

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

### DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Physique Subatomique et Astroparticules**

Arrêté ministériel : 7 Août 2006

Présentée par

**Abdelaziz Chebboubi**

Thèse dirigée par **Herbert Faust**  
et codirigée par **Grégoire Kessedjian**

préparée au sein du **Laboratoire de Physique Subatomique et de  
Cosmologie de Grenoble (LPSC)**  
et de l'**École doctorale de Physique**

## Contribution à l'étude de la fission nucléaire : de LOHENGRIN à FIPPS

Thèse soutenue publiquement le **28 octobre 2015**,  
devant le jury composé de :

**M. Éric Liatard**

Professeur à l'Université Joseph Fourier, Président

**M<sup>me</sup> Fanny Farget**

Chargée de recherche au Ganil, Rapporteur

**M. Pieter Van Duppen**

Professeur à la Katholieke Universiteit Leuven, Rapporteur

**M. Philippe Dessagne**

Directeur de recherche à l'IPHC, Examineur

**M. Olivier Litaize**

Chercheur au CEA-Cadarache, Invité

**M. Herbert Faust**

Chercheur à l'Institut Laue-Langevin, Directeur de thèse

**M. Grégoire Kessedjian**

Maître de conférences à Grenoble INP, Co-Directeur de thèse





# Remerciements

*“Be yourself, everyone else is already taken”*

Oscar Wilde

Trois années résumées en quelques centaines de pages et une soutenance, c'est à la fois peu et beaucoup. Cela permet avant tout de prendre du recul sur le travail effectué mais aussi de relativiser sur sa propre situation. Il est vrai que la thèse implique un investissement personnel important voir fusionnel pour certain. Durant la période d'écriture, on s'éloigne enfin de son travail afin de l'insérer dans un contexte de recherche plus général et on arrive finalement à s'en détacher voire à en juger les forces et faiblesses. Il ne faut cependant pas oublier que ce travail personnel n'aurait jamais abouti sans l'aide d'innombrables personnes.

Je tiens tout d'abord à remercier l'Université Grenoble Alpes d'avoir permis la réalisation de ce projet à travers le financement de mes travaux de recherches ainsi qu'à travers les formations proposées. Je remercie M. Serge Kox, M<sup>me</sup> Annick Billebaud et M. Arnaud Lucotte les directeurs successifs du LPSC de m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire de recherche.

J'aimerais remercier les membres de mon jury de thèse d'avoir pris de leur temps pour lire, évaluer et critiquer ce manuscrit. Il est toujours très gratifiant d'avoir des retours positifs. Mais il est sans doute encore plus important d'avoir des remarques et des questions pertinentes sur son travail afin de repousser les limites de l'incompréhension d'un phénomène.

Merci à Herbert d'avoir été mon directeur de thèse. Vos connaissances sur la fission et sur l'expérience sont un puits sans fond. Je ne compte plus les fois où vos réponses m'ont permis de comprendre où se situaient les problèmes. J'ai aussi eu la chance d'avoir un second directeur de thèse, Grégoire. Merci de m'avoir donné l'opportunité de m'exprimer. A vos côtés, je suis passé (comme vous me l'aviez annoncé) d'étudiant à collaborateur. Je n'ai cessé d'apprendre à la fois sur l'aspect expérimental de la physique nucléaire mais aussi sur le domaine aussi passionnant qu'est l'analyse des données. Durant les moments difficiles, vous avez su me remotiver mais aussi croire en mes capacités. La corrélation entre la réussite de cette thèse et votre implication est à n'en pas douter égale à un ! Je ne pourrais sans doute jamais vous rendre ce que vous m'avez apporté, alors je vous rappellerais juste que lorsque rien ne fonctionne et qu'il est 1h du matin, il n'y a qu'une chose à faire : « mèche courte » !

Merci aussi à mon ex co-bureau Christophe pour sa disponibilité et implication notamment lors des manip's. Il est important à mes yeux d'avoir quelqu'un de calme qui permet à la fois de ne pas s'enfoncer lorsque les résultats sont mauvais mais également de trop s'enthousiasmer lorsque les données sont prometteuses. En somme, merci d'être un régulateur (un vrai) qui sert à quelque chose et non pas juste un gadget.

Cela m'amène à remercier les différents membres de l'ILL (pas pour le côté gadget, mais pour le côté manip s'entend) que sont Ulli, Aurélien, Norbert, Paolo (et son crew) qui ont toujours su répondre aux différentes requêtes et souhaits afin d'améliorer le fonctionnement de LOHENGRIN. Je les remercie également pour leurs retours sur mon travail.

Mais pour récolter encore et toujours plus de données, rien de tel qu'une équipe d'élite. On dit d'eux que lorsqu'ils approchent de LOHENGRIN, ce dernier prend peur et se met à fonctionner correctement . . . Merci à David, Stefano, Olivier L., Olivier S. pour votre bonne humeur et pour votre coopération !

Les interprétations des données n'auraient jamais pu se faire sans l'implication de Olivier Litaize et Olivier Sérot. Merci à vous (en plus d'être parmi la fine fleur des shifteurs) pour les discussions sur mon travail et d'avoir été toujours très positifs et enthousiastes. Vous faites partie des leviers qui m'ont poussé à m'améliorer afin de pouvoir avoir des échanges encore plus fructueux. De manière anecdotique, je vous remercie également d'avoir relu mon manuscrit afin d'en proposer une version la plus fluide et la plus claire possible.

Deux Oliviers en cachent un autre. Olivier Méplan, merci pour tout. Sans vous, je n'aurais sans doute pas eu la chance d'effectuer ce travail. Merci de m'avoir donné ma chance et d'avoir cru en moi. Je vous dois tellement de choses que si je les listais, le nombre de pages de ma thèse doublerait.

Merci à Annick, chef de groupe de physique des réacteurs, de toujours songer à notre confort de travail. Merci surtout pour les échanges qu'on a eu, à la fois sur le domaine de la recherche mais aussi sur le reste. Cela permet de s'aérer l'esprit afin de mieux repartir au travail. Merci à Axel pour sa bonne humeur et sans qui le Nord n'aurait jamais gagné aucune compétition . . . Merci à Adrien de l'intérêt porté sur mon sujet de recherche. Là encore, ces échanges permettent de booster sa confiance en soi. Merci à Véronique pour les échanges intéressants qu'on a eu. Merci à Alexis de m'avoir fait découvrir de nouveaux nanards ainsi que d'avoir partagé sur des sujets plus sérieux. Merci à Nico\* pour sa gentillesse et sa considération qui permettent de vraiment se sentir faire partie d'un groupe au titre de chercheur et non de simple étudiant. Merci à Eric qui malgré son emploi du temps chargé a toujours participé aux différentes présentations que j'ai effectuées. Merci à Pablo d'avoir une si bonne opinion de moi. Merci à Elsa pour ses remarques, notamment lors des différentes répétitions, qui ont permis d'améliorer sensiblement la qualité de la soutenance. Merci à Sébastien pour les critiques portées à ce travail au cours de ces trois années de thèse. Merci à Daniel pour les encouragements distillés tout au long de cette thèse. Merci aussi à M. Guy Marleau pour certains propos qui raisonnent toujours en moi. En fait, l'ensemble des membres de ce groupe m'a fait sentir comme quelqu'un d'exceptionnel, que je ne suis pas. Cela a eu pour conséquence la volonté de ne pas décevoir leurs attentes.

J'ai eu la chance durant ces trois années d'enseigner à l'université et en école d'ingénieur. Merci à Gabriela, Jacob et Mourad de m'en avoir donné l'opportunité. C'est une expérience qui m'a permis de mettre en perspective le métier de chercheur mais aussi et surtout de développer des méthodes pédagogiques qui sont essentielles dans ce métier.

J'aimerais aussi remercier l'ensemble des personnes de l'ombre qui nous facilitent la vie, je pense notamment aux services administratifs et techniques du LPSC ainsi que celui des ressources humaines de l'UJF. Merci à Emmanuelle pour retrouver des articles introuvables tout en corrigeant, éditant des thèses !

Albert Einstein disait : *c'est le rôle essentiel du professeur d'éveiller la joie de travailler et de connaître* et je dois lui donner raison. Je n'aurais sans doute pas effectué cette thèse sans la connaissance d'enseignants, qui chacun à leur façon ont su me transmettre leur passion du métier de chercheur et d'enseignant. J'aimerais remercier M<sup>me</sup> Modot, MM. Salati, Mayet, Feinstein, Hugonie, Léon, Lopez et tant d'autres . . .

Je tiens également à remercier Mathieu qui m'a refait découvrir le dépassement de soi. Merci pour ces moments de souffrance mais aussi de joie. Cela a fait partie des éléments qui ont eu un impact important sur le déroulement de mes trois années de thèse. Merci aussi à Sana de toujours m'en demander plus ! Merci à David M., Peter, Christophe, Louis, Jin, Laurent, Juan, David A., Monica, Dimitri, Julien et tous les autres pour ces parties de foot endiablées, qu'il vente, pleuve ou neige ! Je remercie aussi mes compagnons sur la faille de l'invocateur que sont

Inhibiteur, Haefely, Zhalya, Goudah, Arkaye, Lilang . . . pour les victoires et surtout les défaites !

Je souhaite remercier ma famille pour leur soutien inconditionnel durant ces trois années de thèse mais surtout d'avoir fait ce que je suis aujourd'hui. De nombreux traits de mon caractère découlent essentiellement d'eux et pour cela je leur en suis reconnaissant.

Merci à Michèle pour la relecture de ce manuscrit (et tant d'autres choses) mais aussi à Jean qui m'a montré qu'après tant d'années on peut toujours être passionné par son métier.

Enfin, j'aimerais remercier Laure qui m'a transmis le virus de la physique. Sans elle, je n'aurais pas terminé ces trois années de thèse. Il serait trop long de résumer son impact sur ce travail et dans ma vie, alors je ne dirais que quelques mots : merci d'exister hein.



# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 La fission de 1939 à aujourd'hui</b>	<b>3</b>
1.1 De l'intérêt des modèles pour l'étude du processus de fission	3
1.1.1 Des premiers modèles aux calculs microscopiques	3
1.1.2 Modes de fission et vallées	15
1.2 Les modèles pour l'évaluation et les applications	17
1.3 Objectifs de la thèse	18
<b>2 Un lieu unique pour étudier la fission : le spectromètre de masse LOHENGRIN de l'ILL</b>	<b>21</b>
2.1 Quelques mots sur l'Institut Laue Langevin	22
2.2 Les différentes méthodes d'identification des fragments de fission	22
2.2.1 Méthode 2E	23
2.2.2 Méthode 2E-2v	24
2.2.3 Radiochimie	27
2.3 Fonctionnement de LOHENGRIN	28
2.3.1 Principe de séparation	29
2.3.2 Caractéristiques du spectromètre de masse LOHENGRIN	31
2.4 Détecteurs utilisés à LOHENGRIN	36
2.4.1 Chambre d'ionisation	36
2.4.2 Détecteurs de rayonnement $\gamma$	40
2.4.3 Principe de fonctionnement des détecteurs germanium	40
2.4.4 Efficacité des détecteurs $\gamma$	41
2.4.5 Effet de somme	42
2.5 Système de pilotage et d'acquisition de LOHENGRIN	44
2.5.1 Nomad : une interface pour contrôler LOHENGRIN	44
2.5.2 Nomad : un système d'acquisition	44
2.5.3 Nomad : avantage de l'automatisation de la prise de données	46
<b>3 Développement d'un spectromètre magnétique gazeux dans le cadre du projet FIPPS</b>	<b>49</b>
3.1 Le futur spectromètre de l'ILL : FIPPS	49
3.2 Présentation des spectromètres magnétiques gazeux	51
3.3 Caractérisation d'un spectromètre magnétique gazeux : GFM @ Lohengrin	52
3.3.1 Dispositif expérimental et méthode d'analyse	52
3.3.2 Principaux résultats expérimentaux	55
3.4 Développement d'une simulation Monte Carlo	63
3.4.1 Fonctionnement général de la simulation Monte Carlo	63
3.4.2 Modélisation des processus se produisant au sein du GFM	66
3.5 Comparaison expérience/simulation	74
3.6 Faisabilité du spectromètre magnétique gazeux du projet FIPPS	78

<b>4 Mesures de rapports isomériques pour l'étude du processus de fission</b>	<b>81</b>
4.1 Rapports isomériques à l'échelle de la microseconde . . . . .	82
4.1.1 Dispositif expérimental . . . . .	82
4.1.2 Méthode d'analyse . . . . .	83
4.1.3 Méthode Total Monte Carlo . . . . .	91
4.1.4 Limite de la méthode auprès du spectromètre LOHENGRIN . . . . .	95
4.1.5 Perspectives pour ce type de mesures . . . . .	95
4.1.6 Résultats expérimentaux . . . . .	97
4.2 Rapports isomériques de la milliseconde à la minute . . . . .	101
4.2.1 Dispositif expérimental . . . . .	101
4.2.2 Méthode d'analyse . . . . .	101
4.2.3 Limite de la méthode . . . . .	105
4.2.4 Résultats . . . . .	105
4.3 Étude des états isomères à l'échelle de la nanoseconde . . . . .	107
4.3.1 Dispositif expérimental . . . . .	107
4.3.2 Méthode d'analyse . . . . .	110
4.3.3 Résultats . . . . .	110
4.3.4 Limite de la méthode . . . . .	111
4.3.5 Perspectives pour ce type de mesures . . . . .	113
4.4 Comparaison avec un code de désexcitation nucléaire . . . . .	114
4.4.1 FIFRELIN . . . . .	114
4.4.2 Test d'hypothèses : approche fréquentiste et bayésienne . . . . .	118
4.4.3 Extraction d'un spin cutoff . . . . .	120
4.4.4 Interprétation des résultats . . . . .	123
<b>5 Etude de la fission symétrique de <math>^{233}\text{U}</math></b>	<b>129</b>
5.1 Dispositif expérimental . . . . .	130
5.2 Mesure d'un rendement en masse . . . . .	130
5.3 Phénomène de contamination . . . . .	134
5.4 Méthodologie d'analyse . . . . .	139
5.4.1 Analyse du Burn-Up . . . . .	139
5.4.2 Analyse d'un haut rendement en masse ( $Y(A) > 4\%$ ) . . . . .	140
5.4.3 Analyse d'un rendement symétrique . . . . .	145
5.5 Résultats et interprétation . . . . .	151
5.6 Perspectives pour l'étude de la région symétrique sur le spectromètre LOHENGRIN	163
<b>Conclusion générale</b>	<b>165</b>
<b>A Détails de l'analyse du Burn-Up</b>	<b>167</b>
<b>B Bilan des résultats de la mesure des masses symétriques</b>	<b>171</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>179</b>



# Introduction générale

Par bien des aspects, la recherche scientifique repose sur la nécessité de remettre en question les faits établis et de développer par là-même un esprit critique. Enrico Fermi synthétise le rôle des sciences, et en particulier d'une thèse de doctorat, en soutenant que : *Ignorance is never better than knowledge*. Ici, l'objet des études porte sur la fission nucléaire qui correspond à la brisure d'un noyau en deux (ou trois) noyaux plus légers. La particularité de cette réaction nucléaire est à la fois la grande multiplicité des paires de noyaux formées et la grande quantité d'énergie dégagée. Dès lors il est extrêmement difficile de prédire le comportement d'un tel processus. De nombreux modèles ont été développés afin de mieux interpréter ce phénomène. On citera par exemple les travaux de Lise Meitner et de Otto Frisch qui au lendemain de la découverte de la fission nucléaire ont, à l'aide du modèle de la goutte liquide, donné une explication quant à la cassure d'un noyau lourd. Ce type de réaction nucléaire peut être caractérisé par différentes observables telles que la section efficace ou le taux de production des particules (chargées ou non) créées. Ces données expérimentales permettent de discuter des modèles fondamentaux indispensables à une compréhension globale de la fission nucléaire.

Ainsi, bien qu'ayant été découverte il y a plus de sept décennies, la fission nucléaire possède des caractéristiques sur lesquelles subsistent encore des zones d'ombres. Le moment angulaire des fragments de fission est l'une de ces propriétés qui à ce jour n'est pas entièrement comprise. Ce paramètre est pourtant très important pour déterminer le spectre des  $\gamma$  prompts, qui jouent un rôle central dans les calculs d'échauffement et de dommage des sous-structures d'un réacteur nucléaire. Les travaux actuels doivent conduire à la détermination précise de cette dernière observable afin de permettre de dimensionner les futurs réacteurs avec un niveau de confiance plus élevé. De la même manière, les évaluations de données nucléaires reposent de plus en plus sur l'utilisation de modèles. Certaines données expérimentales n'étant pas accessibles, ou dont la valeur peut être remise en question, il est alors indispensable de valider les modèles afin de fiabiliser les données évaluées. Ainsi l'étude de la région symétrique est particulièrement adaptée pour tester les hypothèses des modèles. En effet son caractère rare rend cette région très sensible pour les hypothèses et paramètres définissant les différents modèles du processus de fission nucléaire.

Ce travail de thèse a pour ambition de mettre en avant des observables d'intérêt pour la validation des modèles de fission, notamment ceux utilisés pour l'évaluation de données. Ce manuscrit est divisé en cinq parties.

Tout d'abord, nous présentons au cours du chapitre 1 les différents modèles développés au cours de ces dernières décennies afin de décrire la fission nucléaire. Nous exposons en quoi ces théories jouent un rôle primordial dans le processus d'évaluation de données nucléaires.

Ensuite, dans le chapitre 2 nous effectuons une description des techniques de mesures des observables de fission, telles que celles des rendements de fission. Un accent est mis sur le fonctionnement du spectromètre de masse LOHENGRIN de l'Institut Laue Langevin (ILL) ainsi que sur les détecteurs utilisés auprès de ce dernier. En effet, l'ensemble des mesures expérimentales se sont déroulées sur cet instrument.

Le chapitre 3 concerne la caractérisation des spectromètres magnétiques gazeux, appelés aussi GFM, dans le cadre du projet FIPPS (Fission Product Prompt  $\gamma$ -ray Spectrometer). Ce futur spectromètre de l'ILL, qui a pour ambition l'étude des propriétés des particules promptes, consiste en un couplage de détecteurs  $\gamma$  et neutrons avec un filtre de fragments de fission qu'est

le GFM. Un travail expérimental et de simulation permettra *in fine* de dimensionner le spectromètre du projet FIPPS.

Dans le chapitre 4, nous exposons, grâce à la mesure de rapports isomériques, la détermination du moment angulaire des fragments de fission. Selon la durée de vie des états isomères, différentes techniques de mesures ont été développées. L'analyse de ces données s'est faite à l'aide de méthodes statistiques innovantes dans la thématique incluant du Total Monte Carlo et les métadonnées. Enfin pour accéder au moment angulaire initial, l'utilisation d'un code de désexcitation nucléaire est indispensable. Pour ce travail de thèse, le code FIFRELIN a été utilisé. Une brève discussion sur les résultats obtenus permet de mettre en évidence le caractère discriminant de cette observable sur les modèles de fission nucléaire.

Pour finir, dans le chapitre 5, nous sondons la région symétrique à l'aide du spectromètre de masse LOHENGRIN. L'étude de cette région est particulièrement complexe à cause de la difficulté à identifier avec certitude le fragment de fission. Cela permet de mettre en avant les limites actuelles du spectromètre LOHENGRIN et du système de détection. Une estimation des rendements associée aux distributions en énergie cinétique sont présentées. Une amélioration du dispositif expérimental est proposée afin de lever l'incertitude quant à l'identification du fragment de fission.

Cette thèse, à travers trois types d'expériences, propose d'explorer des méthodes expérimentales usuelles de la physique nucléaire pour la thématique des données nucléaires. La maîtrise des précisions expérimentales accessibles, en utilisant des méthodes de propagation d'incertitudes complètes et sophistiquées, a pour objectif d'ouvrir la thématique des données nucléaires au test d'hypothèses afin de discuter de la pertinence des modèles à l'aide d'outils quantitatifs.

# La fission de 1939 à aujourd'hui

---

## Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>De l'intérêt des modèles pour l'étude du processus de fission . . . . .</b>	<b>3</b>
1.1.1	Des premiers modèles aux calculs microscopiques . . . . .	3
1.1.2	Modes de fission et vallées . . . . .	15
<b>1.2</b>	<b>Les modèles pour l'évaluation et les applications . . . . .</b>	<b>17</b>
<b>1.3</b>	<b>Objectifs de la thèse . . . . .</b>	<b>18</b>

---

## Introduction

*No-one really thought of fission before its discovery.* À travers ces mots, Lise Meitner exprime la complexité qu'est ce nouveau processus nucléaire. Cette découverte à l'aube de l'année 1939, a valu à O. Hahn le prix Nobel de chimie en 1944. La fission nucléaire est d'une certaine manière la dernière grande découverte en physique nucléaire expérimentale et clôt le cycle initié par H. Becquerel, P. et M. Curie en 1903 par la mise en évidence de la radioactivité. Le contexte historique de cette découverte et son potentiel usage a permis de développer des techniques expérimentales et des modèles théoriques très rapidement afin de mieux comprendre ce phénomène et de le maîtriser. Au cours de ce chapitre nous allons décrire quelques modèles qui permettent d'interpréter la fission nucléaire. Nous présenterons ensuite le concept d'évaluation de données et l'impact des connaissances fondamentales sur des applications utilisant ces données évaluées. Dans la dernière section, le cadre et les objectifs de ce travail de thèse seront exposés.

## 1.1 De l'intérêt des modèles pour l'étude du processus de fission

### 1.1.1 Des premiers modèles aux calculs microscopiques

La fission nucléaire correspond à la brisure d'un noyau lourd en deux noyaux plus légers. Ce nouveau mécanisme de réaction nucléaire a été mis en évidence expérimentalement par O. Hahn et F. Strassmann en 1939 [[Hahn et Strassmann\(1939\)](#)]. À la suite de l'irradiation d'un échantillon d'uranium par des neutrons provenant d'une source  $Ra - Be$ , ralentis par de la paraffine, les différents éléments synthétisés étaient séparés chimiquement. Les éléments radioactifs étaient ensuite détectés à l'aide de compteurs Geiger-Müller. Il se trouvait que certains éléments synthétisés étaient des isotopes du baryum. Ces données à première vue déconcertantes, ont été correctement interprétées par L. Meitner et O. Frisch comme étant la conséquence de la cassure de l'uranium en deux noyaux plus légers [[Meitner et Frisch\(1939\)](#)]. L'énergie libérée par ce phénomène est de l'ordre de 200 MeV. Pour arriver à cette conclusion, leurs hypothèses étaient fondées sur l'analogie entre le noyau fissionnant et une goutte liquide. Le concept de goutte

liquide en physique nucléaire avait été introduit par G. Gamow afin de décrire les principales caractéristiques d'un noyau nucléaire [Gamow(1930)]. La figure 1.1 présente le principe de ce processus. Le noyau composé formé suite à la capture d'un neutron (par exemple) va se déformer jusqu'au point selle (saddle point). Ce point de non retour va le conduire jusqu'au point de scission, où la cassure du noyau en deux fragments de fission va avoir lieu.<sup>1</sup> Ces deux notions (point selle et point de scission) seront développées dans la suite de cette section. La répulsion coulombienne va permettre aux fragments d'acquérir une énergie cinétique (de l'ordre de 140-180 MeV au total). De plus les fragments créés sont peuplés dans des états très excités. Pour se désexciter ils vont d'abord émettre des neutrons (neutrons prompts) puis des photons  $\gamma$  ( $\gamma$  prompts). À ce stade, on parle de produits de fission. Néanmoins ces noyaux sont toujours très instables car très riches en neutrons. Pour rejoindre la vallée de la stabilité, ces produits de fission vont émettre des particules  $\beta^-$  ainsi que des neutrons dits retardés.

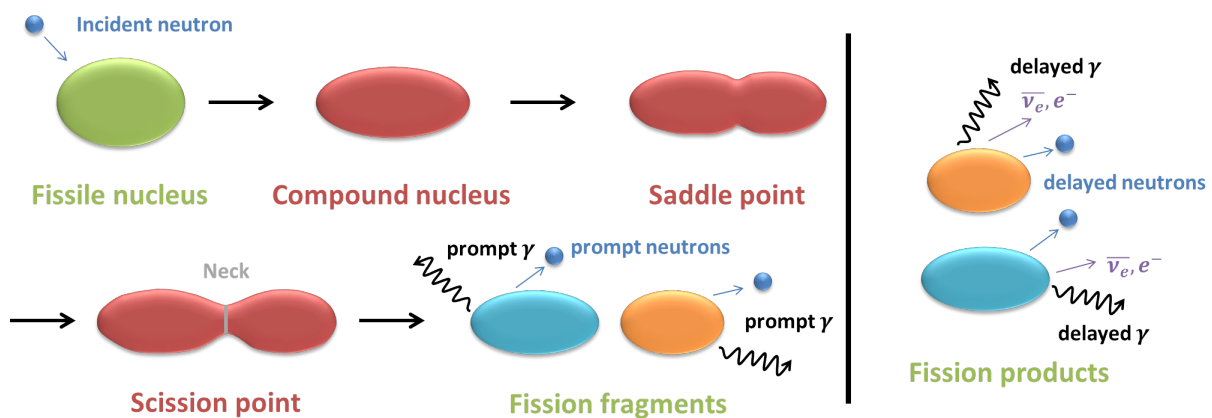


FIGURE 1.1 – Illustration du processus de fission binaire. Le noyau composé, formé suite à la capture d'un neutron, va passer par différentes étapes avant de se casser et donner naissance à deux fragments de fission. Ces noyaux très excités vont rapidement émettre des particules promptes. À la suite de ce processus, on parle de produits de fission. Ces derniers étant toujours instables, ils vont se désexciter par désintégration  $\beta^-$  suivi pour certains d'émission de neutrons retardés.

On remarque que dès les premiers instants de la découverte de la fission nucléaire, les modèles jouent un rôle central dans la compréhension de ce nouveau processus. Dans cette partie nous allons présenter trois visions différentes de la fission nucléaire à travers les modèles traitant le noyau composé comme une goutte liquide, ceux ayant une approche statistique et enfin ceux qui ont une approche microscopique du problème.

### Modèles de la goutte liquide

N. Bohr et J.A. Wheeler ont rapidement développé un modèle de fission nucléaire basé sur les principes d'une goutte liquide [Bohr et Wheeler(1939)]. Ce modèle, LDM (pour Liquid Drop Model), traite le noyau fissionnant comme un fluide de nucléons chargés incompressible. De la même manière que dans la formule de Bethe-Weizsäcker, l'énergie du noyau est décomposée de

1. Ici on ne traite que de la fission binaire. Il existe un processus, la fission ternaire où trois noyaux sont créés.

la manière suivante :

$$E = E_v + E_s + E_C + E_a + E_p \quad (1.1)$$

avec  $E_v$  l'énergie volumique, proportionnelle à la masse du noyau,  $E_s$  l'énergie de surface,  $E_C$  l'énergie due à la répulsion coulombienne,  $E_a$  le terme d'asymétrie et  $E_p$  l'énergie d'appariement. La déformation du noyau est définie par :

$$R(\theta) = R_0 \left( 1 + \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{m=l} a_{lm} Y_{lm}(\theta) \right) \quad (1.2)$$

où  $R_0$  est le rayon du noyau sphérique,  $Y_{lm}(\theta)$  correspond aux harmoniques sphériques et  $a_{lm}$  permet de caractériser la déformation du noyau.  $a_0$  est relié au volume de la goutte,  $a_{1m}$  est associé à la déformation dipolaire, qui consiste à la translation du centre de masse du noyau. Ce paramètre décrit alors la position du centre de masse. La déformation quadrupolaire,  $a_{2m}$  qui est la plus importante, traduit l'élongation du noyau. La déformation octupolaire,  $a_{3m}$ , est associée à l'asymétrie du noyau.

Dans une première approche, les termes volumiques, d'asymétrie et d'appariement ne dépendant pas de la déformation, l'énergie de déformation est alors définie comme suit :

$$E_{def} = E_s(a) + E_C(a) - E_s(0) - E_C(0) \quad (1.3)$$

avec  $a$  qui correspond à la combinaison des paramètres de déformation  $a_{lm}$  et  $a = 0$  le cas où le noyau est sphérique. Dans ce modèle, on définit aussi le paramètre de fissilité  $x$  :

$$x = \frac{E_C(0)}{2E_s(0)} \simeq \frac{Z^2}{A} \frac{1}{50} \quad (1.4)$$

qui permet de définir la stabilité d'un noyau par rapport au processus de fission nucléaire. Il traduit la compétition entre la force de Coulomb, désordonne le noyau, et la tension de surface qui au contraire confine les nucléons dans le noyau. Pour qu'un noyau soit stable, la condition nécessaire est  $x < 1$ . On note alors que l'état fondamental des actinides, par exemple, respecte cette condition. Cependant lorsqu'on calcule l'énergie de déformation en fonction de  $a_2$  et  $a_4$ , qui sont les paramètres reliés à la déformation quadrupolaire et hexadécapolaire, on constate qu'il existe un point critique. Ce point instable, appelé aussi point selle (ou saddle point), du fait de sa forme particulière à deux dimensions, est un point de non retour. Si le noyau le passe, alors il va fissionner. La courbe de déformation le long de ce chemin de fission est appelée barrière de fission. Ce résultat fondamental permet de comprendre pour quelle raison un noyau stable tel que l'uranium peut fissionner à la suite de la capture d'un neutron. La figure 1.2 présente l'évolution de l'énergie de déformation en fonction des paramètres de déformation. On y observe aussi la barrière de fission. Si l'énergie du noyau après capture du neutron est supérieure au maximum de potentiel, alors le noyau va pouvoir fissionner. Notons que le paramètre  $x$  sur la figure ne correspond pas à la fissilité comme définie ci dessus, mais à une coordonnée le long du chemin de fission. Ce modèle a permis d'estimer la hauteur des barrières pour plusieurs noyaux. La figure 1.3 présente les résultats de ces calculs, qui sont très proches des évaluations récentes.

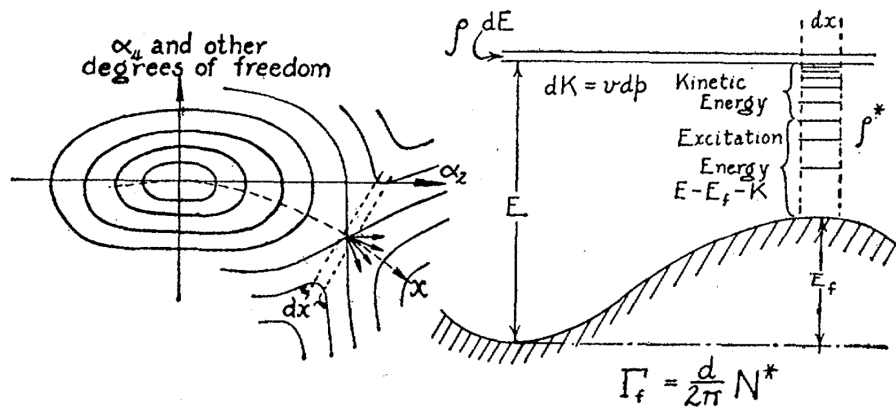


FIGURE 1.2 – À gauche : énergie potentielle de déformation en fonction de deux paramètres de déformation ( $\alpha_2, \alpha_4$ ). Le long du chemin de fission  $x$ , le noyau se déforme jusqu'au point de scission. À droite : évolution de la barrière de fission en fonction du temps. La probabilité de fission  $\Gamma_f$ , dépend de l'espacement des niveaux  $d$ , ainsi que du nombre d'états de transitions (correspondant aux états disponibles au dessus de la barrière de fission)  $N^*$ . Figure issue de [Bohr et Wheeler(1939)]

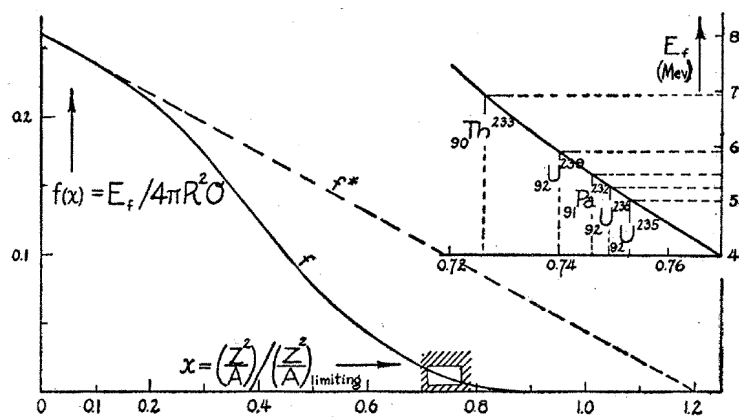


FIGURE 1.3 – Hauteur de la barrière de fission en fonction des noyaux. Il est à noter que ces résultats sont très proches des évaluations récentes. Figure issue de [Bohr et Wheeler(1939)]

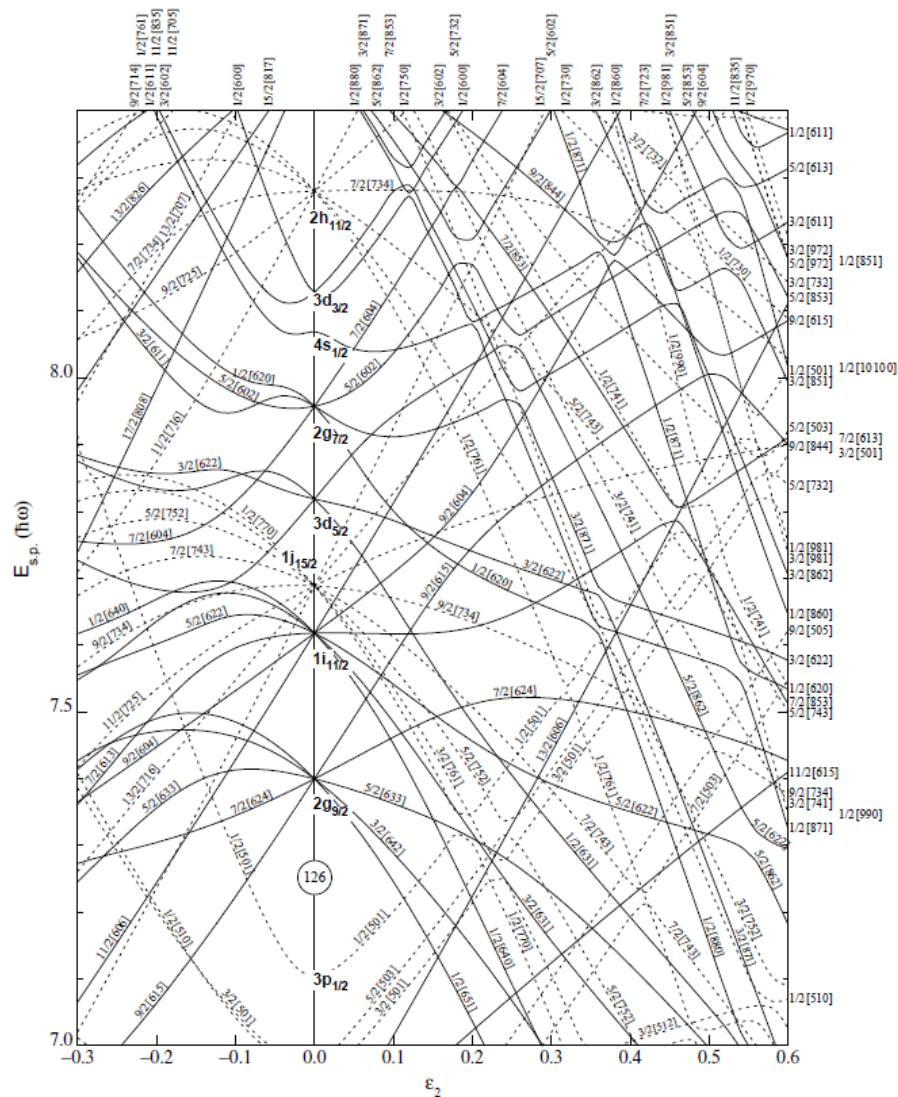


FIGURE 1.4 – Diagramme de Nilsson pour les niveaux d'énergie des neutrons en fonction d'un paramètre de déformation.

Ce modèle permet d'accéder aux sections efficaces de capture et de fission, via la probabilité de réaction et la section efficace de formation du noyau composé (dans l'hypothèse de Bohr [Bohr(1936)]). Néanmoins la grande faiblesse de cette approche est que celle-ci prévoit une cassure symétrique de cette goutte liquide. Or il a été rapidement observé (voir chapitre 2) que la fission des actinides était asymétrique. En 1949, un nouveau modèle du noyau atomique a permis d'interpréter l'existence expérimentale de nombres magiques : c'est le modèle en couche [Haxel *et al.*(1949), Mayer(1949)]. Nilsson a généralisé le modèle en couche aux noyaux déformés [Nilsson(1955)]. La figure 1.4 présente l'évolution des différents niveaux d'énergie en fonction d'un paramètre de déformation du noyau.

