E-02 | 0,4 | 6,1 |
| 141 | 4,71 E-02 | 0,4 | 1,2 |
| 142 | 4,16 E-02 | 0,4 | 3,1 |
| 143 | 4,03 E-02 | 0,4 | 3,2 |
| 144 | 3,84 E-02 | 0,4 | 2,2 |
| 145 | 3,31 E-02 | 0,4 | 3,2 |
| 146 | 2,40 E-02 | 0,4 | 3,2 |
| 147 | 2,18 E-02 | 0,4 | 5,1 |
| 148 | 1,59 E-02 | 0,4 | 7,2 |
| 149 | 1,88 E-02 | 0,4 | 7,2 |
| 150 | 1,17 E-02 | 0,4 | 4,2 |
| 151 | 9,25 E-03 | 0,4 | 4,1 |

TAB. 6.6 – Rendements en masse pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Comparaison avec différentes bibliothèques de données nucléaires.

Les comparaisons entre les rendements mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin et les bibliothèques de données nucléaires JEFF-3.1, ENDF/BVI.8 et JENDL-3.3 sont données figures 6.22, 6.23, et 6.24. On constate un bon accord pour la plupart des rendements. Quelque soit la bibliothèque avec laquelle il est comparé, le rendement de la masse 149 mesuré sur le spectromètre Lohengrin semble être surestimé. Ses distributions en charges ionique et en énergie cinétique sont fortement asymétriques (figure 6.20). L'existence d'un ou plusieurs isomères peut expliquer la présence de cette structure.

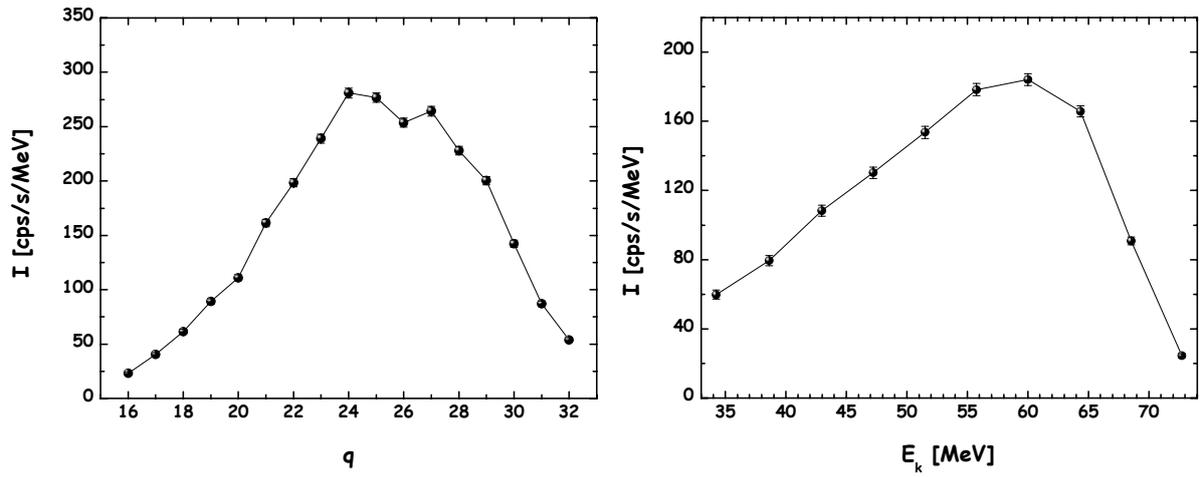


FIG. 6.20 – Distributions en charge ionique (à l'énergie 58 MeV) et énergie cinétique (à la charge 22) de la masse 149 pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

En comparant avec la bibliothèque ENDF/B-VI.8 les masses 138 et 139 mesurées sur le spectromètre Lohengrin présentent également un rapport R qui n'est pas égal à 0 dans les barres d'erreurs.

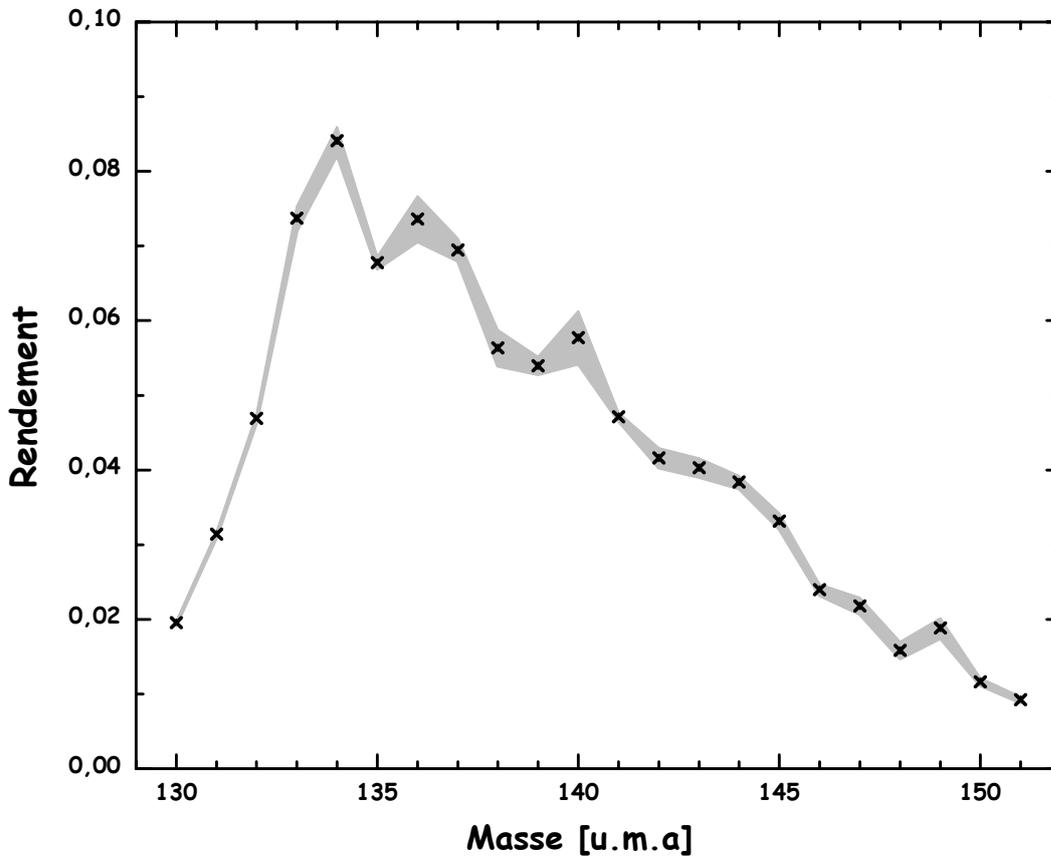


FIG. 6.21 – Rendements en masse pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les incertitudes statistiques (négligeables) sont données par des barres verticales alors que les incertitudes systématiques sont représentées par la zone grisée.

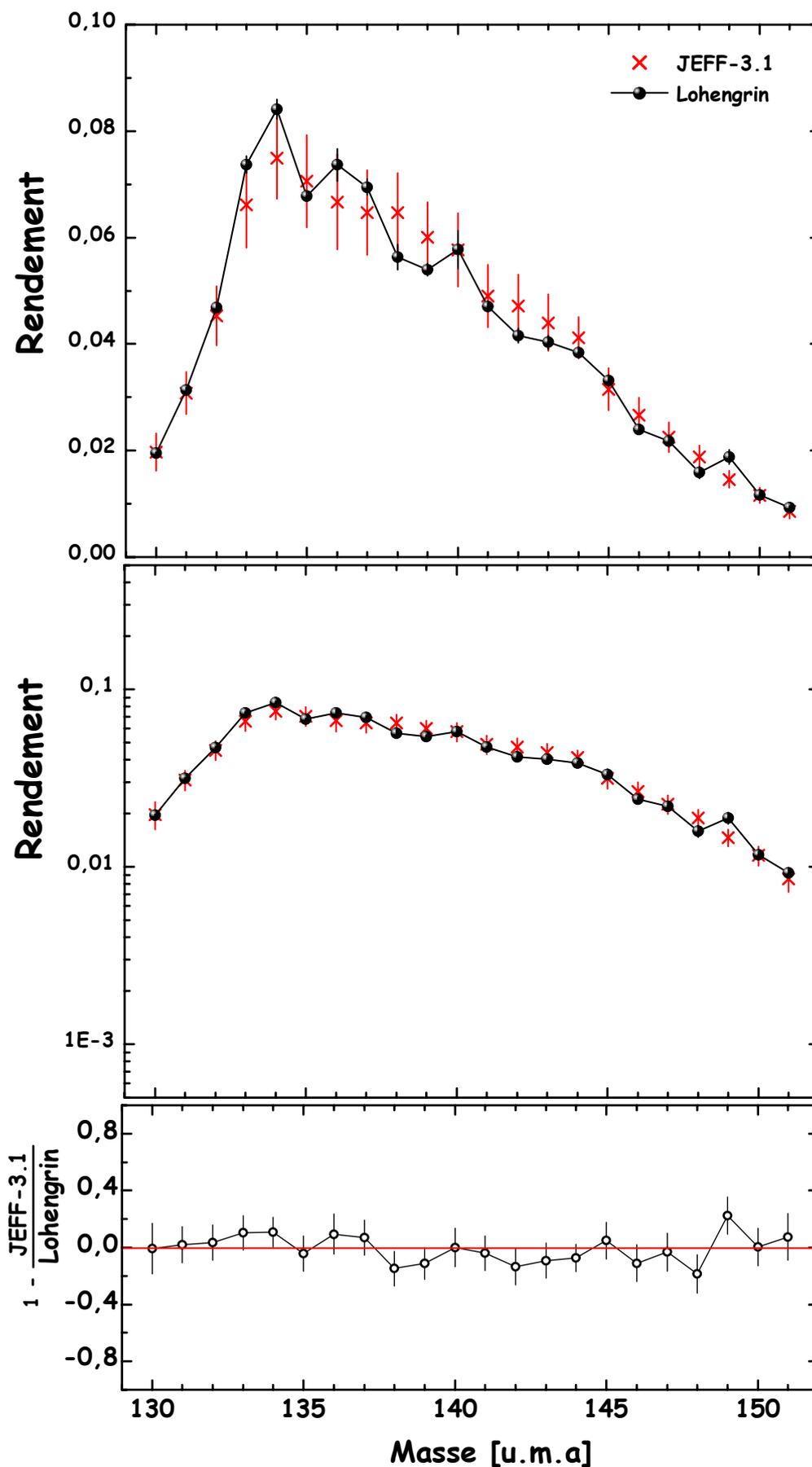


FIG. 6.22 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JEFF-3.1*.

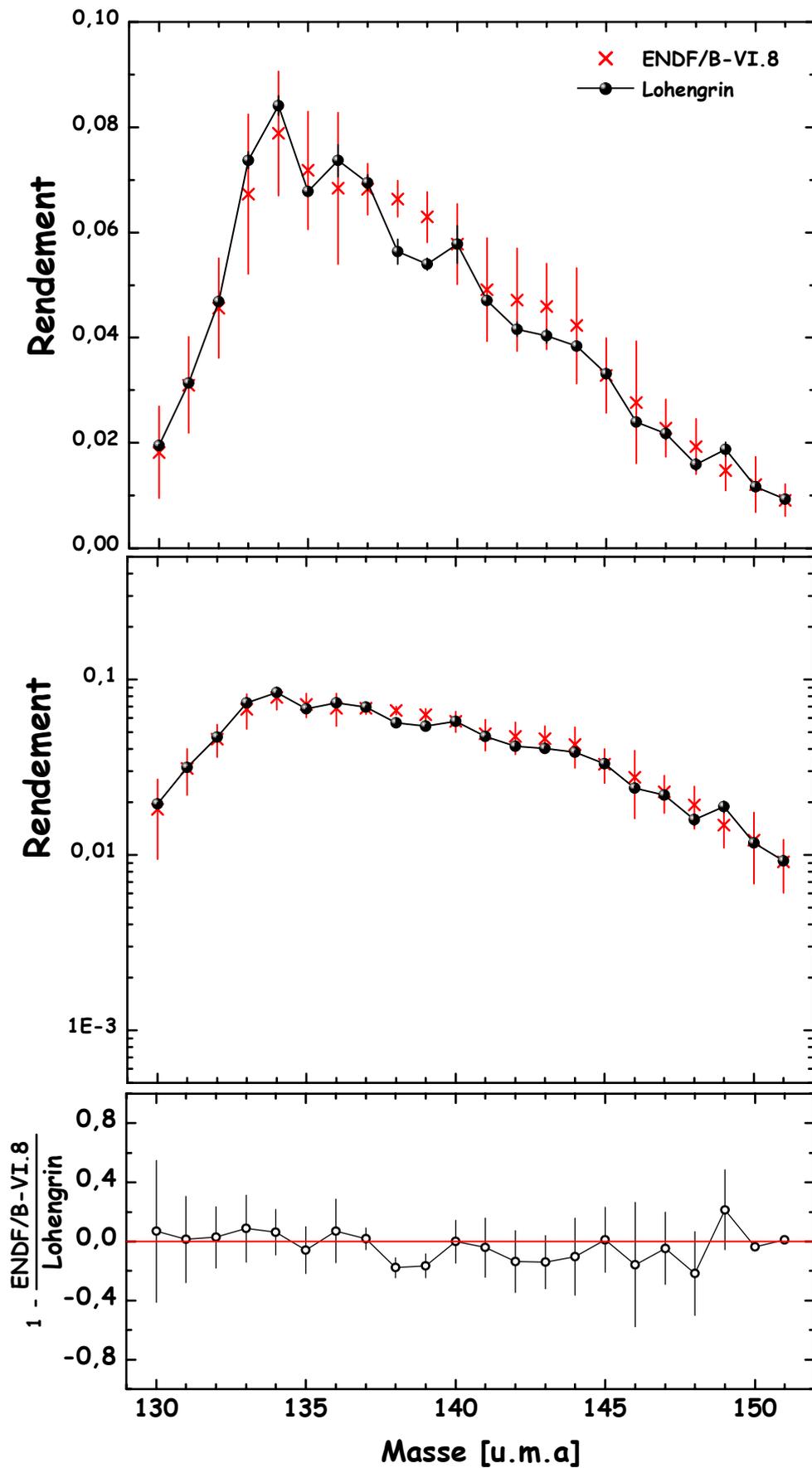


FIG. 6.23 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *ENDF/B-VI.8*.

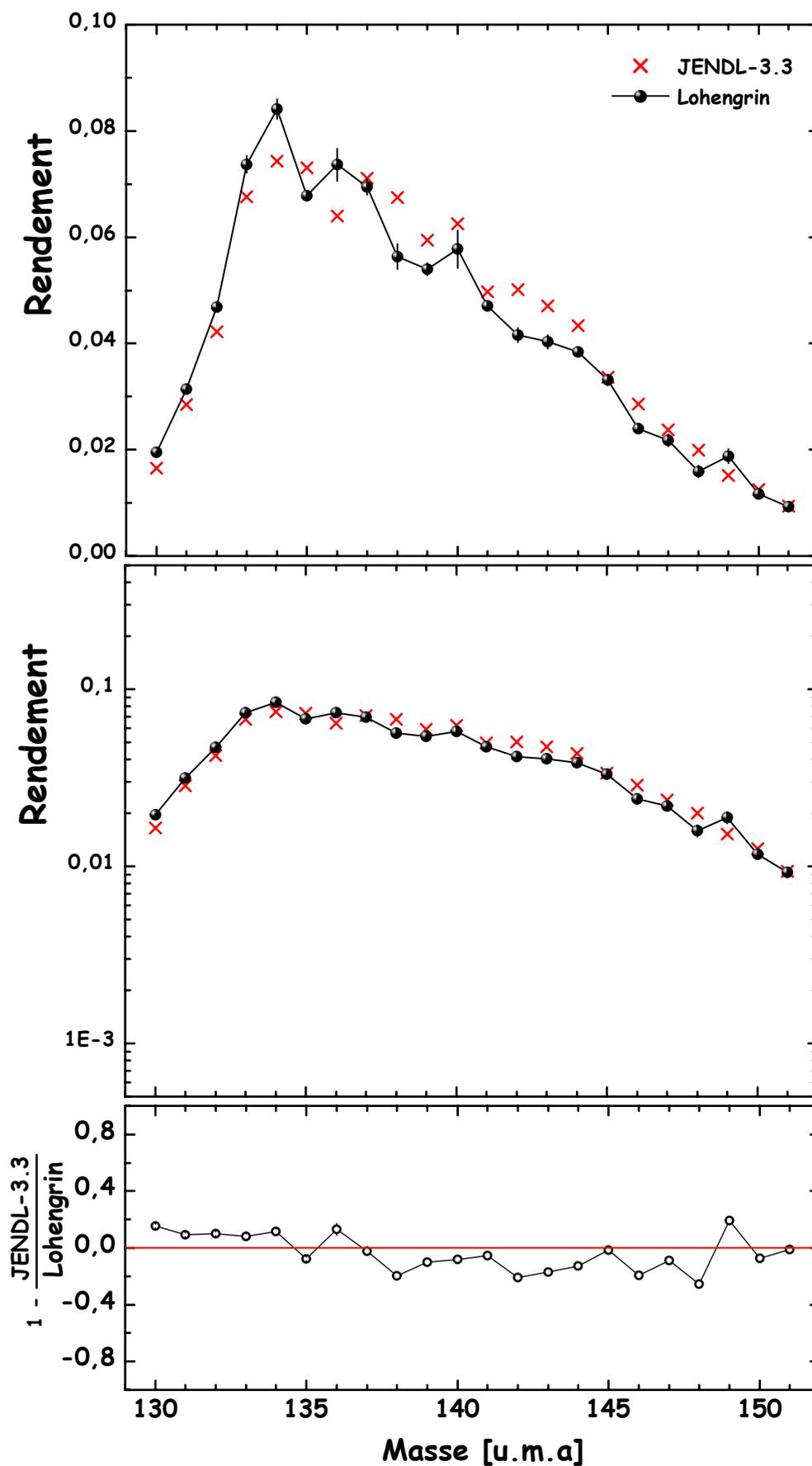


FIG. 6.24 – Comparaison entre les rendements en masse de $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin avec ceux de la bibliothèque *JENDL-3.3*.

Comparaison avec des mesures après émission des neutrons prompts

Les rendements de fission légers du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ après émission de neutrons prompts ont été mesurés sur le spectromètre Cosi-Fan-Tutte de l'ILL [106]. Comparés à nos mesures et à la bibliothèque JEFF-3.1, ils sont donnés figure 6.25.

On peut remarquer que les quatre masses qui ont été mesurées sur le spectromètre Lohengrin dans la région des produits de fission légers ($A=90, 95, 98$ et 100) sont en très bon accord avec les mesures sur le spectromètre Cosi-Fan-Tutte. Il semble que l'accord Lohengrin/Cosi-Fan-Tutte soit meilleur que celui Lohengrin/JEFF-3.1.

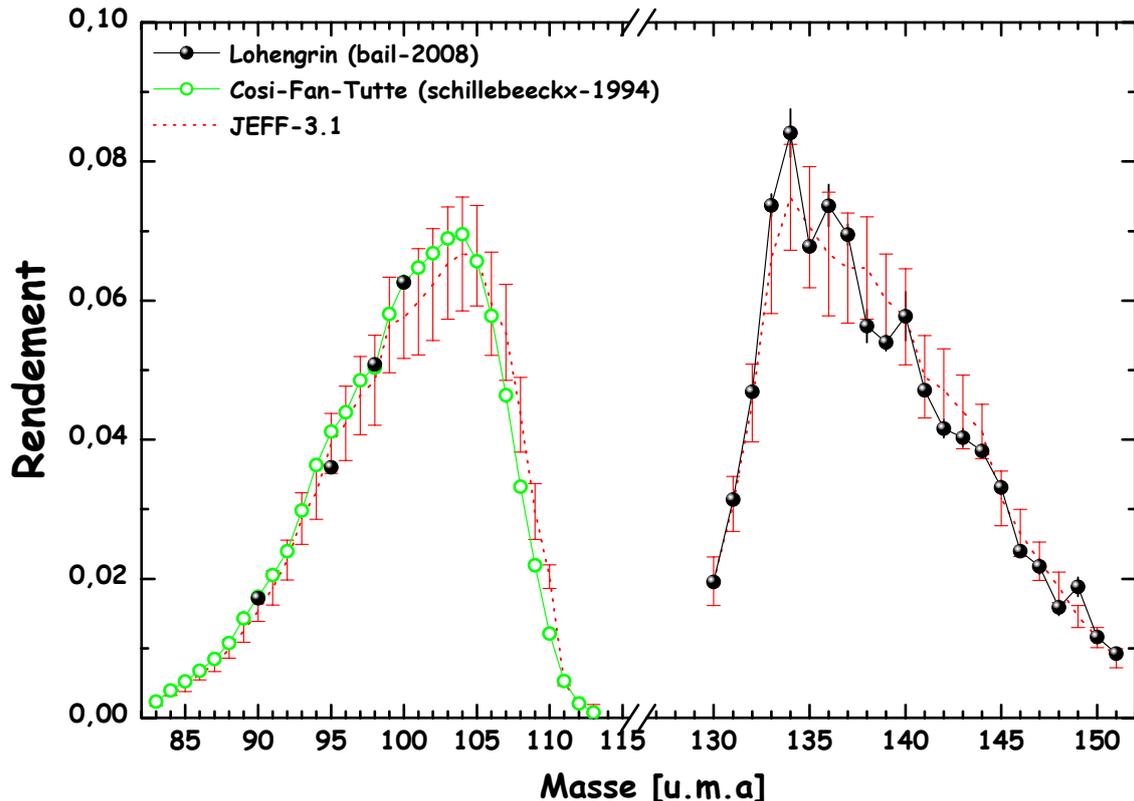


FIG. 6.25 – Rendements en masse du $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Cosi-Fan-Tutte [106] (cercles en vert) et sur le spectromètre Lohengrin (points en noir) comparés aux données de JEFF-3.1 (courbe en pointillés rouge).

Etude des rendements en fonction des énergies cinétiques

Les figures 6.26 donnent les rendements en masse de l' $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ tracés pour différentes énergies cinétiques des produits de fission ($E_k = 43$ MeV, 51 MeV, 60 MeV, 68 MeV, 77 MeV et 85 MeV).

On observe comme attendu que les masses les plus légères sont plus représentées pour les énergies cinétiques des produits de fission élevées et inversement.

De la même façon que pour les noyaux précédents la fission à faible énergie d'excitation a été regardée. Cependant les problèmes liés à la cible de ^{241}Pu (forte inhomogénéité) ne permettent pas d'obtenir des résultats fiables. Les mesures avant émission de neutrons prompts laissent quand à elles entrevoir notamment une structure autour des masses 142 à 144 [94].

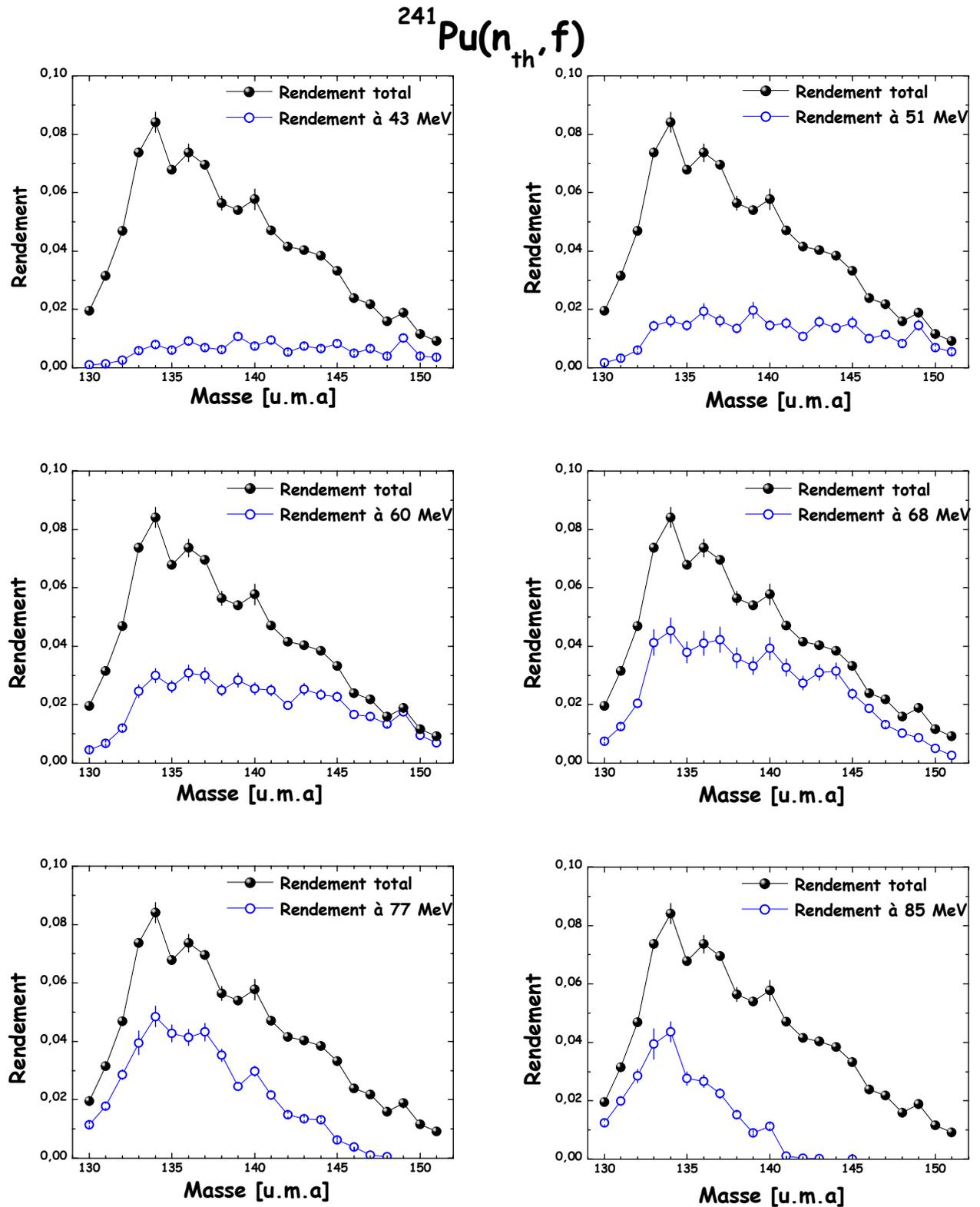


FIG. 6.26 – Rendements en masse tracés pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ selon les énergies cinétiques des produits de fission.

6.2.4 Conclusion

Les rendements en masse dans la région des produits de fission lourds pour les trois noyaux étudiés présentent des résultats très satisfaisants.

Tout d'abord ces expériences démontrent le très bon fonctionnement du spectromètre Lohengrin et son rôle à jouer dans la mesure des rendements de fission lourds.

En effet nos points mesurés dans la région des produits de fission légers sont en très bon accord avec les mesures faites dans le passé. De plus les tendances générales de ces mesures pour les rendements des masses lourdes suivent les tendances des bibliothèques.

Mais surtout la forte réduction des incertitudes par rapport à celles fournies dans les bases de données est très importante pour les applications nucléaires.

La mise en évidence de nombreuses structures directement observables sur le spectromètre Lohengrin présente également un intérêt majeur pour la théorie.

Chapitre 7

Rendements isotopiques

7.1 Désintégrations β^- des produits de fission

7.1.1 Introduction

Parce que les actinides sont des noyaux lourds, leur configuration nucléaire stable possède un rapport Z/N plus faible que celui des noyaux légers. La charte des noyaux (figure 7.1) répertorie tous les noyaux en fonction de leur charge nucléaire (Z) et de leur nombre de neutrons (N). Sur cette représentation les noyaux stables correspondent aux points en noir (vallée de la stabilité) alors que les atomes qui se situent en dessous ($Z/N < (Z/N)_{STABLE}$) sont excédentaires en neutrons et que ceux situés au-dessus ($Z/N > (Z/N)_{STABLE}$) le sont en protons.

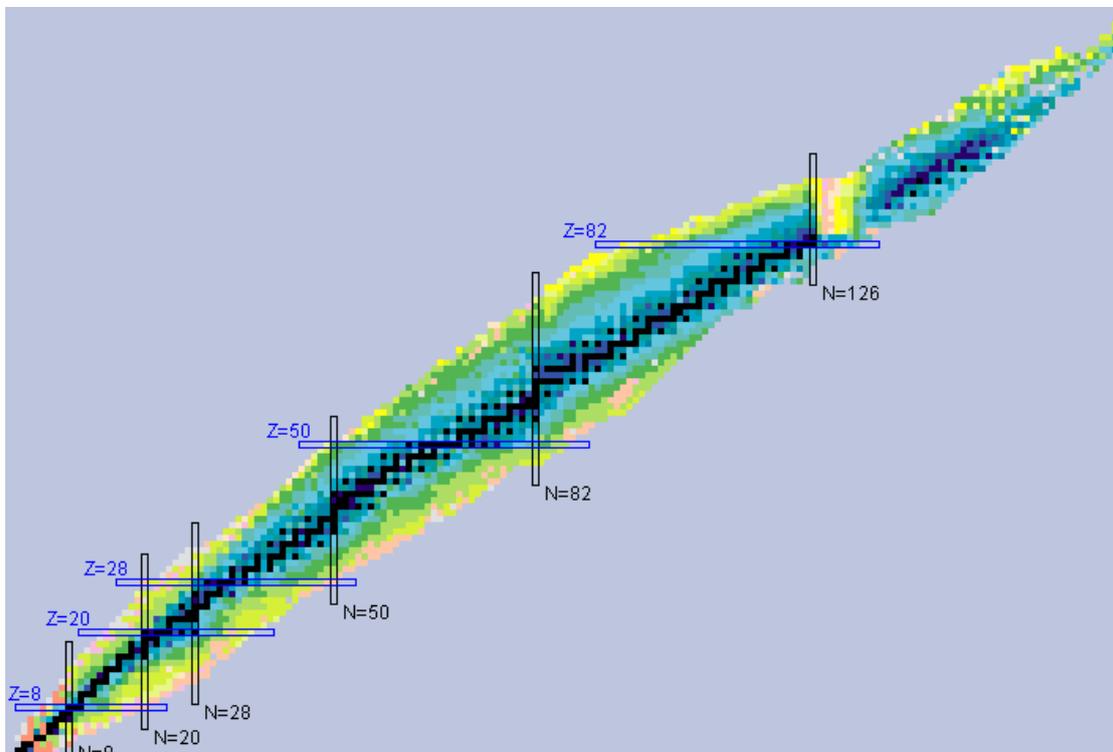


FIG. 7.1 – Charte des noyaux [www.nndc.bnl.gov].

La fission peuplé donc la région des noyaux excédentaires en neutrons. Afin de se retrouver dans une configuration stable, les produits de fission rejoignent la vallée de la stabilité par

désintégrations β^- (équation 7.1) ou (β^-, n) pour les précurseurs de neutrons retardés.

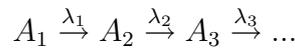


7.1.2 Equations de Bateman

A cause des temps de vie de certains isotopes le spectromètre de masse Lohengrin ne permet pas de mesurer directement les rendements indépendants de fission. Les quantités mesurées correspondent au rendement cumulé de l'isotope considéré au temps t.

Les lois de désintégrations radioactives permettent d'extraire de ces mesures les rendements indépendants pour chaque isotope. Ces équations (équations de Bateman) permettent de calculer pour un échantillon donné à un instant t le nombre N_i de noyaux de l'isotope radioactif A_i .

Soit la chaîne de désintégration suivante :



Le noyau père A_1 décroît dans le noyau fils A_2 selon le temps de demie vie $T_{1/2}^1$, qui lui même décroît dans le noyau petit-fils A_3 selon le temps de demie vie $T_{1/2}^2, \dots$, avec $T_{1/2}^i$ le temps au bout duquel le nombre de noyaux de l'élément radioactif N_i est réduit de moitié, et tel que $T_{1/2}^i = \frac{\ln(2)}{\lambda_i}$.

Soit un échantillon contenant à l'instant t_0 $N_1(t_0)$ atomes de A_1 , $N_2(t_0)$ atomes de A_2 , $N_3(t_0)$ atomes de A_3, \dots avec A_1, A_2, A_3, \dots des éléments radioactifs. Alors, à l'instant t, le nombre de chaque élément $N_i(t)$ est donné par la résolution des équations de Bateman suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dN_1(t)}{dt} = -\lambda_1 \cdot N_1(t) \\ \frac{dN_2(t)}{dt} = -\lambda_2 \cdot N_2(t) + \lambda_1 \cdot N_1(t) \\ \frac{dN_3(t)}{dt} = -\lambda_3 \cdot N_3(t) + \lambda_2 \cdot N_2(t) \\ \dots \end{array} \right. \quad (7.2)$$

Pour optimiser la statistique des spectres, l'acquisition des γ se fait en continu sans couper le faisceau des produits de fission qui arrivent du spectromètre.

Pour que le système d'équations 7.2 corresponde aux conditions expérimentales de nos mesures, il faut prendre en compte ce flux. Noté Y_i il représente le rendement indépendant des différents isotopes (équations 7.3).

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dN_1(t)}{dt} = Y_1 - \lambda_1 \cdot N_1(t) \\ \frac{dN_2(t)}{dt} = Y_2 - \lambda_2 \cdot N_2(t) + \lambda_1 \cdot N_1(t) \\ \frac{dN_3(t)}{dt} = Y_3 - \lambda_3 \cdot N_3(t) + \lambda_2 \cdot N_2(t) \\ \dots \end{array} \right. \quad (7.3)$$

A l'instant initial t_0 le nombre N_i de noyaux A_i est nul : le "start" de chaque mesure correspond au temps d'ouverture du faisceau et la bande passante permet d'éliminer les contributions des mesures précédentes. On a donc $N_i(t_0) = 0$.

Les constantes λ_i sont données par les bibliothèques nucléaires : $\lambda_i = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}^i}$. L'impact de ces bibliothèques sera discuté ultérieurement.

L'intégrale des pics γ (I_γ^{exp}) au temps de mesure t_f est égale à :

$$I_\gamma^{\text{exp}} = \int_{t_0}^{t_f} \varepsilon_{E_\gamma} \cdot BR_{E_\gamma}^i \cdot \lambda_i \cdot N_i(t) dt$$

Elle correspond à la somme de tous les γ à l'énergie E_γ mesurés pendant de l'acquisition. Cette intensité doit être normalisée par le rapport d'embranchement $BR_{E_\gamma}^i$ de la raie γ considérée ainsi que par l'efficacité ε_{E_γ} correspondante à l'énergie mesurée.

La résolution de cette équation couplée au système 7.3 permet de déterminer les valeurs Y_i des rendements isotopiques pour chaque noyau A_i .

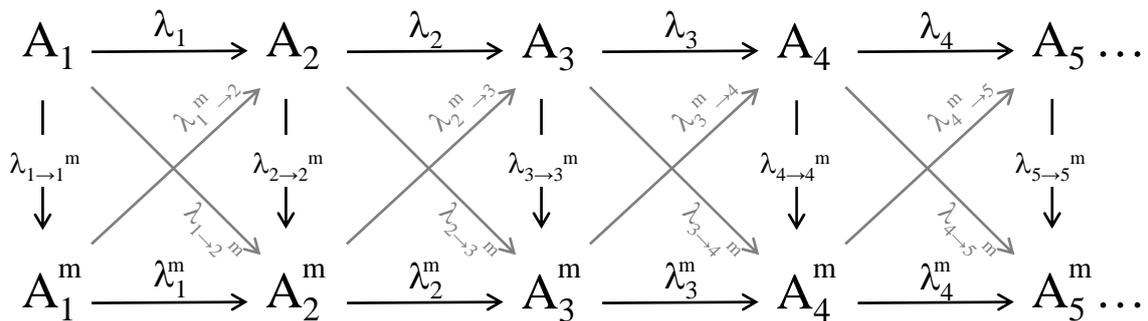
La résolution analytique de ces équations a été calculée et la solution des rendements pour les deux premiers noyaux de la chaîne de désintégration est donnée à titre d'exemple aux équations 7.4 et 7.5.

$$Y_1 = \frac{I_{\gamma 1}^{\text{exp}} \cdot (t_f)}{\varepsilon_{E_\gamma} \cdot BR_{E_\gamma}^1} \left[t_f + \frac{e^{-\lambda_1 \cdot t_f} - 1}{\lambda_1} \right]^{-1} \left[t_f + \frac{e^{-\lambda_1 \cdot t_f} - 1}{\lambda_1} \right]^{-1} \quad (7.4)$$

$$Y_2 = \left[\frac{I_{\gamma 2}^{\text{exp}} \cdot (t_f)}{\varepsilon_{E_\gamma} \cdot BR_{E_\gamma}^2} \cdot Y_1 \left(\frac{\lambda_1(1 - e^{-\lambda_2 \cdot t_f})}{\lambda_2(\lambda_2 - \lambda_1)} - \frac{\lambda_2(1 - e^{-\lambda_1 \cdot t_f})}{\lambda_1(\lambda_2 - \lambda_1)} + t_f \right) \right] \left[t_f + \frac{e^{-\lambda_2 \cdot t_f} - 1}{\lambda_2} \right]^{-1} \quad (7.5)$$

Parce que très vite les solutions gagnent en complexité, les résultats donnés dans la suite de ce chapitre ont été calculés numériquement.

De plus le cas général à considérer est le suivant :



Il doit tenir compte de la décroissance des noyaux dans leur état fondamental A_i ou dans leur état isomérique A_i^m ainsi que de toutes les transitions possibles.

La résolution numérique des équations différentielles a été faite par la méthode de Runge-Kutta à l'ordre 4. Une méthode de recherche par dichotomie a été utilisée pour déterminer les rendements Y_i .

Ces calculs numériques ont pu être comparés directement avec les solutions analytiques pour les trois premiers noyaux d'une chaîne sans isomères. Ces comparaisons montrent que les incertitudes générées par la méthode numérique sont négligeables.

7.2 Normalisation et calculs d'incertitudes

7.2.1 Normalisation

De la même manière que pour les rendements en masse les mesures de rendements isotopiques sur le spectromètre Lohengrin ne sont pas absolues.

Il est donc nécessaire de normaliser les résultats obtenus, soit sur un noyau de référence, soit sur la somme des isotopes mesurés.

Le noyau de référence doit présenter les avantages suivants :

- Il doit être dans la chaîne de décroissance radioactive de la masse considérée le premier isotope dont le rendement est assez élevé pour pouvoir être mesuré sur le spectromètre. Son rendement mesuré n'aura donc pas besoin d'être corrigé des équations de Bateman, ce qui limite ainsi l'incertitude associée à cette valeur.
- Les principales raies γ de la désexcitation du noyau doivent être facilement sélectionnées (intensité suffisamment forte).
- Les données de décroissance de ce noyau doivent très bien connues.
- Son rendement isotopique doit être connu avec une bonne précision.