Strutinsky a incorporé au modèle de la goutte liquide, les effets de couches développés par

Nilsson [Strutinsky(1967)]. Concrètement l'énergie de déformation s'écrit :

$$E_{def} = E_{LDM} + U - \tilde{U} = E_{LDM} + \delta U \quad (1.5)$$

avec  $E_{LDM}$  l'énergie de déformation calculée dans le cadre du modèle de la goutte liquide [voir équation (1.3)]. La composante  $\delta U$  provient de la correction du modèle en couche, où  $U$  est l'énergie totale des différents niveaux accessibles, et  $\tilde{U}$  l'énergie totale dans le cas où la répartition des niveaux est uniforme.

Ce modèle macroscopique-microscopique prédit un second puits et donc une seconde barrière de fission comme illustré sur la figure 1.5. Ce second puits a été observé expérimentalement par la fission spontanée d'un état isomère du  $^{242}\text{Am}$  [Polikanov *et al.*(1962)]. En effet, les états présents dans ce puits, appelés états de classe II ont une signature qui a permis d'estimer la déformation du noyau. Il s'est avéré que le noyau était deux fois plus déformé que dans le premier puits. La mise en évidence des isomères de fission permet de valider l'approche de Strutinsky. La description de la barrière de fission est fondamentale dans l'étude notamment des sections efficaces de fission et dans la compréhension du processus de fission. Ce modèle permet aussi d'expliquer l'asymétrie observée dans la fission des actinides et donc le rôle des effets de couches des fragments naissants. Il est usuellement admis que dans la région des actinides la première barrière de fission est triaxiale alors que la seconde est octupolaire. Dès lors, on est obligé de considérer l'espace des phases à plusieurs dimensions.

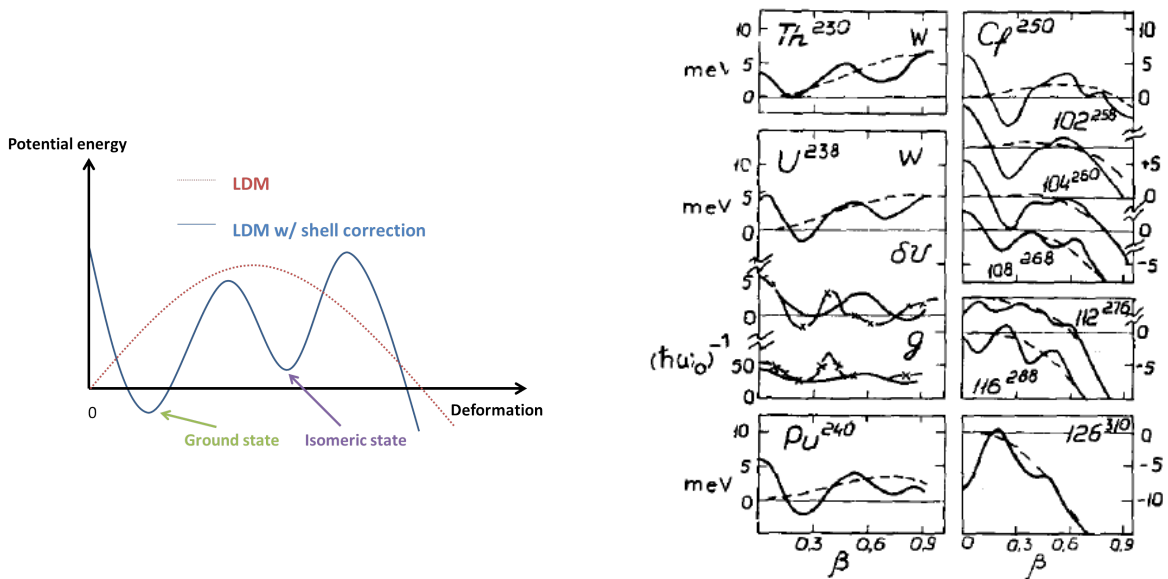


FIGURE 1.5 – À gauche : illustration de l'impact des corrections de couches sur l'énergie potentielle du noyau composé. À droite : calculs des barrières de fission extraits de [Strutinsky(1967)].



Les chercheurs de Los Alamos ont affiné le modèle de Strutinsky [Nix et Swiatecki(1965)]. Ce modèle appelé autrefois “Los Alamos model” est devenu le Finite Range Droplet Model (FRDM). Récemment P. Möller *et al.* ont calculé la surface d'énergie potentielle du noyau dans cinq dimensions [Möller *et al.*(2004)]. Ils ont mis en évidence la présence de différentes vallées de fission. On reviendra sur cette notion dans la section suivante.

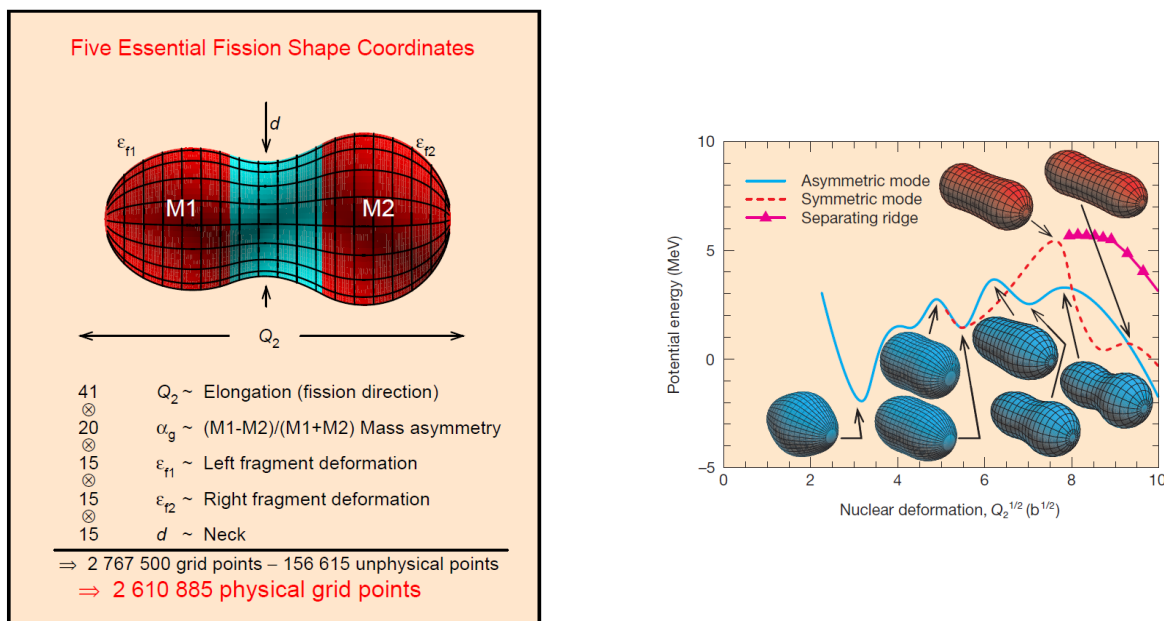


FIGURE 1.6 – À gauche : paramétrisation du noyau composé. À droite : évolution de l'énergie potentielle avec la déformation du noyau. Différentes vallées de fission sont représentées. Les figures sont extraites de [Möller *et al.*(2004)].

Le rendement en masse (ou isotopique), qui correspond au taux de production d'un fragment par fission, est l'une des observables les plus étudiées. Cette quantité est cruciale pour les applications. C'est aussi un test important quant à la validation de la modélisation de la fission nucléaire. Dans le cadre du modèle FRDM, pour obtenir le rendement d'un fragment de fission caractérisé par sa masse  $A$  et sa charge nucléaire  $Z$ , un traitement de l'évolution de la forme du noyau, qui est décrite par cinq paramètres (voir figure 1.6), en utilisant l'équation de Langevin est nécessaire [Randrup *et al.*(2011)] :

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial}{\partial \dot{\chi}} \mathcal{L}(\dot{\chi}, \chi) = \frac{\partial}{\partial \chi} \mathcal{L}(\dot{\chi}, \chi) + F^{diss}(\chi, t) \quad (1.6)$$

avec  $\mathcal{L}$  le lagrangien de la forme du noyau,  $\chi$  les cinq paramètres de déformation et  $F^{diss}$  la force dissipative. Cette dernière provient de la réflexion des nucléons sur la surface en mouvement. La résolution de cette équation traduit le mouvement de la forme du noyau de manière analogue au mouvement Brownien [Randrup et Möller(2011)]. Ici, la particule brownienne est associée à la forme du noyau, tandis que le milieu ambiant dans lequel se déplace la particule est associé aux degrés de liberté microscopique du noyau. Pour obtenir un rendement, il suffit alors de déterminer le poids,  $W(\bar{\chi})$  de chacune des configurations de la forme du noyau au niveau de la scission :

$$W(\bar{\chi}) \simeq \exp\left(-\frac{U(\bar{\chi})}{T(\bar{\chi})}\right) \quad (1.7)$$

où  $U(\bar{\chi})$  est l'énergie potentielle calculée dans le cadre du FRDM et  $T(\bar{\chi})$  la température nucléaire du noyau. La figure 1.7 présente les résultats des rendements isotopiques pour différents noyaux fissionnants. Les courbes rouges sont associées à un calcul à cinq dimensions tandis que les courbes vertes correspondent à un calcul à trois dimensions. On remarque alors l'amélioration du modèle en augmentant le nombre de degrés de libertés collectifs. Néanmoins les effets pairs-impairs observés expérimentalement ne sont pas reproduits.

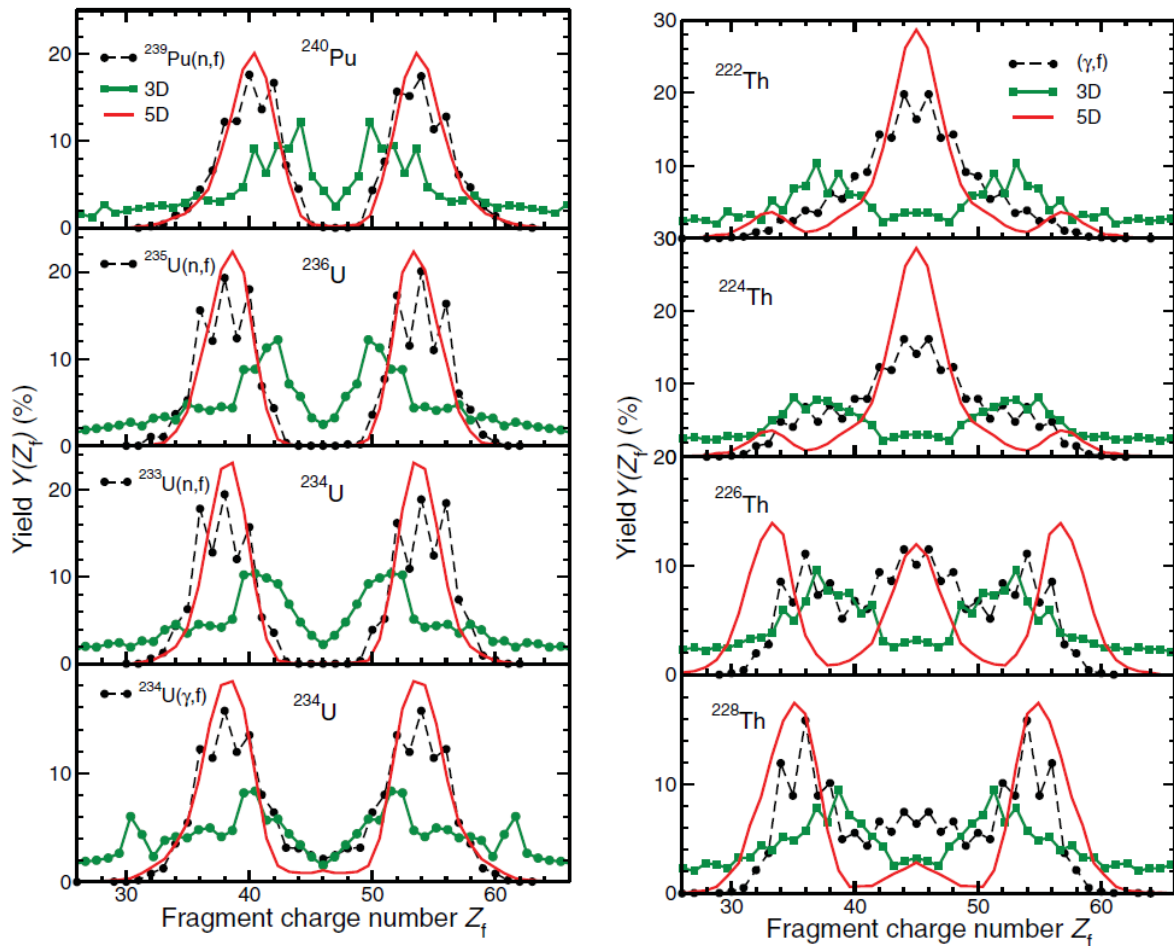


FIGURE 1.7 – Rendement isotopique pour différents noyaux. Les calculs à 3D et 5D sont comparés avec les données expérimentales pour différents noyaux fissionnants. La figure est extraite de [Randrup et al.(2011)].

Au cours des années, le modèle de la goutte liquide n'a cessé d'évoluer. Il permet une représentation simple du processus de fission. Les différents raffinements de ce modèle ont permis de mieux comprendre ce phénomène et de lever certains de ses mystères.

### Approche statistique

D'autres modèles existent afin de décrire l'allure des rendements en masse. La plupart de ces modèles considèrent que les observables de fission telles que les rendements ou l'énergie cinétique des fragments découlent de ce qui se passe au point de scission. C'est à cet instant que le noyau va se casser en deux et donner naissance aux fragments de fission. La première approche développée par P. Fong consiste à affirmer que l'intégralité de l'énergie potentielle est transformée en énergie d'excitation entre le point selle et le point de scission négligeant ainsi l'énergie cinétique de pré-scission [Fong(1956)]. Il considère aussi que ce processus est suffisamment lent pour que tous les degrés de liberté (collectifs et intrinsèques) soient à l'équilibre statistique. Les paramètres collectifs sont ceux permettant de définir la forme du noyau à travers le modèle de la goutte liquide. Les degrés de liberté intrinsèques sont associés aux états nucléaires individuels<sup>2</sup>. Finalement la distribution en masse des fragments de fission dépend directement du nombre d'états accessibles du noyau composé au niveau du point de scission. La figure 1.8 présente la comparaison entre les rendements en masse expérimentaux et ceux calculés dans le cadre de ce modèle.

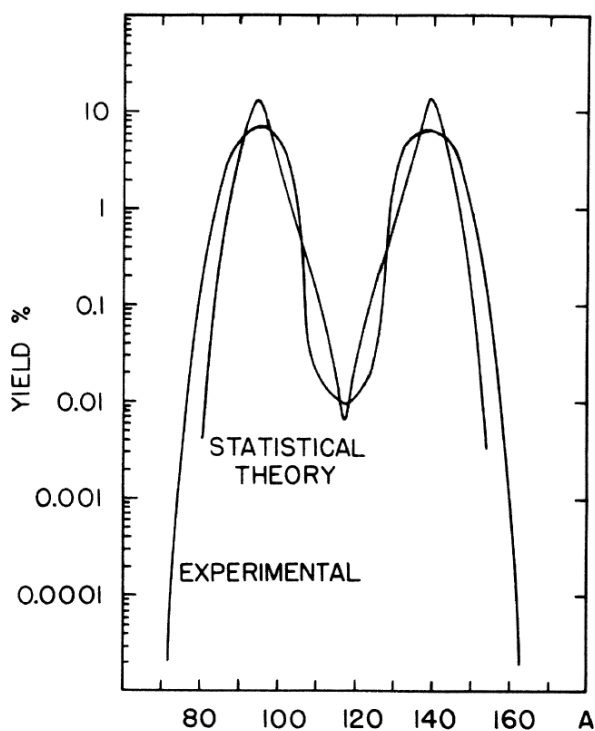


FIGURE 1.8 – Comparaison des rendements en masse pour la réaction  $^{235}\text{U}(n,f)$  entre un calcul statistique et les valeurs expérimentales. La figure est tirée de [Fong(1974)].

Une autre théorie reposant sur un équilibre thermodynamique à la scission est appelée “scission point model”. Développé par B.D. Wilkins *et al.*, ce modèle considère que les degrés de liberté collectifs et intrinsèques sont chacun en équilibre statistique au niveau du point de scission et sont caractérisés par une température  $T_{coll}$  et  $T_{int}$  [Wilkins *et al.*(1976)]. Un autre paramètre, la

2. Lorsque qu'on néglige les frictions au sein du noyau composé, il n'y a plus d'échanges d'énergie d'excitation entre les états collectifs et individuels. On parle alors d'équilibre adiabatique.

distance  $d$  entre les surfaces des deux fragments à la scission est nécessaire dans la description du processus de fission. L'énergie potentielle du noyau au point de scission s'écrit :

$$\begin{aligned}
 V(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, T_{int}, d) = & V_{LD_1}(N_1, Z_1, \beta_1) + V_{LD_2}(N_2, Z_2, \beta_2) \\
 & + S_1(N_1, \beta_1, T_{int}) + S_1(Z_1, \beta_1, T_{int}) + S_2(N_2, \beta_2, T_{int}) + S_2(Z_2, \beta_2, T_{int}) \\
 & + P_1(N_1, \beta_1, T_{int}) + P_1(Z_1, \beta_1, T_{int}) + P_2(N_2, \beta_2, T_{int}) + P_2(Z_2, \beta_2, T_{int}) \\
 & + V_C(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, d) + V_{nuc}(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, d) \quad (1.8)
 \end{aligned}$$

Elle se compose de l'énergie issue des degrés de liberté collectifs (terme goutte liquide ou LD), des corrections de couches (termes  $S_i$ ) et de parité ( $P_i$ ) des deux fragments naissants. Finalement l'interaction entre les deux fragments est décrite par une énergie potentielle coulombienne ( $V_C$ ) et nucléaire ( $V_{nuc}$ ). Les paramètres  $N$ ,  $Z$ , et  $\beta$  correspondent au nombre de neutrons, à la charge nucléaire et à la déformation du fragment de fission. La probabilité de créer une paire de fragments s'écrit :

$$P(Z_1, N_1, Z_2, N_2, T_{int}, d, T_{coll}) = \int_{\beta_1} \int_{\beta_2} \exp\left(-\frac{V(N_1, Z_1, \beta_1, N_2, Z_2, \beta_2, T_{int}, d)}{T_{coll}}\right) d\beta_1 d\beta_2 \quad (1.9)$$

Ce modèle permet de mettre en évidence l'impact des corrections de couches sur la forme des rendements en masse. La figure 1.9 présente une comparaison entre ce modèle et les données expérimentales. On note que ce modèle permet de retrouver l'asymétrie de la fission dans le cas de  $^{235}\text{U}$ , mais ne reproduit pas correctement les résultats expérimentaux. De plus, le paramètre  $d$  s'avère nécessaire pour reproduire les énergies cinétiques des fragments de fission.

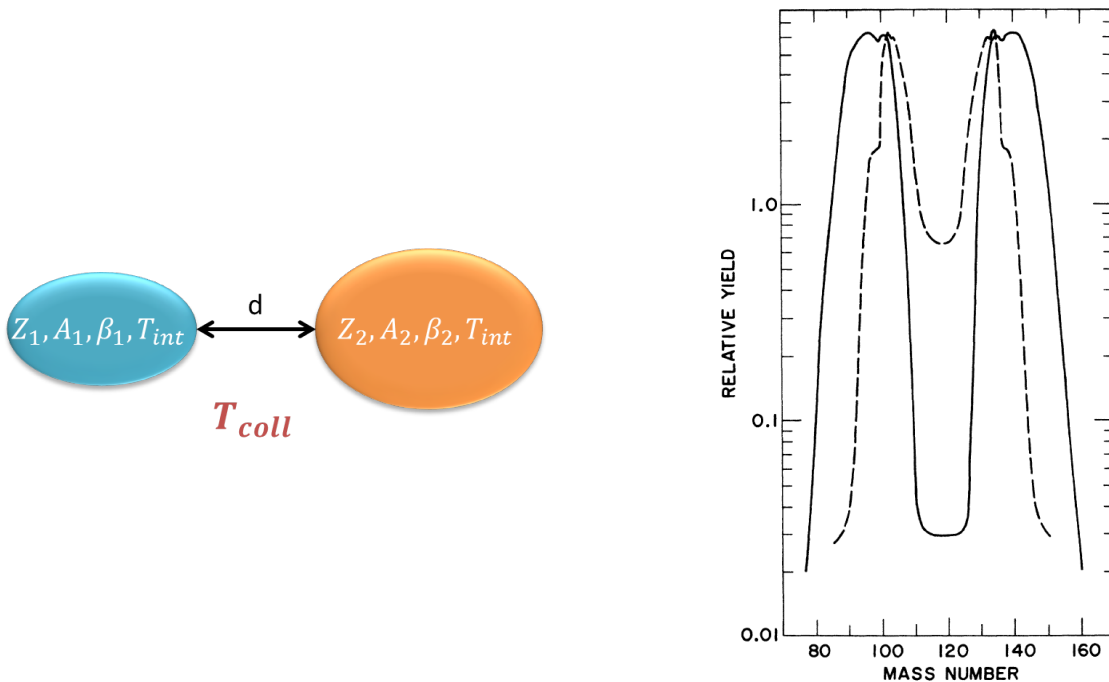


FIGURE 1.9 – À gauche : schéma du modèle de Wilkins. À droite : comparaison des rendements en masse entre un calcul basé sur “scission point model” (traits pointillés) et les valeurs expérimentales (traits pleins). La figure est tirée de [Wilkins et al.(1976)].

Enfin le dernier modèle a été développé par U. Brosa *et al.* [Brosa *et al.*(1990)]. Des suites de calculs d'énergie potentiel de déformation, reposant sur une approche “microscopique-macroscopique”,

des modes de fission ont été mis en évidence. En outre, les différentes observables de la fission, telles que les rendements en masse, ou la multiplicité de l'émission neutron en fonction de la masse, dépendent de l'hypothèse de cassure aléatoire du col (ou "random neck rupture"). Ainsi pour chaque mode de fission, l'hypothèse de la "rupture aléatoire du col" doit s'appliquer. La modélisation des rendements en masse repose sur trois distributions gaussiennes qui découlent des calculs de surface d'énergie potentielle. Chacune de ces distributions correspondant à un mode de fission :

- Super long (SL) : mode symétrique avec une forme très allongée du noyau à la scission
- Standard-1 (S1) : mode asymétrique avec une forme très compacte du noyau à la scission
- Standard-2 (S2) : mode asymétrique avec une forme allongée du noyau à la scission

Le concept de vallée et de modes de fission sera discuté dans la prochaine section. La figure 1.10 présente le principe de cassure aléatoire du col. Plus le col est fin, et plus la cassure est probable. C'est pourquoi les rendements hauts sont interprétés comme étant la conséquence d'une rupture en la position 2, 2'. La figure du bas présente l'évolution de la multiplicité neutron en fonction de la masse du fragment. Les lignes correspondent au modèle. Il faut noter que ce modèle ne prédit pas l'intensité des différents modes de fission.

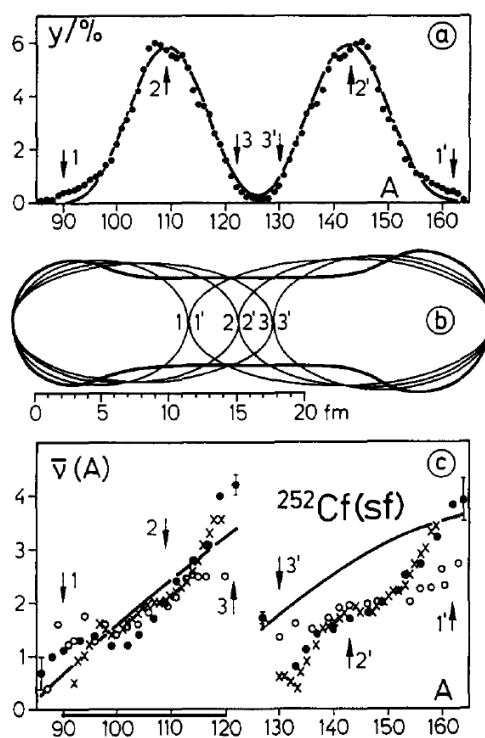


FIGURE 1.10 – En haut : comparaison des rendements en masse entre un calcul basé sur "random neck rupture" et les valeurs expérimentales. Au milieu : variation du col à la scission en fonction des modes de fission. En bas : nombre moyen de neutrons émis par le fragment de fission en fonction de sa masse. Les lignes correspondent aux calculs tandis que les symboles sont associés aux points expérimentaux. La figure est tirée de [Brosa et al.(1990)].

### Approche microscopique

En parallèle aux modèles macroscopiques ou phénoménologiques, l'approche microscopique (HFB) permet d'étudier le processus de fission à travers la génération des surfaces d'énergie potentielle (et d'en déduire les barrières de fission) ainsi que les différentes observables que sont les rendements en masse ou les distributions en énergie cinétique des fragments de fission. Cette approche repose sur la résolution des équations de la mécanique quantique. L'hamiltonien du noyau composé, caractérisé par un nombre de nucléons  $A$  et de protons  $Z$ , en interaction s'écrit :

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^A \frac{\hat{p}_i^2}{2M} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{i,j=1 \\ j<i}}^A \hat{v}_{ij} \quad (1.10)$$

avec  $M$  la masse d'un nucléon,  $p_i$  l'impulsion d'un nucléon et  $v_{ij}$  le potentiel d'interaction entre deux nucléons. Il est actuellement impossible de résoudre exactement cette équation. Une première approximation consiste à considérer que tous les nucléons voient le même potentiel (approximation d'un champ moyen). Jusqu'à présent, ce potentiel effectif est dérivé de forces nucléaires phénoménologiques telles que les forces de Skyrme [Beiner *et al.*(1975)] ou de Gogny [Dechargé et Gogny(1980)]. De plus la forme du noyau est décrite par la fonction d'onde  $|\phi(\{q\})\rangle$  où  $\{q\}$  est l'ensemble des paramètres de déformations. Ici on ne va considérer que deux déformations  $q_{20}$  et  $q_{30}$  qui sont liées à la déformation quadrupolaire et octupolaire respectivement. La dernière quantité est la distance  $d$  entre les centres de masse des deux fragments naissants [Goutte *et al.*(2005)]. La figure 1.11 présente les résultats de la surface d'énergie potentielle dans le cas du  $^{238}\text{U}$ . On note que ce modèle prédit l'existence de différentes vallées de fission.

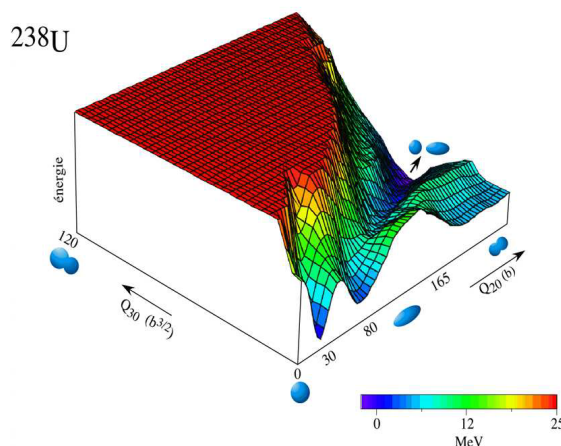


FIGURE 1.11 – Surface d'énergie potentielle calculée avec un modèle microscopique pour  $l^{238}\text{U}$ . On note la présence de différentes voies de fission. Le résultat est extrait de [Goutte *et al.*(2005)].

Il faut ajouter que ce calcul a été effectué en tenant compte de la dynamique quantique du noyau composé. Ce modèle aussi appelé TDHFB (pour "Time Dependant Hartree-Fock-Bogoliubov") est différent du précédent car il repose sur la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps<sup>3</sup> :

$$i\hbar \frac{\partial \phi}{\partial t} = H\phi \quad (1.11)$$

3. la fonction d'onde  $\phi$  ainsi que le hamiltonien  $H$  de cette équation ne sont pas exactement identiques à ceux

L'impact de la prise en compte de la dynamique de fission dans l'approche microscopique est visible sur la figure 1.12.

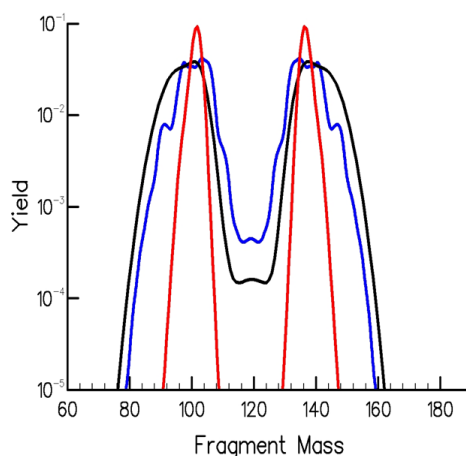


FIGURE 1.12 – Comparaison des rendements en masse pour  $l^{238}U$  entre deux calculs microscopiques et les données évaluées. La courbe bleue tient compte de la dynamique de fission. La courbe rouge est un calcul microscopique sans prise en compte de la dynamique. Les résultats sont issus de [Goutte et al.(2005)].

Pour conclure, différentes approches permettent de mieux appréhender le processus de fission. Néanmoins aucune ne permet de reproduire fidèlement l'ensemble des données expérimentales. Un nouveau type de fission a été récemment découvert dans la région des noyaux riches en protons [Andreyev et al.(2010)]. Dans cette région des “mercures” la fission était attendue symétrique, or il a été observé que la distribution en masse était asymétrique. Des calculs qui s'appuient sur le FRDM [Möller et al.(2012)] ou une version plus évoluée du “scission point model” de Wilkins [Panebianco et al.(2012)] permettent de retrouver l'asymétrie observée. Néanmoins leurs interprétations diffèrent. Dans le premier cas, on considère que les effets microscopiques des fragments naissants ne jouent pas un rôle prédominant au niveau de la scission alors que le second tend à affirmer l'inverse.

### 1.1.2 Modes de fission et vallées

Les récents calculs, à la fois des modèles macroscopique-microscopique (FRDM), microscopique (TDHFB), ou phénoménologique (“random neck rupture”) prédisent l'existence de modes de fission. Dans ces trois cas ils apparaissent naturellement lors des calculs des surfaces d'énergie potentielle. Le noyau composé évolue dans différentes vallées qui correspondent à des modes de fission différents. Ainsi il existe, au moins, deux chemins différents : la fission symétrique, et la fission asymétrique. La figure 1.13 présente les modes de fission prédits par ces trois modèles.

Expérimentalement les modes de fission sont visibles à travers la mesure de l'énergie cinétique des fragments. En effet suivant le mode de fission, la distance  $d$  entre les fragments naissants à la scission n'est pas la même. Or l'énergie cinétique totale provient essentiellement de la répulsion

---

de l'équation (1.10). Ces approximations proviennent de l'utilisation du recouvrement gaussien “GOA” [Ring et Schuck(2004)]. En effet sans ces considérations, l'équation exacte est très difficile à résoudre.

coulombienne dans l'approximation ponctuelle :

$$TKE = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 d} \quad (1.12)$$

où  $Z_i$  est la charge du fragment,  $e$  la charge élémentaire et  $\epsilon_0$  la permittivité du vide. Ainsi les distributions en énergie cinétique sont expliquées par la présence des modes de fission. Pour étudier plus en détail la compétition entre ces différents modes, la région des masses symétriques est un lieu idéal. On reviendra sur cette étude dans le chapitre 5.

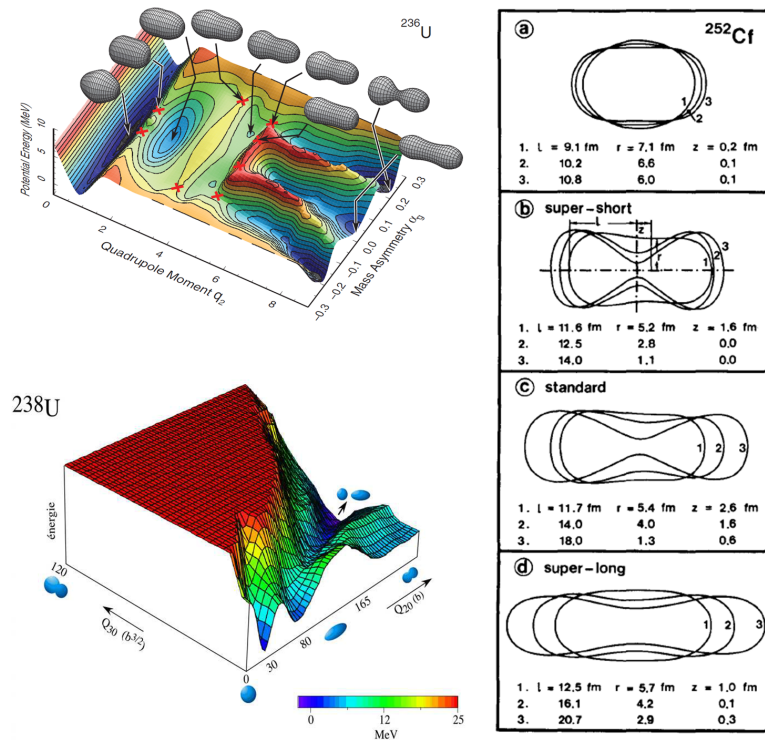


FIGURE 1.13 – Évidence de la modalité de la fission. En haut à gauche : calcul macroscopique-microscopique de la surface d'énergie potentielle. Figure extraite de [Ichikawa et al.(2012)]. En bas à gauche : calcul microscopique de la surface d'énergie potentielle. Figure extraite de [Goutte et al.(2005)]. À droite : présentation des modes de fission tels que décrits par le “random neck rupture model”. Figure extraite de [Brosa et al.(1990)].



## 1.2 Les modèles pour l'évaluation et les applications

Dans un rapport publié en 1988, l'IAEA considère que les modèles ne sont pas assez précis pour les applications. Ils recommandent notamment aux expérimentateurs de s'intéresser aux rendements des masses symétriques ainsi qu'aux rapports isomériques. Ils souhaitent aussi que les incertitudes systématiques et statistiques soient publiés tout comme les matrices de covariance [Lammer(1988)]. On pourrait croire que depuis 30 ans ces problèmes seraient résolues. Il n'en est rien. Malgré les progrès effectués auprès des différents modèles de fission, à ce jour les données évaluées des rendements de fission reposent toujours sur des modèles semi-empiriques, tels que celui de A.C. Wahl [Wahl(1988)] ou encore de D.G. Madland et T.R. England [Madland et England(1977)]. Dans le premier cas, les rendements en masse sont modélisés par des distributions gaussiennes dont les paramètres sont contraints par la conservation de la densité de charge nucléaire (UCD) avant et après la scission. Or il a été observé expérimentalement une polarisation de charges sur toute la région des masses, avec un point d'inflexion dans la région des masses symétriques. Pour prendre en compte cet effet, des corrections ont été ajoutées sur la densité de charge nucléaire. Dans le second cas, les fragments de fission sont supposés avoir une distribution de moment angulaire caractérisée par le paramètre  $J_{rms}$  appelé aussi spin cutoff. L'écart de  $J_{rms}$  au moment angulaire  $J$  de l'état isomère permet d'estimer la population relative de l'état isomère par rapport à l'état fondamental et d'en déduire son rendement. Dans un futur proche la bibliothèque européenne de données nucléaires JEFF souhaite utiliser le code GEF dans les futures évaluations [Schmidt *et al.*(2014)].

Les évaluations et les applications qui en découlent se nourrissent des modèles fondamentaux visant à décrire le processus de fission. La combinaison des données expérimentales et des approches théoriques permet de déterminer la valeur la plus exacte d'une observable. Aujourd'hui l'apport des modèles fondamentaux est encore à la marge dans l'évaluation des rendements mais les recommandations faites en 1988 sont toujours d'actualité. Afin de dimensionner des réacteurs nucléaires innovants, par exemple, il est nécessaire d'avoir des incertitudes les plus faibles possibles sur les paramètres d'entrée (rendements, sections efficaces, ...) mais aussi de connaître les interdépendances entre ces paramètres, via les matrices de covariance [Fiorito *et al.*(2014)]. La figure 1.14 présente l'évolution de l'incertitude sur la puissance résiduelle qui correspond à l'énergie dégagée par un réacteur à l'arrêt, calculée au cours du temps. On constate que la grande part de l'incertitude provient de celle des rendements de fission.

De plus, la NEA dans sa high priority list, requiert une connaissance plus précise du spectre de  $\gamma$  prompt pour différents noyaux fissionnant [Rimpault *et al.*(2012)]. Dans un réacteur, 70 % du rayonnement  $\gamma$  provient du processus de fission. Les données actuelles sont insuffisantes pour atteindre des précisions (7 %) sur l'énergie déposée dans les sous-structures des réacteurs de génération IV (réflecteurs, barres de contrôles...). Il est alors nécessaire d'obtenir de nouvelles mesures de  $\gamma$  prompts (mais aussi des  $\gamma$  retardés issus de la décroissance des produits de fission). Aussi le développement de modèles permettant de simuler le spectre  $\gamma$  à la suite d'une fission est indispensable. On citera par exemple le code FIFRELIN développé par le CEA Cadarache (sur lequel nous reviendrons en détail dans le chapitre 3), dont la particularité est de prendre en compte la structure discrète des noyaux mesurée expérimentalement. Cependant ces calculs sont très dépendants du moment angulaire des fragments de fission [Regnier *et al.*(2015)]. On rappelle que les évaluateurs utilisent à ce jour des données expérimentales et des modèles phénoménologique (Wahl, England) pour compléter et établir les données qui sont nécessaires aux calculs des applications.