Quelques noyaux remplissent les trois premières conditions (comme par exemple le ^{147}La : tableau 7.1) mais les incertitudes associées à leur rendement sont dans tous les cas trop grandes et généreraient des erreurs très importantes.

| | |
|--|-----------------|
| $Y_{^{147}\text{La}} = 6,71 \text{ E-03} \pm 24,0\%$ | |
| $T_{1/2} = 4,0 \text{ s} \pm 0,2\%$ | |
| E_γ | B.R. |
| $117,72 \pm 0,01\%$ | $12 \pm 1,0\%$ |
| $186,30 \pm 0,01\%$ | $6,5 \pm 0,5\%$ |

TAB. 7.1 – Données de décroissance du noyau de ^{147}La (JEFF-3.1).

C'est pourquoi bien qu'un grand nombre d'isotopes n'ont pas pu être mesurés toutes nos données ont été normalisées sur la somme des rendements de JEFF-3.1 pour les isotopes mesurés (légers + lourds) :

$$\sum_i Y_{JEFF-3.1}(A, Z) = 0,92$$

A titre de comparaison la normalisation de tous les rendements a également été effectuée sur le rendement du ^{147}La . Les résultats présentent 2% de différence avec les rendements normalisés sur la somme des noyaux mesurés.

7.2.2 Incertitudes

Incertainces statistiques-erreurs des fit γ

Les erreurs statistiques et les erreurs engendrées par les fits effectués sur les raies γ sont estimées par le programme TV utilisé pour l'analyse des spectres (chapitre 4).

Incertainces systématiques analogues à celles des rendements en masse

Aux erreurs statistiques viennent s'ajouter les incertitudes systématiques du spectromètre, des variations de la cible et du réacteur, ainsi que de la méthode de calcul du rendement utilisée et la présence des isomères nanosecondes. Elles sont prises en compte de la même manière que pour le calcul des incertitudes sur les mesures de rendements en masse.

Incertitudes liées aux bases de données

Il faut ensuite rajouter à ces dernières les erreurs liées aux données de décroissance disponibles dans les bibliothèques nucléaires (λ_i et BR_i).

Incertitudes systématiques des détecteurs

Il faut enfin prendre en compte les incertitudes liées à la courbe en efficacité des détecteurs germanium.

Incertitudes totales

Les incertitudes totales sont données par la somme de toutes les incertitudes décrites précédemment.

De la même façon que pour les rendements en masse les incertitudes liées à la normalisation peuvent être négligées.

7.3 Rendements isotopiques

Les rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés en juin et octobre 2008 sur le spectromètre Lohengrin sont donnés tableaux 7.2 et 7.3 et figure 7.2. Un certain nombre de masses a été mesuré dans la région des produits de fission légers afin de pouvoir valider cette nouvelle méthode expérimentale avec les mesures effectuées par C. Schmitt avec la chambre à ionisation.

| Masse A | Z | Rendement | Incertitude statistique (%) | Incertitude systématique (%) |
|------------|-----------|-----------|-----------------------------|------------------------------|
| 93 | 36 | 2,29 E-03 | 1,0 | 17,1 |
| | 37 | 1,31 E-02 | 0,9 | 9,1 |
| | 38 | 2,32 E-02 | 0,9 | 8,1 |
| 94 | 37 | 4,05 E-03 | 0,9 | 8,1 |
| | 38 | 3,19 E-03 | 0,9 | 8,1 |
| | 39 | 4,29 E-03 | 0,9 | 9,1 |
| 95 | 37 | 2,38 E-03 | 0,9 | 10,1 |
| | 38 | 2,84 E-02 | 0,9 | 8,1 |
| | 39 | 1,23 E-02 | 0,9 | 35,6 |
| 96 | 38 | 1,94 E-02 | 0,9 | 4,4 |
| | 39 | 1,69 E-02 | 0,9 | 23,9 |
| 98 | 38 | 3,33 E-03 | 4,0 | 6,3 |
| | 39 | 2,45 E-02 | 0,9 | 19,1 |
| 99 | 38 | 3,99 E-03 | 0,9 | 4,4 |
| | 39 | 4,29 E-03 | 0,9 | 61,0 |
| | 40 | 4,45 E-02 | 0,9 | 12,7 |
| | 41 | 7,15 E-03 | 0,9 | 42,0 |
| 133 | 51 | 1,24 E-02 | 0,9 | 17,4 |
| | 52 | 4,81 E-02 | 0,8 | 8,4 |
| 134 | 51 | 5,75 E-03 | 0,5 | 2,6 |
| | 52 | 3,61 E-02 | 1,0 | 10,3 |
| | 53 | 2,69 E-02 | 1,3 | 9,1 |

TAB. 7.2 – Rendements isotopiques pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$

| Masse A | Z | Rendement | Incertitude statistique (%) | Incertitude systématique (%) |
|---------|----|-----------|-----------------------------|------------------------------|
| 136 | 52 | 5,30 E-03 | 3,0 | 52,2 |
| | 53 | 3,38 E-02 | 1,3 | 11,1 |
| 137 | 53 | 2,31 E-02 | 0,8 | 12,1 |
| | 54 | 3,68 E-02 | 1,2 | 7,1 |
| 138 | 53 | 4,88 E-03 | 1,8 | 52,1 |
| | 54 | 4,72 E-02 | 0,4 | 10,1 |
| | 55 | 1,43 E-02 | 2,0 | 11,1 |
| 139 | 53 | 1,37 E-03 | 0,3 | 5,3 |
| | 54 | 3,14 E-02 | 1,5 | 11,1 |
| | 55 | 2,28 E-02 | 3,0 | 10,1 |
| 140 | 53 | 7,03 E-04 | 1,3 | 131,1 |
| | 54 | 1,52 E-02 | 0,8 | 10,1 |
| | 55 | 2,95 E-02 | 1,0 | 20,1 |
| 141 | 55 | 3,16 E-02 | 0,8 | 10,1 |
| | 56 | 1,59 E-02 | 1,0 | 12,1 |
| 142 | 55 | 9,59 E-02 | 0,2 | 2,1 |
| | 56 | 3,61 E-02 | 1,0 | 9,1 |
| | 57 | 4,09 E-03 | 0,8 | 13,1 |
| 143 | 56 | 2,87 E-02 | 0,8 | 13,1 |
| | 57 | 1,05 E-02 | 0,8 | 13,1 |
| 144 | 56 | 2,69 E-02 | 2,3 | 8,1 |
| | 57 | 1,24 E-02 | 2,3 | 75,2 |
| 145 | 56 | 8,29 E-03 | 1,3 | 16,1 |
| | 57 | 1,81 E-02 | 0,8 | 14,1 |
| | 58 | 4,42 E-03 | 1,1 | 14,1 |
| 146 | 56 | 5,15 E-03 | 1,2 | 8,1 |
| | 57 | 1,04 E-02 | 0,9 | 43,2 |
| | 58 | 8,16 E-03 | 1,7 | 7,1 |
| 147 | 57 | 6,60 E-03 | 1,0 | 8,1 |
| | 58 | 1,66 E-02 | 1,2 | 11,0 |
| 148 | 57 | 1,92 E-03 | 1,1 | 19,7 |
| | 58 | 9,46 E-03 | 1,7 | 13,1 |
| 151 | 59 | 4,22 E-03 | 0,6 | 9,1 |
| | 60 | 2,91 E-03 | 1,2 | 9,1 |
| 152 | 59 | 2,81 E-04 | 1,6 | 12,1 |
| | 60 | 5,37 E-03 | 1,5 | 20,2 |

TAB. 7.3 – Rendements isotopiques pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$

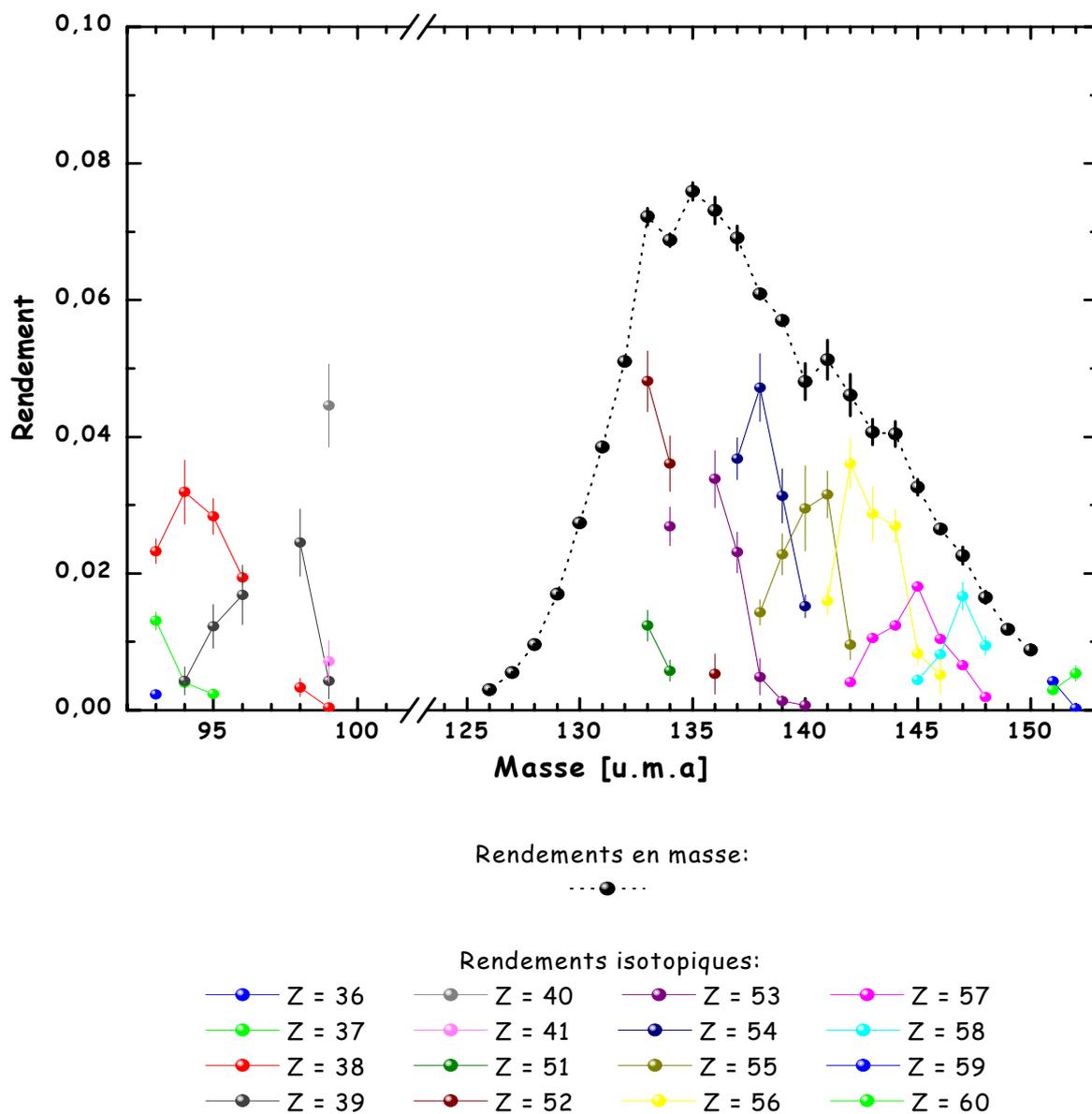


FIG. 7.2 – Rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ (les incertitudes données sont les incertitudes totales).

Les isotopes mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin ont tous un rendement de fission supérieur à 10^{-3} (hormis le noyau de Praséodyme ($Z=59$) pour la masse 152). Principalement à cause du rapport signal sur bruit il est en effet difficile de déterminer des rendements inférieurs à cette valeur.

L'objectif des mesures en coïncidences $\beta - \gamma$ est de diminuer ce rapport. Elles auraient donc dû permettre de déterminer des rendements beaucoup plus faibles mais n'ont pas pu être effectuées à cause de l'efficacité du détecteur β qui demandait des temps de mesure beaucoup trop long.

Le temps de faisceau imparti pour la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ n'a pas permis la mesure de tous les noyaux. Le choix des masses mesurées s'est fait selon les critères qui sont énumérés dans le tableau 7.3.

| Masse | Problème dû : | | |
|------------|--|--|-----------------------|
| | $t_{1/2}$ trop long pour au moins un isotope | connaissance insuffisante des données nucléaires | rendement trop faible |
| ≤ 132 | | X | |
| 135 | X | | |
| 149 | X | X | |
| 150 | X | X | |
| ≥ 153 | | | X |

FIG. 7.3 – Tableau récapitulatif des raisons pour lesquelles les rendements isotopiques de certaines masses n'ont pas pu être mesurés.

Comparaison avec d'autres données

Les rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre Lohengrin (points) sont comparés avec différentes données sur les figures 7.4, 7.5 et 7.6 :

- bibliothèque JEFF-3.1 : croix,
- données évaluées de Wahl [33] : cercles,
- mesures auprès du réacteur IBR-30 avec des détecteurs Germanium-Lithium en 1994 [107] : triangles renversés,
- mesures par temps de vol en 1991 [108] : étoiles,
- mesures sur un Van de Graff en 1976 [109] : triangles vers la droite,
- mesures sur un spectrographe de masse en 1975 [110] : losanges,
- mesures par radiochimie en 1975 [111] : triangles.

On constate un bon accord entre les tendances générales pour toutes les charges ioniques. Les mesures du Lohengrin présentent cependant plus de structures que les données.

Il semble que le rendement du noyau de Praséodyme ($Z=57$) pour la masse 152 soit sous-estimé en comparaison aux autres évaluations ou mesures.

Nos mesures ont permis de réduire la plupart des incertitudes. Quelques noyaux gardent cependant des incertitudes importantes. Elles peuvent être liées aux erreurs sur les données de décroissance disponibles dans les bibliothèques (pour le noyau de Césium ($Z=55$) par exemple) ou bien à la difficulté à estimer l'intégrale d'une raie γ à cause de sa faible intensité : rapport d'embranchement très faible (noyau de Cérium ($Z=58$) pour la masse 147) ou faible efficacité pour la raie γ considérée (noyau d'Yttrium ($Z=39$) pour la masse 98).

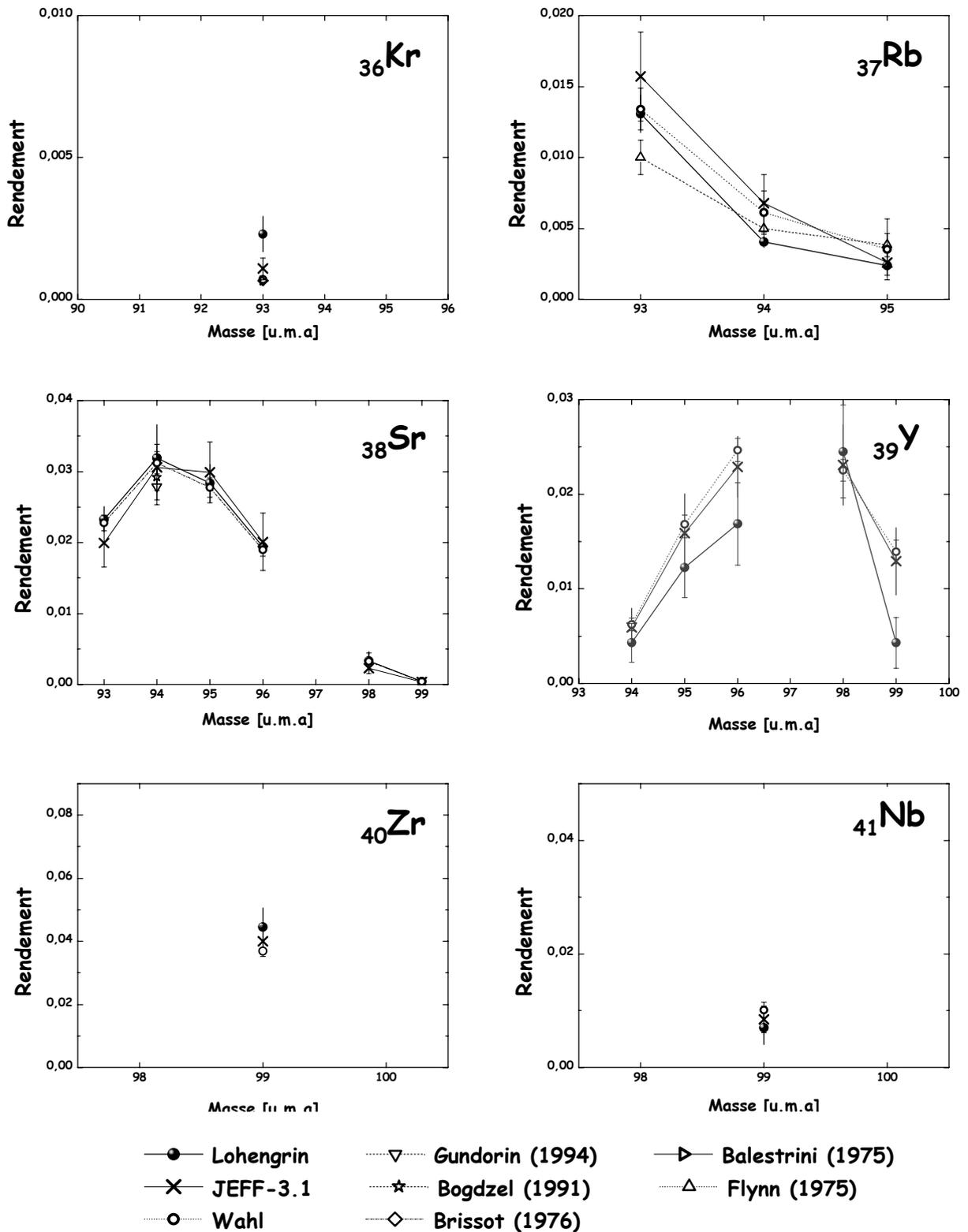


FIG. 7.4 – Comparaison avec différentes mesures et évaluations des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin dans la région des produits de fission légers (les incertitudes données pour nos résultats sont les incertitudes totales).

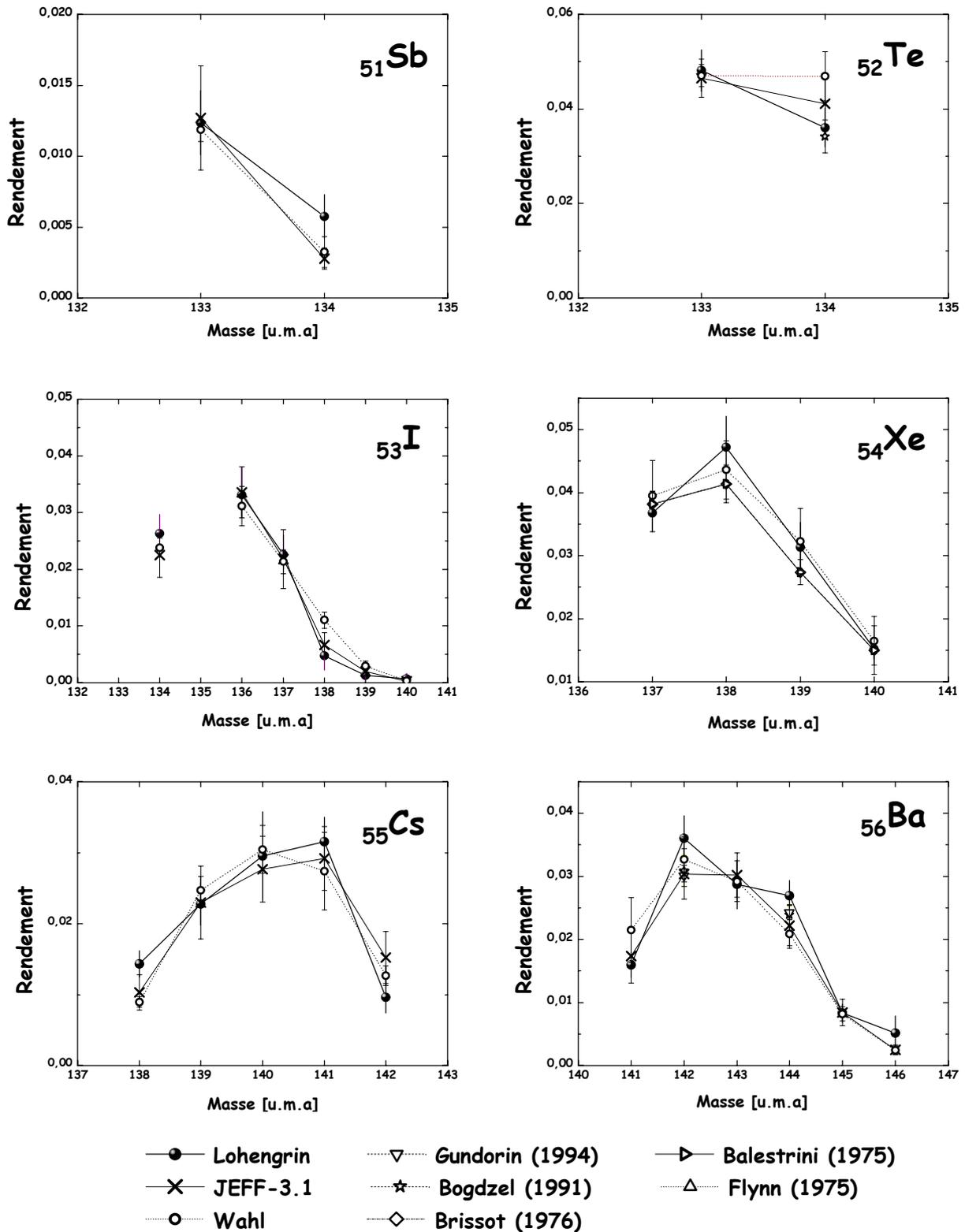


FIG. 7.5 – Comparaison avec différentes mesures et évaluations des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin dans la région des produits de fission lourds (les incertitudes données pour nos résultats sont les incertitudes totales).

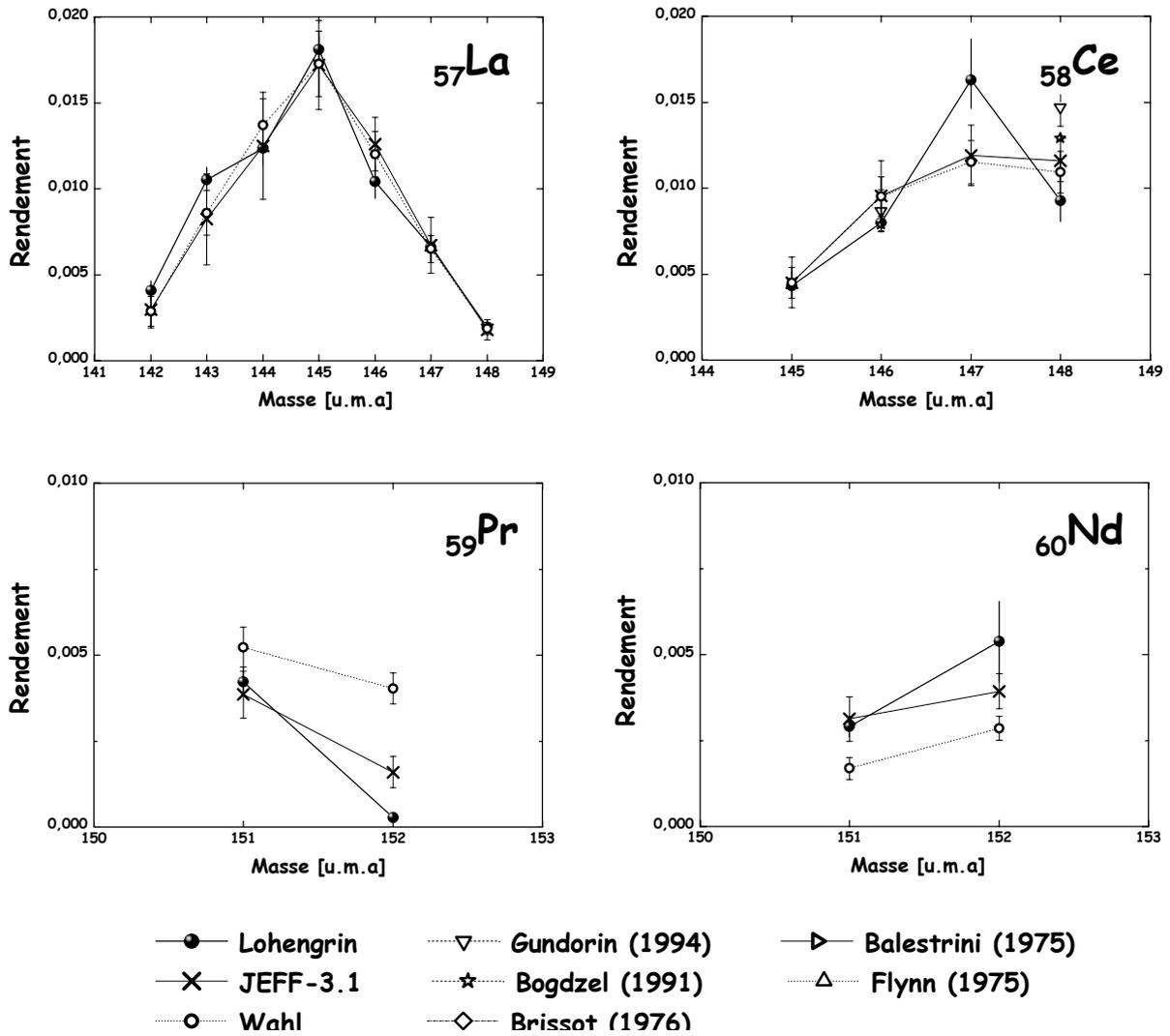


FIG. 7.6 – Comparaison avec différentes mesures et évaluations des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin dans la région des produits de fission lourds (les incertitudes données pour nos résultats sont les incertitudes totales).

Nos rendements sont comparés figure 7.7 avec les rendements précédemment mesurés sur le spectromètre de masse Lohengrin avec une chambre à ionisation, qui rappelons-le, permet une séparation isotopique jusqu'à $Z=42$ (avec absorbeur passif) [59]. On observe un bon accord entre ces deux mesures puisque pour chaque noyau les barres d'erreur se recouvrent. Seul le noyau d'Yttrium ($Z=39$) présente pour ces deux mesures des rendements qui peuvent différer jusqu'à 40%. Les incertitudes sur les données de décroissance et la présence d'un état isomérique pour lequel les γ de décroissance sont souvent identiques à ceux de l'état fondamental expliquent ces différences.

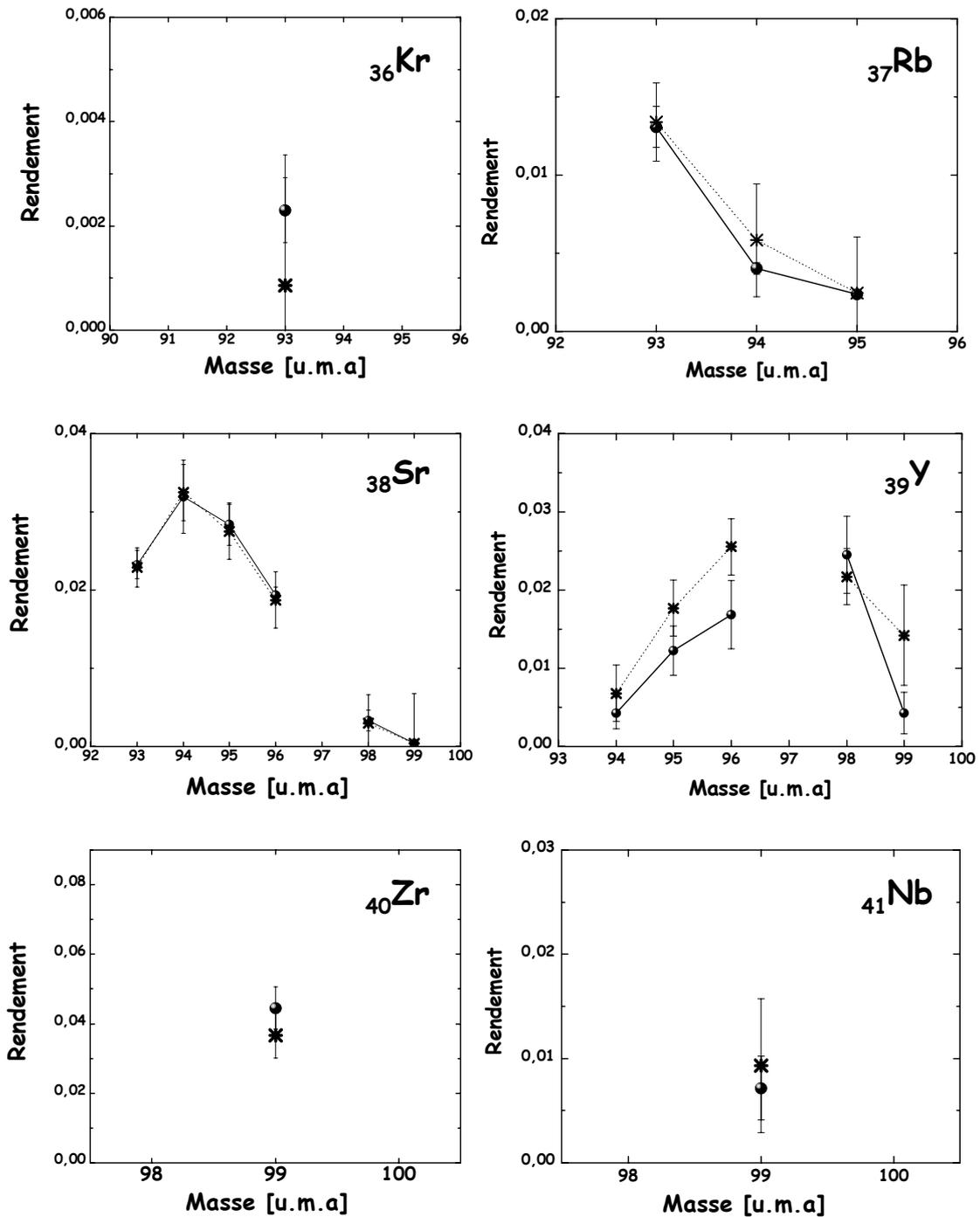


FIG. 7.7 – Comparaison de nos mesures (points) avec les données de C. Schmitt (étoiles) obtenues sur le spectromètre Lohengrin avec une chambre à ionisation [59]. Les incertitudes données pour nos résultats sont les incertitudes totales.

7.3.1 Rapports isomériques

Certains noyaux mesurés comportent un état isomérique de durée de vie suffisamment grande (de l'ordre de la ms) pour être répertorié dans les tables de données avec leurs γ de décroissance radioactive. Les rendements isotopiques mesurés sur le spectromètre montrés précédemment correspondent à la somme du rendement de l'état fondamental avec le rendement des états isomériques lorsqu'ils existent. Les rendements des isomères nanosecondes ne sont pas différenciés du rendement de l'état fondamental du noyau considéré. Pour les isomères connus, le tableau 7.8 compare le rapport isomérique (rendement de l'état isomérique sur le rendement de l'état fondamental) des noyaux concernés avec celui de la bibliothèque JEFF-3.1.

| Masse A | Charge nucléaire Z | Rapport isomérique Lohengrin | Rapport isomérique JEFF-3.1 | $1 - \frac{RI_{JEFF-3.1}}{RI_{Lohengrin}}$ |
|------------|--------------------------|------------------------------------|-----------------------------------|--|
| 96 | 39 | X | 1,79 E+00 | X |
| 98 | 39 | 2,44 E-01 | 4,21 E+00 | -0,72 |
| 99 | 41 | 2,49 E-01 | 2,31 E-01 | 0,07 |
| 133 | 52 | 1,54 E+00 | 2,41 E+00 | 0,56 |
| 134 | 51 | X | 2,34 E+00 | X |
| 134 | 53 | 7,46 E-01 | 7,39 E-01 | 0,01 |
| 136 | 53 | 3,07 E+00 | 2,35 E+00 | 0,23 |
| 138 | 55 | 1,52 E+00 | 1,42 E+00 | 0,06 |
| 146 | 57 | 2,53 E+00 | 1,80 E+00 | 0,29 |

FIG. 7.8 – Rapports isomériques $RI = \frac{\text{Rendement} (^mY)}{\text{Rendement} (^sY)}$ des noyaux concernés mesurés avec le spectromètre de masse Lohengrin et disponibles dans la bibliothèque de données JEFF-3.1.

Les γ de décroissance de l'état fondamental du noyau d'Yttrium (Z=39) pour la masse 96 ont une intensité trop faible pour pouvoir être mesurés par spectrométrie γ : faibles rapports d'embranchement et efficacité aux énergies considérées (tableau 7.4).

| E_γ (keV) | BR_γ (%) |
|-------------------------|-----------------|
| 1750,42 \pm 0,02 | 2,35 \pm 7 |
| 2225,93 \pm 0,04 | 0,32 \pm 19 |
| 475,33 \pm 0,01 | 0,18 \pm 7 |
| 469,33 \pm 0,03 | 0,17 \pm 5 |
| <i>autres raies ...</i> | < 0,10 |

TAB. 7.4 – γ de décroissance de l'état fondamental du noyau d'Yttrium pour la masse 96 : énergie (E_γ) et rapport d'embranchement (BR_γ) (table of isotopes, LBNL).

Les rendements des états fondamental et isomérique de l'Yttrium 98 semblent avoir été inversés dans la bibliothèque JEFF-3.1 (la bibliothèque ENDF/B-VI.8 propose les mêmes rendements pour l'état isomérique et fondamental de l' ^{98}Y , ce qui semble également être faux).

Contrairement à ce qui est attendu dans cette base les mesures ont montré que l'état fondamental de ce noyau est plus peuplé que sont état isomérique. En revanche les proportions de ces deux états nucléaires, une fois inversées, semblent correctes.

A cause de son faible rendement ($> 10^{-3}$) l'état fondamental de l'Antimoine 134 n'a pas pu être mesuré au cours de cette expérience.

7.3.2 Masses et charges moyennes pour certains Z et A respectivement

Distributions des masses en fonction des charges nucléaires

Les distributions en masse pour quelques charges nucléaires sont tracées figures 7.9 et les valeurs moyennes ainsi que les largeurs de distribution sont données tableau 7.5.

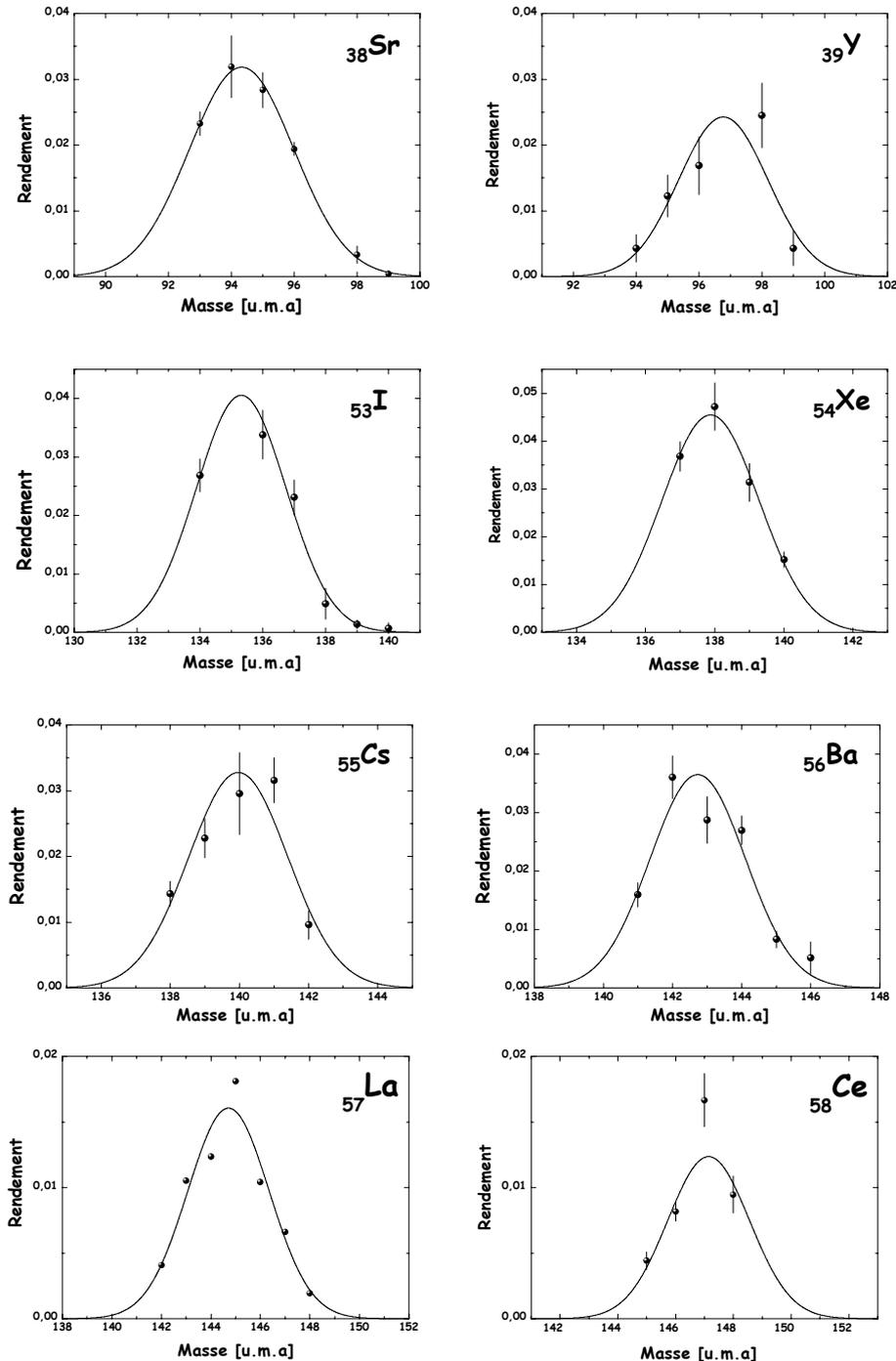


FIG. 7.9 – Distributions des masses pour quelques charges nucléaires.

| Z | <A > | σ_A |
|----|-------|------------|
| 38 | 94,4 | 1,6 |
| 39 | 96,7 | 2,2 |
| 53 | 135,3 | 1,4 |
| 54 | 137,9 | 1,4 |
| 55 | 139,9 | 2,1 |
| 56 | 142,7 | 1,4 |
| 57 | 144,7 | 1,7 |
| 58 | 147,1 | 1,4 |

TAB. 7.5 – Masses moyennes et largeurs de distribution en fonction des charges nucléaires.