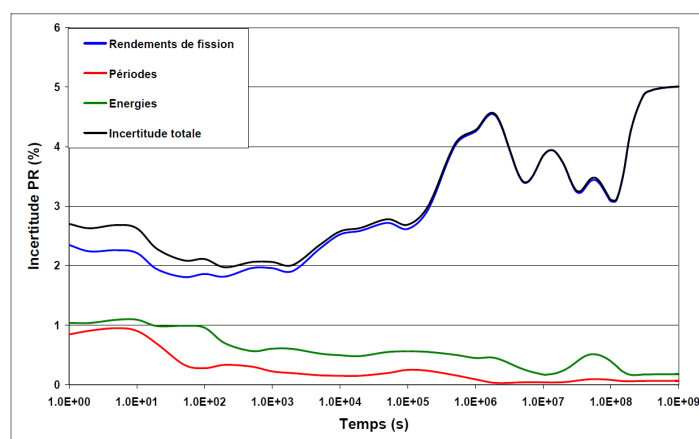


FIGURE 1.14 – Évolution de l'incertitude de la puissance résiduelle au cours du temps. L'incertitude sur les rendements de fission est la principale source d'erreur du calcul. Figure extraite de la thèse de J.C. Benoit [Benoit(2012)]

Ainsi afin de fournir aux applications des données évaluées aussi précises que complètes, il est nécessaire de tester le pouvoir de prédiction des modèles fondamentaux permettant la description du processus de fission.

### 1.3 Objectifs de la thèse

Les thèses précédentes s'intéressant à la fission auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN avaient pour objectif la mesure précise de rendements d'intérêt pour l'évaluation [Martin(2013), Amouroux(2014)]. Dans le cadre de cette thèse, on s'est intéressé à approfondir les aspects de la fission à travers l'étude du moment angulaire des fragments fissions et des propriétés (rendements et distributions en énergie cinétique) des fragments de la région symétrique.

Tout d'abord, concernant le moment angulaire des fragments de fission, lorsque le noyau composé se sépare en deux, les fragments de fission sont peuplés dans des états de haute énergie d'excitation et de haut moment angulaire (voir figure 1.15). Très rapidement, le fragment se désexcite en émettant des neutrons, qu'on appelle neutrons prompts, puis en émettant des photons  $\gamma$ , aussi appelés  $\gamma$  prompts. L'étude de ces  $\gamma$  prompts, par isotope, permet d'estimer alors la distribution du moment angulaire induit par le processus de fission. Pour étudier ces particules, un projet est en train de voir le jour à l'ILL : le projet FIPPS pour Fission Product Prompt  $\gamma$ -ray Spectrometer. Cet instrument est constitué d'une cible déposée sur un support, entourée de détecteurs  $\gamma$  et neutrons. Pour isoler la contribution de la fission, un filtre en masse, charge nucléaire, énergie cinétique et en temps est disposé en aval de la cible. Ainsi lorsqu'une fission a lieu, un fragment va être arrêté par le support, tandis que le second va être détecté par le "filtre fission". Une coïncidence entre le "filtre fission" et les détecteurs  $\gamma$  ou neutrons, permettra de nettoyer le spectre et ainsi d'extraire la contribution de chaque isotope produit par le processus de fission nucléaire. Au cours de cette thèse on s'est intéressé à la faisabilité de l'utilisation d'un spectromètre magnétique gazeux en tant que "filtre fission". Cette étude sera développée dans le chapitre 3.

Une autre technique usuellement utilisée pour étudier la distribution de moment angulaire

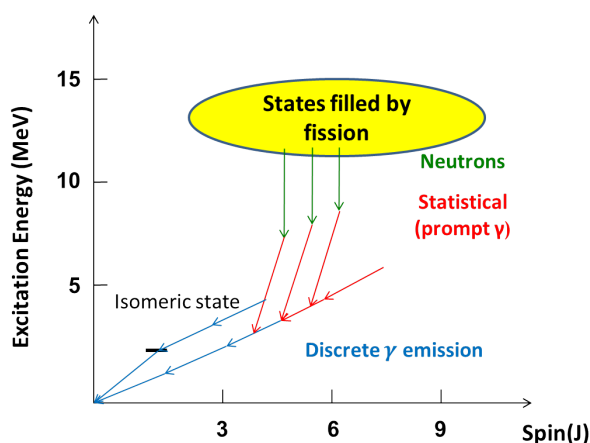


FIGURE 1.15 – Schéma de principe du peuplement des niveaux d'un fragment de fission après la scission du noyau composé. Afin de remonter à la distribution du moment angulaire induit par la fission, on peut mesurer le spectre de  $\gamma$  prompt, ou les rapports isomériques du fragment.

induit par la fission est de mesurer les rapports isomériques des fragments. Du fait de sa nature particulière, un état isomère, qui correspond à un niveau excité d'un noyau avec une durée de vie et un moment angulaire très différents de ses voisins, permet de déterminer indirectement la distribution du moment angulaire initial. Pour déterminer cette quantité, il faut utiliser un code de désexcitation nucléaire qui permet à partir d'un état initial d'estimer la probabilité d'alimenter l'état isomère par rapport à l'état fondamental. Différentes mesures ont eu lieu sur le spectromètre LOHENGRIN de l'ILL et seront exposées dans le chapitre 4. L'accent a été mis sur le développement de méthodes d'analyse à l'aide d'outils statistiques afin de mieux estimer les incertitudes et contrôler les éventuels biais des expériences.

Enfin, la région symétrique est un lieu intéressant pour étudier le processus de fission. Il semble acquis que la fission soit un processus modal. Cette région est donc très sensible aux prédictions des différents modèles au niveau des rendements mais aussi et surtout des distributions en énergie cinétique. Dans cette étude on présentera les résultats obtenus lors de la mesure de rendement en masse et des distributions en énergie cinétique dans la région symétrique, à l'aide du spectromètre de masse LOHENGRIN.

Finalement je terminerai sur quelques mots de M.B. Chadwick au sujet de la complémentarité entre la recherche effectuée à Livermore et celle de Los Alamos : *Livermore never performs a calculation it doesn't believe, whilst Los Alamos never makes a measurement it doesn't believe!*

## Conclusion

Ce chapitre retrace succinctement l'évolution au cours du temps des modèles fondamentaux permettant d'interpréter le processus de fission nucléaire (binaire). Cette thèse a un double objectif. Le premier est de vérifier la pertinence des observables expérimentales permettant de tester les hypothèses sous-jacentes des modèles et ainsi espérer contribuer indirectement à une meilleure compréhension des mécanismes mis en jeu dans la fission nucléaire. Le second objectif est d'amener la problématique de la validité d'un modèle dans le domaine des tests d'hypothèses. En effet, la thématique des données nucléaires et plus particulièrement des évaluations se situe à l'interface entre la physique fondamentale, où la logique des études est d'approfondir les connaissances et la physique appliquée, où l'enjeu est d'utiliser des modèles dans un espace de validité. Ainsi le cadre présenté au cours de ce premier chapitre est central pour la suite de ce travail de thèse.

# Un lieu unique pour étudier la fission : le spectromètre de masse LOHENGRIN de l'ILL

---

## Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Quelques mots sur l'Institut Laue Langevin</b>	<b>22</b>
<b>2.2</b>	<b>Les différentes méthodes d'identification des fragments de fission</b>	<b>22</b>
2.2.1	Méthode 2E	23
2.2.2	Méthode 2E-2v	24
2.2.3	Radiochimie	27
<b>2.3</b>	<b>Fonctionnement de LOHENGRIN</b>	<b>28</b>
2.3.1	Principe de séparation	29
2.3.2	Caractéristiques du spectromètre de masse LOHENGRIN	31
<b>2.4</b>	<b>Détecteurs utilisés à LOHENGRIN</b>	<b>36</b>
2.4.1	Chambre d'ionisation	36
2.4.2	Détecteurs de rayonnement $\gamma$	40
2.4.3	Principe de fonctionnement des détecteurs germanium	40
2.4.4	Efficacité des détecteurs $\gamma$	41
2.4.5	Effet de somme	42
<b>2.5</b>	<b>Système de pilotage et d'acquisition de LOHENGRIN</b>	<b>44</b>
2.5.1	Nomad : une interface pour contrôler LOHENGRIN	44
2.5.2	Nomad : un système d'acquisition	44
2.5.3	Nomad : avantage de l'automatisation de la prise de données	46

---

## Introduction

*Son pouvoir dure et sa force est sacrée* répond Lohengrin en parlant du Graal. Cette citation issue de l'opéra Lohengrin de Wagner, qui est à l'origine du nom du spectromètre de masse de l'ILL, résume parfaitement la place de LOHENGRIN en physique nucléaire. Depuis plus de 40 ans, le spectromètre de masse LOHENGRIN a su évoluer et rester compétitif quant à l'étude du processus de fission. Au cours de ce chapitre nous tâcherons de présenter les atouts d'un tel instrument au regard des autres techniques utilisées pour l'étude de ce phénomène. De même une description synthétique des principaux détecteurs utilisés au cours de cette thèse ainsi que le système d'acquisition seront décrits.

## 2.1 Quelques mots sur l'Institut Laue Langevin

L'institut Laue-Langevin est la conséquence de l'amitié franco-allemande, symbolisée par le physicien français Louis Néel et le physicien allemand Heinz Maier-Leibnitz. Sous l'impulsion de ces deux personnalités ainsi que des États français et allemand, l'ILL fut créé en Janvier 1967 [Institut Laue-Langevin(2015)]. Seulement 4 ans plus tard, la première divergence du réacteur a eu lieu. Depuis cette année 1971, l'ILL est la source de neutrons la plus intense d'Europe. Dès 1972, l'institut fournit aux scientifiques du monde entier des neutrons avec des performances inégalées. A travers sa diversité de recherches mais aussi de personnels, l'ILL est l'un des symboles de réussite de l'Europe.

Le réacteur de l'ILL est composé d'un combustible de 8,57 kg d' $^{235}\text{U}$  avec pour modérateur de l'eau lourde  $\text{D}_2\text{O}$ . La puissance thermique est de 58 MW. Au cours d'un cycle, d'une durée de 50 jours, 40 % du combustible est brûlé [Institut Laue-Langevin(2010)].

Aujourd'hui l'ILL compte 40 instruments dédiés à la recherche scientifique dans des domaines allant de la physique fondamentale à la biologie. Ces recherches peuvent conduire à la conception de nouvelles formes de glace pour stocker l'énergie [Falenty *et al.*(2014)] ou encore à l'observation du chat quantique du Cheshire [Denkmayr *et al.*(2014)]. On peut voir sur la Figure 2.1 une vue extérieure du réacteur et le plan des différentes lignes de neutrons et les instruments associés.

La diffractométrie des neutrons est la technique la plus utilisée par les instruments de l'ILL [Institut Laue-Langevin(2015)]. Elle permet, par exemple, de sonder la matière de manière complémentaire, voire exclusive pour certains échantillons, à la radiographie X. Les neutrons générés par le réacteur peuvent aussi être refroidis à l'aide d' $^4\text{He}$  ou de  $\text{D}_2$  liquide, pour étudier les propriétés fondamentales du neutron. On peut s'intéresser à sa période radioactive [Pichlmaier *et al.*(2010)], son moment dipolaire électrique [Thompson(1989)] ou encore à ses états quantiques dans un champ gravitationnel [Kreuz *et al.*(2009)]. En physique nucléaire, les neutrons sont utilisés afin d'induire une réaction de fission, ou de capture, afin d'étudier la structure nucléaire d'un noyau en particulier via le spectromètre GAMS [Koch *et al.*(1980)] ou bien sûr le processus de fission qui va nous intéresser au cours de cette thèse. Seul le spectromètre de masse LOHENGRIN [Armbruster *et al.*(1976)] peut nous permettre d'effectuer aujourd'hui cette étude à l'ILL. On pourra citer dans un futur proche le spectromètre FIPPS de l'ILL comme un nouvel outil pour étudier la fission nucléaire. Ce projet sera exposé dans le chapitre 3. Auparavant l'ILL abritait le spectromètre Cosi Fan Tutte qui a permis de nombreuses avancées dans la compréhension du processus de fission. On remarque ainsi qu'au cours des décennies de nombreux instruments se sont succédés pour étudier ce phénomène, avec en fil rouge le spectromètre de masse LOHENGRIN.

## 2.2 Les différentes méthodes d'identification des fragments de fission

Avant de présenter plus en détail le spectromètre de masse LOHENGRIN de l'ILL, nous allons présenter quelques méthodes pour identifier et étudier les fragments de fission. Les expériences pionnières dans la découverte de la fission ont été succinctement présentées au cours du chapitre 1. Les méthodes présentées ci-dessous sont bien entendu non exhaustives. Chacune des méthodes sera illustrée par la présentation et la description d'un instrument en lien avec cette méthode. Des résultats issus de ces mesures seront aussi mis en avant.

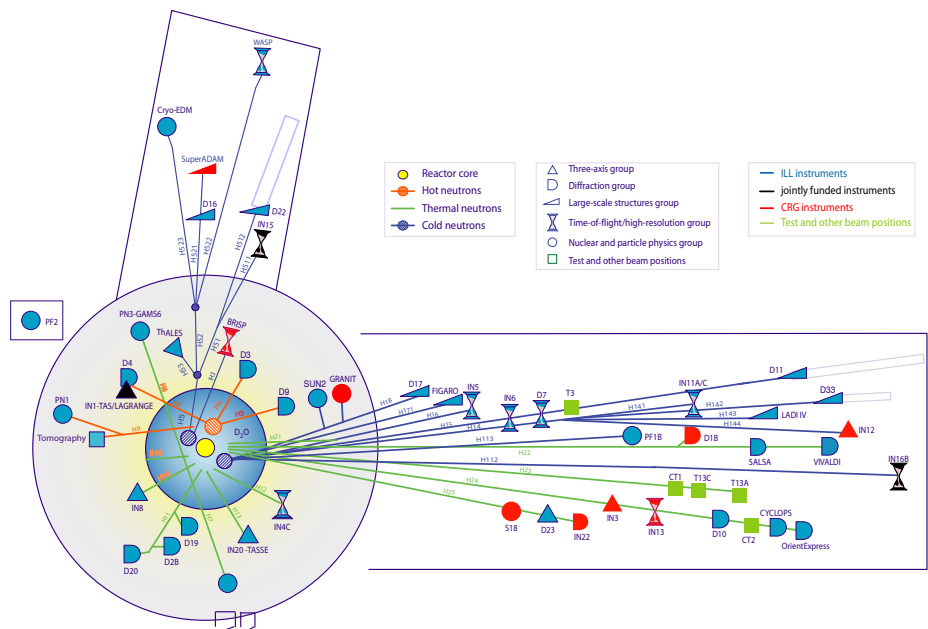


FIGURE 2.1 – La photo du haut représente une vue extérieure de l'Institut Laue-Langevin et plus particulièrement de son réacteur à haut flux [Institut Laue-Langevin(2015)]. Le schéma du bas est un plan des lignes de neutrons et des instruments associés. On y observe ainsi la diversité de la science (groupes) et des méthodes utilisées [Institut Laue-Langevin(2015)]

### 2.2.1 Méthode 2E

Dans le cas d'une fission induite par neutron thermique, les fragments de fission, qui sont des noyaux lourds, ont une énergie cinétique de 40 à 120 MeV suivant leur masse. Pour détecter ces particules, on utilise une chambre d'ionisation. Le fonctionnement de ce type de détecteur sera présenté dans le paragraphe 2.4.1. Si l'on veut s'intéresser à une observable de fission, comme les rendements en masse, une seule chambre d'ionisation ne suffit plus. Très rapidement les

physiciens qui étudient le processus de fission ont donc utilisé deux chambres d'ionisation dos à dos. Les deux chambres partagent la même cathode qui sert aussi de support au dépôt de matière fissile<sup>1</sup>. Un événement de fission (binaire) correspond à un signal émis simultanément dans les deux chambres d'ionisation. En calibrant les détecteurs [Schmitt et Leachman(1956)], on peut mesurer l'énergie cinétique de chaque fragment et obtenir l'égalité suivante :

$$TKE = E_T = E_L + E_H \quad (2.1)$$

où L et H définissent le fragment léger et le fragment lourd respectivement et  $E_T$  l'énergie cinétique totale libérée par la fission notée aussi  $TKE$  pour "total kinetic energy". On peut aussi écrire la conservation massique :

$$m_F \simeq m_L^* + m_H^* \quad (2.2)$$

où \* correspond au fragment avant émission neutron.  $m_F$  représente quant à lui la masse du système fissionnant. On va négliger ici la différence qu'on a entre la conservation du nombre de nucléons et la masse des fragments. De plus dans le centre de masse, la conservation de l'impulsion implique :

$$m_L^* v_L^* = m_H^* v_H^* \quad (2.3)$$

où  $v^*$  représente la vitesse des fragments pré-émission neutron. Dans le cas de particules non relativistes (ce qui est le cas pour la fission induite par neutron thermique) et si on élève au carré l'équation (2.3), on peut écrire

$$\frac{E_L^*}{m_L^*} = \frac{E_H^*}{m_H^*} \quad (2.4)$$

À ce point on observe les limites de cette méthode. En effet pour utiliser toutes ces équations et les lier à la mesure d'énergie effectuée post-émission neutron par les chambres d'ionisation on doit faire une hypothèse forte : il n'y a pas d'émission de neutron. Sinon on doit utiliser une mesure supplémentaire : la fameuse saw-tooth qui correspond à la multiplicité des neutrons prompts en fonction de la masse des fragments. Cependant, la principale limitation de ce type de mesure est sa résolution en énergie, donc en masse, de l'ordre de 4 unités (FWHM) [Wagemans(1991)]. Toutefois, ce type d'étude a permis d'observer l'asymétrie de la fission pour la plupart des actinides [Jentschke et Prankl(1942)] [Brunton et Hanna(1949)]. La Figure 2.2 illustre le dispositif expérimental composé d'une chambre à fission entourée d'un blindage de plomb (pour se protéger des rayonnements  $\gamma$  qui pourraient interagir dans les chambres d'ionisation) ainsi que de paraffine afin de ralentir les neutrons produits par la source de Rn-Be. La figure 2.3 montre quant à elle l'asymétrie de la fission de l'uranium.

### 2.2.2 Méthode 2E-2v

On vient de voir que, lorsqu'on mesure uniquement l'énergie des deux fragments, on ne peut déterminer avec précision la masse des fragments. L'idée est de mesurer simultanément l'énergie cinétique et la vitesse des fragments. Pour y parvenir on utilise une chambre d'ionisation ainsi qu'un détecteur de temps de vol. La combinaison des équations (2.2) et (2.3) aboutit à :

$$E_T^* = \frac{1}{2} m_F v_L^* v_H^* \quad (2.5)$$

1. L'ensemble constitue ce qu'on appelle communément une chambre à fission.



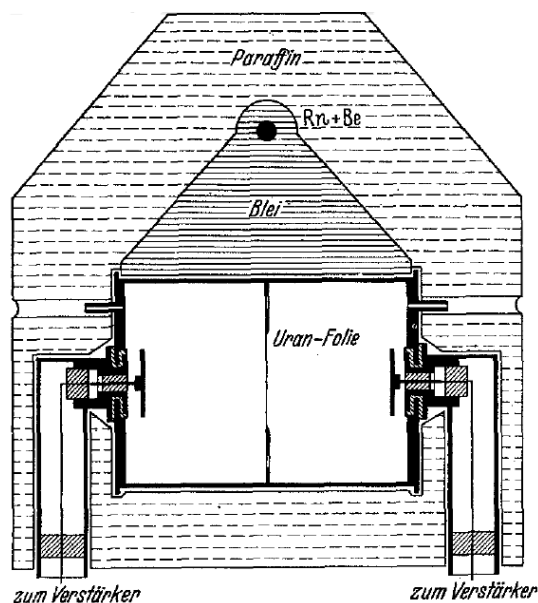


FIGURE 2.2 – Dispositif expérimental pour la mesure de la distribution en énergie cinétique des fragments de fission de l'uranium [Jentschke et Prankl(1942)]

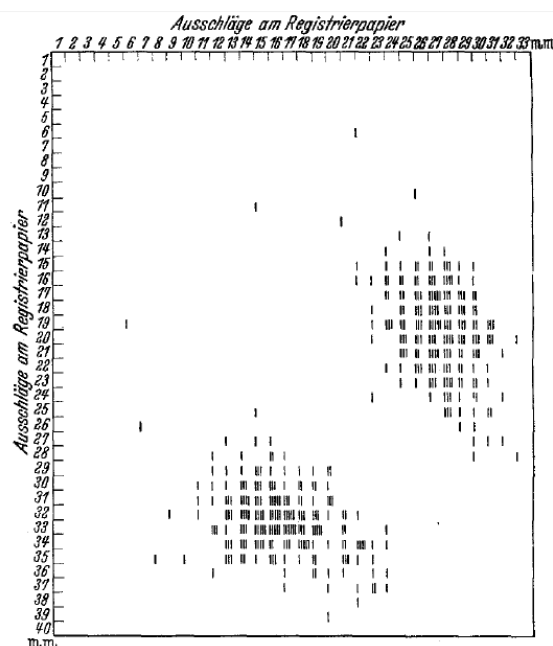


FIGURE 2.3 – Diagramme de l'amplitude des signaux pour chaque chambre d'ionisation. La hauteur des pulses étant proportionnelle à l'énergie, ce résultat illustre l'asymétrie de la fission de l'uranium [Jentschke et Prankl(1942)]

Contrairement à la détermination de l'énergie cinétique, la vitesse mesurée à l'aide d'un temps de vol n'est pas à corriger de l'émission neutron. Cette affirmation est correcte si l'on suppose que l'émission de neutron est isotrope. Dans ce cas, en moyenne, la vitesse mesurée ne dépend pas de cette émission [Kiker(1964)] [Wagemans(1991)]. Néanmoins la résolution s'en trouve détériorée. Pour déterminer le temps de vol, on va mesurer le temps parcouru par la particule entre deux détecteurs "start" et "stop". Le fragment créé va traverser une feuille très mince, 10 à 20  $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  de carbone ou d'oxyde d'aluminium [Wagemans(1991)] et éjecter des  $e^-$ . Ces  $e^-$  secondaires, après accélération, sont détectés par la combinaison d'un scintillateur et d'un photomultiplicateur [Kiker(1964)], ou par un microchannel plate detector (MCP) [Wiza(1979)]. Plusieurs possibilités existent quant au choix du stop. On peut rajouter un MCP [Oed et al.(1984)] ou alors utiliser la chambre d'ionisation [Kiker(1964)]. D'autres solutions existent et sont discutées par [Wagemans(1991)].

De nombreux résultats ont été obtenus, à Oak Ridge, à l'aide de ce type de spectromètre [Kiker(1964)] [Schmitt et al.(1965)] [Schmitt et al.(1966)] [Neiler et al.(1966)].

L'ILL avait aussi son propre spectromètre 2E-2v dans les années 80, le Cosi Fan Tutte [Oed et al.(1984)]. La figure 2.4 est un schéma de ce dernier. On note que la cible est au centre du dispositif avec deux chambres d'ionisation dos à dos séparées d'une distance de l'ordre de 2 m. Le dispositif à temps de vol est composé de deux MCP.

La résolution en temps obtenue est de l'ordre de 100 ps. De même la résolution en énergie des chambres d'ionisation est d'environ 400 keV. La combinaison de l'ensemble de ces détecteurs

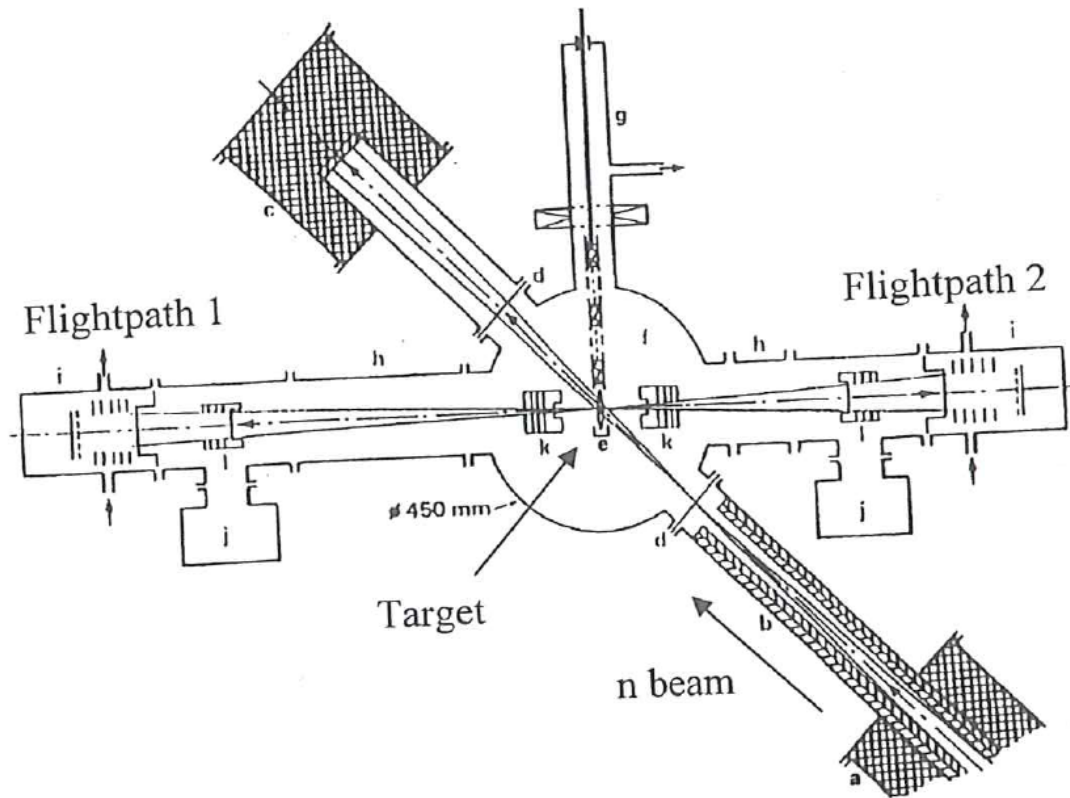


FIGURE 2.4 – Schéma du spectromètre *Cosi Fan Tutte* de l'ILL. On voit les deux chambres dos à dos, ainsi que le dispositif à temps de vol. Cette illustration est tirée de [Börner et Gönnenwein(2012)]

permet d'obtenir une résolution en masse de  $\sim 0.5$  uma (unité de masse atomique). Il faut bien noter que les rendements mesurés sont ceux post-émission neutron. Pour obtenir les rendements pre-émission il faut soit utiliser la saw-tooth<sup>2</sup>, soit utiliser uniquement les données issues du temps de vol. Malheureusement un dispositif 2v ne permet pas l'obtention d'une résolution en masse inférieure à 1 uma. La figure 2.5 illustre bien cet état de fait avec un diagramme entre la vitesse et l'énergie. Un résultat plus parlant est sans doute visible sur la figure 2.6 où on note bien que la résolution en masse est inférieure à l'unité. Néanmoins pour obtenir une telle résolution en masse il y a une contrepartie. En effet l'acceptance du dispositif est très faible. Ainsi la mesure d'événements rares reste très difficile. Cependant ces dernières années de nombreux projets de spectromètre 2E-2v sont apparus tels que Spider [Arnold *et al.*(2014)], Falstaff [Doré *et al.*(2014)] ou encore Verdi [Oberstedt *et al.*(2010)]. L'objectif est d'utiliser les récents développements technologiques (fenêtre d'entrée  $Si_3N_4$ , acquisition numérique permettant d'effectuer des coïncidence hors ligne) pour obtenir les mêmes performances (voire meilleures) mais avec une ouverture et couverture angulaire beaucoup plus grandes. De même l'intérêt est d'aller plus loin non seulement pour la mesure de rendements en masse mais aussi pour l'étude de l'émission neutron et  $\gamma$  [Börner et Gönnenwein(2012)].

2. multiplicité de l'émission de neutrons en fonction de la masse du fragment de fission

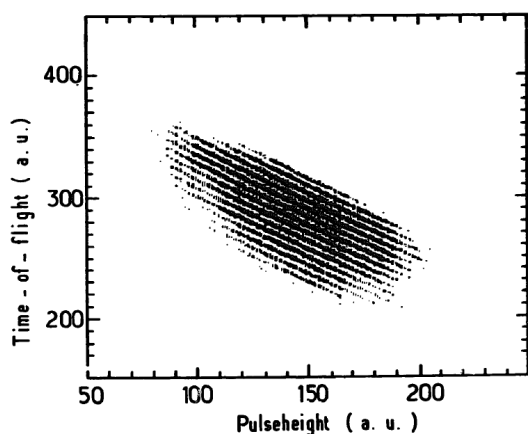


FIGURE 2.5 – *Corrélation entre le temps de vol (vitesse) et la tension induite par la chambre d'ionisation (énergie) pour des fragments issus de la fission du  $^{240}\text{Pu}$  [Boucheneb et al.(1991)].*

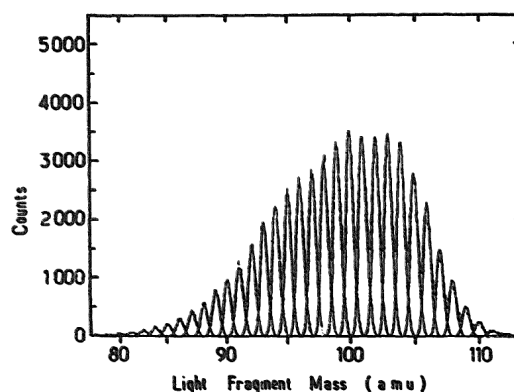


FIGURE 2.6 – *Taux de comptage en fonction de la masse pour des fragments légers issus de la fission du  $^{240}\text{Pu}$  [Boucheneb et al.(1991)].*

### 2.2.3 Radiochimie

L'une des techniques les plus précises pour mesurer des rendements en masse est l'utilisation de la radiochimie. L'échantillon d'intérêt (quelques mg) est placé sous un flux de neutrons (dans un réacteur, ligne de neutrons ...). La durée d'irradiation dépend de l'isotope dont on souhaite mesurer le rendement. Il s'agit très souvent d'un élément en bout de chaîne de décroissance, ainsi on obtient directement le rendement en masse (ou rendement isotopique cumulé). L'échantillon est ensuite extrait et dissous avec le dissolvant adéquat [Coryell et Sugarman(1951)]. En ajoutant un isotope avec les mêmes propriétés chimiques, appelé isotope "porteur", que celui d'intérêt, une meilleure purification et séparation de l'isotope est possible [Turkevich et Niday(1951)]. Le précipité ainsi obtenu est analysé à l'aide d'un compteur Geiger-Müller ou d'un détecteur  $\beta$  par exemple. Sachant quelle quantité d'isotope "porteur" a été utilisée, il est alors possible d'évaluer la quantité d'isotopes radioactifs qui n'a pas réussi à précipiter, à cause de l'imperfection des états de surface (où il a pu s'adsorber). L'hypothèse est que l'isotope "porteur" agit de la même manière que l'isotope dont on souhaite mesurer le rendement. La différence entre la quantité d'isotope "porteur" détectée et celle mise dans la solution permet d'évaluer précisément cet effet. On peut observer sur la figure 2.7 la procédure mise en place pour évaluer la quantité de  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ , ... présent dans la mer Noire suite à la catastrophe de Tchernobyl [Buessler et al.(1990)].

La limite de ce type de technique est le nombre d'isotopes accessibles. En effet les gaz nobles (Xe, Kr ...), ou à faible durée de vie ne peuvent être mesurés avec cette méthode. D'autres techniques telle que la séparation isotopique en ligne ont été développées afin de mesurer précisément les rendements de ces isotopes. On citera notamment le travail de Roger Brissot auprès du réacteur Mélusine de Grenoble [Brissot(1977)] [Brissot et al.(1975)]. La figure 2.8 illustre bien cet état de fait avec la mesure de 40 masses sur 110. De même seuls les isotopes avec une durée d'au moins quelques minutes sont mesurés. Néanmoins cette technique permet d'obtenir avec une grande précision des rendements cumulés qui sont souvent considérés comme des références.

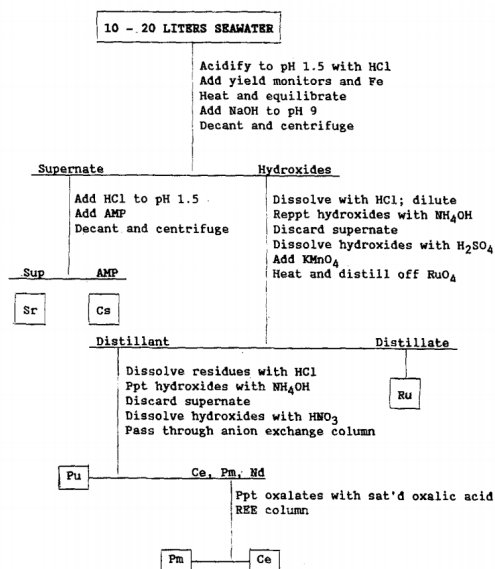


FIGURE 2.7 – Schéma de la procédure de séparation pour la mesure d'isotopes présents en mer Noire suite à l'accident de Tchernobyl [Buessler et al.(1990)]

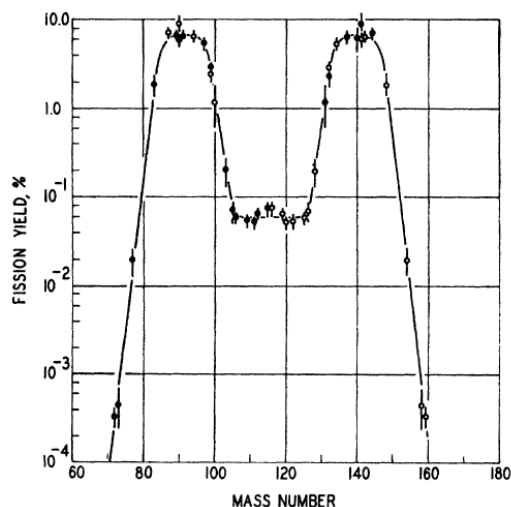


FIGURE 2.8 – Rendements en masse mesurés par radiochimie pour le  $^{232}\text{Th}$  après irradiation dans un réacteur [Turkevich et Niday(1951)]

## 2.3 Fonctionnement de LOHENGRIN

La dernière technique qu'on abordera dans ce chapitre est celle utilisant les spectromètres de masse afin d'identifier un fragment de fission. De nombreux spectromètres existent dans le monde. Chacun a une utilisation assez spécifique. Les deux techniques qui sont utilisées en spectroscopie de masse sont la détection directe des fragments de fission ou la détection en cinématique inverse. Pour la dernière méthode, on citera par exemple l'expérience SOFIA [Boutoux et al.(2013)] auprès du spectromètre Aladin. Un faisceau d'actinides ou de pré-actinides à haute énergie cinétique va interagir, par exemple, avec une cible composée de plomb. Au cours de l'interaction, le noyau d'actinide va pouvoir fissionner via ce qu'on appelle la fission électromagnétique [Armbruster et al.(1996)] [Bertulani et Baur(1988)]. Les fragments ainsi créés vont être séparés, entre autre, par le spectromètre Aladin. De même les réactions de transfert au cours desquelles on forme le noyau composé à l'aide d'une réaction indirecte [Rodríguez-Tajes et al.(2014)] telle que  $^{238}\text{U} + ^{12}\text{C} \rightarrow ^{242}\text{Pu}^*$  peuvent être analysées. Le spectromètre Vamos au Ganil, permet d'identifier les fragments de fission. Ces nouvelles techniques ont l'avantage d'étudier le processus de fission pour des noyaux de faibles durées de vie, ou difficiles à produire en grande quantité. De plus l'intérêt est d'étudier le phénomène à haute énergie d'excitation. Néanmoins pour ces réactions de transfert, l'impact du moment angulaire sur la fission semble ne pas être négligeable. En ce sens il devient plus difficile de les comparer directement aux mesures de rendement de fission induits par neutron où le moment angulaire apporté est très faible. Toutefois, cette observable est une nouvelle voie pour tester les différents modèles qui décrivent le processus de fission.

Avec le spectromètre de masse LOHENGRIN, on s'intéresse à la fission induite par neutron thermique. Au cours des prochains paragraphes, nous détaillerons son fonctionnement, les détec-

teurs utilisés pour mesurer les observables d'intérêt ainsi que l'évolution de cet instrument qui a été construit dans les années 70 et qui aujourd'hui est toujours incontournable pour l'étude du processus de fission. La figure 2.9 illustre les différents composants du spectromètre de masse LOHENGRIN. On remarque que la fission se déroule dans la cible qui est placée dans le canal H9, près du réacteur de l'ILL. Après 8 mètres de temps de vol, le produit de fission va être dévié par un champ magnétique et un déflecteur électrique qu'on peut observer sur la photo 2.10 prise durant la construction du spectromètre. Dans les années 90 un deuxième aimant, le Reverse

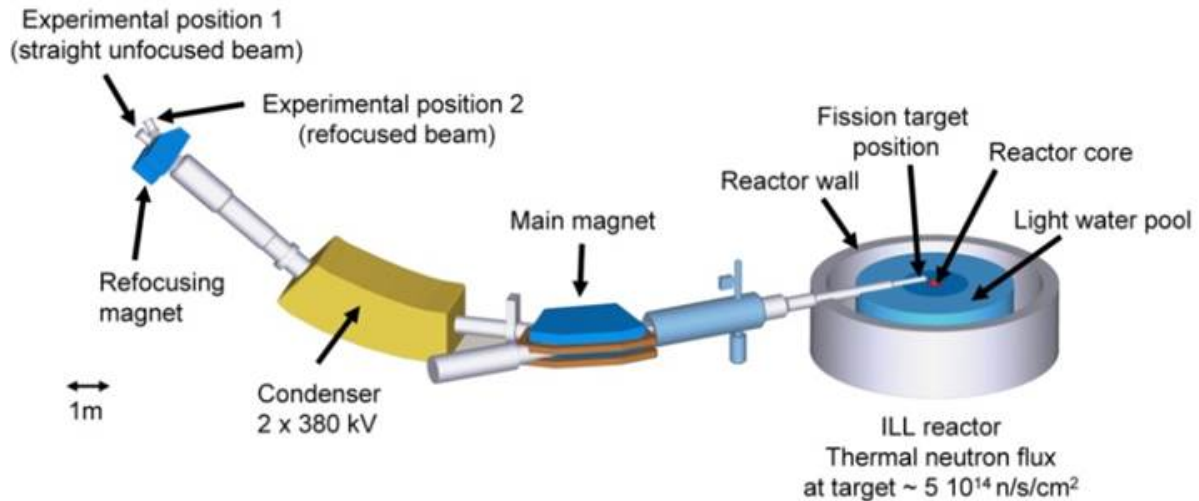


FIGURE 2.9 – Schéma du spectromètre de masse LOHENGRIN de l'ILL

Energy Dispersion (RED) [Fioni *et al.*(1993)], a été ajouté pour focaliser le faisceau et permettre la spectrométrie  $\gamma$  avec un taux de comptage plus important. Finalement l'ion termine sa trajectoire dans un détecteur placé au plan focal. Notons qu'il existe deux plans de détection : la position 1 qui correspond au cas où un produit de fission traverse le RED lorsque ce dernier n'est pas alimenté et la position 2 qui se trouve après le RED et est atteinte par le produit de fission lorsqu'il est en fonctionnement. Ces deux positions sont visibles sur les figures 2.11 et 2.9.

### 2.3.1 Principe de séparation

Qu'importe la physique qu'on souhaite étudier, un spectromètre de masse, en physique nucléaire, repose sur la combinaison de différents champs électromagnétiques. L'idée est d'utiliser la force de Lorentz pour obtenir un faisceau d'ions, ici de produits de fission, le plus pur possible. Le spectromètre de masse LOHENGRIN est composé d'un dipôle électrique (condensateur) et d'un dipôle magnétique.

D'après la seconde loi de Newton, le mouvement d'une particule de charge ionique  $q$ , de masse  $m$ , de vitesse  $\vec{v}$  dans un champ magnétique  $\vec{B}$  et un champ électrique  $\vec{E}$  s'écrit :

$$m \frac{d\vec{v}}{dt} = q\vec{E} + q\vec{v} \wedge \vec{B} \quad (2.6)$$

Dans le cas du spectromètre LOHENGRIN, la vitesse du produit de fission est perpendiculaire au champ magnétique. Par conséquent la trajectoire de la particule dans le plan perpendiculaire

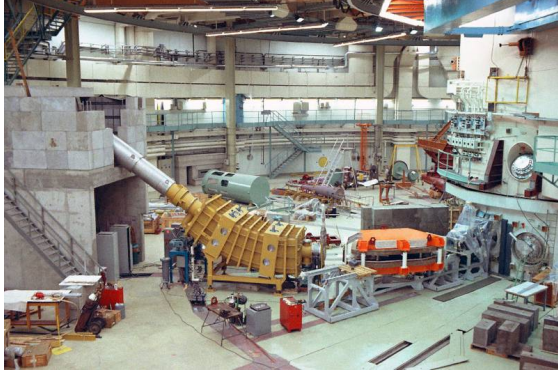


FIGURE 2.10 – Photographie du spectromètre de masse LOHENGRIN pendant sa construction. En orange, le dipôle magnétique et en jaune, le condensateur électrique. Le système de détection se trouve dans la casemate en haut à gauche.

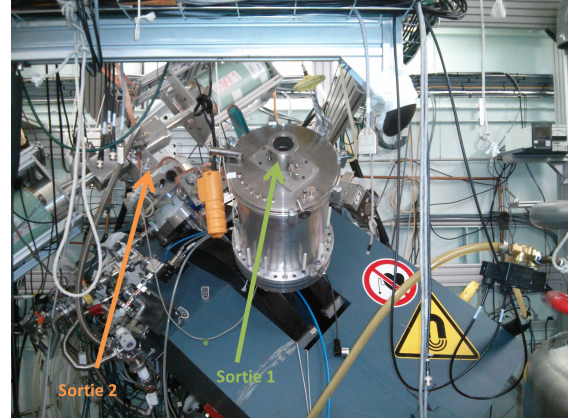


FIGURE 2.11 – Photographie du RED avec ses deux sorties. On aperçoit sur la sortie 1 une chambre d'ionisation de haute résolution. Au niveau de la sortie 2 on observe une chambre d'ionisation entourée de deux détecteurs  $\gamma$ .

à  $\vec{B}$  est circulaire, avec un rayon noté  $\rho_m$ . On peut ainsi écrire :

$$\frac{mv^2}{\rho_m} = qvB \quad (2.7)$$

Le produit de fission va ensuite subir une force électrique perpendiculaire, sur tout le parcours du condensateur [Faust *et al.*(1981)] de rayon  $\rho_{el}$ . Autrement dit, l'ion ne va pas être accéléré par le champ électrique. Comme pour l'équation (2.7), on obtient :

$$\frac{mv^2}{\rho_{el}} = qE \quad (2.8)$$

On peut réécrire l'équation 2.8 pour faire apparaître l'énergie cinétique  $E_K$ , en posant  $E = \frac{U}{d}$  où U est la tension appliquée entre les plaques éloignées d'une distance d, il vient :

$$E_K = \frac{\rho_{el}Uq}{2d} \quad (2.9)$$

Un produit de fission est caractérisé par sa masse  $m$ , sa charge ionique  $q$  et son énergie cinétique  $E_K$ . La déviation par un champ magnétique et électrique conduit aux équations (2.7) et (2.8). Le spectromètre de masse LOHENGRIN va permettre une séparation selon le rapport masse sur charge ionique,  $\frac{m}{q}$  et énergie cinétique sur charge ionique,  $\frac{E_K}{q}$ . On ne peut avoir une solution unique. Il existe donc une dégénérescence, c'est à dire que plusieurs produits de fission de masses, charges et énergies cinétiques différentes auront exactement la même trajectoire, la même optique ionique.

L'équation (2.9) permet de déterminer le second rapport :

$$\frac{E_K}{q} = \frac{\rho_{el}}{2d}U = \Phi U \quad (2.10)$$

où  $\Phi = \frac{\rho_{el}}{2d}$  est un paramètre qu'on va pouvoir régler afin de calibrer le spectromètre en énergie cinétique. On remarque que la sélection en énergie ne s'effectue qu'à l'aide de grandeurs dépendant du condensateur.

En mettant au carré l'équation (2.7) et en utilisant l'expression de la vitesse de l'équation (2.8) il vient :

$$\left(\frac{m}{q}\right)^2 = \left(\frac{B\rho_m}{v}\right)^2 = (B\rho_m)^2 \frac{m}{q} \frac{d}{\rho_{el}U} \quad (2.11)$$

Finalement, on peut écrire le premier rapport tel que :

$$\frac{m}{q} = (B\rho_m)^2 \frac{d}{\rho_{el}U} = \frac{B^2}{\chi U} \quad (2.12)$$

De même  $\chi = \frac{\rho_{el}}{d\rho_m^2}$  est un paramètre à régler. Il permet de calibrer la masse. On note que la sélection en masse dépend à la fois du champ magnétique et du champ électrique. La procédure de calibration est donnée dans un rapport interne de l'ILL [Faust *et al.*(1981)].

Dans la suite on va utiliser le nombre de nucléons  $A$ , comme étant la masse du produit de fission (sans tenir compte de la différence entre ces deux termes). La combinaison d'un champ électrique et magnétique permet la sélection de rapport masse sur charge ionique,  $\frac{m}{q}$  ou  $\frac{A}{q}$ , explicité par la formule (2.12) et d'énergie cinétique sur charge ionique,  $\frac{E_K}{q}$ , dont l'expression est décrite par l'équation (2.10). On a supposé que le fragment de fission n'était pas relativiste. Dans le cas de la fission thermique des actinides, la valeur maximale d'énergie cinétique pour un fragment de fission est de l'ordre de 120 MeV. De même la masse la plus faible détectée sur LOHENGRIN est autour de  $A=60$ . Il faut vérifier que cette assertion soit correcte :

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}} = \frac{1}{\sqrt{1-\frac{2E}{Am_u c^2}}} = 1.002 \quad (2.13)$$

où  $m_u c^2 = 931.5$  MeV est l'unité de masse atomique.

On constate qu'un produit de fission n'est absolument pas relativiste. Les équations classiques suffisent donc pour décrire sa trajectoire.

### 2.3.2 Caractéristiques du spectromètre de masse LOHENGRIN

Le spectromètre est situé sur la ligne de neutrons H9 de l'ILL. Une simulation du spectre en énergie des neutrons est présentée sur la figure 2.12 et 2.13. Le premier calcul fournit un spectre sur la gamme d'énergie 1 meV - 10 MeV. On note que le maximum se situe entre 10 et 100 meV. C'est la signature d'un spectre thermique. Quand on observe la seconde figure qui reproduit la gamme entre 0-100 meV, on remarque que le maximum est aux alentours de 25 meV. Un tel spectre est préférable pour étudier la fission. Le flux au niveau de la cible est de  $5.3 \cdot 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Ce flux très important est compensé par une acceptation angulaire du spectromètre de seulement  $3.2 \cdot 10^{-5} \text{ sr}$ . Néanmoins les taux de comptage obtenus sont suffisamment importants pour observer et mesurer avec une grande précision de nombreuses observables de fission. Par la suite le produit de fission est sélectionné selon sa masse  $A$ , sa charge ionique  $q$  et son énergie cinétique  $E_k$  comme on l'a démontré par les équations (2.10) et (2.12).

Pour décrire les trajectoires des produits de fission dans un spectromètre en masse, on peut utiliser l'optique ionique. Cette description repose sur une analogie avec l'optique géométrique où les dipôles magnétiques et électriques jouent le rôle de lentille et les ions ceux de la lumière. On ne décrira pas le formalisme de cette méthode, mais on va s'appuyer sur cette analogie avec

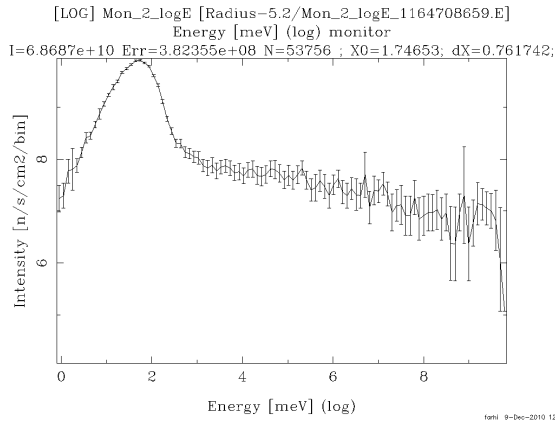


FIGURE 2.12 – Simulation du flux de neutrons en fonction de l'énergie dans le canal H9. L'énergie des neutrons est comprise entre 1 meV et 10 MeV [Institut Laue-Langevin(2015)].

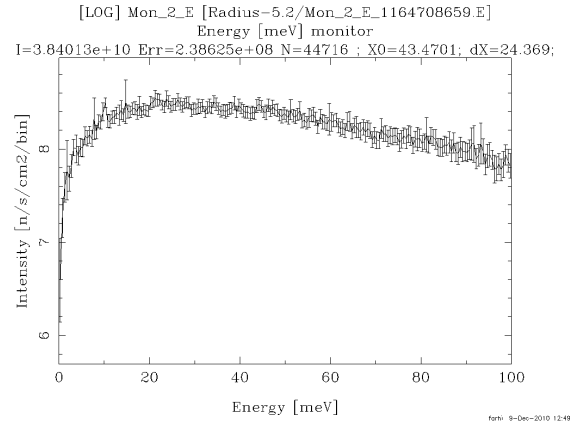


FIGURE 2.13 – Simulation du flux de neutrons en fonction de l'énergie dans le canal H9. L'énergie des neutrons est comprise entre 0 meV et 100 meV [Institut Laue-Langevin(2015)].

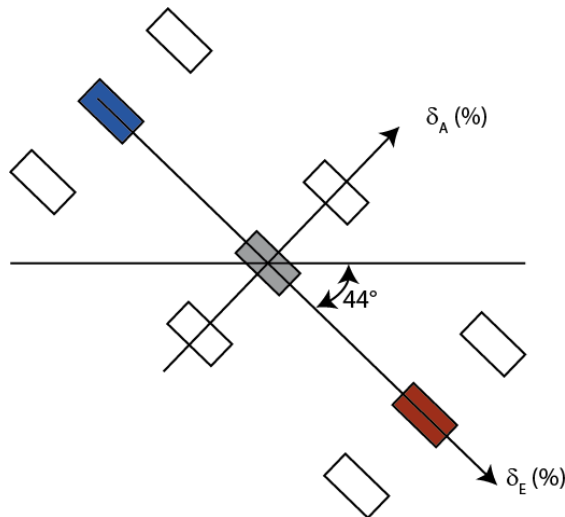


FIGURE 2.14 – Pouvoir de séparation du spectromètre de masse LOHENGRIN. Le rectangle central est l'image de la source. Les rectangles à  $\pm 1$  correspondent à des images de la source pour une variation  $\frac{\delta A}{A}$  et  $\frac{\delta E}{E}$  de 1%.

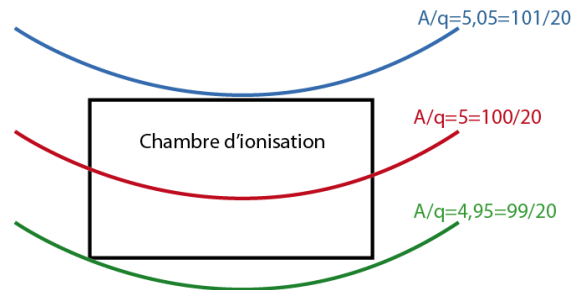


FIGURE 2.15 – Allure du plan focal. Notons que la contamination la plus proche n'est pas sélectionnée, ou très peu par le détecteur.

l'optique classique afin de mieux appréhender les propriétés de LOHENGRIN. La figure 2.14 présente l'image de la cible sur l'axe des énergies et des masses. Cela revient à dire que lorsqu'on règle notre système optique pour sélectionner le triplet  $(A, q, E_K)$  d'intérêt, les trajectoires des ions voisins (par exemple  $(A+1, q, E_K)$ ) auront une trajectoire qui sera décalée par rapport au point focal où sera placé notre détecteur. De plus, si on note  $x$  la déviation due au champ



magnétique et  $y$  celle du champ électrique, alors à partir de (2.7) et (2.8) :

$$x \propto \frac{1}{\rho_m} = \frac{qB}{\sqrt{2E_K A}} \quad (2.14)$$

$$y \propto \frac{1}{\rho_{el}} = \frac{qU}{\sqrt{2E_K}} \quad (2.15)$$

La combinaison des équations (2.14) et (2.15) permet d'aboutir à :

$$y \propto \frac{U}{B^2} \frac{A}{q} x^2 \quad (2.16)$$

On remarque alors que la trajectoire au niveau du plan focal suit une parabole comme on peut le voir sur la figure 2.15.

La définition d'une résolution en masse (ou pouvoir de séparation) d'un spectromètre correspond à la capacité de l'instrument à séparer deux masses voisines. Cela s'écrit simplement selon l'équation (2.17) :

$$R = \frac{A}{\Delta A} \quad (2.17)$$

avec  $\Delta A = (A - A') \frac{\delta l}{\Delta l}$  où  $\frac{\delta l}{\Delta l}$  permet d'exprimer la différence entre deux pics en unité de masse. En effet avec un spectromètre, la position des masses s'exprime en centimètre (si notre détecteur peut se déplacer sur le plan focal) ou alors en Gauss si le détecteur est sur une position fixe. Avec la formule (2.17), on peut retrouver les résolutions des spectres présentés sur les figures 2.16 et 2.17. Intéressons-nous au premier cas à l'aide de la figure 2.16. On va prendre la différence entre les masses 96 et 97 pour la charge  $q = 24$ . Avec  $B_1 \simeq 1495$  G et  $B_2 \simeq 1505$  G et une largeur à mi hauteur  $\delta l = 1$  G on a :

$$R = \frac{A}{\Delta A} = \frac{96 \times 10}{1} = 960 \quad (2.18)$$

On retrouve bien la valeur définie par [Armbruster *et al.*(1976)]. Pour la deuxième technique, on va utiliser une information qui est que la dispersion en masse de 1% correspond à un déplacement de 3.24 cm. Sur la figure 2.17 on observe que la largeur  $\delta x$  est de 0.2 mm. On peut alors écrire :

$$R = \frac{A}{\delta A} = \frac{A}{\Delta A} \times \frac{\Delta x}{\delta x} = \frac{100}{1} \times \frac{3.24}{0.02} \quad (2.19)$$

Finalement on obtient,

$$\frac{A}{\delta A} = 16200 \quad (2.20)$$

On retrouve bien la valeur de l'article [Armbruster *et al.*(1976)]. Il faut noter que la résolution en masse dépend de la taille de la cible,  $\delta x^2 = \Delta x_{cible}^2 + \delta_{geo}^2$ . Plus la cible est fine, meilleure est la séparation en masse. La limite provient de l'aberration géométrique de l'instrument. On peut déterminer cette quantité à partir d'une cible qui n'est qu'un filament. De la même manière, la résolution en énergie dépend aussi de la taille de la cible ainsi que de l'aberration géométrique de l'instrument.

Finalement, le tableau 2.1 résume les caractéristiques importantes du spectromètre de masse LOHENGRIN. On peut aussi retrouver d'autres cotes intéressantes sur la figure 2.18 notamment sur les légers changements qu'induisent l'ajout de l'aimant RED.

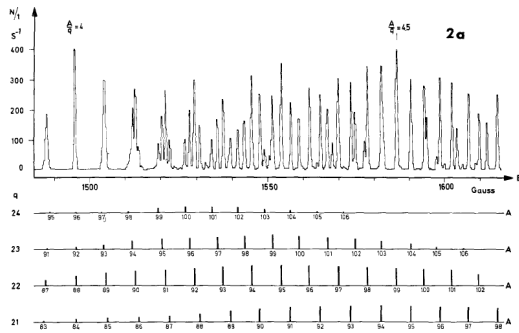


FIGURE 2.16 – Sélection en masse pour une tension électrique de 480 kV. La résolution en masse est de  $\frac{A}{\Delta A} \simeq 900$  [Armbuster et al.(1976)].

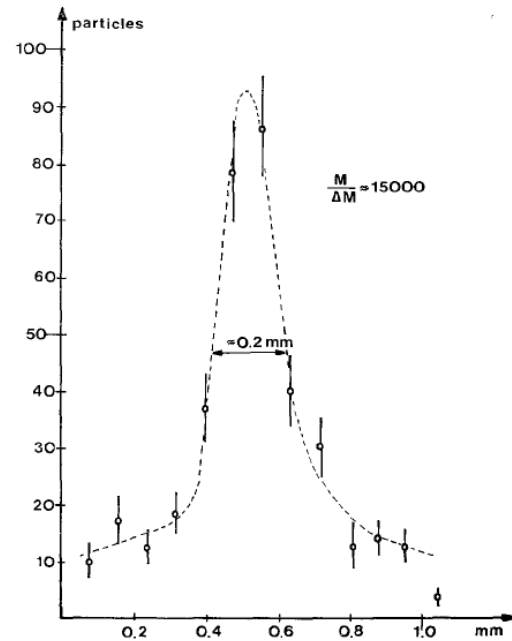


FIGURE 2.17 – Mesure de résolution en masse  $\frac{A}{\Delta A} \simeq 15000$  avec un seul isotope.

TABLE 2.1 – Caractéristiques du spectromètre LOHENGRIN [Institut Laue-Langevin(2015)]

Puissance du réacteur de l'ILL	58 MW
Flux au niveau de la cible	$5.3 \cdot 10^{14} \text{ n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
Angle solide	$\frac{\Omega}{4\pi} \leq 3.2 \cdot 10^{-5}$
Longueur totale de la trajectoire	23 m
Rayon de courbure magnétique	$\rho_m = 4 \text{ m}$
Rayon de courbure électrique	$\rho_{el} = 5.6 \text{ m}$
Rayon de courbure du RED	$\rho_{RED} = 0.6 \text{ m}$
Grandissement	1
Dispersion en masse : $\frac{\Delta A}{A} = 1\%$	3.24 cm
Dispersion en énergie : $\frac{\Delta E}{E} = 1\%$	7.2 cm
Pouvoir de séparation en masse	400 pour une cible de $0.8 \times 7.5\text{cm}^2$ 1500 pour une cible de $0.16 \times 4\text{cm}^2$

Distance entre le condensateur et le RED	5,24 m
Distance entre l'entrée du RED et le plan focal	$1.040 \pm 0.005$ m
Distance totale de la trajectoire avec/sans RED	23.15/23.0 m
Largeur entre fer (RED)	50 mm
Longueur totale de la trajectoire	23 m
Poids du RED	6125 kg

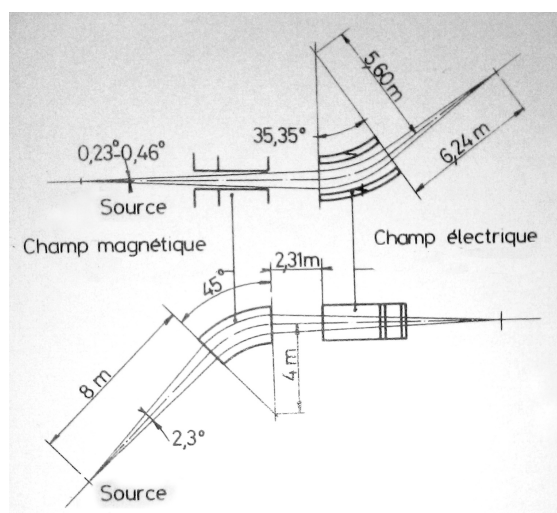


FIGURE 2.18 – Différentes cotes du spectromètre de masse LOHENGRIN. Influence du RED sur les caractéristiques de l'instrument.

## 2.4 Détecteurs utilisés à LOHENGRIN

Suivant la physique qu'on souhaite effectuer auprès de LOHENGRIN, différents détecteurs peuvent entrer en jeu. Dans le cadre de cette thèse, nous n'avons utilisé qu'une chambre d'ionisation et des détecteurs Ge de rayonnement  $\gamma$ . Dans cette partie nous expliquerons le fonctionnement et les caractéristiques de ces détecteurs. Dans le cas des détecteurs  $\gamma$  la description de la procédure pour déterminer l'efficacité de détection est présentée ainsi que la notion d'effet de somme.

### 2.4.1 Chambre d'ionisation

La chambre d'ionisation est un détecteur incontournable pour détecter et mesurer l'énergie d'un fragment de fission. On a vu au cours des paragraphes précédents qu'elle joue un rôle important dans l'étude du processus de fission. Dans le cas du spectromètre de masse LOHENGRIN, elle permet de démêler le multiplet  $(A, E_K, q)$ .

Lorsqu'un produit de fission va interagir avec le gaz du détecteur, les atomes sur sa trajectoire vont s'exciter et s'ioniser, c'est-à-dire des électrons vont être arrachés. Soumis à un champ électrique, les ions et les électrons vont être collectés par la cathode et l'anode respectivement. La figure 2.19 permet de décrire, schématiquement, le fonctionnement d'une chambre d'ionisation. Il existe bien sûr d'autres processus qui vont entrer en jeu tel que la recombinaison, l'ionisation secondaire ...

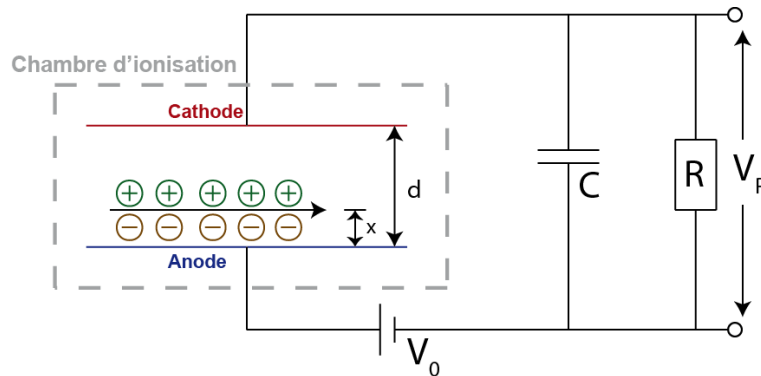


FIGURE 2.19 – Schéma descriptif du fonctionnement d'une chambre d'ionisation. Le signal créé par la collection de charges (des électrons) a une constante de temps donnée par  $RC$  [Knoll(2000)]

La vitesse de dérive dépend du champ électrique appliqué, mais aussi et surtout de la nature des particules. Puisque les électrons ont une masse beaucoup plus faible que les ions, ils vont dériver environ 1000 fois [Knoll(2000)] plus rapidement que ces derniers. Le signal électrique généré par la collection des électrons s'écrit :

$$V = \frac{n_0 e x}{C d} \quad (2.21)$$

où  $n_0 = \frac{E_K}{W}$  est le nombre de paires d'ions/électrons créées par le passage du produit de fission d'énergie cinétique  $E_k$  ( $W$  est le potentiel d'ionisation du gaz),  $x$  la distance de l'anode où l'ion lourd est passé (on suppose que la trajectoire est rectiligne et à distance constante),  $C$  la capacité

du condensateur,  $e$  la charge électrique élémentaire et  $d$  la distance anode-cathode. On remarque que la tension dépend de la position où a eu lieu l'interaction [Knoll(2000)].

La chambre d'ionisation utilisée sur le spectromètre de masse LOHENGRIN et décrite par la figure 2.20 dispose d'une grille de Frisch entre l'anode et la cathode. Cette grille, sous tension, va permettre de rendre la collection de charges indépendante de la position où a lieu l'interaction [Knoll(2000)]. La tension aux bornes de la chambre d'ionisation s'écrit alors :

$$V = \frac{n_0 e}{C} \quad (2.22)$$

L'amplitude du signal généré par le passage du produit de fission dans la chambre est proportionnelle au nombre de paires d'ions formées et donc à l'énergie de la particule incidente [Knoll(2000)]. La résolution en temps s'en retrouve aussi améliorée car le temps de montée du signal dépend de la charge créée. La résolution d'une chambre d'ionisation dépend de différents paramètres :

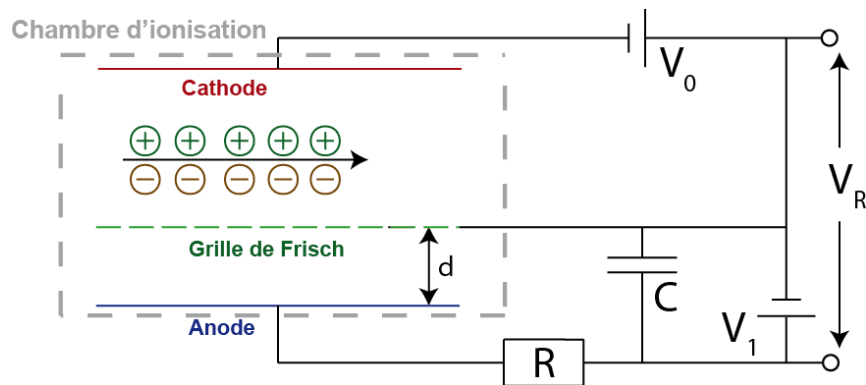


FIGURE 2.20 – Schéma descriptif du fonctionnement d'une chambre d'ionisation avec une grille de Frisch. Le signal issu de la collection des électrons sur l'anode ne dépend plus de la position de l'interaction entre les molécules du gaz et la particule incidente.

- La largeur en énergie du faisceau (dans le cas de LOHENGRIN, celle-ci dépend de la taille de la cible)
- La résolution intrinsèque
- Bruit électronique
- Propriétés du gaz
- Fenêtre d'entrée

Dans le cas du spectromètre LOHENGRIN, la largeur du faisceau dépend du collimateur en sortie du condensateur (appelé aussi shutter) ainsi que de la taille de la cible. Pour une cible de 7.5 cm de longueur et un collimateur de 3.5 cm, la résolution relative est de 1 %.

La résolution intrinsèque en énergie dépend de la fluctuation du nombre de paires d'ions créées. Cette fluctuation n'est pas uniquement due à l'incertitude statistique. Afin de retrouver la résolution intrinsèque expérimentale, il est alors nécessaire d'introduire un facteur correctif empirique : le facteur de Fano<sup>3</sup>. Pour une chambre d'ionisation, la résolution intrinsèque est de l'ordre de  $R = 0.2\%$  [Knoll(2000)].

3. Cela signifie simplement que les processus de création des électrons ne sont pas indépendants entre deux collisions le long de la trajectoire

Cette résolution n'est malheureusement pas observée expérimentalement car d'autres sources d'incertitudes viennent s'ajouter à celle de la collection de charge. Le bruit électronique, notamment joue un rôle très important car l'amplitude du signal est relativement faible. Le choix du gaz et sa pression permet d'améliorer sensiblement la résolution en énergie.

En effet, sur le spectromètre de masse LOHENGRIN, la chambre se doit d'être étanche. Le condensateur étant sous vide, le gaz employé se doit d'être le moins diffusif possible. Cela signifie que la pression appliquée dans la chambre d'ionisation se doit d'être la plus faible possible. Néanmoins si elle est trop faible ( $< 1$  mbar), alors le gaz n'est plus isolant et il existe alors des risques de claquages. L'isobutane se révèle alors un gaz de choix car il permet de fonctionner à des pressions relativement basses (20-50 mbar), mais délivre aussi un signal électrique élevé pour une tension assez basse [Bocquet *et al.*(1988)]. La vitesse de dérive des électrons, qui gouverne la résolution en temps, et donc le taux de comptage accessible par la chambre, dépend de la pression et de la nature du gaz [Fulbright(1979)]. La figure 2.21 illustre la dépendance de cette vitesse en fonction du champ électrique et de la pression. La forme de la courbe représente la compétition entre le processus d'ionisation et de recombinaison. De plus, si de l'air est présent dans la chambre, et plus exactement de l'oxygène, ce dernier va attirer les électrons et former un ion négatif [Fulbright(1979)]. Il est donc très important de s'assurer que la chambre ne possède pas de telles impuretés. La figure 2.22 illustre l'impact de la présence d'isobutane sur la vitesse de dérive des électrons. On remarque que plus on rajoute de l'isobutane et plus le plateau est important. C'est pour toutes ces raisons que sur le spectromètre de masse LOHENGRIN, la chambre d'ionisation est utilisée avec de l'isobutane. On a la meilleure combinaison au niveau de l'amplitude du signal, de la réduction des fuites, de la tension appliquée et du taux de comptage.

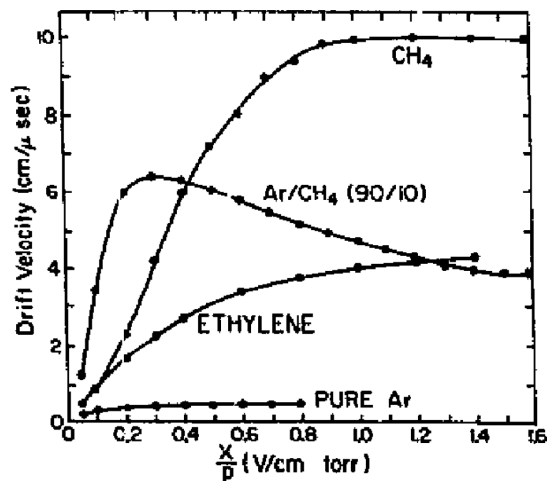


FIGURE 2.21 – Vitesse de dérive des électrons en fonction de la nature du gaz et du rapport champ électrique sur pression  $\frac{E}{P} = \frac{U}{lP}$  [Fulbright(1979)].

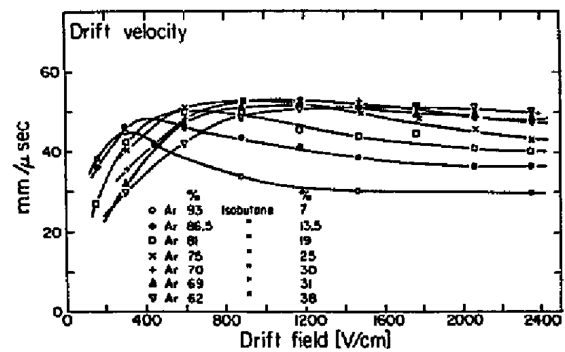


FIGURE 2.22 – Vitesse de dérive des électrons en fonction de la composition en isobutane et Ar d'un gaz et du champ électrique [Fulbright(1979)].

Un autre facteur d'importance sur la résolution en énergie est la feuille d'entrée de la chambre d'ionisation. Si elle est trop épaisse, ou inhomogène, la fluctuation de l'énergie peut être très importante. Différents types de feuilles ont été utilisés au cours des décennies sur l'instrument [Oed

*et al.*(1983)]. La figure 2.23 illustre la différence de résolution entre une feuille de polypropylène et de nitrure de silicium  $Si_3N_4$ . La résolution définitive est la convolution de celle de la feuille, de la chambre d'ionisation mais aussi du spectromètre de masse LOHENGRIN (et plus précisément du condensateur).

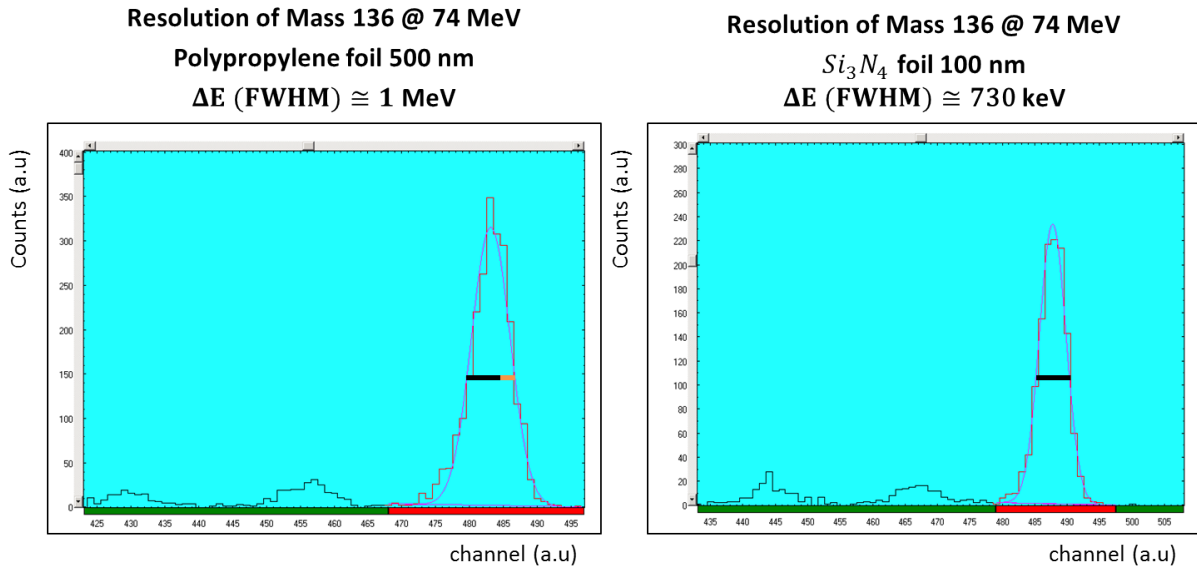


FIGURE 2.23 – Comparaison de la résolution en énergie pour les mêmes conditions d'énergie cinétique, de charge ionique et de masse entre une feuille d'entrée de polypropylène et de nitrure de silicium ( $Si_3N_4$ ). Données issues du logiciel d'acquisition MPANT [FAST ComTec GmbH(1998)].