Distribution des charges nucléaires en fonction des masses

Les distributions en charge nucléaire de quelques masses sont tracées figures 7.10 et les valeurs moyennes ainsi que les largeurs de distribution sont données tableau 7.6.

| A | <Z > | σ_Z |
|-----|------|------------|
| 94 | 38,0 | 0,5 |
| 95 | 38,2 | 0,5 |
| 134 | 52,4 | 0,7 |
| 138 | 54,3 | 0,5 |
| 139 | 54,4 | 0,5 |
| 142 | 55,9 | 0,5 |
| 145 | 56,9 | 0,7 |
| 146 | 57,2 | 1 |

TAB. 7.6 – Charges moyennes et largeurs de distribution en fonction des masses.

La charge nucléaire Z_{UCD} après émission des neutrons prompts est définie par l'équation suivante :

$$Z_{UCD}(A') = \frac{Z_F}{A_F}(A + \bar{\nu}(A'))$$

Cette charge représente les produits de fission qui conservent un rapport Z/A identique à celui du noyau fissionnant.

La fission peuple en général les noyaux légers qui ont une charge nucléaire en moyenne supérieure de 0,5 proton au Z_{UCD} . Les produits de fissions lourds ont plutôt tendance à avoir un Z inférieur de 0,5 au Z_{UCD} .

Pour étudier ces variations on peut définir l'écart à la densité initiale ΔZ telle que :

$$\Delta Z = Z_{UCD}(A) - \langle Z_p(A) \rangle$$

Les ΔZ en fonction des masses et des charges nucléaires moyennes sont donnés figures 7.11. Ils ont été calculés en prenant pour valeur de $\bar{\nu}$ les données évaluées de Wahl.

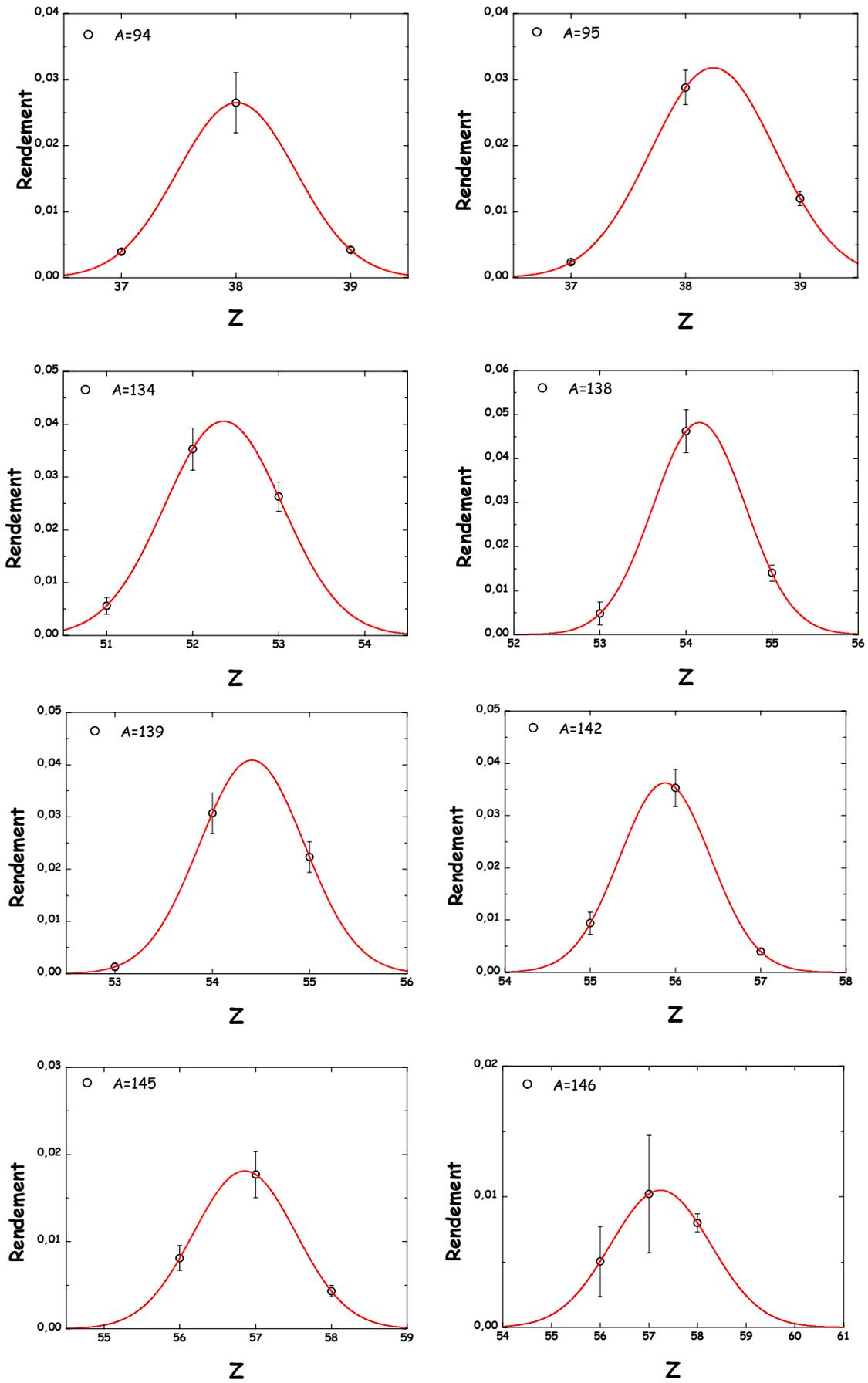


FIG. 7.10 – Distributions des charges nucléaires pour quelques masses.

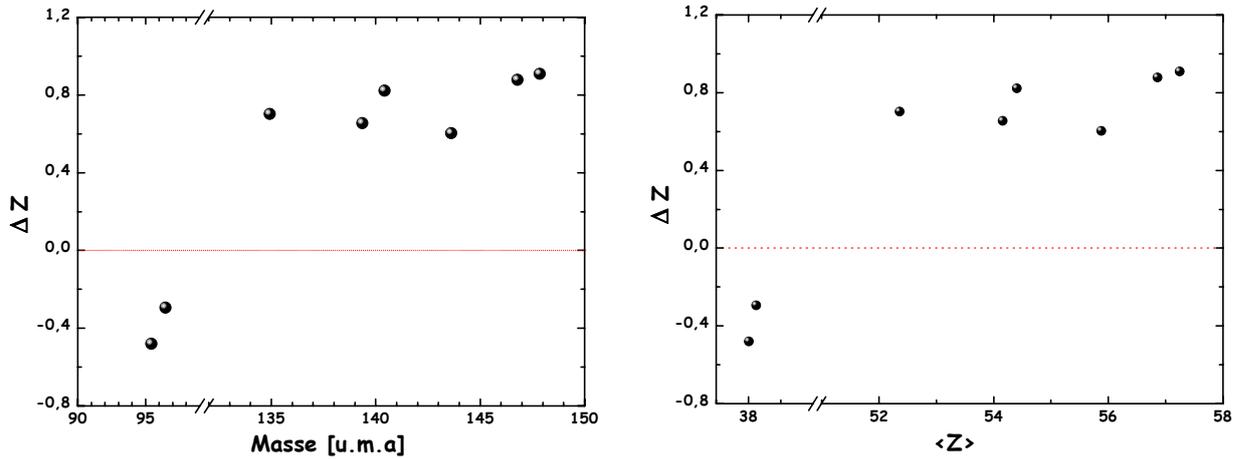


FIG. 7.11 – ΔZ en fonction des masses (figure de gauche) et des charges nucléaires moyennes (figure de droite). Ces données sont en accord avec les mesures présentées référence [112].

7.3.3 Effets de parité

Parce qu'au cours de la fission, les rendements des charges nucléaires paires sont favorisés par rapport aux rendements des charges nucléaires impaires, l'effet de parité globale de chaque système fissionnant est positif. La tendance générale de cette grandeur est tracée pour différents noyaux composés à la figure 7.12.

Elle montre que plus le noyau fissionnant est léger, plus l'effet de parité est important.

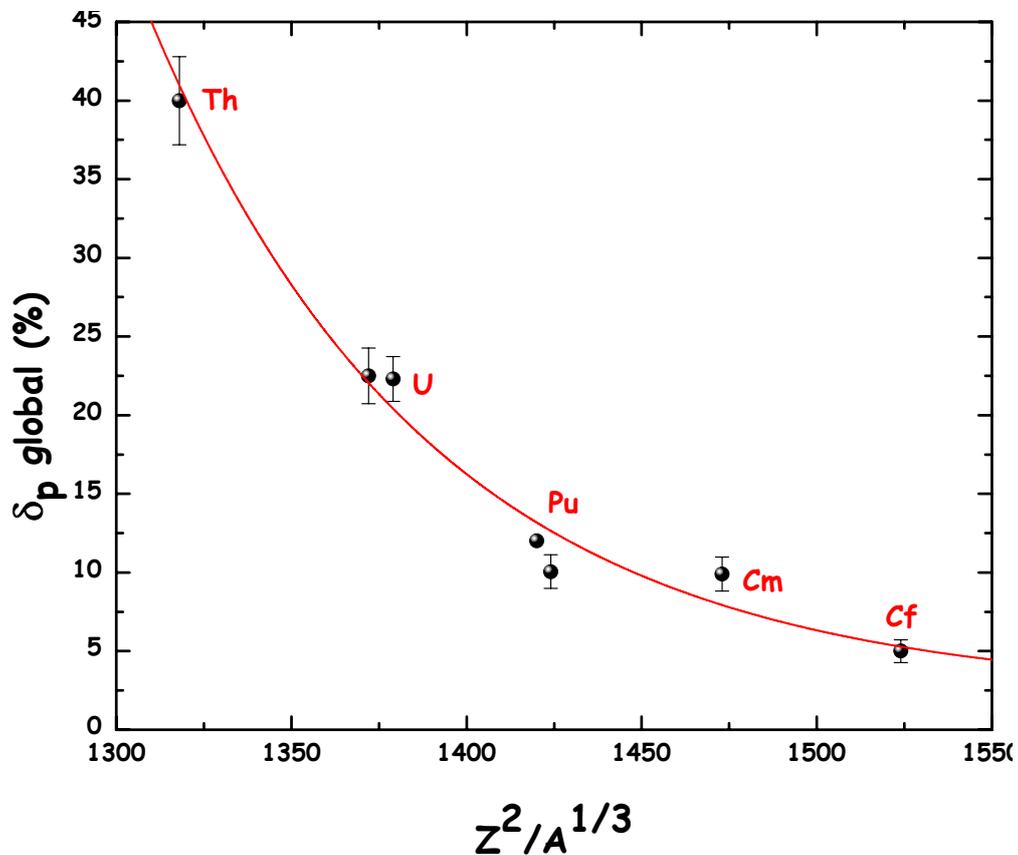


FIG. 7.12 – Effet de parité global pour les protons en fonction du paramètre de Coulomb $Z^2/A^{1/3}$ de plusieurs systèmes fissionnants [73, 11].

Cette grandeur est importante puisqu'elle est aujourd'hui l'unique grandeur mesurable qui révèle quelques informations sur la répartition de l'énergie disponible au moment de la scission. En effet, moins l'effet de parité global d'un noyau sera important, plus de paires de nucléons auront été brisées, indiquant une forte énergie d'excitation individuelle.

Cette grandeur peut être tracée localement pour chaque masse :

$$\delta_p = \frac{Y_{pair} - Y_{impair}}{Y_{pair} + Y_{impair}}$$

Cependant parce que les mesures des rendements isotopiques de la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ dans la région des produits de fission lourds n'ont pas été mesurés complètement, il est difficile d'établir une conclusion quant à la figure 7.13. Cette figure compare l'effet de parité des masses mesurées avec les valeurs de JEFF-3.1 calculées uniquement pour les isotopes mesurés. Elle montre néanmoins un très bon accord entre ces deux types de valeurs.

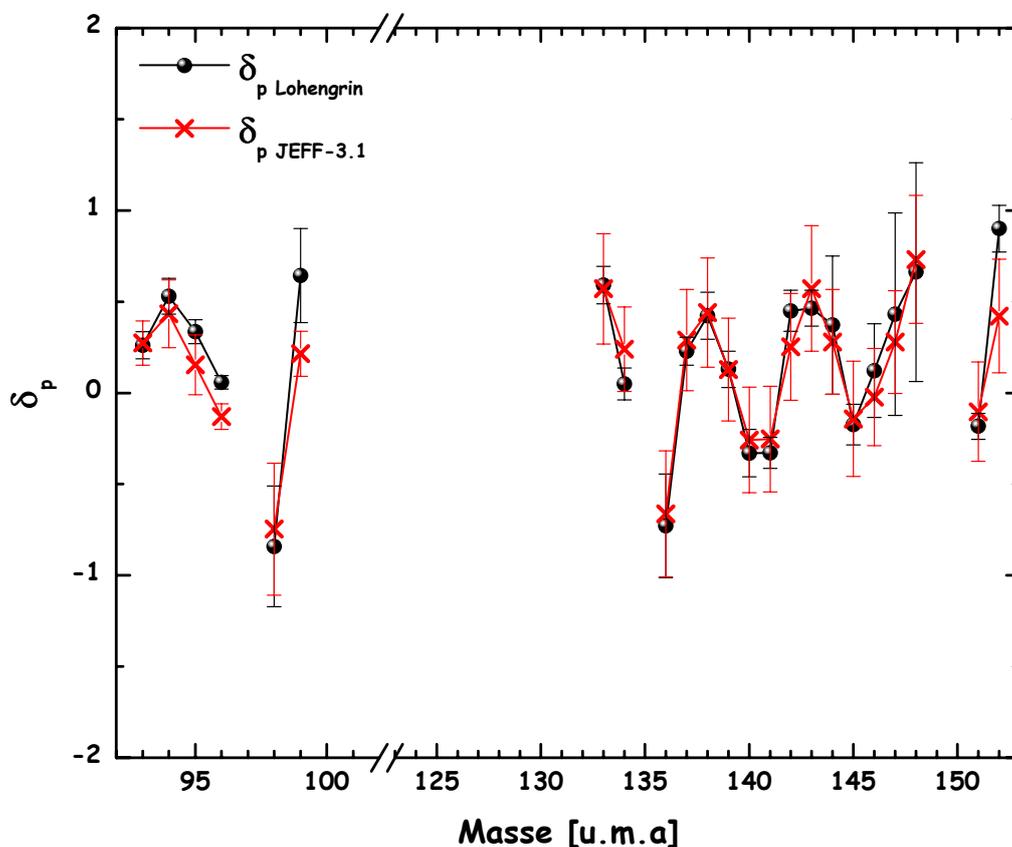


FIG. 7.13 – Effet de parité local en fonction des masses pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$. Les calculs ont été effectués uniquement pour les isotopes qui ont été mesurés sur le spectromètre Lohengrin. Les points en noir représentent les valeurs calculées à partir de nos mesures, les croix en rouge représentent les valeurs calculées à partir des données de JEFF-3.1.

7.4 Limites de la méthode et conclusion

Comme pour toutes les mesures de spectrométrie le premier obstacle auquel est confrontée cette méthode réside dans l'étendue de la connaissance des données nucléaires. Encore

aujourd'hui un grand nombre de noyaux, et en particulier les plus exotiques, n'ont pas été mesurés.

De nombreux efforts sont cependant faits pour remédier à ce problème, notamment en spectroscopie γ .

Plusieurs bibliothèques nucléaires ont donc dues être considérées pour choisir au mieux les données de décroissance de chaque isotope :

- NNDC (National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory),
- JEFF-3.1,
- LBNL (Lawrence Berkeley National Laboratory),
- ENDF/B-VI.8,
- JENDL-3.3.

Les bases de données ENDF/B-VI.8 et JENDL-3.3 se sont très vite avérées incomplètes, et aucune donnée utilisée au cours des expériences ne provient de l'une de ces deux bibliothèques.

Les valeurs de JEFF-3.1 ainsi que celles de LBNL sont pour la plupart des noyaux en très bon accord, même si les données disponibles sur le site du LBNL sont plus nombreuses que celles de JEFF-3.1. Ces données correspondent directement aux données de la Table des Isotopes. Cependant pour certains noyaux comme $^{139}_{53}\text{I}$, $^{149}_{58}\text{Ce}$ et $^{152}_{61}\text{Pm}$, seule de ces deux bases JEFF-3.1 a été à même de fournir des renseignements.

Le choix des masses mesurées au cours de ces expériences s'est donc en grande partie appuyé sur une bonne connaissance ou non de ces données nucléaires disponibles dans les différentes bases.

La mesure de différentes raies γ du noyau $^{87}_{37}\text{Rb}$ a permis de déterminer laquelle des trois bibliothèques NNDC, LBNL ou JEFF-3.1 donnait une valeur juste du rapport d'embranchement du pic γ de 1309,1 keV. En effet, les valeurs données pour ce rapport d'embranchement sont différentes dans ces trois bibliothèques, tableau 7.7. Au cours de nos mesures, seules les valeurs de NNDC ont donné des résultats cohérents entre les différents pics γ de ce noyau.

| | NNDC | LBNL | JEFF-3.1 |
|------------------|---------------|---------------|-----------------|
| E_γ [keV] | B.R. (%) | B.R. (%) | B.R. (%) |
| 836,9 | 87 ± 3 | $87,1 \pm 4$ | $87,3 \pm 0,5$ |
| 1309,1 | $14,2 \pm 8$ | $87 \pm ?$ | $? \pm ?$ |
| 1577,5 | $31,8 \pm 16$ | $31,8 \pm 16$ | $31,9 \pm 1,58$ |

TAB. 7.7 – Comparaison des trois différentes bases de données pour les γ du noyau $^{87}_{37}\text{Rb}$.

Les temps de demie vie très longs de certains isotopes représentent également une contrainte pour ce type de mesure. A moins d'entreprendre des mesures spécifiques pour certaines chaînes de masses particulières, il est difficile d'envisager, à cause des temps de faisceaux délivrés sur le spectromètre et des temps de vie des cibles, la mesure d'isotopes dont la durée de demie vie est supérieure à quelques heures (une ou deux).

De plus, les isotopes qui se dés excitent directement sur l'état fondamental de leur noyau fils ne pourront jamais être mesurés par cette méthode. Ils sont néanmoins très peu nombreux.

Mais malgré ces limitations ce type de mesure reste très prometteur. Il permet en outre d'évaluer les rendements isotopiques et isomériques de n'importe quel système fissionnant pour toutes les masses. Ces premiers résultats obtenus sont très prometteurs et, même si l'expérience peut être améliorée (par exemple par des mesures en coïncidences $\beta - \gamma$) ils ont déjà permis de diminuer l'incertitude d'un grand nombre de noyaux.

Conclusion

Le but de ce travail était dans un premier temps de valider la mesure des rendements isobariques dans la région des produits de fission lourds sur le spectromètre de masse Lohengrin.

Si les rendements lourds ont déjà été mesurés pour le $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ [62], il était nécessaire de confirmer le bon fonctionnement du spectromètre, notamment après les récents problèmes du générateur de haute tension de celui-ci. Les deux différentes mesures de rendements de l' $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ ont ainsi permis de montrer que non seulement la nouvelle haute tension du spectromètre fonctionnait bien, mais aussi que la méthode de détermination des rendements en masse avec pour système de détection une chambre à ionisation était efficace dans la région des produits de fission lourds aussi bien que dans celles des produits de fission légers.

Cette méthode a donc été étendue pour la détermination des rendements isobariques des produits de fission lourds pour les systèmes $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ et $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$. Ces mesures montrent un accord satisfaisant avec les évaluations et permettent de réduire significativement les incertitudes associées.