On rappelle qu'avec LOHENGRIN on a une sélection en rapport  $\frac{A}{q}$  et  $\frac{E_K}{q}$ . Autrement dit si l'on est capable de mesurer l'énergie cinétique de nos produits de fission, alors on est capable de remonter à leur masse. Afin d'identifier de manière plus précises le produit de fission, on découpe l'anode en deux parties. On verra dans le chapitre 5 qu'il est impératif d'utiliser une telle chambre afin d'identifier correctement la masse symétrique. L'ion incident perd donc une énergie  $\Delta E$  dans la première partie de la chambre, et  $E_r$  dans la seconde. Si l'on construit un histogramme à 2 dimensions, avec en abscisse l'énergie totale détectée  $E_{tot}$  et en ordonné l'énergie perdue dans la première zone de la chambre  $\Delta E$ , on parvient à identifier plus facilement chaque masse du bruit de fond. La figure 2.24 représente le diagramme à deux dimensions. Pour des masses légères, on peut aussi déterminer la charge nucléaire  $Z$  du produit de fission [Bocquet *et al.*(1988)]. En effet la perte d'énergie dans un gaz est régie par la formule de Bethe Bloch qu'on étudiera plus en détail dans le chapitre 3. Dans cette formule la perte d'énergie le long de la trajectoire dépend de la charge nucléaire. Ainsi avec une chambre d'ionisation de haute résolution, il est possible pour une masse donnée d'observer sa composition isobarique. Le pouvoir de séparation dépend la différence entre la courbe de Bragg des deux isotopes voisins. En général, la meilleure résolution est atteinte pour une perte d'énergie  $\Delta E \simeq 60$  %. En outre, un écart de l'ordre de 20% sur la pression ne modifie pas la résolution [Oed *et al.*(1983)].

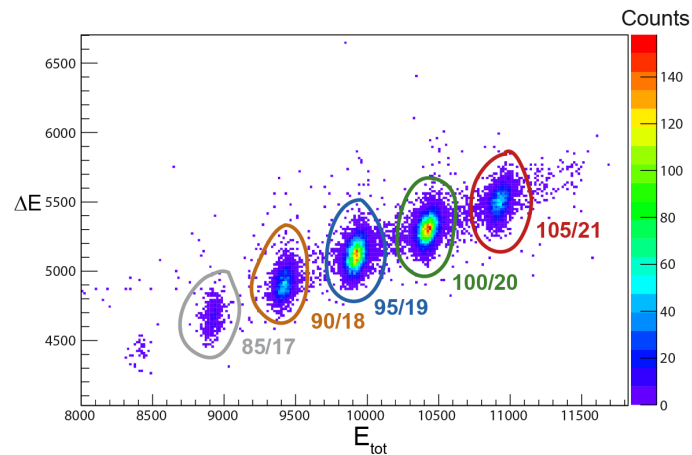


FIGURE 2.24 – Spectre issu d’une chambre d’ionisation à la sortie du spectromètre de masse LOHENGRIN. L’instrument était réglé sur le rapport  $\frac{A}{q} = 5$  et  $\frac{E_k}{q} = 5$ . On observe alors la dégénérescence de la sélection du spectromètre.

### 2.4.2 Détecteurs de rayonnement $\gamma$

La plupart des produits de fission sont radioactifs. Afin de les identifier on peut s’intéresser à leur signature  $\gamma$ . Comme l’empreinte ADN l’est pour l’homme, le spectre  $\gamma$  d’un noyau est unique. Pour détecter ce rayonnement on utilise un détecteur germanium de haute pureté (HPGe). Nous tâcherons d’expliquer succinctement le fonctionnement de ce type de détecteur.

### 2.4.3 Principe de fonctionnement des détecteurs germanium

Il existe trois modes principaux pour la gamme d’énergies d’intérêt (100-2000) keV d’interaction du photon avec la matière :

- L’effet Compton
- L’effet photoélectrique
- La création de paires

Un détecteur germanium est un semi-conducteur. Il possède donc une bande de conduction et une bande de valence relativement proche (de l’ordre de 1 eV) [Knoll(2000)]. Ainsi sous l’effet de la température, des électrons de la bande de valence vont passer sur la bande de conduction. La bande de conduction permet aux électrons de migrer librement à travers le cristal. Si l’on applique un potentiel électrique, alors un courant électrique va apparaître. Sinon il est possible d’observer des recombinaisons. Pour favoriser ces échanges, on peut doper notre cristal. C’est-à-dire qu’on va remplacer certains atomes de germanium par des atomes de bore (type p) ou de phosphore (type n). Lorsqu’on effectue cela, on va créer des électrons ou des trous libres dans le cristal. Par juxtaposition d’un semi conducteur dopé p avec un dopé n, on crée une jonction PN. Il existe alors une zone de déplétion où aucun trou ou électron libre n’est présent. Un champ électrique est appliqué dans cette zone. Le photon incident va interagir dans la zone déplétée et créer des paires électrons-trous qui sous l’action du champ électrique vont se déplacer vers la l’anode ou la cathode respectivement. Le dopage au niveau du contact permet d’améliorer la collection de charge [Knoll(2000)]. Afin de réduire le passage des électrons de la bande de valence à la bande de conduction sous l’agitation thermique, et qui induisent un signal non souhaité, les



détecteurs germanium sont refroidis aux alentours de 70K.

Enfin, si les détecteurs semi-conducteurs et plus particulièrement les HPGe sont utilisés pour la spectroscopie  $\gamma$  c'est qu'ils ont une très bonne résolution en énergie. On a pu obtenir sur nos détecteurs des résolutions de l'ordre de 2 keV pour un  $\gamma$  de 1332 keV. Ceci est amplement suffisant pour les mesures faites sur le spectromètre de masse LOHENGRIN.

Au cours de ce travail, les détecteurs  $\gamma$  utilisés, au nombre de deux, sont composés de quatre cristaux de germanium disposés en forme de trèfle. Chaque cristal, de forme parallélépipédique, a une largeur de 50 mm et une hauteur de 80 mm. Ainsi la surface d'entrée est de  $10 \times 10$  cm. L'efficacité de détection est de l'ordre de 6 % à 80 keV et de 0.5 % à 1 MeV.

#### 2.4.4 Efficacité des détecteurs $\gamma$

Usuellement pour déterminer l'efficacité d'un détecteur  $\gamma$ , on utilise une ou plusieurs sources de calibrations, puis on effectue un fit à l'aide d'un polynôme. Avec une telle procédure, l'extrapolation des données, hors de la région du fit, peut conduire à une mauvaise estimation de l'efficacité. On peut citer l'effet pandemonium comme la conséquence de la mauvaise maîtrise de l'efficacité du détecteur à haute énergie, qui *in fine* conduit à une erreur sur les intensités de décroissance  $\beta$ .

Afin de valider l'efficacité des détecteurs le plus précisément possible, une simulation Monte Carlo des HPGe, s'appuyant sur les processus physiques (d'interaction rayonnement matière), a été effectuée [Martin(2013)]. Dans un premier temps, seule l'efficacité relative nous intéresse. On souhaite s'assurer que la simulation est compatible avec des données expérimentales provenant du  $^{134}\text{Te}$ , comme on peut le voir sur la figure 2.25 et aussi quantifier cette compatibilité. Pour se faire, on utilise un test du  $\chi^2$  :

$$\chi^2(k) = \sum \frac{(k \times \varepsilon_{MCNP} - \varepsilon_{exp})^2}{(k \times \sigma_{\varepsilon_{MCNP}})^2 + \sigma_{\varepsilon_{exp}}^2} \quad (2.23)$$

avec  $k$  le paramètre qu'on souhaite ajuster,  $\varepsilon_{exp}$  l'efficacité expérimentale et  $\varepsilon_{MCNP}$  l'efficacité de la simulation. On note qu'au dénominateur, l'incertitude de la simulation (uniquement statistique et donc très faible) ainsi que l'incertitude expérimentale (statistique et provenant des intensités  $\gamma$ ) sont prises en compte<sup>4</sup>.

La valeur minimale  $\chi^2(k_{min}) = \chi_{min}^2$ , permet d'extraire la valeur du paramètre  $k$ . Son incertitude  $\delta^5$  est déterminée par la relation :  $\chi^2(k_{min} \pm \delta k) = \chi_{min}^2 + 1$ . Finalement l'efficacité de détection et son incertitude s'écrivent :

$$\varepsilon = \tilde{k} \times \varepsilon_{MCNP} \quad (2.24)$$

$$\left(\frac{\sigma_{\varepsilon}}{\varepsilon}\right)^2 = \left(\frac{\Delta_{\tilde{k}}}{\tilde{k}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\varepsilon_{MCNP}}}{\varepsilon_{MCNP}}\right)^2 \quad (2.25)$$

L'incertitude sur l'efficacité est de 2.5 % sur toute la gamme d'énergie (de 50 keV à 3 MeV).

4. Au cours de cette procédure une hypothèse forte est formulée : les intensités relatives des raies gamma expérimentales sont indépendantes

5. avec un niveau de confiance de 68 % ( $1\sigma$ )

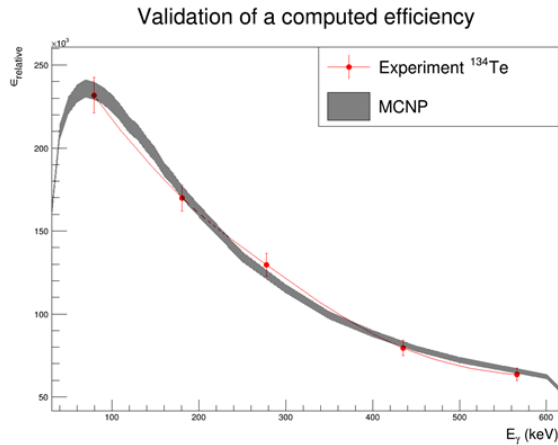


FIGURE 2.25 – Comparaison de l’efficacité simulée et expérimentale à l’aide des raies  $\gamma$  du  $^{134}\text{Te}$ . L’incertitude sur la simulation provient essentiellement de l’incertitude sur le paramètre  $k$ .

### 2.4.5 Effet de somme

L’effet de somme, noté  $C_\gamma$  correspond à la probabilité de détecter simultanément deux raies  $\gamma$ . Cet effet signifie que la détection des rayonnements  $\gamma$  peut être corrélée. Il est majoritairement un effet de géométrie et se doit d’être modélisé afin de déterminer l’activité d’une source [Laborie *et al.*(2000)] :

$$N_\gamma^{\text{détecté}} = N_\gamma^{\text{émis}} \times \varepsilon_\gamma \times C_\gamma \quad (2.26)$$

avec  $\varepsilon_\gamma$  l’efficacité de détection de la raie  $\gamma$ , et  $N_\gamma$  le nombre de photons soit émis par la source, soit mesurés par le détecteur.  $C_\gamma$  est donnée par l’équation (2.27) :

$$C_\gamma = \frac{1}{1 - \sum_i I_{\gamma_i} \varepsilon_T(E_{\gamma_i})} \quad (2.27)$$

où  $I_{\gamma_i}$ ,  $E_{\gamma_i}$  est l’intensité et l’énergie des raies  $\gamma$  en coïncidence avec la raie d’intérêt. L’efficacité totale de détection, noté  $\varepsilon_T$  prend en compte l’efficacité due à l’effet photoélectrique, l’effet Compton et la création de paire. Il a été montré que dans les conditions d’utilisation des détecteurs  $\gamma$  auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN, soit à environ 10 cm du plan focal, ce phénomène n’était pas négligeable [Martin(2013)]. La figure 2.26 montre bien que ce processus doit être pris en compte. Pour corriger cet effet qui dépend de la structure nucléaire du noyau étudié, le logiciel TrueCoinc, développé par Sudár [Sudár(2002)] a été utilisé. Les paramètres d’entrée du logiciel sont l’efficacité absolue du détecteur ainsi que le fichier de structure du noyau<sup>6</sup>.

L’incertitude associée au facteur de correction  $C_\gamma$  est négligeable car les erreurs associées aux intensités  $\gamma$  sont très faibles. La sensibilité à l’efficacité ( $\sim 2\%$ ) est aussi nulle. Par conséquent, dans la suite de ce travail de thèse, les corrélations entre le facteur de correction de l’effet de somme  $C_\gamma$  avec l’efficacité  $\varepsilon$  et l’intensité des raies  $\gamma$ ,  $I_\gamma$  sont supposées nulles.

6. Pour déterminer l’efficacité absolue, on utilise une source de  $^{60}\text{Co}$ . En effet à l’aide de l’effet de somme, qu’on peut déterminer analytiquement (car la structure du noyau est simple), on peut obtenir une efficacité absolue sans avoir à connaître l’activité de la source.

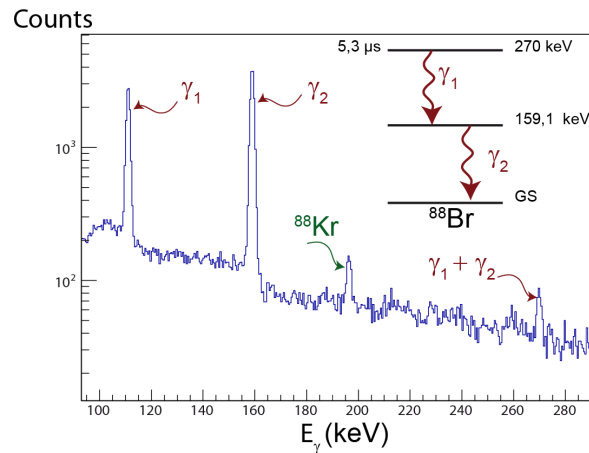


FIGURE 2.26 – Spectre de l'état isomère du  $^{88}\text{Br}$  en coïncidence avec la chambre d'ionisation. On observe le pic somme  $E_{\gamma\gamma} = 270 \text{ keV}$

De plus une inter-comparaison, effectuée par M.C Lépy [Lépy *et al.*(2010)], a permis de valider les résultats obtenus par le logiciel TrueCoinc. De même une comparaison de l'efficacité de détection à l'aide d'une source de  $^{152}\text{Eu}$  avec une simulation Monte Carlo a été effectué par O. Méplan. La prise en compte de l'effet de somme à l'aide du logiciel TrueCoinc permet d'obtenir un accord parfait entre les deux courbes d'efficacité (voir figure 2.27). Il faut noter que la source est au contact du détecteur. Ainsi la correction de l'effet de somme est très importante. On rappelle que dans le cas des mesures effectuées auprès du spectromètre LOHENGRIN, l'efficacité absolue est de l'ordre de 0.5 % à 1 MeV (alors que pour les mesures de la figure 2.27 l'efficacité est 10 fois plus grande).

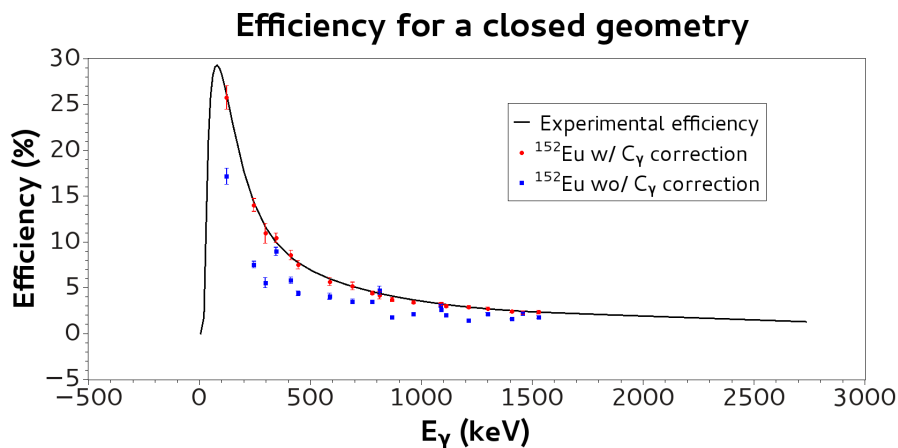


FIGURE 2.27 – Illustration de l'impact de l'effet de somme sur l'évaluation de l'efficacité à l'aide d'une source de  $^{152}\text{Eu}$ . La courbe d'efficacité a été déterminée avec d'autres données expérimentales.

## 2.5 Système de pilotage et d'acquisition de LOHENGRIN

Au cours des décennies qui ont suivi sa construction, le spectromètre de masse LOHENGRIN n'a cessé de s'améliorer. L'une des évolutions importantes et récentes est l'automatisation du contrôle de l'instrument. En effet cela ouvre désormais la voie à de nouvelles expériences et à un approfondissement du fonctionnement du spectromètre comme on le verra dans le chapitre 5.

### 2.5.1 Nomad : une interface pour contrôler LOHENGRIN

On a décrit dans la partie 2.3 le fonctionnement du spectromètre de masse. Concrètement lorsqu'on veut étudier la structure nucléaire d'un produit de fission, ou mesurer le rendement d'une masse, on ne sélectionne pas le champ magnétique et le champ électrique, mais la valeur  $A$ ,  $q$  et  $E_K$  qui nous intéresse. Grâce à la calibration du spectromètre [Institut Laue-Langevin(2010)], NOMAD qui est le programme qui contrôle LOHENGRIN, va calculer le champ électrique et magnétique nécessaire pour obtenir le triplet souhaité. L'information est envoyée directement au condensateur et au dipôle magnétique. Aujourd'hui le système de contrôle de LOHENGRIN est très simple. Avant cette automatisation il fallait saisir et régler manuellement le champ électrique et magnétique.

Un autre exemple du bond en avant qu'a apporté le développement de NOMAD est la possibilité de programmer à l'avance les différents paramètres du spectromètre. Ainsi il n'est plus nécessaire d'être physiquement sur place pour effectuer une mesure. De même le contrôle du vide de l'instrument est assuré par un système automatique. Ceci permet dans le cas où un problème survient de couper les vannes automatiquement et de protéger l'installation et le spectromètre de la ligne du faisceau.

### 2.5.2 Nomad : un système d'acquisition

Toutes les mesures effectuées et présentées dans cette thèse l'ont été avec le nouveau système d'acquisition numérique [Mutti et Ruiz-Martinez(2011)], qui est implémenté dans NOMAD. La chaîne d'acquisition est représentée sur la figure 2.28.

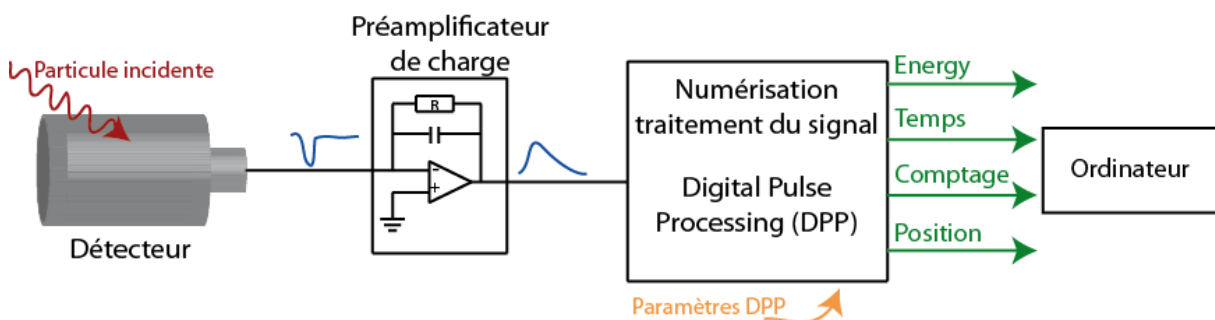


FIGURE 2.28 – Schéma de la chaîne d'acquisition.

Les signaux générés par les différents détecteurs sont pré-amplifiés et envoyés à une carte (CAEN, v1724) qui va à la fois numériser le signal et le traiter à l'aide de différents filtres. A la sortie du préamplificateur, le signal, après un front de montée rapide, a une décroissance exponentielle. Un filtre trapézoïdal [Jordanov et Knoll(1994)] va transformer ce signal en trapèze à partir duquel on va pouvoir extraire les informations nécessaires telle que la hauteur du pulse,

qui correspond à l'énergie déposée par la particule dans le détecteur. Les différents réglages pour filtrer le signal le plus proprement possible se font via une interface reliée à NOMAD, comme on peut le voir sur la figure 2.29.

The image shows two panels of the NOMAD control interface. The left panel, titled 'Channel parameters', contains the following settings: Active channel (0), Threshold (150 ch), Rise time (200 ns), Decay time (45000 ns), DC offset (80 %), Digital gain (0), Pre trigger (500 samples), and Sampling time (10 ns). It also has three checkboxes: 'Inverse polarity', 'Use 1st derivate', and 'External Trigger', all of which are currently unchecked. The right panel, titled 'Filters parameters', contains the following settings: Average window (32), Baseline average (1k), Peak average (16), Trapezoid rise (6000 ns), Trapezoid flat top (1000 ns), Flat top delay (500 ns), Trigger window (0 ns), Trigger holdoff (2000 ns), Peak holdoff (960 ns), and Base holdoff (80 ns).

FIGURE 2.29 – Panneau de réglages de NOMAD, des paramètres du détecteur (à gauche) et du filtre (à droite) [Mutti et Ruiz-Martinez(2011)].

La fréquence d'échantillonnage du signal par la carte CAEN est de 100 méga échantillons (sample) par seconde (100MS/s). Autrement dit on a un échantillon toutes les 10 ns. De plus l'information est codée en 12, 13 ou 14 bits. Dans notre cas, cela suffit amplement pour obtenir des spectres avec une excellente résolution. La carte dispose de 8 voies qui sont reliées aux sorties des détecteurs. Il est aussi possible d'utiliser plusieurs cartes en parallèle. Il est aisé de synchroniser les horloges de chacune des cartes afin d'effectuer des coïncidences entre chacune des voies de chaque carte. Une fois que le signal est traité, une autre carte, la carte d'acquisition, va enregistrer l'information dans un fichier binaire qui a la forme décrite par la figure 2.30.

Nous avons développé un programme de lecture des fichiers list mode (binaire) en C++. On peut voir qu'avec un tel fichier, il devient très facile d'effectuer des coïncidences entre différentes voies. Ceci sera particulièrement utile lors de l'analyse des données sur les rapports isomériques (voir chapitre 4).

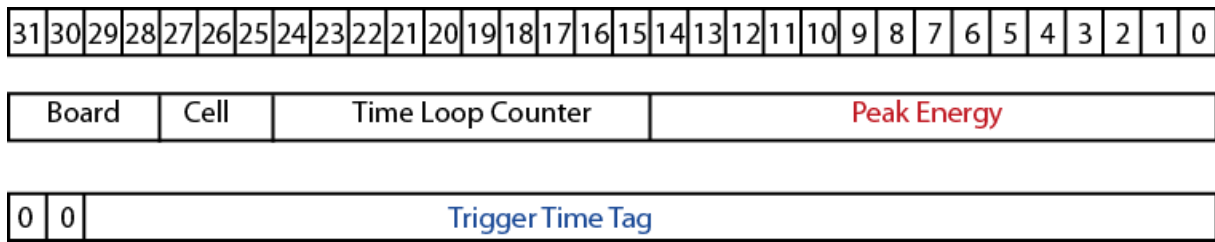


FIGURE 2.30 – Description du fichier binaire contenant l’information issue de la numérisation du signal. Board correspond à la carte à partir de laquelle le signal est fourni. Cell correspond à la voie d’où provient le signal. Time Loop Counter est un compteur qui est incrémenté toutes les  $(2^{30} - 1) \cdot 10 \cdot 10^{-9} = 10.7s$ . Peak Energy correspond à l’énergie déposée dans le détecteur. Enfin Trigger Time Tag est la mesure du temps. Il faut multiplier cette valeur par 10 (qui vient de la fréquence d’échantillonnage) pour obtenir des nanosecondes.

### 2.5.3 Nomad : avantage de l’automatisation de la prise de données

On vient de voir que le système d’acquisition était relié directement à NOMAD qui contrôle aussi le spectromètre LOHENGRIN. Désormais il est beaucoup plus facile d’effectuer des mesures qui demandent une coordination entre le système d’acquisition et le réglage du spectromètre LOHENGRIN. On citera par exemple la méthode dite du “beamcut”, qui sera développée dans la partie 4.2 du chapitre 4, qu’on ne pouvait pas mettre en œuvre avant. La possibilité d’effectuer des séries de mesures, afin de déterminer un rendement par exemple, comme décrit par [Amoureux(2014)] ou [Martin(2013)] est grandement facilitée par l’utilisation unique de NOMAD.

## Conclusion

Au cours de ce chapitre on a pu apercevoir la richesse des techniques employées afin de mesurer de nombreuses observables d'intérêt pour le processus de fission. Les données présentées dans cette étude ont été prises en utilisant le spectromètre de masse LOHENGRIN qui a su évoluer et se moderniser au cours des décennies. Il reste encore aujourd'hui l'un des instruments de référence pour la mesure de précision de rendements en masse et en charge nucléaire par exemple. Les nouveautés apportées par l'avancée technologique des détecteurs et surtout des systèmes d'acquisition permettent d'obtenir des données encore plus complètes.

Ces deux premiers chapitres fixent à la fois le cadre des études physiques et l'environnement technique à disposition à Grenoble. Il s'ensuit trois études distinctes mais complémentaires pour l'étude du processus de fission et qui sont présentées dans la suite de ce travail.

Le chapitre 3 a pour objet l'étude des spectromètres magnétiques gazeux dans le cadre du projet FIPPS, qui a pour ambition d'étudier le spectre de particules promptes. Ici le spectromètre LOHENGRIN sera utilisé comme une source d'ions. Les futures mesures sur les  $\gamma$  prompts permettront alors d'obtenir des informations précises afin de caractériser le mécanisme de génération du moment angulaire.

Dans le chapitre 4 la mesure de rapports isomériques est exposée. Cette observable permet de déterminer indirectement le moment angulaire induit par le processus de fission. Le couplage des détecteurs  $\gamma$  et d'une chambre d'ionisation au plan focal du spectromètre LOHENGRIN permet une identification sans ambiguïté des différents états nucléaires des isotopes étudiés.

Enfin au cours du chapitre 5, l'étude de la région symétrique est exposée. Cette région est d'une part très intéressante pour tester les modèles de fission, mais aussi car le spectromètre LOHENGRIN présente *a priori* toutes les caractéristiques pour sonder précisément cette région.





# Développement d'un spectromètre magnétique gazeux dans le cadre du projet FIPPS

---

## Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Le futur spectromètre de l'ILL : FIPPS</b>	<b>49</b>
<b>3.2</b>	<b>Présentation des spectromètres magnétiques gazeux</b>	<b>51</b>
<b>3.3</b>	<b>Caractérisation d'un spectromètre magnétique gazeux : GFM @ Lo-hengrin</b>	<b>52</b>
3.3.1	Dispositif expérimental et méthode d'analyse	52
3.3.2	Principaux résultats expérimentaux	55
<b>3.4</b>	<b>Développement d'une simulation Monte Carlo</b>	<b>63</b>
3.4.1	Fonctionnement général de la simulation Monte Carlo	63
3.4.2	Modélisation des processus se produisant au sein du GFM	66
<b>3.5</b>	<b>Comparaison expérience/simulation</b>	<b>74</b>
<b>3.6</b>	<b>Faisabilité du spectromètre magnétique gazeux du projet FIPPS</b>	<b>78</b>

---

## Introduction

*Prediction is very difficult, especially if it's about the future* a dit sagement Niels Bohr. Afin d'étudier le spectre de  $\gamma$  prompt, nécessaire à la validation des modèles de fission nucléaire mais aussi pour les calculs de résistance de matériaux pour les réacteurs futurs, le projet FIPPS (Fission Product Prompt  $\gamma$ -ray Spectrometer) a vu le jour dans le cadre du programme ENDURANCE de l'ILL. FIPPS correspond au couplage d'un ensemble de détecteurs avec un "filtre fission". Au cours de ce chapitre nous rappelons les motivations et objectifs de ce futur instrument. Ensuite nous présenterons les études expérimentales et la modélisation des spectromètres magnétiques gazeux. Finalement nous proposerons un design préliminaire, qui synthétise les propriétés fondamentales d'un spectromètre magnétique gazeux.

### 3.1 Le futur spectromètre de l'ILL : FIPPS

L'étude des propriétés des particules promptes est un enjeu très important pour les applications présentes et futures [Rimpault *et al.*(2012)]. Ces données permettent aussi d'alimenter des modèles de fission nucléaire, qui seront utilisées à la fois pour l'évaluation mais aussi pour mieux comprendre ce processus. Dans le cadre des études sur les particules promptes, un projet a vu



cette région les interactions nucléaires fondamentales. De plus ces noyaux sont très importants dans l'étude des processus de nucléosynthèse des noyaux lourds dans l'univers.

### 3.2 Présentation des spectromètres magnétiques gazeux

Lorsqu'un faisceau de particules chargées monocinétiques traverse un champ magnétique, on peut les séparer selon leur rapport masse sur charge ionique :

$$B\rho = \frac{Av}{q} \quad (3.1)$$

avec  $A$ ,  $v$  et  $q$  la masse, la vitesse et la charge ionique de la particule. Notons que le produit  $B\rho$ , appelé rigidité magnétique, permet de quantifier l'effet du champ magnétique sur la trajectoire d'une particule. Dans la suite ce chapitre, afin de simplifier le discours, on associera le terme de champ magnétique au concept de rigidité magnétique puisque dans le cadre de nos études, le rayon de déviation (du RED) est très bien définie avec des fenêtres d'entrée et de sortie de 1 cm de large.

Si l'on rajoute du gaz dans cet espace magnétique, alors à cause des interactions avec le gaz, la charge ionique et la vitesse de la particule évolue autour d'une trajectoire moyenne définie par la relation suivante :

$$B\langle\rho\rangle = A\left\langle\frac{v}{q}\right\rangle \quad (3.2)$$

En général, il existe une corrélation entre la vitesse de la particule et sa charge ionique. L'un des paramètres clés dans la description de la trajectoire d'une particule dans un GFM est sa charge ionique moyenne. On verra par la suite les relations qui régissent le parcours de l'ion dans un tel élément. Avec un GFM, on est capable de séparer une masse comme on peut le voir sur la figure 3.2.

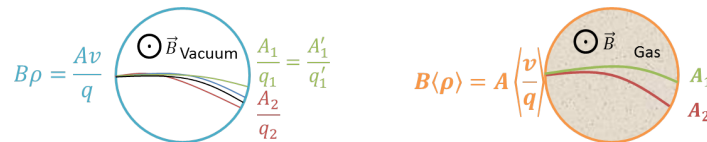


FIGURE 3.2 – Principe de fonctionnement d'un spectromètre magnétique gazeux : séparation spatiale des masses.

Cette technologie est assez ancienne. Au cours des années 50, les spectromètres magnétiques gazeux ont été utilisés afin de déterminer la charge ionique moyenne des fragments de fission dans différents gaz [Cohen et Fulmer(1958)]. Il s'est rapidement avéré que les GFM étaient particulièrement adaptés pour l'étude des ions lourds [Armbruster et al.(1971)]. La première application pour la mesure d'ions lourds a eu lieu à Dubna [Leino(2003)]. Aujourd'hui les spectromètres magnétiques gazeux sont principalement utilisés afin de séparer les ions lourds produits par le processus de fusion-evaporation, et le faisceau incident. On peut citer quelques GFM telle que SASSY [Ghiorso et al.(1988)] qui est implanté à Berkeley ou encore RITU [Leino et al.(1995)] qui est situé à Jyväskylä. La plupart des GFM sont constitués de plusieurs quadropôles et dipôles magnétiques. Un récapitulatif des caractéristiques des différents GFM en fonctionnement est présent dans la référence [Leino(2003)].

D'après l'équation (3.2) les quantités importantes pour décrire un GFM sont la charge ionique moyenne et la vitesse de l'ion. De nombreux modèles semi-empiriques permettent de décrire l'évolution de la charge ionique avec la vitesse de l'ion dans un gaz. Dans le cadre du modèle de Thomas-Fermi, qu'on décrira succinctement dans la suite, on peut réécrire l'équation (3.2) :

$$B \langle \rho \rangle \propto \frac{A}{Z^\alpha} \quad (3.3)$$

avec  $A$  et  $Z$  la masse et la charge nucléaire de l'ion. Le coefficient  $\alpha$  dépend de la nature du gaz, sa pression et de l'ion. Il est compris entre  $\frac{1}{3} \leq \alpha \leq \frac{2}{3}$  [Lawin *et al.*(1976)].

### 3.3 Caractérisation d'un spectromètre magnétique gazeux : GFM @ Lohengrin

On vient de voir que de nombreux GFM sont utilisés aujourd'hui. Néanmoins il existe peu de mesures précises quant au fonctionnement de ce type de spectromètre dans le cas de produits de fission avec une énergie cinétique comprise entre 60 et 100 MeV. Il s'avère qu'une mise en œuvre d'une solution demandant peu d'efforts était possible sur le spectromètre de masse LOHENGRIN : la conversion de l'aimant de refocalisation RED (voir chapitre 2) en GFM. Afin de décrire les propriétés des spectromètres magnétiques, différentes campagnes de mesures ont eu lieu de Décembre 2010 à Octobre 2013.

#### 3.3.1 Dispositif expérimental et méthode d'analyse

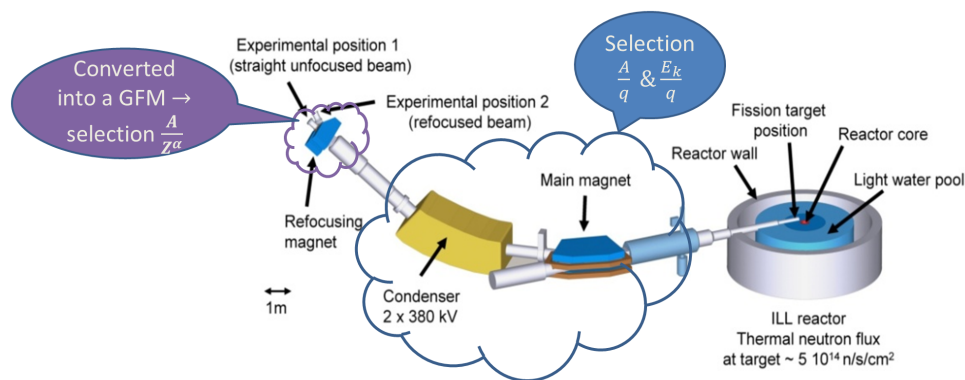


FIGURE 3.3 – Schéma du spectromètre de masse LOHENGRIN et de la conversion du RED en GFM.

#### Dispositif expérimental

Le dernier aimant, le Reverse Energy Dispersion (RED) a été transformé en spectromètre magnétique gazeux (GFM) comme on peut le voir sur la figure 3.3. Pour y parvenir, une feuille d'entrée en polypropylène de  $50 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  d'épaisseur a été placée à l'entrée du RED afin de l'isoler du condensateur et de l'aimant principal. En effet, pour fonctionner, le spectromètre de masse LOHENGRIN doit être sous vide. Une fois isolé, le RED est rempli de gaz ( $\text{He}$ ,  $\text{N}_2$  ...) et devient ainsi un GFM.

### 3.3. Caractérisation d'un spectromètre magnétique gazeux : GFM @ Lohengrin53

À la sortie du spectromètre magnétique gazeux, une chambre d'ionisation est installée afin de détecter les fragments de fission. Pour certaines campagnes, des détecteurs germanium entourent la chambre d'ionisation afin d'étudier les propriétés du GFM à la fois pour une masse  $A$ , et pour un isotope (voir figure 3.4).

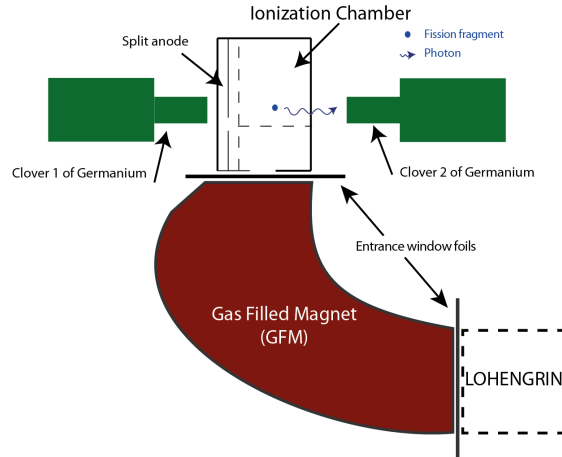


FIGURE 3.4 – Schéma du dispositif expérimental utilisé pour mesurer le pouvoir de séparation d'un GFM.

#### Méthode d'identification et d'analyse des fragments de fission

Pour caractériser les propriétés du GFM, on s'intéresse à l'évolution du nombre de coups détectés en fonction du champ magnétique du RED appliqué pour une masse ou un isotope donné. On rappelle que le spectromètre LOHENGRIN permet une sélection en fonction des rapports  $\frac{A}{q}$  et  $\frac{E_k}{q}$  où  $A$  est la masse,  $q$  la charge ionique et  $E_k$  l'énergie cinétique du fragment de fission.

Ainsi à l'entrée du GFM, plusieurs masses avec des énergies cinétiques différentes sont sélectionnées par le spectromètre LOHENGRIN. Cela revient à dire que le spectromètre de masse LOHENGRIN est utilisé comme un faisceau de fragments de fission quasi parallèles. Une fois dans le gaz, les fragments de fission vont avoir des trajectoires différentes.

Pour identifier un isotope ( $A, Z$ ) on va utiliser certains états  $\mu s$  isomères caractérisant l'isotope. En effet une coïncidence entre la chambre d'ionisation et les détecteurs  $\gamma$  nous permet d'obtenir la signature  $\gamma$  unique de ces états métastables sans problème de contamination des spectres  $\gamma$ . La figure 3.5 présente une partie du schéma de niveau de l' $^{98}\text{Y}$  ainsi qu'un spectre  $\gamma$  en coïncidence avec la chambre d'ionisation.

Dans la chambre d'ionisation, les taches correspondant à chaque masse sélectionnée par LOHENGRIN apparaissent à des énergies différentes, d'une part car leur énergie initiale n'est pas similaire et d'autre part leur perte d'énergie dans le gaz n'est pas identique. Leurs intensités varient selon le champ magnétique appliqué  $B$  du RED. Ainsi on peut extraire l'évolution du taux de comptage de chaque masse en fonction de  $B$ . L'extraction est illustrée par la figure 3.6 : à gauche on observe un spectre  $\Delta E \times E$  issu de la chambre d'ionisation pour un champ magnétique donné ; à droite on a en ordonnée l'énergie totale déposée dans la chambre d'énergie en fonction du champ magnétique appliqué. L'énergie détectée, ne variant pas avec le champ magnétique, permet alors d'identifier sans ambiguïté la masse du fragment de fission étudié. Ce type de

figure permet d'obtenir les trois observables d'intérêt que sont : le champ magnétique moyen de déviation, son écart-type ainsi que l'énergie cinétique finale du fragment de fission.

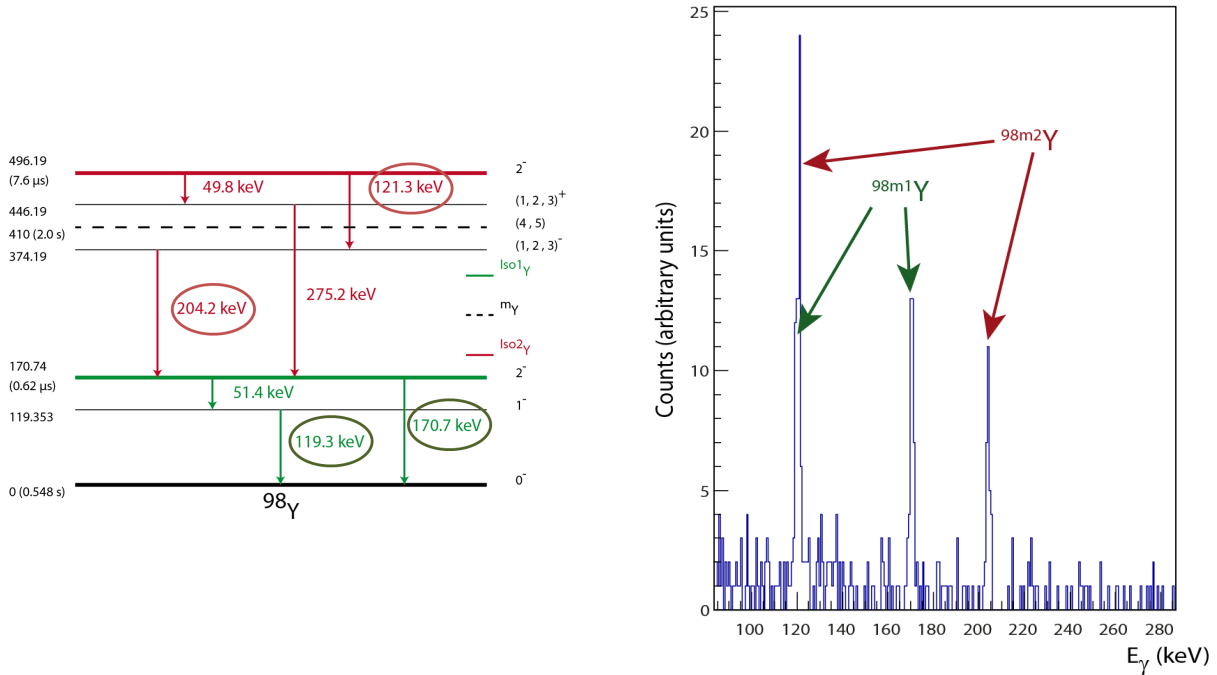


FIGURE 3.5 – À gauche : part du schéma de niveau de  $^{98}\text{Y}$ . À droite : spectre  $\gamma$  en coïncidence avec la chambre d'ionisation. Quatre transitions  $\gamma$  y sont visibles et permettent d'identifier sans ambiguïté le  $^{98}\text{Y}$ .

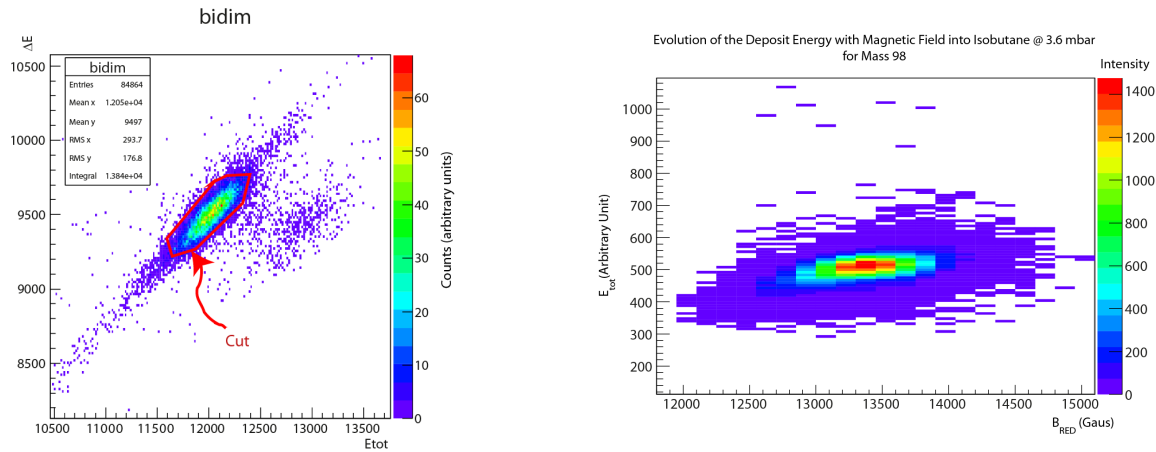


FIGURE 3.6 – Spectre issu de la chambre d'ionisation pour un champ magnétique et pour la masse  $A=98$ . On extrait le taux de comptage de la tache à l'aide d'un contour. On répète cette opération pour chaque champ magnétique afin d'obtenir la distribution en champ magnétique de la masse d'intérêt. A droite on a un spectre qui représente le nombre de fragments de fission ( $A=98$ ) détectés en fonction de l'énergie totale et du champ magnétique à l'intérieur du GFM rempli d'isobutane.

### 3.3. Caractérisation d'un spectromètre magnétique gazeux : GFM @ Lohengrin55

#### 3.3.2 Principaux résultats expérimentaux

Afin de caractériser le comportement d'un spectromètre magnétique gazeux, différentes expériences ont été effectuées. Dans cette section, nous présenterons les résultats obtenus sur le pouvoir de séparation du GFM, l'influence du gaz (nature, pression) sur la résolution, ainsi que le pouvoir de focalisation d'un tel instrument. Pour vérifier ces propriétés, on a utilisé trois observables qui sont le champ magnétique moyen  $\bar{B}$ , la dispersion magnétique  $\sigma_B$  et la perte d'énergie  $\Delta E_{Gaz}$  du fragment de fission lors de son parcours dans le GFM.

#### Séparation spatiale

La première campagne avait pour but de vérifier que le RED dans un régime gazeux permettait la séparation spatiale des masses. La figure 3.7 illustre parfaitement la propriété principale des GFM<sup>1</sup>. Notons que cette séparation a eu lieu dans l'hélium à une pression de 40 mbar avec une ouverture en entrée de  $3.5 \times 1 \text{ cm}^2$ . Il s'est avéré très difficile de travailler avec de l'hélium sur le spectromètre de masse LOHENGRIN à cause des fuites de la fenêtre isolant le RED du spectromètre LOHENGRIN. Les feuilles de polypropylène sont assez poreuse au regard de ce gaz. C'est pourquoi les études suivantes ont été effectuées à l'aide de  $N_2$  qui est un gaz plus lourd et encombrant et qui permet donc de travailler à des pressions plus faibles.

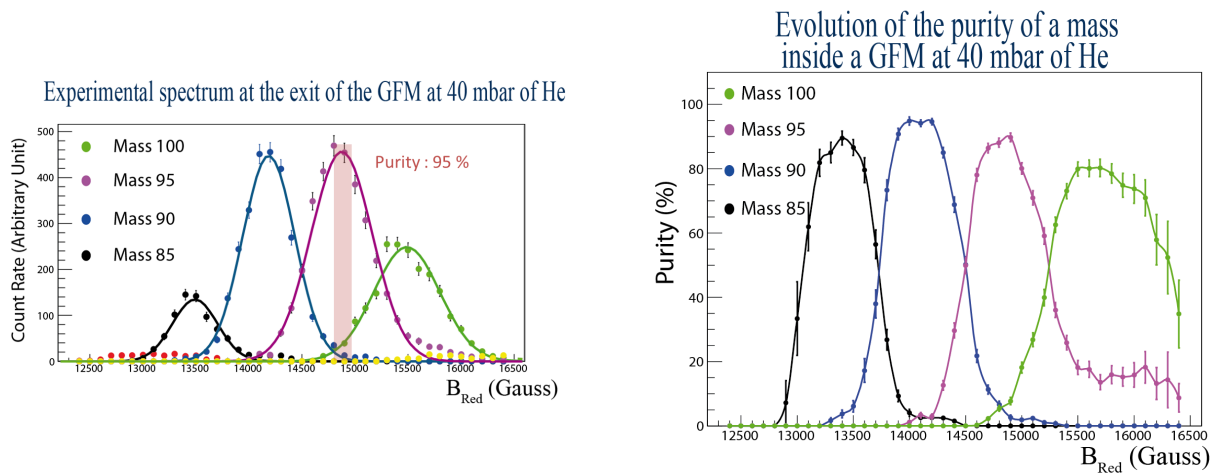


FIGURE 3.7 – Levée de la dégénérescence des masses à l'aide du GFM. La combinaison de la sélection de LOHENGRIN et celle du GFM permet d'obtenir d'un faisceau quasiment isobarique. La figure de droite représente la pureté d'une masse (qui correspond au rapport du taux de comptage de la masse d'intérêt, sur l'ensemble des taux de comptages) en fonction du champ magnétique appliqué.

#### Influence des shutters sur la taille de l'image de la cible

Au cours de la seconde expérience, l'objectif était de déterminer l'impact de l'ouverture à l'entrée du GFM sur la résolution du spectromètre magnétique gazeux. On remarque alors que pour certains shutters, la résolution est meilleure que pour d'autres. On interprète cet effet comme la conséquence de la collision des fragments de fission avec la paroi du GFM. Pour éviter

1. Le plan focal étant fixe, une variation du champ magnétique du GFM équivaut à un déplacement spatial des détecteurs.

ces effets de bord, seul le shutter central (7) a été utilisé (avec en plus dans certains cas un diaphragme) dans la suite des expériences pour caractériser le GFM.

### Influence de la pression sur la taille de l'image de la cible

On a ensuite vérifié si l'image de la cible dépend de la pression du gaz. Pour y répondre on effectue un scan en fonction du champ magnétique de l'aimant principal. En effet, c'est ce dernier qui régit la position de l'image dans l'axe vertical de la fenêtre d'entrée de la chambre d'ionisation. On observe sur la figure 3.8 que la position de l'image ne dépend pas de la pression. Cela implique que la trajectoire moyenne au sein du GFM est proche de la trajectoire géométrique. Cependant une légère dépendance à la pression est visible sur la largeur de la distribution. Cela provient du straggling au sein du gaz. Néanmoins, l'important est que cette image soit comprise dans l'ouverture de la chambre d'ionisation. Usuellement la largeur de l'image dépend de la dimension de la cible et des aberrations géométriques du spectromètre de masse LOHENGRIN. On observe ainsi que la taille de l'image est bien inférieure à l'ouverture de la chambre d'ionisation. En effet dans les pires des cas, on a une largeur à mi hauteur de 2.18 G, ce qui correspond à une image de la cible de 0.97 cm :  $\Delta x = 324 \times \frac{\Delta B}{B}$ . Le coefficient de conversion, 324 cm, provient de la déviation due au champ magnétique principal sur le plan focal image du spectromètre (voir chapitre 2). L'image est donc inférieure à l'ouverture de la chambre d'ionisation qui est de 1 cm. On note néanmoins un minimum à 1 mbar. Cela provient de la compétition entre trois effets que sont la dispersion angulaire induite par la feuille d'entrée (qui permet de maintenir une étanchéité du GFM), le pouvoir focalisant du GFM et la dispersion angulaire du gaz.

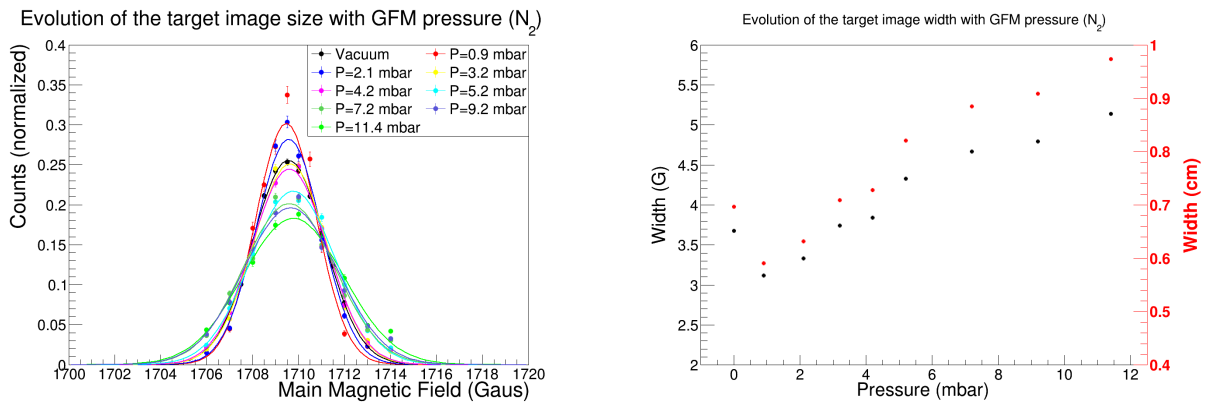


FIGURE 3.8 – Évolution de la taille de l'image de la cible en fonction de la pression pour la masse 98. Bien que la largeur de l'image de la cible évolue (comme attendu) avec la pression, elle reste inférieure à l'ouverture de la chambre d'ionisation.

### Dépendance du champ magnétique moyen en fonction du noyau (A,Z)

Par la suite, l'évolution du champ magnétique moyen en fonction de l'isotope a été mesurée. On observe sur la figure 3.9 la dépendance de  $\bar{B}$  en fonction de la masse de l'isotope et de sa charge nucléaire. Toutes les mesures ont été effectuées dans une même géométrie, avec une pression de 7.2 mbar de N<sub>2</sub>. La loi empirique déduite est la suivante :

$$\bar{B}\rho = F \frac{A}{Z^\alpha} = 12.04 \frac{A}{Z^{0.642}}. \quad (3.4)$$



### 3.3. Caractérisation d'un spectromètre magnétique gazeux : GFM @ Lohengrin57

où  $\alpha$  et  $F$  ont été obtenue en utilisant la méthode des moindres carrés sur les trois isotopes légers ( $^{88}\text{Br}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{109}\text{Rh}$ ). Le coefficient de proportionnalité  $F$  dépend de la pression du gaz ainsi que de l'énergie cinétique initiale. Or ces trois isotopes ont été mesurés avec la même énergie cinétique (96 MeV) et pression (7.2 mbar). Il existe une dépendance (faible) entre le champ magnétique moyen et l'énergie cinétique initiale. Cette corrélation permet d'expliquer la différence qu'on observe entre le calcul, provenant de l'équation (3.4) et la valeur expérimentale pour  $^{132}\text{Sn}$ . On peut apercevoir sur la figure 3.9, des ronds vides qui correspondent aux points expérimentaux. Les carrés noirs quant à eux représentent les calculs effectués avec l'équation (3.4) pour les isotopes qu'on a mesurés. Enfin les points en couleurs sont associés aux 4 isotopes les plus produits par masse selon la bibliothèque de données JEFF. Ce calcul a été effectué pour la région de masse entre  $A = 80$  et  $A = 140$  pour une cible de  $^{235}\text{U}$ .

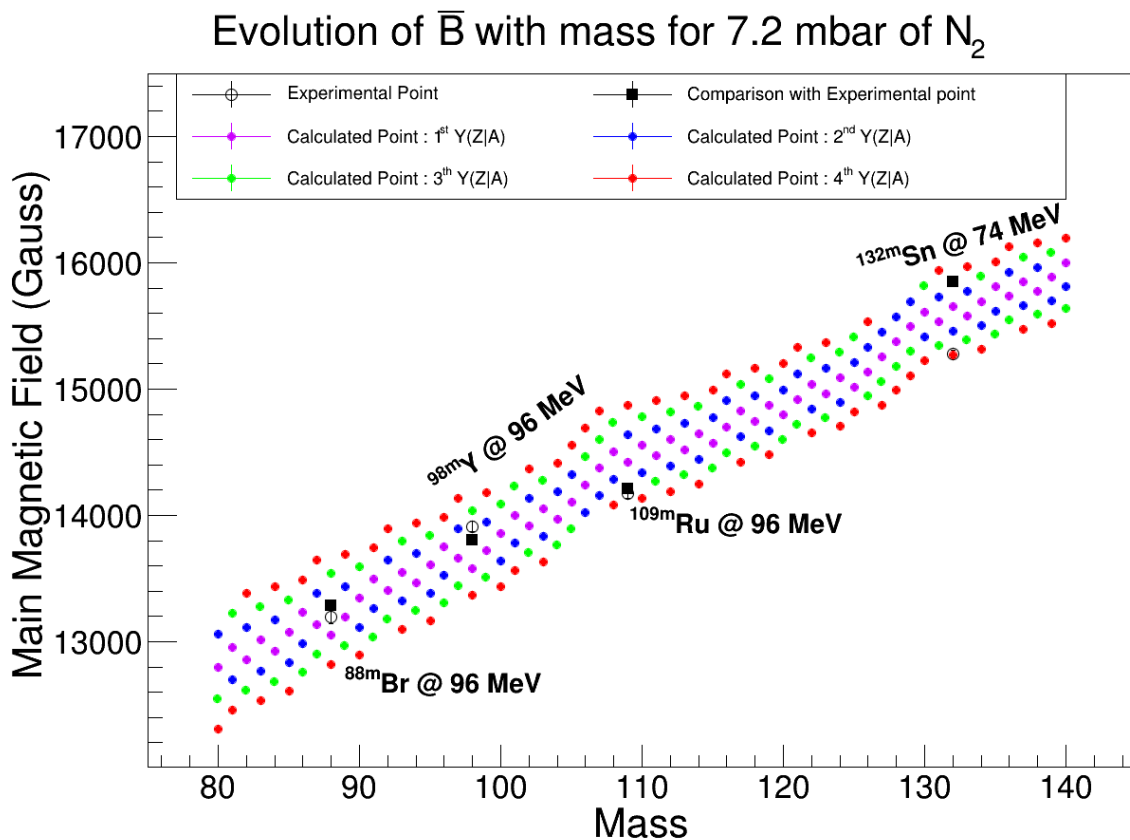


FIGURE 3.9 – Évolution du champ magnétique moyen en fonction du noyau. La formule semi empirique obtenue (3.4) permet de tracer  $\bar{B}$  pour les 4 isotopes les plus produits par masse (dans le cas de la fission de  $^{235}\text{U}$ ). Les points en noirs correspondent à l'évaluation du champ magnétique pour les isotopes dont on a pu mesurer le  $\bar{B}$

#### Détermination de la résolution intrinsèque du GFM

Ensuite, les dernières campagnes expérimentales ont eu pour objectif la mesure précise de la résolution magnétique du GFM. Pour y parvenir, un diaphragme de 1 cm  $\times$  1 cm est placé à

l'entrée du GFM. A la sortie de l'aimant un diaphragme mobile a été ajouté. Pour des mesures de résolution, donc de précision, le diaphragme de sortie a été réglé à  $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$ . Ainsi la résolution mesurée correspondra uniquement à celle provenant du spectromètre magnétique gazeux. On observe sur la figure 3.10 l'évolution, pour différents gaz, de la résolution magnétique en fonction de la densité électronique présente dans le gaz. Cette densité est normalisée à 1 pour une pression de  $N_2$  de 7 mbar.

On peut distinguer trois zones. Dans la première zone la résolution se dégrade rapidement avec la diminution de la pression. Lorsque la pression est faible, les collisions avec le gaz sont peu nombreuses; la trajectoire est alors plus diffuse, ce qui a pour conséquence une dispersion en champ magnétique plus élevée. Ceci permet d'expliquer que la résolution par masse et par isotope est similaire dans cette région. Quand l'équilibre statistique est atteint, la distribution en champ magnétique suit une loi normale. La figure 3.11 illustre la différence des distributions de la masse  $A = 98$  en fonction de la pression. La seconde zone, correspond au maximum de résolution. C'est dans cette gamme que le GFM est le plus performant pour séparer les masses. Pour la troisième zone, on note que la résolution pour une masse se dégrade, alors que celle pour un isotope (issue de la même masse) est plutôt constante. Ceci s'explique par le fait qu'à haute pression la distribution en champ magnétique d'une masse va s'élargir car le GFM est dans un régime où la séparation isotopique intervient. On a alors deux régimes dans un GFM, une première où la résolution en masse est optimale et une deuxième où la séparation des différents fragments d'une même ligne de masse devient possible. Enfin on s'attend qu'à de très hautes pressions la résolution d'un isotope se dégrade à cause du "straggling effect" au sein du GFM.

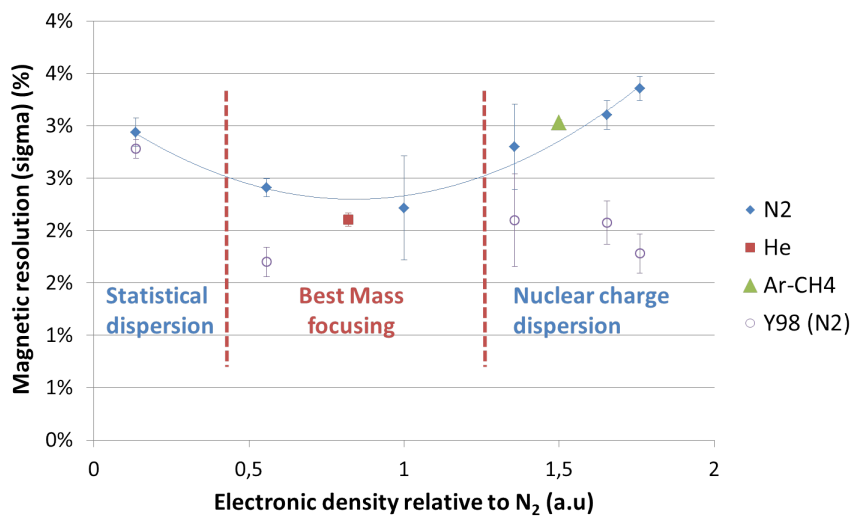


FIGURE 3.10 – Évolution de la résolution magnétique pour la masse 98 et l'isotope  $^{98}Y$  en fonction de la densité électronique des différents gaz étudiés. Cette densité est normalisée à 1 pour une pression de 7 mbar de  $N_2$ .

### Impact de l'énergie cinétique initiale sur la trajectoire du produit de fission

On a pu aussi mesurer l'évolution de la position moyenne du champ magnétique en fonction de l'énergie cinétique initiale de la masse 98. La dépendance est très faible, voire même inférieure à la largeur de la distribution. Autrement dit pour une direction donnée et qu'importe l'énergie

### 3.3. Caractérisation d'un spectromètre magnétique gazeux : GFM @ Lohengrin59

initiale, la trajectoire du fragment de fission sera toujours la même. Par conséquent le GFM a un effet focalisant dans l'espace des phases  $(\vec{x}, \vec{p}) \equiv (\vec{B}, E_k) \otimes Direction^2$  à cause de la corrélation entre la charge ionique et la vitesse du fragment de fission. Cependant ce résultat n'est vrai que pour des trajectoires initiales parallèles. La figure 3.12 présente à la fois les résultats expérimentaux ainsi que l'interprétation ci-dessus. On verra dans la dernière partie la conséquence de ces observations sur l'étude du spectromètre magnétique gazeux du projet FIPPS.

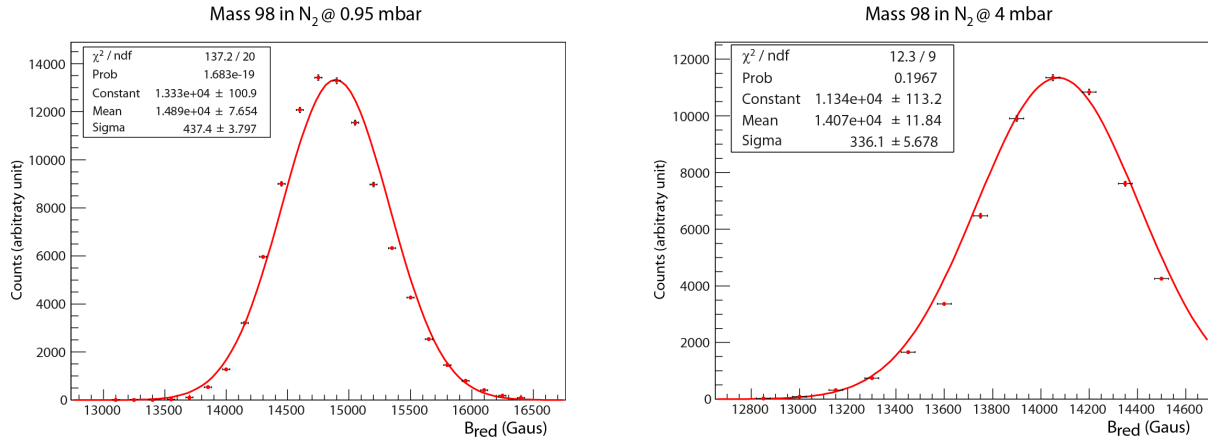


FIGURE 3.11 – Comparaison du taux de comptage en fonction du champ magnétique appliquée au sein du GFM pour une basse pression (gauche) et une pression normale (droite) pour la masse 98. On note que, dans le premier cas, l'équilibre statistique de la trajectoire n'est pas atteint et que la distribution ne suit pas une loi normale.

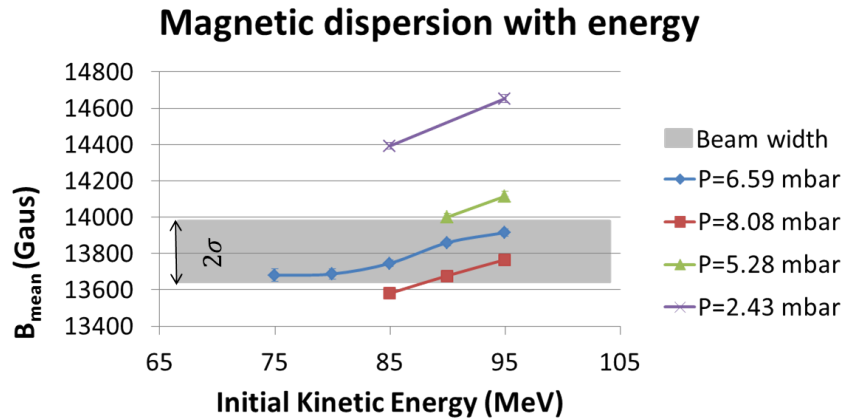


FIGURE 3.12 – Évolution du champ magnétique moyen de la masse 98, pour différentes pressions, en fonction de l'énergie cinétique initiale. La position de sortie dépend très peu de l'énergie cinétique initiale.

2. L'espace des phases défini ici ne correspond pas à l'émittance du faisceau.

### Mesure de la perte d'énergie dans le GFM

Au cours des différentes campagnes on a pu mesurer la perte d'énergie du fragment de fission au cours de son parcours dans le GFM. La figure 3.13 illustre la procédure mise en place pour déterminer cette quantité. On commence par étalonner la chambre d'ionisation :

$$E_f^{calib} = E_i^{Loh} - \Delta E_{foil1}(E_i^{Loh}, Z, A) - \Delta E_{foil2}(E_i^{Loh} - \Delta E_{foil1}, Z, A) \quad (3.5)$$

où  $E_f^{calib}$  est l'énergie mesurée dans la chambre d'ionisation,  $E_i^{Loh}$  l'énergie sélectionnée par le spectromètre LOHENGRIN et  $\Delta E_{foil1}$ ,  $\Delta E_{foil2}$  l'énergie perdue par le produit de fission dans les feuilles de polypropylène. Ces quantités sont déterminées à l'aide du logiciel SRIM [Ziegler *et al.*(2010)].

Lorsqu'on remplit le RED de gaz, un terme supplémentaire s'ajoute :

$$E_f = E_i - \Delta E_{foil1}(E_i, Z, A) - \Delta E_{gas}(E, q_{eff}, Z, A) - \Delta E_{foil2}(E_i - \Delta E_{foil1} - \Delta E_{gas}(Z, A)) \quad (3.6)$$

avec  $\Delta E_{gas}$  l'énergie perdue au cours du parcours dans le GFM. On note que la sensibilité sur l'épaisseur des feuilles minces est faible car leur impact apparait dans l'étalonnage (3.5) et la détermination de l'énergie perdue dans le GFM (3.6). La figure 3.14 illustre la perte d'énergie mesurée pour la masse 98 avec une énergie initiale de 90 MeV. La perte d'énergie dépend linéairement de la pression du gaz entre 4 et 13 mbar de diazote.

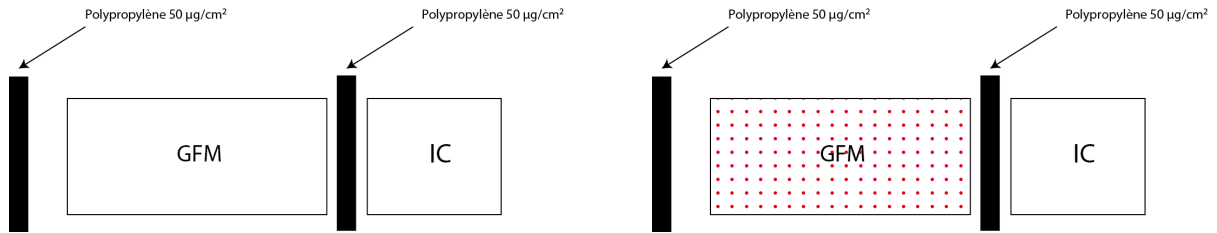


FIGURE 3.13 – Procédure de mesure de la perte d'énergie du produit de fission dans le GFM. On étalonne la chambre d'ionisation (gauche) en tenant compte de la perte d'énergie due aux feuilles minces à l'aide du logiciel SRIM [Ziegler *et al.*(2010)]. On en déduit alors la perte d'énergie dans le GFM (droite).

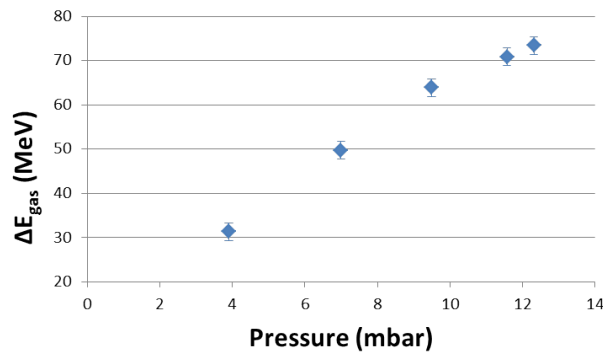


FIGURE 3.14 – Perte d'énergie dans le GFM ( $N_2$ ) d'isobares de la masse 98 avec une énergie initiale de 90 MeV. La dépendance à la pression du gaz est linéaire.

### 3.3. Caractérisation d'un spectromètre magnétique gazeux : GFM @ Lohengrin61

Type de mesure	Gaz	Source + masses/isotopes	Collimateur d'entrée	Collimateur de sortie	Gamme étudiée	Commentaires
Séparation spatiale	$^4\text{He}$	$^{233}\text{U}$ $A = 5$ $q$	Shutter 7	Collimateur aluminium $1 \times 1.5 \text{ cm}^2$	$B_{Red} = 12000 \rightarrow 17000 \text{ G}$	Le GFM permet une séparation spatiale, néanmoins une imperfection de l'étanchéité ne permet pas de monter en pression et met en cause le fonctionnement du spectromètre LOHENGRIN.
Influence des shutters	$\text{N}_2$	$^{241}\text{Am}$ $^{98}\text{Y}$	Shutter 3 $\rightarrow$ 11	Collimateur aluminium $1 \times 1.5 \text{ cm}^2$	$P_{Red} = 2.4; 7.2 \text{ mbar}$	Effets de bords pour les shutters extérieurs $\Rightarrow$ utilisation uniquement des shutters centraux (6-8).
Évolution de l'image de la cible sur l'axe des masses $A$	$\text{N}_2$	$^{241}\text{Am}$ $A = 100$ ( $E_k = 90 \text{ MeV}$ )	Shutter 7	Collimateur aluminium $1 \times 1.5 \text{ cm}^2$	$B_{main} = 1706 \rightarrow 1714 \text{ G}$	L'image de la source est toujours inférieure à la taille du collimateur (selon l'axe des masses (1cm)). Il existe une faible dégradation de l'image de la cible avec la pression.
Évolution de la trajectoire moyenne ( $\bar{B}$ ) en fonction de l'isotope	$\text{N}_2$	$^{241}\text{Am}$ $^{88}\text{Br}, ^{98}\text{Y}, ^{98}\text{Ru}$ ( $E_k = 96 \text{ MeV}$ ) $^{132}\text{Sn}$ ( $E_k = 74 \text{ MeV}$ )	Shutter 6-8	Collimateur aluminium $1 \times 1.5 \text{ cm}^2$	$P_{Red} = 7.2 \text{ mbar}$	Le GFM suit bien la loi empirique $\bar{B} \propto \frac{A}{Z\alpha}$ . Ici $\alpha = 0.64 \pm 0.02$ . Cette formule est valide pour une pression et une énergie cinétique donnée.
Pouvoir de séparation du GFM (résolution magnétique)	$\text{N}_2$	$^{235}\text{U}, ^{233}\text{U}$ $A = 98, ^{98}\text{Y}$ ( $E_k = 90 \text{ MeV}$ )	Collimateur aluminium $1 \times 1 \text{ cm}^2$	Collimateur plomb $1 \times 1 \text{ cm}^2$	$P_{Red} = 0.95 \rightarrow 12.3 \text{ mbar}$	Une résolution optimale est atteinte autour de 7 mbar pour l'azote. On observe un plateau dans la résolution d'un isotope $\rightarrow$ la dégradation de la résolution en masse à haute pression ( $P > 10 \text{ mbar}$ ) provient d'une meilleure séparation isotopique.
	$\text{Ar}$ $\text{CH}_4$	$^{235}\text{U}$ $A = 98$ ( $E_k = 90 \text{ MeV}$ )			$P_{Red} = 8.5 \text{ mbar}$	
	$^4\text{He}$	$^{233}\text{U}$ $A = 98$ ( $E_k = 90 \text{ MeV}$ )	Shutter 7	Collimateur aluminium $1 \times 1.5 \text{ cm}^2$	$P_{Red} = 40 \text{ mbar}$	
Évolution de la trajectoire moyenne ( $\bar{B}$ ) en fonction de l'énergie cinétique initiale	$\text{N}_2$	$^{235}\text{U}$ $A = 98$	Collimateur aluminium $1 \times 1 \text{ cm}^2$	Collimateur plomb $1 \times 1 \text{ cm}^2$	$E_k = 75 \rightarrow 95 \text{ MeV}$ $P_{Red} = 2.43 \rightarrow 8.08 \text{ mbar}$	La position du faisceau dépend faiblement de l'énergie cinétique initiale. Le faisceau à l'entrée est quasi-parallèle.
Évaluation de la perte d'énergie dans le gaz ( $\Delta E_{gaz}$ ) en fonction de la pression	$\text{N}_2$	$^{233}\text{U}$ $A = 98$	Collimateur aluminium $1 \times 1 \text{ cm}^2$	Collimateur plomb $1 \times 1 \text{ cm}^2$	$P_{Red} = 0 \rightarrow 12 \text{ mbar}$	La perte d'énergie dans le gaz dépend quasi-linéairement de la pression du gaz. Ces résultats seront utilisés afin de valider le code Monte Carlo.

TABLE 3.1 – Tableau récapitulatif des différentes expériences conduites afin de caractériser les propriétés d'un spectromètre magnétique gazeux. L'identification des isotopes s'est faite à l'aide d'une coïncidence en temps entre la chambre d'ionisation et les détecteurs  $\gamma$ . L'identification des masses s'est faite à l'aide de la chambre d'ionisation.

### Conclusion sur les résultats expérimentaux

Le tableau 3.1 synthétise les conditions expérimentales au cours desquelles les différentes propriétés des spectromètres magnétique gazeux ont été mesurées. La conclusion de ce travail expérimental est qu'il est très difficile de définir une relation simple permettant d'obtenir la trajectoire moyenne (à travers le paramètre  $\bar{B}$ ) et sa dispersion pour une gamme en énergie cinétique et en masse. Si l'on ne devait retenir qu'une seule propriété des GFM, on présenterait que sa résolution est régie par le nombre de collisions du fragment de fission avec le gaz, reflétant la corrélation entre la vitesse et la charge ionique du fragment de fission au cours de sa trajectoire.