L'autre grande ligne de la thèse a été de mettre au point une nouvelle technique expérimentale afin de pouvoir déterminer sur le spectromètre Lohengrin les rendements isotopiques de n'importe quel produit de fission, la précédente méthode ne permettant de mesurer que la bosse légère. Ces nouvelles mesures reposent sur l'identification des isotopes par spectrométrie γ . Les rendements isotopiques de plusieurs noyaux pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ ont ainsi pu être mesurés. Ces mesures ont été validées par comparaison avec différentes expériences, et en particulier avec la mesure des masses légères grâce à une chambre à ionisation sur le spectromètre Lohengrin. Elles sont très prometteuses. Elles ont permis de réduire les incertitudes de la plupart des noyaux et ouvrent la porte à la mesure de la distribution complète des rendements indépendants pour n'importe quel actinide.

De plus certaines améliorations peuvent être proposées grâce à ces mesures dans les données de décroissance (JEFF/DD).

Cependant, si le principe de cette méthode a été validé par la mesure du ^{239}Pu , certaines améliorations sont nécessaires pour diminuer les incertitudes mais aussi pour étendre la gamme des produits de fission mesurables (faible rendement).

La première étape incontournable pour la suite de ces mesures sera la fabrication d'une nouvelle chambre à vide à l'intérieur de laquelle sera placée un détecteur β . Ce dispositif permettrait d'effectuer des mesures en coïncidences β - γ avec une efficacité suffisante, et laverait les spectres γ du bruit de fond extérieur.

Ces mesures ont également permis d'étudier les distributions en charge ionique et énergie cinétique des produits de fission.

Les distributions en charge ionique ont montré la présence de plusieurs isomères nanosecondes dans cette région de la fission.

La forme asymétrique des distributions en énergie cinétique reste plus complexe et ne trouve toujours pas d'explication tout à fait satisfaisante. Cependant, les différentes études menées au cours de ces trois années montrent que ces formes ne peuvent pas s'expliquer par la perte d'énergie cinétique dans les cibles, contrairement aux idées préconçues. Elle n'est également pas le résultat de l'évaporation des neutrons prompts par les fragments de fission, ni de la superposition des distributions des différents isomères présents pour une même masse.

Dans la suite la mesure des rendements des produits de fission lourds pour d'autre système fissionnant est prévue, notamment en collaboration avec le CNRS, qui s'intéresse par exemple au Thorium ou à l' ^{233}U .

Il est maintenant intéressant pour la physique des réacteurs d'effectuer des calculs de chaleur résiduelle à partir des rendements indépendants obtenus lors de ce travail.

Mais au-delà des rendements d'autres études intéressantes sont à considérer quant aux phénomènes physiques, comme l'étude complète des distribution en charge ionique et énergie cinétique des noyaux possédant au moins un isomère nanoseconde.

Annexe A

Démonstration de l'équation de calcul de rendement

$$Y(A) = \sum_{\mathbf{z}} \sum_i \int_{\mathbf{E}_k} Y(A, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_k) d\mathbf{E}_k$$

Pour plus de clarté dans la démonstration, la somme discrète sur les charges ioniques sera remplacée par une somme continue, et la somme sur les charges nucléaires implicite :

$$Y(A) = \int_q \int_{E_k} Y(A, q, E_k) dq dE_k$$

Cas de deux distributions gaussiennes indépendantes en charge ionique et énergie cinétique

Le rendement $Y(A)$ de la masse A dépend de la contribution des charges ioniques et des énergies cinétiques. Elle peut donc être exprimée comme étant le produit de deux fonctions, avec une première fonction $f(q)$ qui dépend uniquement des charges ioniques, et une seconde fonction $g(E_k)$ qui elle ne dépend que des énergies cinétiques. Cette écriture n'est possible que si les charges ioniques et les énergies cinétiques ne sont pas corrélées :

$$Y(A) = \int_q \int_{E_k} f(q) g(E_k) dq dE_k$$

donc

$$Y(A, q, E_k) = f(q) g(E_k)$$

Pour des distributions en charge ionique et énergie cinétique gaussiennes, les fonctions $f(q)$ et $g(E_k)$ s'écrivent alors :

$$f(q) = I_f \frac{1}{\sigma_q \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q - \langle q \rangle)^2}{2\sigma_q^2}}$$

et

$$g(E_k) = I_g \frac{1}{\sigma_{E_k} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_k \rangle)^2}{2\sigma_{E_k}^2}}$$

La valeur du rendement $Y(A)$ prend alors la valeur de :

$$Y(A) = I_f I_g$$

Soient $R(A, q_i)$ et $S(A, E_{k_j})$ les intégrales des distributions tels que :

$$R(A, q_i) = \int_{E_k} Y(A, q_i, E_k) dE_k = \int_{E_k} f(q_i) g(E_k) dE_k = I_g f(q_i)$$

$$S(A, E_{k_j}) = \int_q Y(A, q, E_{k_j}) dq = \int_q f(q) g(E_{k_j}) dq = I_f g(E_{k_j})$$

d'où :

$$R(A, q_i) \times S(A, E_{k_j}) = I_f g(E_{k_j}) \times I_g f(q_i) = I_f I_g g(E_{k_j}) f(q_i) = Y(A) Y(A, q_i, E_{k_j})$$

$$\mathbf{Y}(\mathbf{A}) = \frac{\mathbf{R}(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i) \times \mathbf{S}(\mathbf{A}, \mathbf{E}_{k_j})}{(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})} \quad \text{cqfd.}$$

Cas de deux distributions indépendantes en charge ionique et énergie cinétique ajustées par deux gaussiennes

De la même manière que précédemment, on retrouve l'équation :

$$Y(A) = \int_q \int_{E_k} Y(A, q, E_k) dq dE_k = \int_q \int_{E_k} f(q) g(E_k) dq dE_k$$

avec cette fois pour fonctions :

$$f(q) = I_{f1} \frac{1}{\sigma_{q1} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q - \langle q_1 \rangle)^2}{2\sigma_{q1}^2}} + I_{f2} \frac{1}{\sigma_{q2} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q - \langle q_2 \rangle)^2}{2\sigma_{q2}^2}}$$

et

$$g(E_k) = I_{g1} \frac{1}{\sigma_{E_{k1}} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_{k1} \rangle)^2}{2\sigma_{E_{k1}}^2}} + I_{g2} \frac{1}{\sigma_{E_{k2}} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_{k2} \rangle)^2}{2\sigma_{E_{k2}}^2}}$$

$Y(A)$ prend alors la valeur de :

$$Y(A) = (I_{f1} + I_{f2}) (I_{g1} + I_{g2})$$

avec

$$R(A, q_i) = \int_{E_k} Y(A, q_i, E_k) dE_k = \int_{E_k} f(q_i) g(E_k) dE_k = (I_{g1} + I_{g2}) f(q_i)$$

$$S(A, E_{k_j}) = \int_q Y(A, q, E_{k_j}) dq = \int_q f(q) g(E_{k_j}) dq = (I_{f1} + I_{f2}) g(E_{k_j})$$

d'où :

$$R(A, q_i) \times S(A, E_{k_j}) = (I_{f1} + I_{f2}) g(E_{k_j}) \times (I_{g1} + I_{g2}) f(q_i)$$

$$= (I_{f1} + I_{f2}) (I_{g1} + I_{g2}) g(E_{k_j}) f(q_i) = Y(A) Y(A, q_i, E_{k_j})$$

$$\mathbf{Y}(\mathbf{A}) = \frac{\mathbf{R}(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i) \times \mathbf{S}(\mathbf{A}, \mathbf{E}_{k_j})}{(\mathbf{A}, \mathbf{q}_i, \mathbf{E}_{k_j})} \quad \text{cqfd.}$$

Ce résultat souligne le fait que quelque soit la fonction utilisée pour ajuster les distributions en charge ionique ou en énergie cinétique, simple ou double gaussiennes, l'équation ci-dessus reste valable, à condition qu'il n'y ait pas de corrélation entre les charges ioniques et les énergies cinétiques.

Cas de deux distributions en charge et en énergie ajustées par deux gaussiennes en considérant une corrélation entre charge ionique et énergie cinétique

La formule de Shima (chapitre 4.3.4) ainsi que la référence [79] montrent explicitement une dépendance de la charge ionique des produits de fission en fonction de leur énergie cinétique après la traversée de la cible et de la feuille de Nickel. En revanche, l'énergie cinétique n'a pas de raison évidente de dépendre de la charge ionique.

Pour tenir compte de ces propriétés, il faut ajouter un terme de corrélation de la charge en fonction de l'énergie :

$$Y(A) = \int_q \int_{E_k} Y(A, q(E_k), E_k) dq dE_k = \int_q \int_{E_k} f(q(E_k)) g(E_k) dq dE_k$$

avec cette fois pour fonctions :

$$f(q(E_k)) = \left(I_{f1} \frac{1}{\sigma_{q1} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q(E_k) - \langle q_1 \rangle)^2}{2\sigma_{q1}^2}} + I_{f2} \frac{1}{\sigma_{q2} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(q(E_k) - \langle q_2 \rangle)^2}{2\sigma_{q2}^2}} \right) \cdot C(q, E_k)$$

et

$$g(E_k) = I_{g1} \frac{1}{\sigma_{E_{k1}} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_{k1} \rangle)^2}{2\sigma_{E_{k1}}^2}} + I_{g2} \frac{1}{\sigma_{E_{k2}} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(E_k - \langle E_{k2} \rangle)^2}{2\sigma_{E_{k2}}^2}}$$

avec

$$R(A, q_i) = \int_{E_k} Y(A, q_i, E_k) dE_k = \int_{E_k} f(q_i) g(E_k) dE_k = (I_{g1} + I_{g2}) f(q_i)$$

$$S(A, E_{k_j}) = \int_q Y(A, q(E_k), E_{k_j}) dq = \int_q f(q) g(E_{k_j}) dq = (I_{f1} + I_{f2}) g(E_{k_j}) \chi(q, E_k)$$

d'où :

$$\begin{aligned} R(A, q_i) \times S(A, E_{k_j}) &= (I_{f1} + I_{f2}) g(E_{k_j}) \chi(q, E_k) \times (I_{g1} + I_{g2}) f(q_j) \\ &= (I_{f1} + I_{f2}) (I_{g1} + I_{g2}) g(E_{k_j}) f(q_j) \chi(q, E_k) = Y(A) Y(A, q_i, E_{k_j}) \chi(q, E_k) \end{aligned}$$

$$\mathbf{Y(A)} = \frac{\mathbf{R(A, q_i)} \times \mathbf{S(A, E_{k_j})}}{(\mathbf{A, q_i, E_{k_j}}) \chi(\mathbf{q, E_k})}$$

Avec le terme $\chi(q, E_k)$ qui représente la corrélation entre charge ionique et énergie cinétique impossible à évaluer avec ces études.

Annexe B

Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution

| Masse | $\langle q \rangle$ | σ_q |
|-------|---------------------|-------------|
| 122 | 21,7 ± 0,3 % | 1,8 ± 4,3 % |
| 123 | 21,4 ± 0,4 % | 2,2 ± 4,0 % |
| 124 | 21,6 ± 1,0 % | 2,4 ± 3,3 % |
| 125 | 21,6 ± 1,0 % | 2,5 ± 4,4 % |
| 126 | 21,8 ± 1,0 % | 2,6 ± 2,3 % |
| 127 | 21,6 ± 1,0 % | 2,4 ± 3,0 % |
| 128 | 21,7 ± 1,0 % | 2,4 ± 3,3 % |
| 129 | 21,6 ± 1,0 % | 2,3 ± 3,9 % |
| 130 | 21,6 ± 1,0 % | 2,4 ± 3,3 % |
| 131 | 21,8 ± 1,0 % | 2,5 ± 0,4 % |
| 132 | 22,1 ± 1,0 % | 2,8 ± 0,6 % |
| 133 | 21,7 ± 1,0 % | 2,5 ± 0,9 % |
| 134 | 22,1 ± 1,0 % | 2,7 ± 0,8 % |
| 135 | 22,5 ± 1,0 % | 3,3 ± 0,4 % |
| 136 | 22,2 ± 1,0 % | 3,0 ± 1,0 % |
| 137 | 23,3 ± 1,0 % | 3,9 ± 0,3 % |
| 138 | 22,3 ± 1,0 % | 3,7 ± 0,8 % |
| 139 | 22,9 ± 1,0 % | 3,6 ± 1,2 % |
| 140 | 22,9 ± 1,0 % | 4,4 ± 2,2 % |
| 141 | 22,8 ± 1,0 % | 4,0 ± 0,2 % |
| 142 | 22,7 ± 1,0 % | 4,0 ± 0,3 % |
| 143 | 22,6 ± 1,0 % | 3,9 ± 0,6 % |
| 144 | 22,0 ± 1,0 % | 3,6 ± 1,8 % |
| 145 | 22,5 ± 1,0 % | 3,6 ± 1,8 % |
| 146 | 22,2 ± 1,0 % | 3,4 ± 1,8 % |
| 147 | 22,8 ± 1,0 % | 3,8 ± 0,8 % |
| 148 | 21,7 ± 1,0 % | 3,1 ± 2,0 % |
| 149 | 25,2 ± 1,0 % | 5,7 ± 1,8 % |
| 150 | 24,0 ± 1,0 % | 5,1 ± 1,4 % |

TAB. 7.8 – Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{235}\text{U}(n_{th},f)$.

| Masse | $\langle q \rangle$ | σ_q |
|-------|---------------------|------------------|
| 126 | $22,0 \pm 0,1 \%$ | $2,6 \pm 1,4 \%$ |
| 127 | $21,8 \pm 0,4 \%$ | $2,4 \pm 1,0 \%$ |
| 128 | $21,8 \pm 0,4 \%$ | $2,4 \pm 0,9 \%$ |
| 129 | $21,9 \pm 0,2 \%$ | $2,3 \pm 0,5 \%$ |
| 130 | $22,2 \pm 0,4 \%$ | $2,4 \pm 0,4 \%$ |
| 131 | $22,1 \pm 0,2 \%$ | $2,5 \pm 0,5 \%$ |
| 132 | $22,2 \pm 0,4 \%$ | $2,8 \pm 0,4 \%$ |
| 133 | $22,0 \pm 0,3 \%$ | $2,5 \pm 0,4 \%$ |
| 134 | $22,5 \pm 0,3 \%$ | $2,7 \pm 0,4 \%$ |
| 135 | $21,9 \pm 0,1 \%$ | $3,3 \pm 0,1 \%$ |
| 136 | $22,2 \pm 0,1 \%$ | $3,0 \pm 0,1 \%$ |
| 137 | $21,9 \pm 0,3 \%$ | $3,9 \pm 0,4 \%$ |
| 138 | $22,2 \pm 0,1 \%$ | $3,7 \pm 2,3 \%$ |
| 139 | $22,7 \pm 0,4 \%$ | $3,6 \pm 0,3 \%$ |
| 140 | $25,2 \pm 0,1 \%$ | $4,4 \pm 0,6 \%$ |
| 141 | $23,5 \pm 0,1 \%$ | $4,0 \pm 0,8 \%$ |
| 142 | $23,1 \pm 0,2 \%$ | $4,0 \pm 0,8 \%$ |
| 143 | $23,0 \pm 0,3 \%$ | $3,9 \pm 1,6 \%$ |
| 144 | $23,3 \pm 0,3 \%$ | $3,6 \pm 1,1 \%$ |
| 145 | $23,0 \pm 0,3 \%$ | $3,6 \pm 2,9 \%$ |
| 146 | $22,5 \pm 0,7 \%$ | $3,4 \pm 1,9 \%$ |
| 147 | $23,1 \pm 0,5 \%$ | $3,8 \pm 4,9 \%$ |
| 148 | $23,0 \pm 0,5 \%$ | $3,1 \pm 2,3 \%$ |
| 149 | $25,2 \pm 0,7 \%$ | $5,7 \pm 1,5 \%$ |
| 150 | $24,8 \pm 0,7 \%$ | $5,1 \pm 3,8 \%$ |

TAB. 7.9 – Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

| Masse | $\langle q \rangle$ | σ_q |
|-------|---------------------|------------------|
| 130 | $21,9 \pm 0,2 \%$ | $2,3 \pm 0,4 \%$ |
| 131 | $21,8 \pm 0,2 \%$ | $2,2 \pm 0,5 \%$ |
| 132 | $22,0 \pm 0,2 \%$ | $2,3 \pm 0,4 \%$ |
| 133 | $22,4 \pm 0,1 \%$ | $2,3 \pm 0,1 \%$ |
| 134 | $22,0 \pm 0,1 \%$ | $2,4 \pm 0,6 \%$ |
| 135 | $21,2 \pm 0,2 \%$ | $2,4 \pm 0,6 \%$ |
| 136 | $22,3 \pm 0,1 \%$ | $2,5 \pm 1,6 \%$ |
| 137 | $21,3 \pm 0,1 \%$ | $2,4 \pm 0,4 \%$ |
| 138 | $22,0 \pm 0,2 \%$ | $2,7 \pm 1,5 \%$ |
| 139 | $22,2 \pm 0,2 \%$ | $2,7 \pm 0,7 \%$ |
| 140 | $23,8 \pm 0,2 \%$ | $4,2 \pm 0,2 \%$ |
| 141 | $22,6 \pm 0,1 \%$ | $3,3 \pm 0,6 \%$ |
| 142 | $22,8 \pm 0,1 \%$ | $3,6 \pm 0,3 \%$ |
| 143 | $22,5 \pm 0,3 \%$ | $3,0 \pm 1,0 \%$ |
| 144 | $22,6 \pm 0,3 \%$ | $3,5 \pm 0,6 \%$ |
| 145 | $22,5 \pm 0,6 \%$ | $3,2 \pm 1,2 \%$ |
| 146 | $22,3 \pm 0,7 \%$ | $3,3 \pm 0,9 \%$ |
| 147 | $23,8 \pm 0,5 \%$ | $3,4 \pm 2,0 \%$ |
| 148 | $23,7 \pm 0,7 \%$ | $4,0 \pm 1,0 \%$ |
| 149 | $25,3 \pm 0,5 \%$ | $3,8 \pm 1,6 \%$ |
| 150 | $24,3 \pm 0,6 \%$ | $3,6 \pm 1,7 \%$ |
| 151 | $26,1 \pm 0,5 \%$ | $3,7 \pm 1,6 \%$ |

TAB. 7.10 – Charges ioniques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Annexe C

Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution

| Masse | $\langle E_k \rangle$ | σ_{E_k} |
|-------|-----------------------|----------------|
| 123 | 73,3 ± 5,4 % | 7,2 ± 8,8 % |
| 124 | 75,1 ± 5,3 % | 7,9 ± 8,9 % |
| 125 | 74,5 ± 5,3 % | 6,7 ± 9,4 % |
| 126 | 73,8 ± 5,2 % | 7,5 ± 10,3 % |
| 127 | 75,9 ± 4,9 % | 7,4 ± 12,9 % |
| 128 | 78,5 ± 5,3 % | 7,4 ± 6,6 % |
| 129 | 81,5 ± 5,6 % | 6,0 ± 8,6 % |
| 130 | 83,0 ± 4,9 % | 5,2 ± 11,7 % |
| 131 | 81,2 ± 5,1 % | 5,5 ± 12,2 % |
| 132 | 80,1 ± 4,8 % | 5,3 ± 14,1 % |
| 133 | 78,2 ± 4,5 % | 6,1 ± 13,3 % |
| 134 | 76,9 ± 5,0 % | 5,9 ± 11,9 % |
| 135 | 73,8 ± 5,5 % | 6,4 ± 10,3 % |
| 136 | 72,9 ± 4,9 % | 5,8 ± 12,2 % |
| 137 | 72,5 ± 5,4 % | 6,1 ± 9,5 % |
| 138 | 70,4 ± 5,2 % | 6,2 ± 11,9 % |
| 139 | 69,2 ± 5,1 % | 6,8 ± 15,1 % |
| 140 | 68,9 ± 5,5 % | 6,7 ± 11,7 % |
| 141 | 68,9 ± 6,0 % | 5,4 ± 14,3 % |
| 142 | 66,9 ± 5,6 % | 5,1 ± 11,7 % |
| 143 | 65,8 ± 7,5 % | 5,4 ± 13,8 % |
| 144 | 64,7 ± 6,5 % | 4,8 ± 11,7 % |
| 145 | 64,9 ± 7,6 % | 5,2 ± 13,6 % |
| 146 | 62,6 ± 6,4 % | 5,5 ± 13,6 % |
| 147 | 61,7 ± 6,7 % | 4,9 ± 13,2 % |
| 148 | 60,3 ± 7,0 % | 5,0 ± 12,4 % |
| 149 | 59,0 ± 6,9 % | 5,5 ± 15,7 % |
| 150 | 58,3 ± 7,5 % | 5,4 ± 10,0 % |
| 151 | 58,2 ± 9,2 % | 6,2 ± 13,2 % |
| 152 | 55,8 ± 7,6 % | 5,2 ± 13,9 % |

TAB. 7.11 – Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$.

| Masse | $\langle E_k \rangle$ | σ_{E_k} |
|-------|-----------------------|----------------|
| 126 | 81,6 ± 5,7 % | 7,7 ± 9,4 % |
| 127 | 80,3 ± 5,8 % | 7,5 ± 9,3 % |
| 128 | 80,8 ± 5,8 % | 7,3 ± 11,8 % |
| 129 | 82,3 ± 5,4 % | 7,0 ± 11,4 % |
| 130 | 81,2 ± 5,7 % | 7,7 ± 7,9 % |
| 131 | 78,4 ± 5,3 % | 6,8 ± 10,3 % |
| 132 | 78,8 ± 5,9 % | 7,0 ± 10,6 % |
| 133 | 78,4 ± 6,0 % | 7,6 ± 9,3 % |
| 134 | 78,0 ± 5,5 % | 7,5 ± 8,9 % |
| 135 | 75,1 ± 5,6 % | 6,9 ± 10,5 % |
| 136 | 72,1 ± 6,7 % | 7,1 ± 9,7 % |
| 137 | 72,4 ± 6,7 % | 7,3 ± 10,1 % |
| 138 | 71,7 ± 6,8 % | 7,0 ± 10,2 % |
| 139 | 69,1 ± 7,2 % | 7,1 ± 10,2 % |
| 140 | 69,9 ± 10,2 % | 7,4 ± 10,3 % |
| 141 | 67,0 ± 9,6 % | 6,5 ± 11,4 % |
| 142 | 66,7 ± 8,1 % | 6,2 ± 12,5 % |
| 143 | 67,3 ± 7,4 % | 5,5 ± 13,2 % |
| 144 | 64,8 ± 7,4 % | 6,3 ± 12,9 % |
| 145 | 61,0 ± 8,5 % | 6,5 ± 13,2 % |
| 146 | 62,1 ± 7,7 % | 6,0 ± 12,0 % |
| 147 | 58,7 ± 9,3 % | 6,9 ± 11,4 % |
| 148 | 59,4 ± 12,7 % | 6,0 ± 13,2 % |
| 149 | 56,3 ± 11,4 % | 6,4 ± 13,8 % |
| 150 | 57,3 ± 9,0 % | 6,3 ± 13,4 % |

TAB. 7.12 – Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

| Masse | $\langle E_k \rangle$ | σ_{E_k} |
|-------|-----------------------|-------------------|
| 130 | $81,2 \pm 5,7 \%$ | $8,1 \pm 9,3 \%$ |
| 131 | $80,3 \pm 5,9 \%$ | $7,9 \pm 11,2 \%$ |
| 132 | $78,5 \pm 5,9 \%$ | $7,9 \pm 11,8 \%$ |
| 133 | $75,4 \pm 6,2 \%$ | $8,4 \pm 10,6 \%$ |
| 134 | $73,5 \pm 6,6 \%$ | $8,3 \pm 10,1 \%$ |
| 135 | $72,8 \pm 6,5 \%$ | $8,5 \pm 10,7 \%$ |
| 136 | $71,7 \pm 6,8 \%$ | $8,3 \pm 10,4 \%$ |
| 137 | $71,1 \pm 6,9 \%$ | $8,3 \pm 11,1 \%$ |
| 138 | $70,2 \pm 6,9 \%$ | $7,6 \pm 11,7 \%$ |
| 139 | $66,8 \pm 8,1 \%$ | $7,9 \pm 11,4 \%$ |
| 140 | $68,3 \pm 9,7 \%$ | $6,8 \pm 12,8 \%$ |
| 141 | $65,7 \pm 10,5 \%$ | $7,4 \pm 12,4 \%$ |
| 142 | $65,7 \pm 7,8 \%$ | $6,7 \pm 14,1 \%$ |
| 143 | $64,1 \pm 7,6 \%$ | $6,4 \pm 14,3 \%$ |
| 144 | $64,7 \pm 7,6 \%$ | $6,8 \pm 13,4 \%$ |
| 145 | $62,4 \pm 7,9 \%$ | $6,2 \pm 12,3 \%$ |
| 146 | $62,5 \pm 8,1 \%$ | $6,3 \pm 12,9 \%$ |
| 147 | $60,2 \pm 8,8 \%$ | $6,9 \pm 11,8 \%$ |
| 148 | $60,3 \pm 8,6 \%$ | $6,1 \pm 12,4 \%$ |
| 149 | $57,2 \pm 9,9 \%$ | $6,9 \pm 14,9 \%$ |
| 150 | $57,6 \pm 10,5 \%$ | $6,5 \pm 15,2 \%$ |
| 151 | $55,1 \pm 10,2 \%$ | $6,4 \pm 13,2 \%$ |

TAB. 7.13 – Energies cinétiques moyennes et largeurs de distribution pour la réaction $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Annexe D

Bases de données utilisées pour la détermination des
rendements isotopiques du
 $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$

| Masse A | Z | E_{γ} [keV] | B.R. (%) | Base de donnée utilisée |
|-----------|-----------------------|--------------------|----------------|-------------------------|
| 93 | 36 | 253,4 | $41,2 \pm 2,6$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 323,9 | $24,1 \pm 1,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 37 | 432,6 | $20,2 \pm 2$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 986,1 | $7,9 \pm 0,9$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 38 | 590,3 | $68 \pm 4,8$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 875,7 | $24,5 \pm 1,7$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| 94 | 37 | 836,9 | $87,0 \pm 3,0$ | <i>NNDC</i> |
| | | 1309,1 | $14,2 \pm 8,0$ | <i>NNDC</i> |
| | 38 | 1427,7 | $94 \pm 0,7$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 723,8 | $2,4 \pm 0,13$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 39 | 918,7 | 56 ± 3 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 1138,9 | $6 \pm 0,5$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| 95 | 37 | 352 | 59 ± 2 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 204 | $18,2 \pm 1,1$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 38 | 685,6 | $22,6 \pm 1,2$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 2717,3 | $4,6 \pm 0,6$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 39 | 954 | $15,8 \pm 0,7$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 2175,6 | $7 \pm 0,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| 96 | 38 | 122,3 | $76,5 \pm 1,2$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 809,4 | $71,9 \pm 2,6$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 39^m | 914,8 | $59,7 \pm 2,7$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 617,2 | $57,9 \pm 2,7$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| 98 | 38 | 119,4 | $72,9 \pm 4,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 444,6 | $33 \pm 4,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 39 | 2941,3 | $16,9 \pm 1,6$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 1590,9 | $14,8 \pm 1,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 39^m | 620,5 | $66,1 \pm 3,8$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 647,6 | $52,2 \pm 2,9$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| 99 | 38 | 125,1 | $16,1 \pm 2,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 1198,1 | $9,2 \pm 2,2$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 39 | 121,8 | 44 ± 3 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 724,2 | $18,5 \pm 2,2$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 40 | 469,1 | $54,9 \pm 1,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 546,1 | $48,3 \pm 2,1$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 41 | 137,7 | $90,6 \pm /$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 41^m | 97,8 | $6,7 \pm 0,8$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 253,5 | $3,7 \pm 0,5$ | <i>JEFF-3.1</i> |

TAB. 7.14 – Raies γ et rapports d'embranchement utilisés dans la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

| Masse A | Z | E _γ [keV] | B.R. (%) | Base de donnée utilisée |
|------------|-----------------------|----------------------|-------------|-------------------------|
| 133 | 51 | 1096,2 | 43 ± 2,38 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 817,8 | 18,5 ± 1,92 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 52 | 312,1 | 62,4 ± 0,5 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 407,6 | 21,7 ± 0,5 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 52^m | 863,9 | 15,6 ± 0,8 | <i>JEFF-3.1</i> |
| 134 | 51^m | 1279 | 100 ± 5 | <i>LBNL</i> |
| | | 297 | 97 ± 5 | <i>LBNL</i> |
| | 52 | 767,2 | 29,6 ± 0,6 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 210,5 | 22,4 ± 0,8 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 53 | 847 | 95,4 ± 1,9 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 884,1 | 64,9 ± 1,9 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 53^m | 272,1 | 79,1 ± 3,0 | <i>JEFF-3.1</i> |
| 136 | 52 | 2077,9 | 22,4 ± 2,5 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 333,9 | 18,8 ± 2,1 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 53 | 1321,1 | 24,8 ± 1,8 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 53^m | 381,4 | 100 ± 6 | <i>LBNL</i> |
| 137 | 53 | 1218 | 13,1 ± 0,9 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 601,1 | 5,8 ± 1 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 54 | 455,5 | 31,2 ± 0,5 | <i>JEFF-3.1</i> |
| 138 | 53 | 588,8 | 54,0 ± 6,29 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 875,2 | 8,9 ± 1,25 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 54 | 258,4 | 31,5 ± 1,3 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 434,6 | 20,3 ± 0,8 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 55 | 1009,8 | 29,8 ± 0,6 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 55^m | 191,9 | 15,4 ± 1,7 | <i>JEFF-3.1</i> |
| 139 | 53 | 571,2 | 8,3 ± 0,7 | <i>ENDF/B-VI.8</i> |
| | | 588,8 | 5,7 ± 0,2 | <i>ENDF/B-VI.8</i> |
| | 54 | 218,6 | 56 ± 6,0 | <i>ENDF/B-VI.8</i> |
| | | 296,5 | 21,7 ± 2,4 | <i>ENDF/B-VI.8</i> |
| | 55 | 1283,2 | 7,1 ± 1,5 | <i>ENDF/B-VI.8</i> |
| | | 627,2 | 1,5 ± 0,3 | <i>ENDF/B-VI.8</i> |
| 140 | 53 | 376,6 | 90 ± / | <i>LBNL</i> |
| | 54 | 805,5 | 20 ± / | <i>LBNL</i> |
| | | 1413,6 | 12,2 ± 12 | <i>LBNL</i> |
| | 55 | 602,3 | 52,5 ± 16 | <i>LBNL</i> |
| | | 908,3 | 8,56 ± 21 | <i>LBNL</i> |
| 141 | 55 | 561,6 | 4,7 ± 0,4 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 1194 | 4,0 ± 0,3 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 56 | 190,3 | 46 ± 3,3 | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 304,2 | 25,4 ± 1,8 | <i>JEFF-3.1</i> |

TAB. 7.15 – Raies γ et rapports d'embranchement utilisés dans la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

| Masse A | Z | E_γ [keV] | B.R. (%) | Base de donnée utilisée |
|---------|-----------------|------------------|-----------------|-------------------------|
| 142 | 55 | 359,6 | $27,2 \pm 2,7$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 1326,5 | $12,9 \pm 1,3$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 56 | 255,3 | $20,5 \pm 0,8$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 1204,3 | $14,2 \pm 0,5$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 57 | 641,3 | $47,4 \pm 0,5$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| 143 | 56 | 211,5 | $25,0 \pm /$ | <i>LBNL</i> |
| | | 798,8 | $15,6 \pm 3,0$ | <i>LBNL</i> |
| | 57 | 620,3 | $2,3 \pm 12,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 643,8 | $1,6 \pm 8,0$ | <i>LBNL</i> |
| 144 | 56 | 103,9 | $23,3 \pm 12,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 430,5 | $18,3 \pm 4,0$ | <i>LBNL</i> |
| | 57 | 397,4 | $94,3 \pm 16,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 541,2 | $39,2 \pm 8,0$ | <i>LBNL</i> |
| 145 | 56 | 96,6 | $17 \pm /$ | <i>LBNL</i> |
| | | 91,9 | $7 \pm /$ | <i>LBNL</i> |
| | 57 | 70 | $10,8 \pm 1,9$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 355,8 | $3,8 \pm 0,7$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 118,2 | $3,6 \pm 0,6$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 58 | 724,3 | $44,0 \pm 6,0$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 1148 | $9,6 \pm 1,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| 146 | 56 | 140,7 | $20,2 \pm 4,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 251,2 | $19,6 \pm 5,0$ | <i>LBNL</i> |
| | 57 | 924,6 | $7,5 \pm 0,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 666,1 | $6,4 \pm 0,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 57 ^m | 514,6 | $23,8 \pm 19,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 502,9 | $19,7 \pm 15,0$ | <i>LBNL</i> |
| | 58 | 316,7 | $56,2 \pm 3,0$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 218,2 | $20,8 \pm 1,2$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| 147 | 57 | 117,7 | $12,0 \pm 1,0$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 186,3 | $6,5 \pm 0,6$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 58 | 268,8 | $6,3 \pm 0,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 92,9 | $4,0 \pm 0,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| 148 | 57 | 158,5 | $55,6 \pm 1,4$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | | 989,9 | $9,3 \pm 0,3$ | <i>JEFF-3.1</i> |
| | 58 | 269,5 | $17,0 \pm 9,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 291,7 | $16,7 \pm 8,0$ | <i>LBNL</i> |

TAB. 7.16 – Raies γ et rapports d'embranchement utilisés dans la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

| Masse A | Z | E_γ [keV] | B.R. (%) | Base de donnée utilisée |
|------------|-----------|------------------|----------------|-------------------------|
| 151 | 59 | 484,5 | $9,3 \pm 5,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 495,3 | $8,5 \pm 6,0$ | <i>LBNL</i> |
| | 60 | 116,8 | $39 \pm 5,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 255,7 | $14,8 \pm 3,0$ | <i>LBNL</i> |
| 152 | 59 | 226,7 | $7,8 \pm 4,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 297,6 | $5,9 \pm 3,0$ | <i>LBNL</i> |
| | 60 | 278,6 | $29 \pm 17,0$ | <i>LBNL</i> |
| | | 250,2 | $18,3 \pm 9,0$ | <i>LBNL</i> |

TAB. 7.17 – Raies γ et rapports d'embranchement utilisés dans la détermination des rendements isotopiques du $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$.

Bibliographie

- [1] J.L. Rowlands et al., “Fission product data needs for reactor applications”, *Proc. Spec. Mtg.*, pp. 12–38, 1992.
- [2] D.W. Wootan et al., “Irradiation tests of ^{99}Tc and ^{239}I transmutation in the fast flux test facility”, *Trans. An. Nucl. Soc.*, vol. 64, pp. 125, 1991.
- [3] L. Mathieu, “Delayed neutron emission measurement”, *Note Technique DEN/DER/SPRC/LEPh CEA Cadarache n°08-218*, 2009.
- [4] O. Serot et al., “Comparative study of certain aspects of the JEFF3.1 (UKFY3.6), JEF2.2 (UKFY2), JENDL – 3.3 and BVI.8 fission yields files”, *JEF/doc-1078*, 2005.
- [5] R.W. Mills, *Fission product yield evaluation*, Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Birmingham, 1995.
- [6] F. Gönnenwein, “Tip model of cold fission”, *Nucl. Phys. A*, vol. 530, pp. 27–57, 1991.
- [7] S.B. Duarte, “Cold fission description with constant and varying mass asymmetries”, *Phys. Rev. C*, vol. 57, pp. 2516–2522, 1998.
- [8] M. Montoya, “Mass and kinetic energy distribution in cold fission of ^{233}U , ^{235}U and ^{239}Pu induced by thermal neutrons”, *Zeit. für Phys. A Had. & Nucl.*, vol. 319, pp. 219–225, 1984.
- [9] W. Lang, “Nuclear charge and mass yields for $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ as a function of the kinetic energy of the fission products”, *Nucl. Phys. A*, vol. 345, pp. 34–71, 1980.
- [10] L. Meitner et al., “Disintegration of Uranium by neutrons : a new type of nuclear reaction”, *Nat.*, vol. 143, pp. 239–240, 1939.
- [11] C. Wagemans, *The nuclear fission process*, CRC Press, 1991.
- [12] J.F. Berger et al., “Ecole joliot-curie de physique nucléaire”, Maubuisson, 2006.
- [13] P. Möller et al., “Nuclear ground-state masses and deformations”, *Atom. Data and Nucl. Data Tabl.*, vol. 59, pp. 185–381, 1995.
- [14] V.M. Strutinsky, “Shell effects in nuclear masses and deformation energies”, *Nucl. Phys. A*, vol. 122, pp. 1–33, 1968.
- [15] V.M. Strutinsky, “”Shells” in deformed nuclei”, *Nucl. Phys. A*, vol. 95, pp. 420–442, 1967.
- [16] P. Möller et al., “Nuclear fission modes and fragment mass asymmetries in a five-dimensional deformation space”, *Nat.*, vol. 406, pp. 785–789, 2001.
- [17] P. Möller et al., “New developments in the calculation of heavy element fission barriers”, *Nucl. Phys. A*, vol. 492, pp. 349–387, 1989.
- [18] P. Möller et al., “Five-dimensional potential energy surfaces and coexisting fission modes in heavy nuclei”, *AIP Conference Proceedings*, vol. 561, pp. 455–463, 2001.
- [19] P. Möller et al., “Realistic fission saddle-point shapes”, *Phys. Rev. C*, vol. 61, pp. 047602 :1–4, 2000.

- [20] A. Mamdouh et al., “Large-scale fission-barrier calculations with the etfsi method”, *Nucl. Phys. A*, vol. 644, pp. 389–414, 1998.
- [21] U. Brosa et al., “In the exit channel of nuclear fission”, *Z. Phys. A*, vol. 310, pp. 177–187, 1983.
- [22] U. Brosa et al., “Multimodal fission and neutron evaporation”, *Phys. Rev. C*, vol. 38, pp. 1944–1947, 1988.
- [23] W. Myers, “Nuclear masses and deformations”, *Nucl. Phys.*, vol. 81, pp. 1, 1966.
- [24] U. Brosa et al., “Systematics of fission-channel probabilities”, *Phys. Rev. C*, vol. 59, pp. 767–775, 1999.
- [25] L.G. Moretto, “Pairing fluctuations in excited nuclei and the absence of a second order phase transition”, *Phys. Lett. B*, vol. 40, pp. 1–4, 1972.
- [26] H.J. Krappe et al., “Proc. third int. atomic en. symp. on physics and chemistry of fission”, Rochester, 1973, vol. 1, p. 159.
- [27] D.N. Poenaru, *Experimental techniques in nuclear physics*, Walter de Gruyter, 1997.
- [28] H. Goutte et al., “Mass and kinetic energy distributions of fission fragments using the time dependent generator coordinate method”, *Nucl. Phys. A*, 2004.
- [29] J.F. Berger et al., “Microscopic analysis of collective dynamics in low energy fission”, *Nucl. Phys. A*, 1984.
- [30] J.F. Berger et al., “Time-dependent quantum collective dynamics applied to nuclear fission”, *Comp. Phys. Comm.*, 1991.
- [31] H. Goutte et al., “Microscopic approach of fission dynamics applied to fragment kinetic energy and mass distributions in ^{238}U ”, *Phys. Rev. C*, 2005.
- [32] M. Soyeur, *Quelques aspects de la méthode de la coordonnée génératrice*, CEA-IN2P3, 1971.
- [33] A. Wahl, “Nuclear-charge distribution and delayed-neutron yields for thermal-neutron-induced fission of ^{235}U , ^{233}U , and ^{239}Pu and for spontaneous fission of ^{252}Cf ”, *Atom. Data and Nucl. Data Tabl.*, vol. 39, pp. 1–156, 1988.
- [34] B. Nimal et al., “Méthode de calcul des rendements indépendants de fission”, *Note interne*, 1983.
- [35] F. Caitucoli, *Mécanisme de fission nucléaire : contribution à l'étude des différents modes de fragmentation du noyau*, Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Bordeaux I, Bordeaux-Gradignan, 1985.
- [36] G. Barreau et al., “Fission-fragment energy correlation measurements for $^{252}\text{Cf}(\text{sf})$ and structures in far-out asymmetric fission”, *Nucl. Phys. A*, vol. 432, pp. 411–420, 1985.
- [37] E. Birgersson et al., “properties of the reaction $^{238}\text{Uf}(\text{n},\text{f})$ at the vibrational resonances”, *Nucl. Phys. A*, vol. 817, pp. 1–34, 2009.
- [38] P. Ambruster et al., “Low energy fission investigated in reactions of 750 AMeV ^{238}U -ions with Pb and Be targets”, *Z. Phys. A*, vol. 355, pp. 191–201, 1996.
- [39] P. Ambruster et al., “Measurement of a complete set of nuclides, cross sections, and kinetic energies in spallation of U^{238} at 1AGeV with protons”, *Phys. Rev. Lett.*, vol. 93, pp. 212701 :1–4, 2004.
- [40] M. Bernas et al., “Fission-residues produced in the spallation reaction $^{238}\text{U}+\text{p}$ at 1 AGeV”, *Nucl. Phys. A*, vol. 725, pp. 213–253, 2003.

- [41] M. Bernas et al., “Very heavy fission fragments produced in the spallation reaction $^{238}\text{U}+\text{p}$ at 1 AGeV”, *Nucl. Phys. A*, vol. 765, pp. 197–210, 2006.
- [42] K.H. Schmidt et al., “Relativistic radioactive beams : A new access to nuclear-fission studies”, *Nucl. Phys. A*, vol. 665, pp. 221–267, 2000.
- [43] V. Nesvizhevsky et al., “Search for quantum states of the neutron in a gravitational field : gravitational levels”, *Nucl. Instr. & Meth. A*, vol. 440, pp. 754–750, 2000.
- [44] V. Nesvizhevsky et al., “Quantum states of neutrons in the earth’s gravitational field”, *Nat.*, vol. 415, pp. 297–299, 2002.
- [45] K. Eberhardt et al., “Preparation of targets by electrodeposition for heavy element studies”, *Nucl. Instr. & Meth. A*, vol. 521, pp. 208–213, 2004.
- [46] L.V. Drapchinsky et al., “Practice of using the multiple painting method”, *Nucl. Instr. & Meth. A*, vol. 438, pp. 116–118, 1999.
- [47] E. Moll et al., “A mass spectrometer for the investigation of fission products”, Marburg, 1970, pp. 241–254.
- [48] E. Moll et al., “Optical performance of the recoil mass spectrometer LOHENGRIN”, Sweden, 1973, pp. 249–254.
- [49] G. Fioni et al., “Reduction of energy dispersion on a parabola mass spectrometer”, *Nucl. Instr. & Meth. A*, vol. 332, pp. 175–180, 1993.
- [50] Z. Brissot et al., “Characteristic of mass and nuclear charge distributions of $^{229}\text{Th}(n_{th},f)$ ”, *Z. Phys. A*, vol. 335, pp. 41–48, 1990.
- [51] U. Quade et al., “Nuclear yields of light fission products from thermal neutron induced fission of ^{233}U at different kinetic energies”, *Nucl. Phys. A*, vol. 487, pp. 1–36, 1988.
- [52] U. Quade, *Messung des Ausbeuten der Leichten Spaltprodukte aus der Reaktion $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ mit einer ionisationskammer*, Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Munich, 1983.
- [53] H.G. Clerc et al., “Nuclear charge distribution of mass-separated isobars from thermal neutron induced fission of ^{235}U ”, *Nucl. Phys. B*, vol. 53, pp. 45–47, 1974.
- [54] G. Sieger et al., “Direct determination of the nuclear charge distribution of mass separated fission products from $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ ”, *Nucl. Phys. B*, vol. 53, pp. 45–47, 1974.
- [55] H. Wohlfarth, *Massenausbeuten bei der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ als Funktion der kinetischen Energie und der Ionenladung der Spaltprodukte*, Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Darmstadt, 1976.
- [56] J.L. Sida et al., “Mass charge, and energy distributions in very asymmetric thermal fission of ^{235}U ”, *Nucl. Phys. A*, vol. 502, pp. 233–242, 1989.
- [57] G. Martinez et al., “Mass and nuclear charge yields for $^{237}\text{Np}(n_{th},f)$ at different fission product kinetic energies”, *Nucl. Phys. A*, vol. 515, pp. 433–465, 1990.
- [58] I. Tsekhanovich et al., “Mass and charge distributions in the very asymmetric mass region of the neutron induced fission of ^{238}Np ”, *Nucl. Phys. A*, vol. 688, pp. 633–658, 2001.
- [59] C. Schmitt et al., “Fission yields at different fission-product kinetic energies for thermal neutron induced fission of ^{239}Pu ”, *Nucl. Phys. A*, vol. 430, pp. 21–60, 1984.
- [60] T. Friedrichs, *Untersuchung der neutroneninduzierten Spaltung von Curium 245 und Plutonium 241*, Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Carolo-Wilhelmina, 1998.

- [61] I. Tsekhanovich et al., “Mass and charge distributions in the very asymmetric thermal neutron induced fission of the Odd – Z nucleus ^{242m}Am ”, *Nucl. Phys. A*, vol. 658, pp. 217–239, 1999.
- [62] D. Rochman et al., “Isotopic yields from the reaction $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ at the Lohengrin mass separator”, *Nucl. Phys. A*, vol. 710, pp. 3–28, 2002.
- [63] M. Djebara et al., “Mass and nuclear charge yields for $^{249}\text{Cf}(n_{th},f)$ at different fission product kinetic energies”, *Nucl. Phys. A*, vol. 496, pp. 346–366, 1989.
- [64] U. Köster et al., “Ternary fission yields of $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ ”, *Nucl. Phys. A*, vol. 652, pp. 371–387, 1999.
- [65] I. Tsekhanovich et al., “Ternary particle yields in $^{249}\text{Cf}(n_{th},f)$ ”, *Phys. Rev. C*, vol. 67, pp. 034610 :1–10, 2003.
- [66] M. Wöstheinrich et al., “Ternary particles from the reactions $^{229}\text{Th}(n_{th},f)$, $^{233}\text{U}(n_{th},f)$ and $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ ”, 1998, vol. 287, p. 330.
- [67] J.A. Pinston et al., “Microsecond isomers in $^{125,127,129}\text{Sn}$ ”, *Phys. Rev. C*, vol. 61, pp. 024312 :1–6, 2000.
- [68] J. Genevey et al., “Identification of microsecond isomers in the fission product of $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ ”, *Phys. Rev. C*, vol. 59, pp. 82–89, 1999.
- [69] *MPAWIN Software Manual, MPA/PC-Multiparameter System*, FAST ComTec Communication Technology, 1995.
- [70] H. Bethe et al., “Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie”, *Annalen der Physik*, vol. 397, pp. 325–400, 1930.
- [71] J.P. Bocquet et al., “A large ionization chamber for fission fragment nuclear charge identification at the LOHENGRIN spectrometer”, *Nucl. Instr. & Meth. A*, vol. 267, pp. 466–472, 1988.
- [72] D.W. Hetherington et al., “Leak rates for air and isobutane through thin polypropylene films”, *Nucl. Instr. & Meth. A*, vol. 242, pp. 270–276, 1986.
- [73] D. Rochman, *Mesure et analyse de la distribution en masse et charge des produits de fission de $^{245}\text{Cm}(n_{th},f)$ grâce au spectromètre de masse Lohengrin*, Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université de Strasbourg, CEA Cadarache : France, 2001.
- [74] J.F. Ziegler et al., *The stopping and range of ions in matter*, Pergamon Press, 1985.
- [75] E. Birgeron et al., “Light fission-fragment mass distribution from the reaction $^{251}\text{Cf}(n_{th},f)$ ”, *Nucl. Phys. A*, vol. 791, pp. 1–23, 2007.
- [76] G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley & Sons Inc, 1999.
- [77] S. Gauthier, “Efficacité relative d’un détecteur de Ge”, *Université de Montréal*.
- [78] Y. Baudinet-Robinet, “Equilibrium charge-state distributions for heavy ions exciting carbon foils”, *Phys. Rev. A*, vol. 26, pp. 62–71, 1982.
- [79] K. Shima et al., “Equilibrium charge state distributions of ions ($Z_1 \geq 4$) after passage through foils : compilation of data after 1972”, *Atom. Dat. & Nucl. Tab.*, vol. 34, pp. 357–391, 1986.
- [80] Y. Baudinet-Robinet, “Analysis of charge-state distributions of heavy ions in carbon foils and gases”, *Atom. Molec. Phys.*, vol. 11, pp. 1291–1302, 1978.
- [81] H. Wohlfarth et al., “The ionic charge distribution of fission products and the influence of internal conversion on highly preionized heavy ions”, *Z. Phys. A*, pp. 153–163, 1978.

- [82] A.D. Belyaev et al., “Some specularities in ionic charge distributions of $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ -fission products”, *Nucl. Instr. & Meth. in Phys. Res. B*, vol. 43, pp. 5–8, 1989.
- [83] B. Crasemann, *Atomic inner-shell processes*, New York-San Francisco-London : Academic Press, 1975.
- [84] V. Nikolaev et al., “On the equilibrium charge distribution in heavy element ion beams”, *Phys. Lett. A*, vol. 28, pp. 277–278, 1968.
- [85] K. Shima et al., “Empirical formula for the average equilibrium charge-state of heavy ions behind various foils”, *Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res.*, vol. 200, pp. 605–608, 1982.
- [86] R. Hentzschel et al., “Mass, charge and energy distributions in the very asymmetric fission of ^{249}Cf induced by thermal neutrons”, *Nucl. Phys. A*, vol. 571, pp. 427–446, 1994.
- [87] H. Baba et al., “Role of effective distance in the fission mechanism study by the double-energy measurement for Uranium isotopes”, *Nucl. Scien. & Techn.*, vol. 34, pp. 871–881, 1997.
- [88] C. Wagemans et al., “Experimental study of some important characteristics of the thermal neutron induced fission of ^{237}Np ”, *Nucl. Phys. A*, vol. 369, pp. 1–14, 1981.
- [89] P. Djachenko et al., “Kinetic energy of fragments at the fission of ^{235}U by neutrons in the energy range 0 – 0.6MeV”, *R YFI*, vol. 8, pp. 7, 1969.
- [90] C. Tsuchiya et al., “Simultaneous measurement of prompt neutrons and fission fragments for $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$ ”, *Nucl. Scien. & Techn.*, vol. 37, pp. 941–948, 2000.
- [91] N. Nishio et al., “Measurement of fragment mass dependent kinetic energy and neutron multiplicity for thermal neutron induced fission of plutonium-239”, *Nucl. Scien. & Techn.*, vol. 32, pp. 404–414, 1995.
- [92] C. Wagemans et al., “Comparison of the energy and mass characteristics of the pu-239(n,f) and pu-240(sf) fragments”, *Phys. Rev. C*, vol. 30, pp. 218–223, 1984.
- [93] W. Surin et al., “Yields and kinetic energies of fragments at the fission of U – 235 and 239 – Pu by 5.5 and 15 MeV neutrons”, *Yader. Fiz.*, vol. 14, pp. 935, 1971.
- [94] V.G. Vorobyeva et al., “Mass yields and kinetic energy of fragments for fission of plutonium isotopes”, *Conf.on Neutron Physics*, vol. 3, pp. 270, 1973.
- [95] F. Caitucoli et al., “Mass and energy characteristics of the $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$ fragments”, *Nucl. Phys. A*, vol. 369, pp. 15–24, 1981.
- [96] A. Guessous, *Etude des distributions en charge et en énergie cinétique des fragments de fission de $^{239}\text{Pu}(n_{th},f)$* , Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université scientifique et médicale de Grenoble, Institut Laue Langevin : France, 1983.
- [97] W. Arafa, *Mesures des distributions de produits de fission pour la réaction $^{237}\text{Np}(2n_{th},f)$* , Thèse de doctorat en physique nucléaire, Université scientifique et médicale de Grenoble, Institut Laue Langevin : France, 1986.
- [98] C. Wagemans et al., “Some users’ comments on the fabrication, assaying and use of samples for nuclear measurements”, *Nucl. Instr. & Meth. Phys. Res. A*, vol. 236, pp. 429–434, 1985.
- [99] O. Hamsch et al., “Fission mode fluctuations in the resonances of $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ ”, *Nucl. Phys. A*, vol. 491, pp. 56–90, 1989.
- [100] H.W. Schmitt et al., “Precision measurements of correlated energies and velocities of ^{252}Cf fission fragments”, *Phys. Rev.*, vol. 137, pp. B837–B847, 1965.

- [101] H. Faust et al., “Higher moments in the kinetic energy distribution of fission products”, *Nucl. Phys. A*, vol. 736, pp. 55–76, 2004.
- [102] Y. Patin et al., “Etude de la dissipation d’énergie dans la fission de ^{234}U à l’aide de la réaction $^{233}\text{U}(\text{d},\text{pf})$ ”, *Phys. Rev. C*, vol. 61, pp. 024312 :1–6, 2000.
- [103] T. Thomas et al., *Proc. Symp. Physics & Chemistry on Fission*, Vol. 1, IAEA, 1966.
- [104] P. Geltenbort et al., “Precision measurements of mean kinetic energy release in thermal-neutron-induced fission of ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu ”, *Radiat. Effects & Techn.*, vol. 93, pp. 57–60, 1986.
- [105] A. Tsoukatos et al., vol. 28, 1968.
- [106] P. Schillebeeckx et al., “Investigation of mass, charge and energy of $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{\text{th}},\text{f})$ fragments with the Cosi-Fan-Tutte spectrometer”, *Nucl. Phys. A*, vol. 580, pp. 15–32, 1994.
- [107] N.A. Gundorin et al., “Comparative measurements of independant yields of Pu-239 fission fragments induced by thermal neutrons”, *Conf.on Nucl.Data for Sci.and Technol.*, p. 139, 1994.
- [108] A.A. Bogdzel et al., “Peculiarities of Pu-239 fission by resonance neutrons”, *Conf.on Nucl.Data for Sci.and Technol.*, p. 150, 1991.
- [109] R. Brissot et al., “Distributions isotopiques des gaz rares dans la fission par neutrons thermiques de ^{239}Pu et ^{241}Pu . evaluation de l’effet de parité en protons”, *Journ. de Phys.*, vol. 37, pp. 241–242, 1976.
- [110] S.J. Balestrini et al., “Independent fission yields of Rb and Cs from thermal-neutron-induced fission of ^{239}Pu ”, *Phys. Rev. C*, vol. 12, pp. 413–416, 1975.
- [111] K.F. Flynn et al., “Independent yields of ^{84}Rb , ^{86}Rb and ^{136}Cs for thermal-neutron-induced fission of ^{233}U , ^{235}U and ^{239}Pu ”, *Jour. of Inorg. & Nucl. Chem.*, vol. 37, pp. 869–872, 1975.
- [112] R. Brissot et al., “Mass, energy and nuclear charge distribution of fission fragments”, *Nucl. Phys. A*, vol. 502, pp. 213–232, 1989.

Résumé

Les rendements de fission sont des données très importantes pour les applications nucléaires. Elles représentent par exemple une partie des données d'entrée des différents codes de simulation. De même les modèles théoriques qui tentent de reproduire ces distributions ont besoin de valeurs expérimentales auxquelles ils peuvent se comparer.

Par le passé le spectromètre de masse Lohengrin a permis, grâce à sa très bonne résolution en masse et en énergie, de déterminer avec une grande précision les rendements des produits de fission légers pour de nombreux systèmes fissionnants. Cependant la méthode expérimentale utilisée dans cette région de la fission, détection par chambre à ionisation, ne permet pas la séparation des isotopes dans la région des produits de fission lourds. Pour cette raison un nouveau dispositif expérimental par spectrométrie γ a été mis en place au cours de cette thèse. Il a été validé par comparaison des précédentes mesures dans la région des produits de fission légers et permet de déterminer les rendements isotopiques que ce soit pour les produits de fission légers comme pour les produits de fission lourds.

Ainsi au cours de ces travaux, afin de compléter et d'améliorer les bibliothèques de données, les rendements en masse des produits de fission lourds pour les réactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ et $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ ont été mesurés pour la première fois sur le spectromètre Lohengrin. Ils ont permis d'améliorer considérablement les incertitudes associées.

De la même manière les rendements isotopiques des produits de fission lourds pour le $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ ont été déterminés par spectrométrie γ .

De plus les distributions en charge ionique et en énergie cinétique des produits de fission ont été particulièrement étudiées. Elles ont entre autres mis en évidence la présence d'isomères nanosecondes pour certains noyaux.

Mots clés : *fission, rendements isobarique et isotopique, spectromètre Lohengrin, spectrométrie γ , distributions en charge ionique et en énergie cinétique, isomère nanoseconde*

Abstract

In spite of the huge amount of fission yield data available in different libraries, more accurate values are still needed for nuclear energy applications and to improve our understanding of the fission process.

Thus measurements of fission yields were performed at the mass spectrometer Lohengrin at the Institut Laue-Langevin in Grenoble, France. The mass separator Lohengrin is situated at the research reactor of the institute and permits the placement of an actinide layer in a high thermal neutron flux. It separates fragments according to their atomic mass, kinetic energy and ionic charge state by the action of magnetic and electric fields. Coupled to a high resolution ionization chamber the experiment was used to investigate the mass and isotopic yields of the light mass region. Almost all fission yields of isotopes from Th to Cf have been measured at Lohengrin with this method.

To complete and improve the nuclear data libraries, these measurements have been extended in this work to the heavy mass region for the reactions $^{235}\text{U}(\text{n}_{th},\text{f})$, $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ and $^{241}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$. For these higher masses an isotopic separation is no longer possible. So, a new method was undertaken with the reaction $^{239}\text{Pu}(\text{n}_{th},\text{f})$ to determine the isotopic yields by γ spectrometry. These experiments have allowed to reduce considerably the uncertainties.

Moreover the ionic charge state and kinetic energy distributions were specifically studied and have shown, among others, nanosecond isomers for some masses.

Keywords : *fission process, mass yields, isotopic yields, Lohengrin spectrometer, spectroscopy γ , ionic charge state distribution, kinetic energy distribution, nanosecond isomer*