Pour dimensionner un GFM dans le cadre du projet FIPPS, il est nécessaire de recourir à une simulation afin de déduire les propriétés d'un tel instrument.

Ce travail illustre aussi la possibilité d'améliorer les conditions de mesures du spectromètre LOHENGRIN. Ceci est d'un intérêt tout particulier pour les mesures de structures nucléaires qui sont polluées par la présence de masses non souhaitées due à la sélection non unique de LOHENGRIN. La combinaison du GFM avec LOHENGRIN permet d'obtenir un faisceau quasi isobarique et de réduire drastiquement ses contaminants. Ce nouveau dispositif expérimental peut aussi servir dans le cas de mesures de chaleur de réaction par masse.

### 3.4 Développement d'une simulation Monte Carlo

Un des objectifs de ce travail de thèse est de répondre quant à la faisabilité de l'utilisation d'un GFM en tant que filtre de fragment de fission dans le cadre du projet FIPPS. On a pu caractériser expérimentalement les propriétés intrinsèques des spectromètres magnétiques gazeux à l'aide du spectromètre LOHENGRIN. Pour aller plus loin et dimensionner le futur aimant de FIPPS, une simulation Monte Carlo permettant de décrire les trajectoires des fragments de fission dans le GFM a été développée. Tout au long du parcours de la particule dans le gaz, sa charge ionique ainsi que sa vitesse sont calculées afin de déterminer le parcours moyen et les variations autour de cette trajectoire. Au cours de cette partie, une description de l'architecture du code ainsi que des modèles utilisés sera présentée. Enfin nous comparerons nos résultats expérimentaux avec ceux calculés par la simulation. Notons que les calculs effectués le sont uniquement en deux dimensions, ce qui correspond au plan perpendiculaire au champ magnétique  $\vec{B}$ . La dispersion verticale n'est pas considérée dans cette simulation. On peut justifier cette approche par la figure 3.8 où on a mesuré précisément l'impact de cette dimension sur l'image de la cible. On en a conclu que le straggling vertical était négligeable devant les autres effets induits par les deux autres dimensions.

#### 3.4.1 Fonctionnement général de la simulation Monte Carlo

Le programme se décompose en trois parties. La figure 3.15 schématise le principe de fonctionnement du code Monte Carlo. On rappelle qu'on souhaite simuler le comportement de l'aimant RED converti en spectromètre magnétique gazeux. Tous les calculs qui vont suivre ont été obtenus en considérant la géométrie de cet aimant.

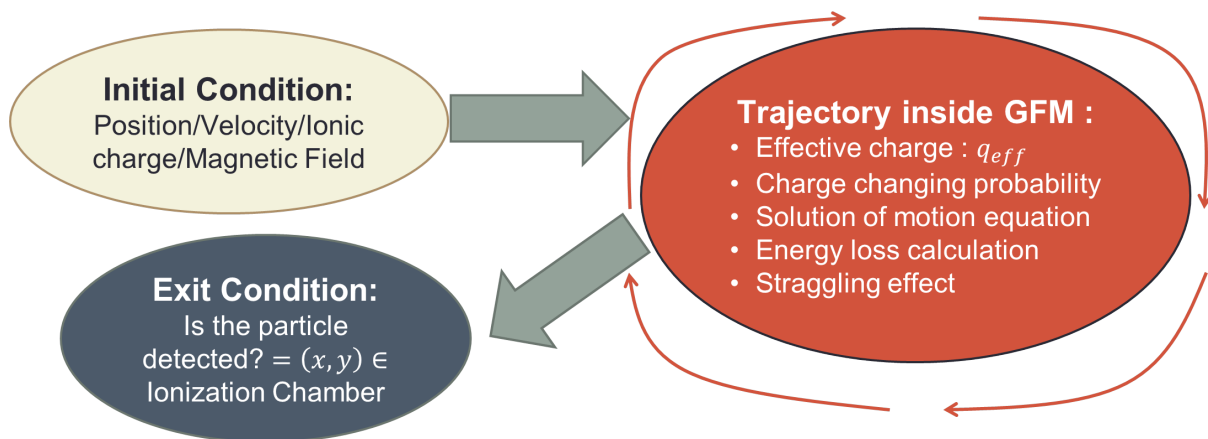


FIGURE 3.15 – Principe de fonctionnement du code Monte Carlo développé afin d'interpréter les résultats expérimentaux du GFM @ LOHENGRIN. Ce code sera ensuite utilisé afin de dimensionner le nouveau spectromètre magnétique gazeux du projet FIPPS.

### Conditions initiales

On tire aléatoirement la position  $(x, y)$  du fragment  $(A, Z)$  selon l'ouverture considérée d'un faisceau parallèle. Pour tenir compte uniquement des effets dus au GFM, on s'est restreint aux mesures avec une ouverture de 3.5 cm dans l'hélium et de 1 cm dans le cas des études avec le  $N_2$ . De même l'énergie initiale dépend à la fois de la position (LOHENGRIN a une dispersion en énergie) mais aussi de la perte d'énergie dans la feuille de polypropylène. Cette perte d'énergie est déduite de calculs effectués avec le logiciel TRIM [Ziegler *et al.*(2010)]. De ce calcul on peut aussi en déduire un straggling angulaire.

Concrètement dans la simulation on suppose des distributions gaussiennes de perte d'énergie centrées autour de la valeur moyenne et avec un écart type déduits de TRIM. Concernant l'écart type, il tient compte de l'incertitude sur l'épaisseur des feuilles d'entrée qui est de 20 % selon le fournisseur (Goodfellow).

### Trajectoires au sein du GFM

Le parcours du fragment de fission dans le GFM résulte de la combinaison de différents phénomènes tels que la perte d'énergie, le changement de charge ionique et la courbure due au champ magnétique. A chaque pas de calcul, on détermine la probabilité de changement de charge ionique. On résout ensuite les équations du mouvement. Enfin on calcule la perte d'énergie de la particule. On réitère ces opérations dans le même ordre jusqu'à ce que la particule sorte du GFM. Dans la suite nous détaillerons toutes ces étapes ainsi que les modèles utilisés pour déterminer la trajectoire de la particule.

### Conditions finales

Finalement on compare la position finale du fragment de fission dans le GFM à celle du diaphragme de sortie. Toutes particules se trouvant à l'intérieur de ce diaphragme sont considérées comme étant détectées par la chambre d'ionisation. En effet, l'efficacité de la chambre d'ionisation dépend de l'ouverture de la feuille d'entrée placée sur une grille métallique. Par conséquent l'acceptance de la chambre d'ionisation est l'acceptance géométrique de la grille. Celle-ci est indépendante de la masse et de la charge nucléaire de l'ion incident.

On répète ces trois parties pour  $N$  fragments de fission incidents et ce pour différents champs magnétiques. On obtient alors la figure 3.16 qui représente l'évolution en fonction du champ magnétique du nombre de fragments de fission détectés. Une masse est la combinaison de quatre isotopes pondérés par leur rendement issu des bibliothèques d'évaluations telles que JEFF [Koning *et al.*(2006)].



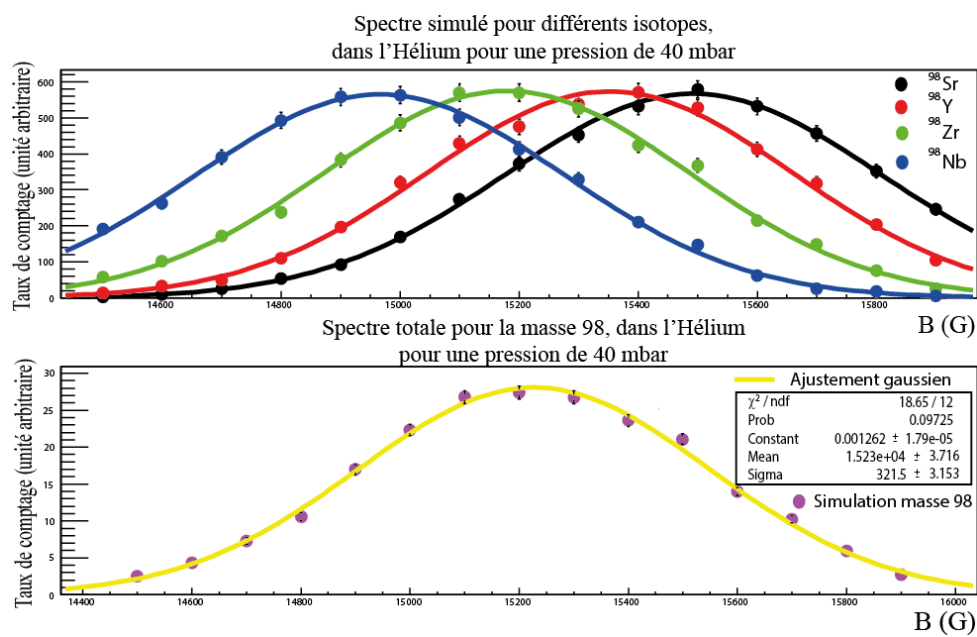


FIGURE 3.16 – *Spectre simulé.* Les barres d'erreurs correspondent à l'incertitude statistique du calcul Monte Carlo. Spectre du haut : spectre simulé pour les isotopes principaux pour la masse  $A=98$ . Spectre du bas : spectre simulé pour la masse  $A=98$  produite par fission de  $l^{233}\text{U}(n,f)$  c'est-à-dire que chaque isotope est pondéré par la distribution isotopique  $P(Z|A=98)$ .

### 3.4.2 Modélisation des processus se produisant au sein du GFM

#### Calcul de la charge ionique du produit de fission

Par collision atomique, la charge du produit de fission va fluctuer autour d'une charge moyenne  $\bar{q}$ . Au cours de son parcours, l'ion peut capturer ou perdre plusieurs électrons. On a alors besoin de modèles de collision atomiques afin de modéliser cet effet.

Selon H.D. Betz [Betz(1972)] la charge ionique suit une distribution de la forme suivante :

$$F(q) \propto e^{-\frac{(q-\bar{q})^2}{2d^2}} \quad (3.7)$$

La charge moyenne  $\bar{q}$  et la largeur  $d$  sont déterminées à l'aide d'un modèle semi-empirique. Dans notre cas on a utilisé la paramétrisation de Betz :

$$q_{eff} = Z \left( 1 - C \exp \left( -\frac{v_{ion}}{v_0 Z^\delta} \right) \right) \quad (3.8)$$

avec  $Z$  et  $v_{ion}$  la charge nucléaire et la vitesse du produit de fission.  $v_0 = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\hbar} = 2.19 \cdot 10^8 \text{ cm.s}^{-1}$  est la vitesse de Bohr. Les paramètres  $C = 1.032$  et  $\delta = 0.69$  ont été fixés par les données expérimentales issues de la littérature. La largeur dépend essentiellement de la charge nucléaire du produit de fission :

$$d = d_1 Z^w \quad (3.9)$$

où  $d_1 = 0.27$  et  $w = 0.5$ . La dépendance de ces paramètres à la nature du gaz est très faible [Betz(1972)].

Deux commentaires doivent être faits pour comprendre l'équation (3.8). Cette formulation repose sur le modèle de Thomas-Fermi. Ce modèle traite le nuage électronique de manière statistique [Thomas(1927), Fermi(1927)]. L'objectif est de décrire la répartition des électrons dans un atome. L'une des conséquences de ce modèle est que la vitesse des électrons est proportionnelle à  $Z^{2/3}$ . Ainsi un produit de fission ne peut interagir avec le milieu (électronique) si sa vitesse est supérieur à celle des électrons de ce milieu. C'est pourquoi dans tous les modèles semi-empiriques de charge effective, on retrouve le terme  $\frac{v_{ion}}{v_0 Z^\delta}$ . Le second point est la différence entre la charge effective et la charge moyenne. Fondamentalement ces deux quantités ne sont pas identiques. En effet la charge effective est une quantité qui est dérivée de la modélisation de la perte d'énergie (que l'on discutera dans la suite de ce chapitre). Peut-on alors utiliser cette quantité en tant que valeur moyenne? La réponse est oui car la charge effective est d'un point de vue expérimental quasiment égale à la charge moyenne [Betz(1972), Brown et Moak(1972)] :

$$q_{eff}^2 \simeq \bar{q}^2 \quad (3.10)$$

Ceci s'explique par le fait que la largeur de la distribution est petite et que la distribution est symétrique  $d \ll \bar{q}^2$  [Betz(1972)].

On sait décrire l'évolution de la charge moyenne en fonction de l'énergie cinétique du produit de fission. On souhaite désormais déterminer la charge ionique de l'ion le long de sa trajectoire dans le GFM. On a alors besoin de calculer les sections efficaces de capture et de perte d'électron. Pour y parvenir, on suit la procédure décrite par M. Paul [Paul et al.(1989)]. On suppose que les sections efficaces totales de capture  $\sigma_c$  et de perte d'électrons  $\sigma_l$  ont une allure exponentielle :

$$\sigma_l = A_l \exp(-b_l (q - \bar{q})) \quad (3.11)$$

$$\sigma_c = A_c \exp(b_c (q - \bar{q})) \quad (3.12)$$

Dans la littérature seule la section efficace totale de capture d'électrons est tabulée. Il est alors nécessaire de recourir à l'approximation décrite par les équations (3.11). La détermination des coefficients  $A_l$ ,  $A_c$ ,  $b_l$  et  $b_c$  est effectuée à l'aide de mesures sur la section de capture modélisée par Schlachter *et al* [Schlachter *et al.*(1983)] (en  $cm^2$ ) :

$$\sigma_c = \tilde{\sigma}_c \frac{\sqrt{q}}{Z_G^{1,8}} \quad (3.13)$$

$$\tilde{\sigma}_c = \left( 1.1 \times \frac{10^{-8}}{\tilde{E}^{4.8}} \right) \left( 1 - \exp \left( -0.037 \times \tilde{E}^{2.2} \right) \right) \left( 1 - \exp \left( -2.44 \times 10^{-5} \times \tilde{E}^{2.6} \right) \right)$$

$$\tilde{E} = \frac{E}{Z_G^{1,25} q^{0,7}}$$

avec  $E$  et  $q$  l'énergie cinétique (en keV/amu) et la charge ionique (sans unité) du produit de fission.  $Z_G$  correspond à la charge nucléaire du gaz. Cette formule est valide pour  $\tilde{E} \geq 10$  et  $q \geq 3$ . La figure 3.17 présente l'évolution de la section efficace totale de capture, pour différentes énergies cinétiques, en fonction de la charge ionique déterminée à l'aide de l'équation (3.13). On remarque que pour les basses énergies (20 et 40 MeV), la section efficace ne suit pas une loi exponentielle. Il est alors nécessaire de découper cette courbe en plusieurs parties afin d'extraire les paramètres  $A_c$  et  $b_c$  avec le moins de biais possible. Dans notre cas, la charge ionique des fragments de fission oscille autour de 12.

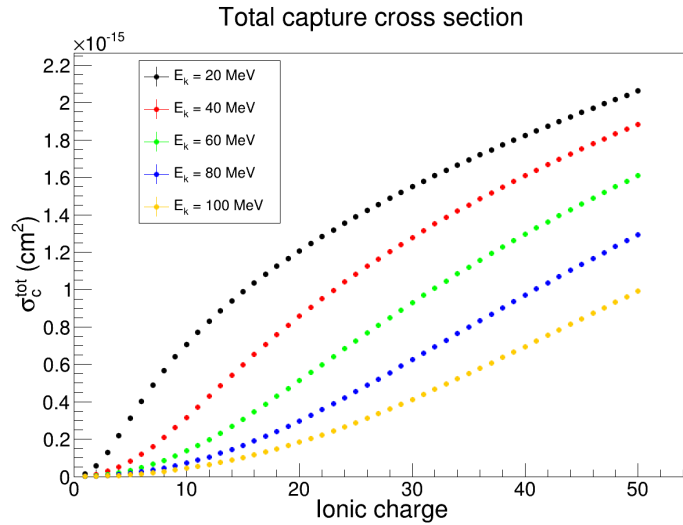


FIGURE 3.17 – Section efficace totale de capture, pour différentes énergies cinétiques, en fonction de la charge ionique calculée à partir de l'équation (3.13).

Il existe d'autres formulations de la section efficace comme celle de K.E Gregorich [Gregorich(2013)]. Néanmoins la différence sur les résultats calculés s'est avérée négligeable. A partir de cette modélisation (3.13), on ajuste les paramètres  $A_c$  et  $b_c$ . Les deux derniers paramètres sont déduits de l'équation (3.7) :

$$b_l = \frac{1}{d^2} - b_c \quad (3.14)$$

$$A_l = A_c \exp \left( \frac{b_c - b_l}{2} \right) \quad (3.15)$$

La section efficace de perte d'électrons  $\sigma_l$  définie par l'équation (3.11) correspond à la section efficace totale de perte, c'est à dire la somme des pertes à 1,2, ..., n électrons par collision. D'après H.D Betz [Betz(1972)] on peut relier les sections efficaces partielles à la section efficace totale de perte via la relation :

$$\begin{aligned}\sigma_l(q, q + 2) &= k_0 \times \sigma_l(q, q + 1) \\ \sigma_l(q, q + 3) &= k_0 \times \sigma_l(q, q + 2) \\ &\vdots \\ \sigma_l(q, q + n) &= k_0^{n-1} \times \sigma_l(q, q + 1)\end{aligned}\quad (3.16)$$

Autrement dit, la section efficace de perte de n électrons par collisions est proportionnelle à celle de perdre uniquement un électron. Dans le cas de la section efficace de capture, la probabilité de capturer simultanément plusieurs électrons est négligeable [Betz(1972)]. Dans la simulation, afin d'optimiser le temps de calcul, seules la double perte d'électrons et la perte d'un électron sont considérées<sup>3</sup>. On obtient alors la section efficace totale de changement de charge :

$$\sigma_{tot} = \sum_{q' \neq q} \sigma(q, q') = \sigma_l + \sigma_c \quad (3.17)$$

La probabilité de passer d'une charge  $q$  à une charge  $q'$  sur une distance  $l$  s'écrit :

$$P(q, q') = \frac{\sigma(q, q')}{\sigma_{tot}} \left(1 - e^{-\sigma_{tot}nl}\right) \quad (3.18)$$

avec  $n$  le nombre d'électrons par unité de volume :

$$n = Z_G \mathcal{N}_A \frac{P}{RT} = Z_G \mathcal{N}_A \frac{\rho}{M} \quad (3.19)$$

où  $Z_G$ ,  $P$ ,  $T$ ,  $M$  sont la charge nucléaire, la pression, la température, la masse molaire du gaz,  $\mathcal{N}_A$  le nombre d'Avogadro, et  $R$  la constante des gaz parfaits.

La section efficace de perte d'un ou plusieurs électrons dépend fortement de la nature du gaz. Dans la simulation le paramètre  $k_0$  est laissé libre. On rappelle que la probabilité de changement de charge est calculée à chaque pas de calcul  $l < \lambda$  où  $\lambda = \frac{1}{\rho \sigma_{tot}}$  est le libre parcours moyen de collision. On suppose alors qu'entre chaque collision, la charge ionique n'a pas évolué. La figure 3.18 résume les différents processus de changement de charge lors d'une collision.

---

3. En effet, le paramètre  $k_0$  n'a pour conséquence que la modification du champ magnétique moyen  $\bar{B}$ . Dès lors qu'on considère ce paramètre comme étant libre et biaisé, la discussion sur sa valeur absolue n'a pas d'intérêt.

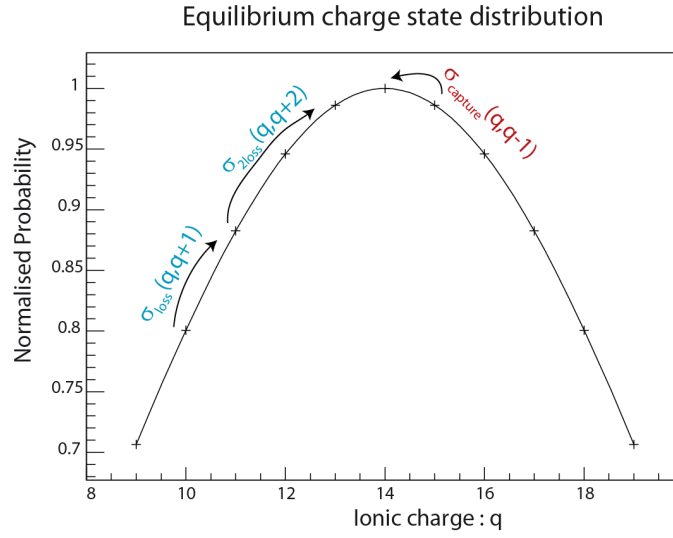


FIGURE 3.18 – Schéma du processus de changement de charge.

### Résolution des équations du mouvement

L'évolution de la charge ionique au cours de la traversée du produit de fission dans le GFM est primordiale car celle-ci intervient lors du calcul de la déviation de la particule dans le champ magnétique via la force de Lorentz :

$$A\vec{a} = q\vec{v} \wedge \vec{B} \quad (3.20)$$

où  $A$  est la masse,  $q$  la charge ionique  $\vec{v}$  la vitesse et  $\vec{a}$  l'accélération du produit de fission.  $\vec{B}$  est le champ magnétique du GFM. Cette équation est résolue à l'aide d'une méthode numérique Runge-Kutta d'ordre 4 à pas variables [Runge(1901), Kutta(1901)]. Prenons le cas  $y' = f(t, y)$  avec comme condition initiale  $y(t_0) = y_0$ . La méthode Runge-Kutta d'ordre 4 s'écrit alors :

$$\begin{aligned} y_{n+1} &= y_n + \frac{l}{6} (k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4) \\ k_1 &= f(t_n, y_n) \\ k_2 &= f\left(t_n + \frac{l}{2}, y_n + \frac{l}{2}k_1\right) \\ k_3 &= f\left(t_n + \frac{l}{2}, y_n + \frac{l}{2}k_2\right) \\ k_4 &= f(t_n + l, y_n + lk_3) \end{aligned} \quad (3.21)$$

Cette méthode repose sur le principe de l'itération. Les coefficients  $k_i$  correspondent à des pentes évaluées à différentes positions. La figure 3.19 illustre un test de précision correspondant à la résolution de l'équation de Lorentz (avec tous les paramètres égaux à 1) avec la méthode Runge-Kutta d'ordre 4 à pas adaptatif. Les conditions initiales sont  $(x(t=0) = 0, y(t=0) = 0)$  et  $v_x(t=0) = 0, v_y(t=0) = v_0$ . On note que la différence entre le résultat analytique et celui calculé à l'aide de la méthode Runge-Kutta est infime. L'abscisse correspond au temps parcouru par la particule dans le champ magnétique. La période de précession est  $T = 2\pi$ . On constate alors que la précision du calcul est très importante. On vérifie donc que les méthodes Runge-Kutta sont très robustes et parfaitement utilisables dans le cadre de ce travail de thèse.

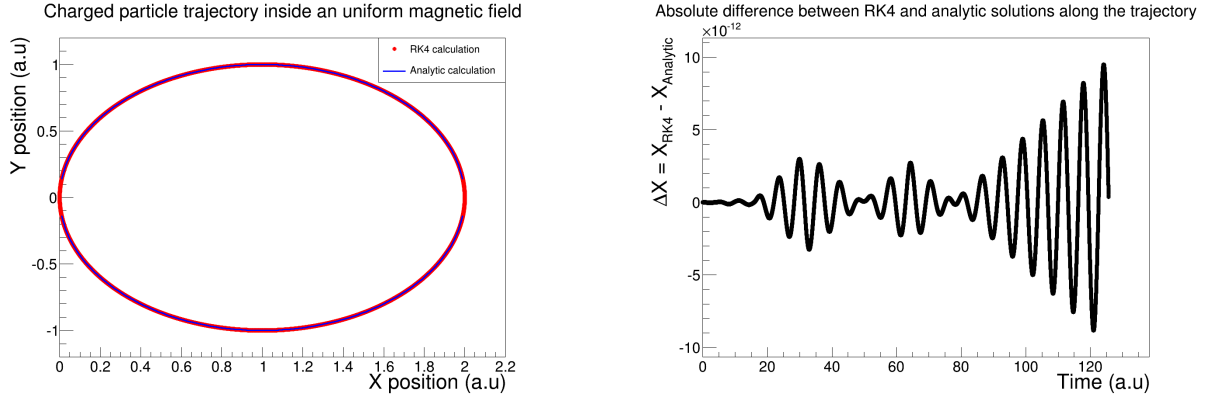


FIGURE 3.19 – Trajectoire d'une particule chargée dans un champ magnétique uniforme (gauche). Les points rouges correspondent à la résolution numérique tandis que la courbe bleue représente la solution analytique. La différence entre les deux calculs (pour la variable  $x(t)$ ) est représentée sur la figure de droite.

### Détermination de la perte d'énergie

Un produit de fission peut perdre de l'énergie en interagissant de plusieurs manières avec le gaz :

- Par collisions inélastiques avec les électrons du milieu traversé
- Par collisions inélastiques avec les noyaux du milieu traversé

Le processus le plus important est le premier. En effet la majeure partie de l'énergie perdue par la particule incidente se fait par collision inélastique avec les électrons du gaz. Néanmoins pour être au plus près de l'expérience, on a aussi pris en compte les collisions inélastiques avec les noyaux.

Tout d'abord pour calculer la perte d'énergie à la suite des interactions avec les électrons, on utilise une formule semi-empirique qui relie la perte d'énergie d'un ion lourd avec celle du proton. Pierce *et al* [Pierce et Blann(1968)] introduisent une charge effective  $q_{eff}$  afin d'interpréter leurs résultats expérimentaux. On a déjà vu précédemment que cette charge effective jouait un rôle primordial dans la description du changement de charge. Il en est de même pour la perte d'énergie. La perte d'énergie suite à une collision avec les électrons du milieu s'écrit :

$$\left(\frac{dE}{dX}\right)_{Z_{ion}, A, E} = \frac{q_{eff}^2}{\gamma_p^2} \times \left(\frac{dE}{dX}\right)_{p, \frac{E}{A}} \quad (3.22)$$

avec  $E$  et  $A$  l'énergie cinétique et la masse du produit de fission.  $q_{eff} = \gamma Z_{ion}$  et  $\gamma_p$  correspond à la charge effective du produit de fission et du proton. Cette formule peut être interprétée comme un effet d'écrantage. Pour les basses énergies,  $\gamma_p \neq 1$ , cela signifie que le proton est aussi sensible à cet effet d'écrantage. Selon Booth et Grant ce paramètre s'écrit [Booth et Grant(1965)] :

$$\gamma_p = \left(1 - e^{-150\varepsilon}\right) e^{-0.835\varepsilon^{-14.5\varepsilon}} \quad (3.23)$$

où  $\varepsilon = \frac{E}{A}$  avec  $E$  exprimé en keV par unité de masse.

Finalement la perte d'énergie d'un proton provient de la formule de Bethe-Bloch [Knoll(2000)] :

$$\frac{1}{\rho} \left(\frac{dE}{dX}\right)_{p, \frac{E}{A}} = -\frac{4\pi N_A r_e^2 m_e c^2}{\mathcal{M}_{Gaz}} \times \frac{Z_{Gaz}}{\beta^2} \times \left(\ln\left(\frac{2m_e c^2 \beta^2}{I(1-\beta^2)}\right) - \beta^2\right) \quad (3.24)$$

avec  $r_e$  et  $m_e$  le rayon et la masse de l'électron.  $\rho$ ,  $\mathcal{M}_{Gaz}$ ,  $I$  et  $Z_{Gaz}$  la masse volumique, la masse molaire, le potentiel d'ionisation et la charge nucléaire du gaz.  $\mathcal{N}_A$  correspond au nombre d'Avogadro,  $c$  à la vitesse de la lumière. Le paramètre  $\beta = \frac{v_{proton}}{c} = \frac{v_{ion}}{c}$  est un facteur sans dimension permettant d'intégrer la vitesse du proton (ou de l'ion). On sait désormais calculer la perte d'énergie électronique d'un produit de fission dans la matière. Cependant, d'autres processus peuvent contribuer à diminuer la vitesse de notre particule lors de la traversée du milieu.

Un autre effet pris en compte est celui du pouvoir d'arrêt nucléaire. Contrairement au cas précédent, la particule incidente interagit cette fois-ci avec les noyaux du milieu et non plus avec les électrons. Pour décrire cet effet on utilise une formule semi empirique établie par J.F. Ziegler [Ziegler(1980)] :

$$\frac{1}{\rho} \left( \frac{dE}{dX} \right)_{nucl} = \left( 0.5 \times \frac{\ln(1 + \varepsilon)}{\varepsilon + 0.010718 \times \varepsilon^{0.37544}} \right) \left( \frac{8.462 \times Z_{ion} Z_{Gaz} A_{ion}}{(A_{ion} + A_{Gaz}) \sqrt{Z_{ion}^{\frac{2}{3}} + Z_{Gaz}^{\frac{2}{3}}}} \right) \quad (3.25)$$

$$\varepsilon = 32.53 \times \frac{A_{Gaz} E_{ion}}{Z_{ion} Z_{Gaz} (A_{ion} + A_{Gaz}) \sqrt{Z_{ion}^{\frac{2}{3}} + Z_{Gaz}^{\frac{2}{3}}}}$$

avec  $Z_{ion}$ ,  $A_{ion}$  et  $E_{ion}$  la charge nucléaire, la masse et l'énergie cinétique du produit de fission. De même,  $Z_{Gaz}$  et  $A_{Gaz}$  est associée au numéro atomique et à la masse du gaz.

On remarque que toutes les formules sont valables pour un gaz composé d'une seule espèce. Autrement dit si l'on souhaite étudier un mélange, il faut dupliquer ces formules pour chaque espèce présente. La pondération se fera à l'aide des nombres stœchiométriques (via la densité).

Notons que le pouvoir d'arrêt nucléaire est faible à haute énergie et prépondérant à basse énergie. Finalement, on arrive à calculer la perte d'énergie totale de notre particule dans le gaz :

$$\left( \frac{dE}{dX} \right)_{tot} = \left( \frac{dE}{dX} \right)_{nucl} + \left( \frac{dE}{dX} \right)_{elec} \quad (3.26)$$

La figure 3.20 présente le pouvoir d'arrêt (en MeV/cm) en fonction de l'énergie cinétique de l'isotope  $^{98}\text{Y}$ . Ces calculs ont été effectués pour une charge effective de  $q = 10$ . La perte d'énergie suite aux collisions avec les noyaux du milieu reste faible autour de 10 MeV.

### Dispersion angulaire

Lors d'une collision, le produit de fission peut changer de direction. On parle alors de straggling (ou dispersion) angulaire. La plupart du temps, cet effet est moyenné sur plusieurs collisions. Due aux nombreuses collisions à petits angles, la dispersion suit une loi normale [Bethe(1953)]. La largeur de cette distribution s'écrit [Olive et al.(2014)] :

$$\theta_0 = \frac{13.6}{\beta c p} q \sqrt{\frac{x}{X_0}} \left( 1 + 0.038 \ln \left( \frac{x}{X_0} \right) \right) \quad (3.27)$$

avec  $p$ ,  $\beta c$ ,  $q$  l'impulsion, la vitesse ( $c$  étant la célérité de la lumière) et la charge ionique du produit de fission. La variable  $x$  est la longueur sur laquelle les multiples collisions ont lieu.  $X_0$  correspond à la longueur de radiation du gaz<sup>4</sup>.

4. Ce paramètre correspond à la distance parcourue par un électron de haute énergie dans la matière, au cours de laquelle 1/e de son énergie est perdue.

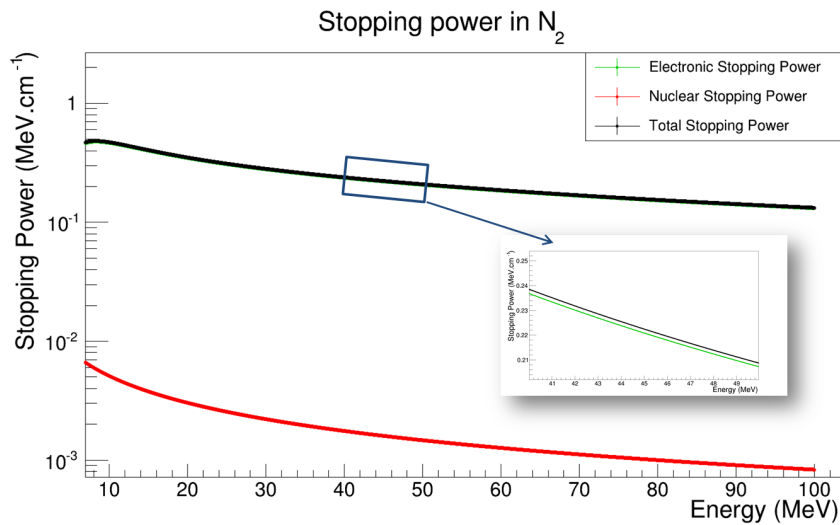


FIGURE 3.20 – Contribution au pouvoir d'arrêt total de la perte d'énergie électronique et nucléaire pour  $l^{98}Y$  avec une charge ionique effective  $q = 10$ .

### Effet de densité de charge (CDE)

Le dernier phénomène modélisé dans le calcul Monte Carlo est celui de l'effet de densité de charge noté CDE (pour Charge Density Effect). Lorsque la pression augmente, le temps entre deux collisions successives diminue. Dans certains cas ce temps est plus petit que le temps de relaxation atomique du produit de fission. Autrement dit, à la suite d'une collision, le produit de fission peut être dans un état atomique excité. Si le temps nécessaire pour se désexciter et retomber dans son état fondamental (atomique) est plus grand que le temps entre deux collisions, le produit de fission va interagir avec le milieu en étant dans un état excité. Dans ce cas, les sections efficaces de capture et de perte vont être modifiées. Il existe des codes atomiques [Shevelko *et al.*(2004)] qui permettent de tenir compte de l'évolution des sections efficaces avec l'énergie d'excitation de l'atome. Dans notre cas, on a utilisé la paramétrisation de K.E. Gregorich pour modéliser ce phénomène [Gregorich(2013)] :

$$q_{eff}(P) = q_{eff0} + D \ln \left( \frac{P}{P_0} \right) \quad (3.28)$$

avec  $D$  un paramètre libre et  $P$  la pression du gaz. Le paramètre  $P_0$  a été fixé à 7 mbar.

La figure 3.21 schématise le principe de cet effet de densité de charge. Sur la figure 3.22 on observe le temps entre deux collisions le long de sa trajectoire dans le GFM. On note que cet effet de densité de charge est déjà présent à basse pression. Cela signifie que les sections efficaces qu'on utilise sont déjà paramétrées non pour un état fondamental (atomique) mais pour un état excité. On remarque néanmoins qu'il y a une différence d'un ordre de grandeur entre le temps de collision entre les basses pressions (3 mbar) et hautes pressions (10 mbar).



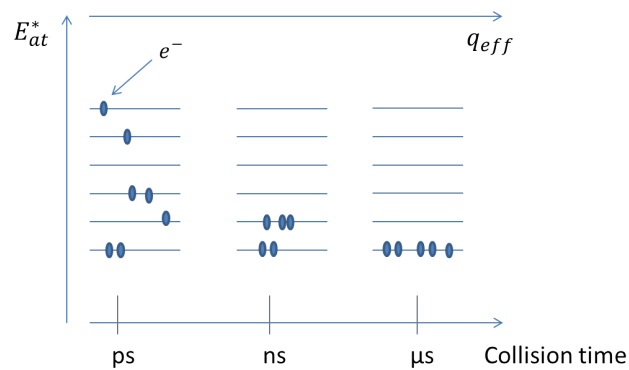
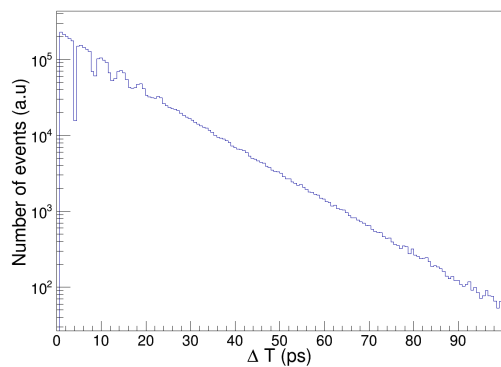


FIGURE 3.21 – *Principe de l'effet de densité. La conséquence est une charge effective modifiée suivant la pression du gaz.*

Time difference between between two successive collisions along the ion trajectory ( $N_2$  @ 3 mbar)



Time difference between between two successive collisions along the ion trajectory ( $N_2$  @ 13 mbar)

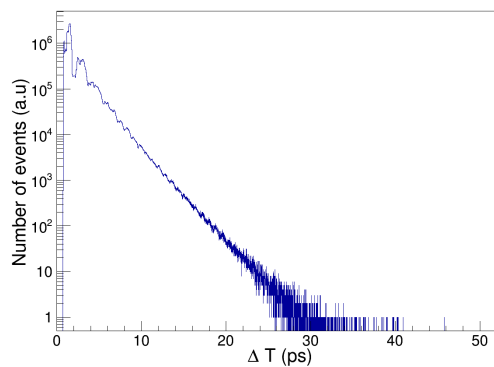


FIGURE 3.22 – *Évolution de temps entre deux collisions le long de la trajectoire dans le GFM. La figure de gauche correspond à un calcul à basse pression (3 mbar). La figure de droite illustre le cas où le produit de fission interagit avec un gaz à haute pression (13 mbar).*

### 3.5 Comparaison expérience/simulation

Les calculs Monte Carlo ont été effectués en deux étapes. Tout d'abord on choisit un lot de données test. A l'aide de ces données, on fixe les paramètres libres  $k_0$  (permet de calculer la perte simultanée de plusieurs électrons) et  $D$  (modélise l'effet de densité de charge), qui sont des corrections aux équations de bases, ainsi que la géométrie du GFM. Deux comparaisons différentes ont été faites. La première l'a été avec les données de décembre 2010 pour lesquelles le gaz était de l'hélium. La seconde étude l'a été avec des mesures effectuées avec du diazote.

#### Comparaison avec les données "hélium"

Pour cette comparaison, le code n'était pas aussi complet tel que décrit dans la partie précédente. Dans un premier temps, on a observé un décalage entre le champ magnétique moyen simulé  $\overline{B}_{simu}$  et expérimental  $\overline{B}_{exp}$ . Pour corriger ce décalage, on a modifié le positionnement de la fenêtre de sortie dans les marges de tolérance. Du fait de la taille de l'aimant et de son encombrement, la position du détecteur n'est pas parfaitement connue. De plus, dans nos calculs, les effets de champ de fuite n'ont pas été pris en compte. Ainsi il paraît tout à fait justifié de modifier la géométrie effective pour être en accord avec les données expérimentales. Toutefois, ce changement de géométrie doit avoir la même influence sur toutes les masses. On a donc ajusté la position géométrique du détecteur (dans les marges d'incertitudes) pour être en accord avec la masse 98. Une fois la géométrie fixée, avec des paramètres proches de la géométrie nominale, on a pu vérifier que la simulation était en accord avec l'expérience à 3 % près comme l'illustre la figure 3.23. Néanmoins cette géométrie est valable uniquement pour l'expérience de décembre 2010. En effet le dispositif expérimental a évolué au cours des expériences suivantes.

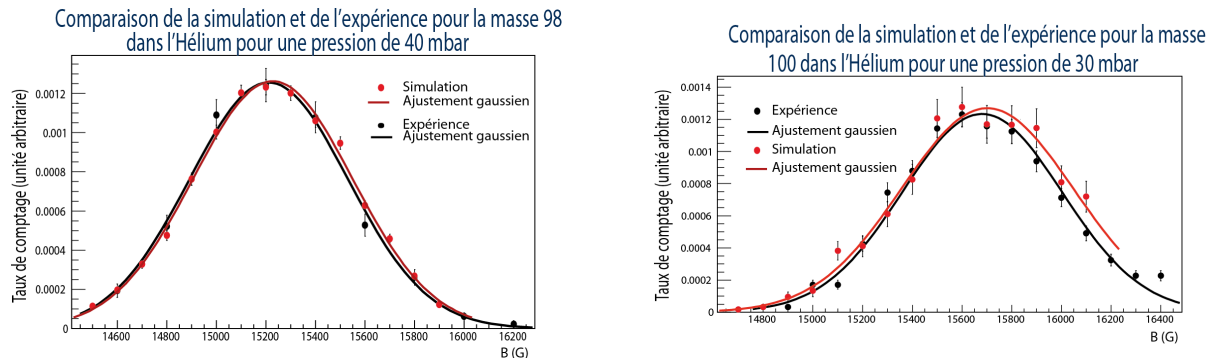


FIGURE 3.23 – Comparaison entre les calculs Monte Carlo et les résultats expérimentaux dans le cas de l'hélium. À gauche :  $A = 98$  pour une pression de 40 mbar. À droite :  $A = 100$  pour une pression de 30 mbar.

Pour ces données, le straggling angulaire n'est pas paramétré de la même manière que celle décrite dans la partie précédente. Ici on suppose une dispersion angulaire initiale à la sortie de la feuille d'entrée du GFM. La figure 3.24 montre l'importance de ce paramètre sur la largeur de la distribution. Enfin on ne tient compte que de la perte ou de la capture d'un seul électron à la fois lors des collisions, car suivant la littérature, la perte de plusieurs électrons simultanément est dite négligeable dans l'hélium [Datz *et al.*(1970)]. La prise en compte de cet effet a pour conséquence de changer la trajectoire du faisceau ( $\overline{B}$  varie) mais ne change pas la dispersion spatiale ( $\sigma_B$  reste constant au premier ordre). Selon la littérature cet effet est non négligeable pour des gaz plus lourds que l'hélium.

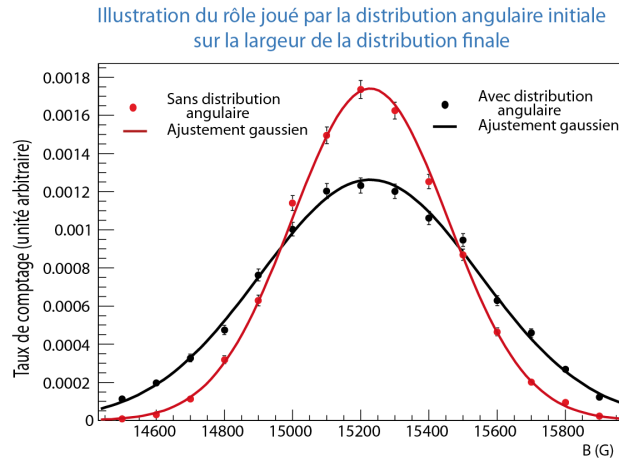


FIGURE 3.24 – Influence du straggling angulaire initiale dans la feuille sur la dispersion en champ magnétique.

### Comparaison avec les données “ $N_2$ ”

Pour la deuxième étude, le gaz d’intérêt était le diazote  $N_2$ . Les deux paramètres  $k_0$  et  $D$  ont été déterminés à l’aide de données “test” et correspondent aux mesures sur la masse 98 et sur l’isotope  $^{98}\text{Y}$ . On rappelle que ces paramètres permettent de prendre en compte la perte simultanée d’électrons lors d’une seule collision (paramètre  $k_0$ ) et de l’effet de densité de charge (paramètre  $D$ ). Les paramètres ont été fixés à :

$$k_0 = 0.56 \pm 0.05 \quad (3.29)$$

$$D = -0.4 \pm 0.04 \quad (3.30)$$

Le paramètre  $k_0$  a un impact de l’ordre de 10 % sur le champ magnétique moyen<sup>5</sup>. Le paramètre  $D$  lui joue un rôle majeur dans la courbure la fonction  $\bar{B} = f(P)$ . La figure 3.25 montre la comparaison du code Monte Carlo avec les données “test”, sur lesquelles les paramètres libres ont été ajustés et les autres données expérimentales. On note alors que l’accord est très satisfaisant.

Il s’est avéré que modéliser la dispersion angulaire du faisceau dans le GFM via une dispersion angulaire initiale normale n’était pas assez robuste au changement de gaz et de pression. Ainsi pour obtenir un code plus réaliste, on a décidé d’introduire un straggling angulaire à chaque collision. A ce jour on n’arrive pas à retrouver la dispersion magnétique d’un isotope, alors que pour une masse le résultat est plutôt satisfaisant. La figure 3.26 illustre la différence entre un calcul en tenant compte uniquement d’une dispersion angulaire initiale, et une autre en utilisant le straggling décrit dans la section précédente par l’équation (3.27).

Les barres d’erreurs de la simulation correspondent à la sensibilité du calcul à différents paramètres tels que la géométrie du RED, l’incertitude sur  $k_0$ ,  $D$ , le diaphragme d’entrée et de sortie, mais aussi de l’influence du choix de bibliothèque de rendement. En effet dans le calcul Monte Carlo, une masse est l’ensemble de quatre isotopes pondérés par leur rendement. La sensibilité,  $S = \frac{\partial Y}{\partial X} \frac{X}{Y}$ <sup>6</sup> aux différents paramètres est présent sur la figure 3.28.

5. Dans le calcul, seule la perte simultanée de un ou deux électrons a été prise en compte. En effet, la perte simultanée d’électrons n’a d’influence que sur le champ magnétique moyen. Dès lors que  $k_0$  est considéré comme un paramètre ajustable, sa valeur absolue, qui dépend du nombre d’électrons perdus, n’a pas d’intérêt.

6. Permet d’évaluer l’impact d’un paramètre  $X$  sur une observable  $Y$

Le dernier point de comparaison correspond à la perte d'énergie. On remarque que la tendance en fonction de la pression est très bien retranscrite par le calcul Monte Carlo. Néanmoins un décalage systématique est présent et correspond à une différence de pression de 0.5 mbar dans le cas où la perte d'énergie est calculée à l'aide de SRIM. Lorsqu'on utilise les formules présentées ci dessus, on a un décalage de 0.9 mbar. L'une des explications est que la jauge de pression avait un offset qui n'a pas été réglé correctement. On a pu vérifier cette hypothèse récemment en utilisant trois jauges de pression différente. Malgré le fait de les avoir réglées minutieusement, on obtenait trois mesures de pression différente. La photo 3.29 montre la mesure des trois jauges pour la mesure de pression de l'hélium. On peut voir sur la figure 3.27 l'impact de l'offset sur la comparaison.

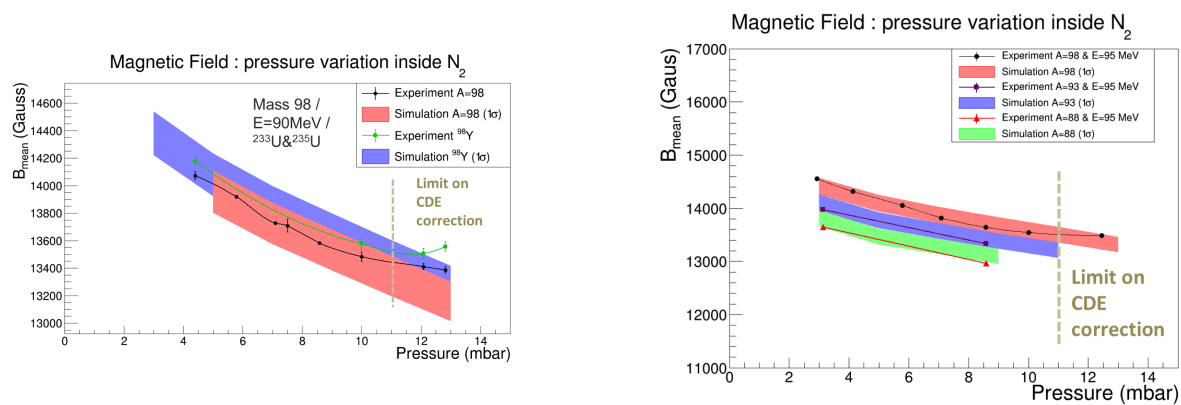


FIGURE 3.25 – Comparaison de  $\bar{B}$  entre les calculs Monte Carlo et les résultats expérimentaux dans le cas de  $N_2$ . À gauche calculs permettant de fixer les paramètres libres  $k_0$  et  $D$ . À droite comparaison des calculs avec un nouveau jeu de données. À haute pression, la modélisation de l'effet de densité de charge (CDE) n'est plus valable.

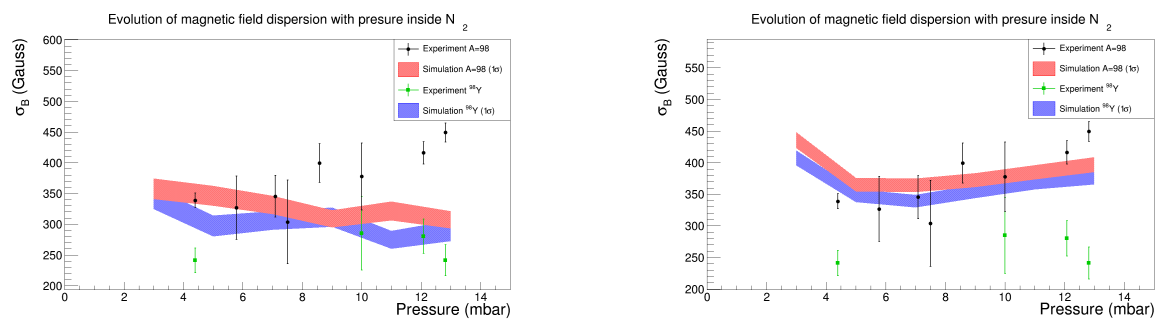
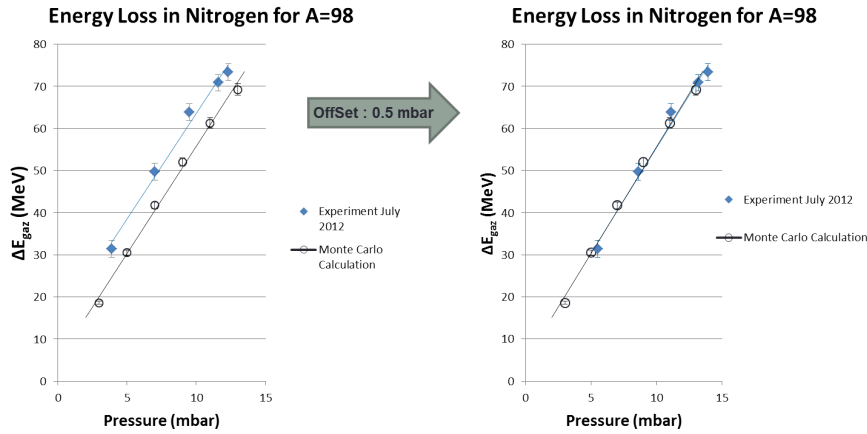


FIGURE 3.26 – Comparaison entre les calculs Monte Carlo et les résultats expérimentaux dans le cas de  $N_2$ . À gauche calcul en tenant compte uniquement d'une dispersion angulaire initiale. À droite calcul basé sur le straggling décrit dans la section précédente.

FIGURE 3.27 – Comparaison de l'énergie perdue dans le gaz en fonction de la pression de  $N_2$ .

Parameter	Sensibility $\bar{B}$	Sensibility $\sigma_B$	$\Delta E_{\text{gas}}$
$\theta_0 \rightarrow \theta_0 + 1^\circ$	0,346	0,711	0,44
$\theta_0 \rightarrow \theta_0 - 1^\circ$	0,395	0,855	0,44
$\theta_1 \rightarrow \theta_1 + 1^\circ$	0,040	0,231	0,003
$\theta_1 \rightarrow \theta_1 - 1^\circ$	0,033	0,174	0,004
$R_{out} \rightarrow R_{out} + 5 \text{ mm}$	0,00059	0,0510	0
$R_{out} \rightarrow R_{out} - 5 \text{ mm}$	0,00088	0,0430	0
$R_{in} \rightarrow R_{in} + 5 \text{ mm}$	0,00096	0,0183	0
$R_{in} \rightarrow R_{in} - 5 \text{ mm}$	0,00058	0,0202	0
$T \rightarrow T + 10 \text{ K}$	0,00236		0,055
$T \rightarrow T - 10 \text{ K}$	0,00241		0,058
Library (Jeff vs ENDF)	0,00020	0,0028	0
Target ( $^{233}\text{U}$ vs $^{235}\text{U}$ )	0,00424	0,0097	0,006
$k \rightarrow k \pm 0,05$	0,063	0,063	0
SRIM	0,0018	0,024	0,059

FIGURE 3.28 – Tableau des sensibilités,  $S = \frac{\partial Y}{\partial X} \frac{X}{Y}$ , du calcul Monte Carlo.

FIGURE 3.29 – Fiabilité des jauges de pression.

### Conclusion sur la simulation Monte Carlo

La simulation Monte Carlo permet d'obtenir des résultats en accord avec l'expérience pour les masses légères et pour des pressions inférieures à 11 mbar. À haute pression la modélisation de l'effet de densité n'est pas satisfaisante. L'une des solutions serait d'utiliser des codes de physique atomique afin d'évaluer plus précisément les différentes sections efficaces. De même un effort sur la modélisation de la dispersion magnétique à travers le straggling angulaire doit être effectué afin de reproduire plus fidèlement les différents résultats expérimentaux. Dans la gamme de pression qui nous intéresse, la dispersion magnétique est plutôt bien modélisée.

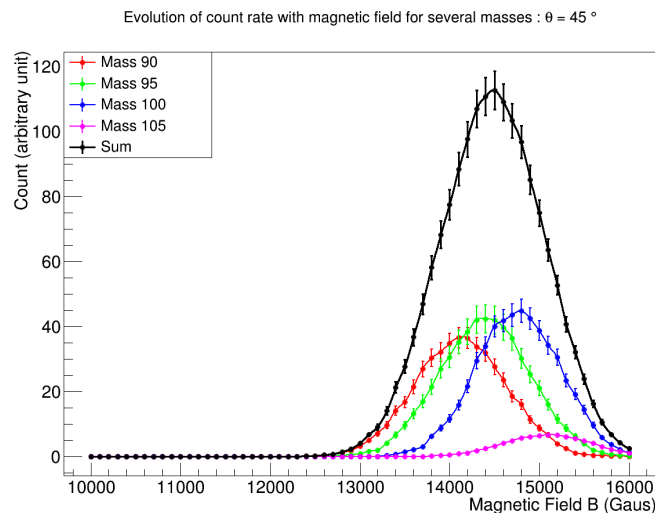
### 3.6 Faisabilité du spectromètre magnétique gazeux du projet FIPPS

L'ensemble des études présentées permettent de mettre en avant certains paramètres clés d'un GFM. Tout d'abord l'ajout de gaz dans un spectromètre peut être vu comme une correction de la trajectoire d'une particule chargée dans le vide. En effet les différentes collisions vont avoir lieu majoritairement autour de la trajectoire moyenne définie dans le vide (pour un ion qui aurait dans le vide la même charge moyenne que dans le gaz). Ainsi les propriétés magnétiques de l'aimant, notamment en terme de focalisation doivent aussi être étudiées dans le vide.

Le nombre de collisions dans le gaz qui est contrôlable à travers la pression, joue un rôle essentiel dans le pouvoir de séparation de l'aimant. Néanmoins les caractéristiques géométriques de l'aimant ont aussi un rôle dans le pouvoir de séparation.

Finalement les recommandations à la suite de ce travail sont de construire un aimant de 650 mm de rayon, et d'un angle de 135°. Ces résultats font suite d'un travail de simulation où différentes géométries ont été testées. La figure 3.30 présente les calculs effectués pour un rayon de courbure de 650 mm et pour différents angles de déviation. On constate alors que le pouvoir de séparation est plus important pour un angle de 135°. Notons que d'autres paramètres tels que l'encombrement de l'aimant doivent être pris en compte lors du dimensionnement. Enfin, la possibilité de modifier la pression du gaz, permet d'avoir une marge de l'ordre de  $\pm 15^\circ$  lors du design de l'élément.

La trajectoire étant plus longue que pour nos études sur le RED, la pression pourra être plus faible et donc permettre l'utilisation d'un gaz plus léger tel que l'hélium. Enfin, pour que les particules puissent être détectées, la pression ne doit pas être trop élevée. Par conséquent pour courber les fragments de fission lourds, un haut champ magnétique doit être utilisé. La limite doit être autour de 2 T. La résolution étant  $\sim 1 - 2\%$ , la stabilité en champ magnétique doit être d'au moins  $\sim 0.5\%$ . Des études sont en cours pour s'assurer de la faisabilité d'un aimant avec de telles caractéristiques.



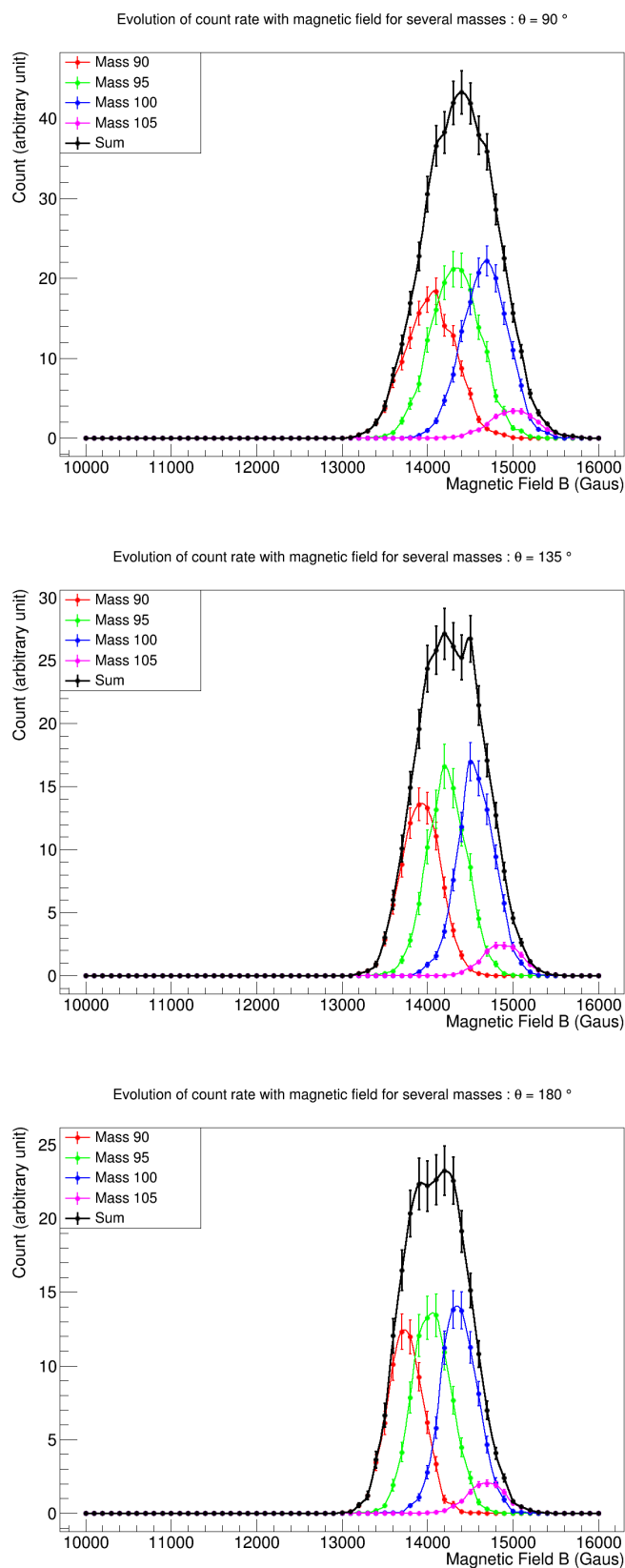


FIGURE 3.30 – *Pouvoir de séparation d'un GFM dans le cadre du projet FIPPS pour un rayon de courbure de 650 mm et pour différents angles de déviation.*

## Conclusion

Au cours de ce travail, nous avons étudié les propriétés fondamentales des spectromètres magnétiques gazeux à travers différentes campagnes expérimentales et le développement d'une simulation Monte Carlo. L'enseignement à tirer est que le pouvoir de séparation d'un GFM existe mais est limité par le nombre de collisions et le straggling au sein du gaz. De plus, l'ajout de gaz dans un aimant magnétique n'altère pas les propriétés de focalisation de ce dernier. Des études sur ces propriétés sont importantes pour obtenir la meilleure résolution. Néanmoins deux résultats peuvent être formulés. Premièrement un GFM remplit le rôle de filtre pour les fragments de fission, ce qui est souhaité dans le cadre du projet FIPPS. Il faut noter qu'il ne sera pas possible d'identifier précisément la masse et la charge nucléaire du second fragment, mais une résolution de l'ordre de  $\pm 5$  masses est réaliste. Le second résultat est la possibilité de combiner le RED en mode "gazeux" avec le spectromètre LOHENGRIN afin d'obtenir des faisceaux isobariques très purs à la sortie. Ceci permet d'une part de réduire le bruit de fond  $\gamma$  au point focal, mais aussi de nouvelles mesures telles que la puissance résiduelle par masse.



# Mesures de rapports isomériques pour l'étude du processus de fission

---

## Sommaire

---

<b>4.1 Rapports isomériques à l'échelle de la microseconde</b>	<b>82</b>
4.1.1 Dispositif expérimental	82
4.1.2 Méthode d'analyse	83
4.1.3 Méthode Total Monte Carlo	91
4.1.4 Limite de la méthode auprès du spectromètre LOHENGRIN	95
4.1.5 Perspectives pour ce type de mesures	95
4.1.6 Résultats expérimentaux	97
<b>4.2 Rapports isomériques de la milliseconde à la minute</b>	<b>101</b>
4.2.1 Dispositif expérimental	101
4.2.2 Méthode d'analyse	101
4.2.3 Limite de la méthode	105
4.2.4 Résultats	105
<b>4.3 Étude des états isomères à l'échelle de la nanoseconde</b>	<b>107</b>
4.3.1 Dispositif expérimental	107
4.3.2 Méthode d'analyse	110
4.3.3 Résultats	110
4.3.4 Limite de la méthode	111
4.3.5 Perspectives pour ce type de mesures	113
<b>4.4 Comparaison avec un code de désexcitation nucléaire</b>	<b>114</b>
4.4.1 FIFRELIN	114
4.4.2 Test d'hypothèses : approche fréquentiste et bayésienne	118
4.4.3 Extraction d'un spin cutoff	120
4.4.4 Interprétation des résultats	123

---

## Introduction

*Ce que nous connaissons est peu de chose, ce que nous ignorons est immense.* D'après le Baron Joseph Fourier, ce sont les dernières paroles du Marquis Pierre Simon de Laplace. La fission abonde encore aujourd'hui en de nombreuses interrogations à élucider. Au cours de ce chapitre nous allons nous intéresser à une question ouverte qu'est l'origine du moment angulaire des fragments de fission. La mesure de rapports isomériques en fonction de l'énergie cinétique permet de mettre en lumière le rôle prépondérant que joue la distribution du moment angulaire des fragments de fission [Vandenbosch et Huizenga(1973), Faust(2012), Gönnerwein *et al.*(2007)]. On

verra que la notion d'énergie d'excitation ou plus exactement son origine (intrinsèque, ou provenant de la déformation) conduit à des interprétations très différentes sur le processus de fission. De plus la modélisation des spectres de neutrons et  $\gamma$  prompts requiert une connaissance précise des distributions de moment angulaire des fragments de fission [Rimpault *et al.*(2012)]. D'anciennes mesures ont déjà été effectuées auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN [Bocquet *et al.*(1980), Gönnerwein *et al.*(2007)]. L'objectif de nos mesures de rapports isomériques est d'estimer le plus précisément possible les incertitudes systématiques et ainsi apporter des informations qui permettront de mieux appréhender la fission nucléaire.

Dans une première partie nous présenterons la méthode de mesure des isomères  $\mu s$  et les outils mis en place pour analyser ces résultats. En effet, dans le passé, les mesures des rapports isomériques étaient un sous-produit des mesures de structure nucléaire [Genevey *et al.*(1999)].

Dans la seconde partie, de nouvelles méthodes ont été mises en place afin de pouvoir mesurer des rendements d'états métastables (de quelque ms à quelques minutes) qui sont d'intérêt immédiat pour l'évaluation de données ou pour des études en physique des réacteurs. Ces mesures sont complémentaires à celles effectuées par Naik *et al.* [Naik *et al.*(2005)].

La troisième partie de ce chapitre permettra de montrer l'impact d'états nanosecondes sur la distribution en charge ionique des fragments de fission. Cette étude met en évidence la nécessité, pour les mesures de rendements sur le spectromètre de masse LOHENGRIN, d'avoir une connaissance solide des schémas de structure nucléaire des fragments de fission.

Dans la dernière partie, une interprétation de quelques rapports isomériques a été effectuée à l'aide du code FIFRELIN. Une discussion sur l'impact de ces nouvelles données sur le mécanisme de génération du moment angulaire des fragments de fission est proposée.

Ces paroles du Marquis de Laplace résonnent avec la volonté d'éclaircir les *a priori* des interprétations et me permettent aussi d'introduire un aspect qui sera traité au cours de ce chapitre : l'analyse basée sur des outils statistiques. Laplace est considéré comme l'un des pères fondateurs des probabilités mathématiques sur lesquelles reposent notre analyse.

## 4.1 Rapports isomériques à l'échelle de la microseconde

Les  $\mu s$  isomères ont été abondamment traités sur le spectromètre de masse LOHENGRIN, dans le cadre d'études en structure nucléaire [Genevey *et al.*(1999), Genevey *et al.*(2003), Genevey *et al.*(2001)]. La technique expérimentale était donc déjà validée. Malheureusement les rapports isomériques n'étaient qu'un produit secondaire de l'analyse de ces données dont l'intérêt était de compléter le schéma de structure des noyaux étudiés. Dans le cadre de ce travail, on s'est focalisé sur la mesure du rapport isomérique avec pour objectif d'obtenir des mesures avec une grande précision. La méthode d'analyse diffère donc de celle mise en place pour étudier les états isomères du point de vue de la structure nucléaire. Au cours de cette partie, nous détaillerons le dispositif expérimental, la méthode d'analyse et enfin nous présenterons les résultats obtenus.

### 4.1.1 Dispositif expérimental

On a vu que le spectromètre de masse LOHENGRIN ne sélectionnait pas une unique masse. Pour caractériser un isotope, on va donc utiliser la signature de son spectre  $\gamma$  issue d'une désintégration  $\beta$  (état fondamental) ou d'une désexcitation interne (état  $\mu s$  isomère). On souhaite mesurer le rapport de population de ces états peuplés par le processus de fission. Pour mesurer des rapports isomériques pour des états excités dont la durée de vie est de quelques  $\mu s$ , on

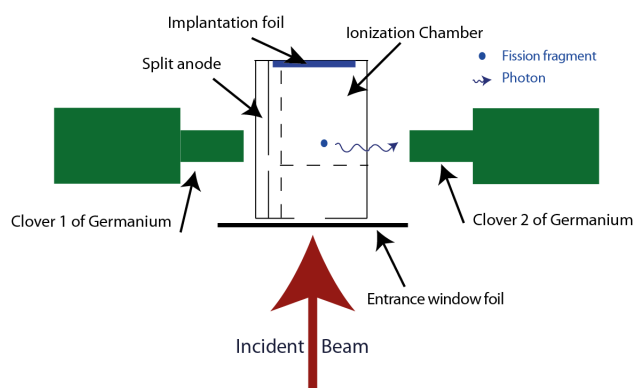


FIGURE 4.1 – Schéma de l'installation.

utilise une chambre d'ionisation et deux clovers de germanium au niveau du plan focal (à la sortie du RED) du spectromètre de masse Lohengrin. Le schéma de l'installation expérimentale est représenté sur la figure 4.1 Le fonctionnement de ces deux détecteurs a été explicité au cours des paragraphes 2.4.1 et 2.4.2 du chapitre 2. Deux méthodes d'extraction sont utilisées pour déterminer la population de l'état isomère et de l'état fondamental. Au cours de cette thèse trois expériences ont eu lieu avec ce dispositif expérimental dont les caractéristiques sont listées dans le tableau 4.1.

Date de l'expérience	Cible utilisée	Épaisseur ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	Couverture	Isotopes étudiés
Juin 2012	$^{233}\text{U}$	323	Ni	$^{88}\text{Br}$ , $^{94}\text{Y}$ , $^{98}\text{Y}$ , $^{129}\text{Sn}$ , $^{132}\text{Te}$
Août 2014	$^{235}\text{U}$	91	Ta	$^{88}\text{Br}$ , $^{98}\text{Y}$ , $^{132}\text{Sn}$ , $^{132}\text{Te}$
Septembre 2014	$^{233}\text{U}$	113	$\emptyset$	$^{88}\text{Br}$

TABLE 4.1 – Tableau récapitulatif des différentes expériences pour mesurer des rapports isomériques pour des états dont la durée de vie est de quelques  $\mu\text{s}$ .

#### 4.1.2 Méthode d'analyse

Dans cette partie, la méthodologie mise en place pour extraire un rapport isomérique ainsi que la description de l'ensemble des corrections nécessaires sont présentées. Le spectromètre LOHENGRIN va être réglé afin d'obtenir l'isotope étudié. Une coïncidence en temps entre les signaux de la chambre d'ionisation et ceux des détecteurs  $\gamma$  permet de générer un spectre afin d'identifier l'état isomère du noyau étudié. L'état fondamental est quant à lui identifié à l'aide du spectre brut, i.e. sans coïncidence, provenant des détecteurs  $\gamma$ .

A l'aide du logiciel TV [Theuerkauf *et al.*(2000)], développé par l'université de Cologne, on extrait les taux de comptage des raies  $\gamma$  qu'on peut trouver dans le tableau 4.2. Ce logiciel utilise les bibliothèques de ROOT [Brun et Rademakers(1997)] dont l'ajustement s'appuie sur la méthode des moindres carrés. L'observable qui nous intéresse est le rapport isomérique,  $IR$ , qui s'écrit :

$$IR = \frac{\tau(^m X)}{\tau(^m X) + \tau(^{GS} X)} \quad (4.1)$$

où  $\tau(^m X)$  représente les taux de fission de l'état isomère (m) ou fondamental (GS) du noyau étudié. Pour certains noyaux, on définira le rapport isomérique comme étant le rapport de deux états isomères différents. C'est notamment le cas pour  $^{98}\text{Y}$  ou  $^{132}\text{Te}$ .

Les relations (4.2) et (4.3) permettent de lier le taux de fission au nombre de  $\gamma$  détectés  $N_\gamma$ .

$$N_\gamma = I_\gamma \varepsilon_\gamma C_\gamma \int_{t=0}^{t_{mesure}} \lambda N(t) dt \quad (4.2)$$

avec  $I_\gamma$ ,  $\varepsilon_\gamma$  et  $C_\gamma$  qui correspondent à l'intensité absolue, l'efficacité des détecteurs  $\gamma$  et du facteur correcteur de l'effet de somme pour la raie  $\gamma$  mesurée. Le paramètre  $\lambda$  est la probabilité de décroissance de l'état considéré (fondamental ou isomère). Enfin,  $N$  représente la population totale d'un état (isomère ou fondamental). Cette variable suit le système d'équations de Bateman :

$$\begin{cases} \frac{dN(^m X)}{dt} = -\lambda_m N(^m X) + \tau_m^{\text{Red}} \\ \frac{dN(^{GS} X)}{dt} = -\lambda_{GS} N(^{GS} X) + \tau_{GS}^{\text{Red}} + BR_m \lambda_m N(^m X) + BR_{A+1} \lambda_{A+1} N(^{A+1} X) \end{cases} \quad (4.3)$$

où  $N(^m X)$  est la population de l'état isomère et  $N(^{GS} X)$  celui de l'état fondamental. La probabilité de décroissance correspond au facteur  $\lambda$ . Le paramètre  $BR$  appelé aussi branching ratio correspond à la fraction de noyaux qui décroissent selon un mode particulier par rapport à l'ensemble des décroissances. Dans notre cas  $BR_m$  est associée à la probabilité d'observer une transition interne, et  $BR_{A+1}$  celle d'observer une décroissance  $\beta^-$  du noyau père. On verra dans la suite que dans le cas de l'état isomère, lorsque la décroissance  $\beta^-$  du noyau père n'est pas négligeable, on peut corriger cette alimentation directement sur les données enregistrées. Enfin,  $\tau^{\text{Red}}$  est le taux de fission au niveau du système de détection. En effet le rapport isomérique mesuré est celui au niveau du système de détection. Lorsqu'on souhaite comparer ces données avec un calcul qui s'intéresse au processus de fission, on doit corriger notre mesure du temps de parcours entre la cible et le système de détection 23 m plus loin. La figure 4.2 schématise les différentes voies d'alimentation de l'état fondamental et isomère. Pour certains noyaux il existe plusieurs états isomères, ainsi que différents états du noyau père alimentant le noyau d'intérêt par décroissance  $\beta^-$ . Les équations de Bateman deviennent alors plus complexes.

### Extraction des raies $\gamma$ pour l'état isomère

Le temps de vol dans le spectromètre Lohengrin est de l'ordre de 1 à 2  $\mu\text{s}$  selon l'énergie du fragment de fission. Il est donc possible de détecter des états isomères entre quelques  $\mu\text{s}$  et quelques dizaines de  $\mu\text{s}$ . En-dessous, la décroissance de la population d'isomères sera trop importante. Au-dessus, la contamination des raies  $\gamma$  de l'état isomère, notamment par la décroissance  $\beta$  du noyau père, devient trop importante.

Pour détecter l'isomère, on effectue une coïncidence entre la chambre d'ionisation et les détecteurs  $\gamma$ . Lorsqu'un ion interagit dans la chambre d'ionisation un signal est émis. On ouvre une porte de  $\Delta t \simeq 10T_{1/2}$ . La figure 4.3 illustre parfaitement l'intérêt du choix de la durée de la porte. En effet la population d'états isomères décroît de manière exponentielle avec le temps. Si la fenêtre temporelle de coïncidence est trop petite, alors la population détectée,  $N^{\text{det}}$ , doit être corrigé par le facteur  $f$  afin de remonter à la population initiale  $N^{\text{init}}$  :

$$N^{\text{mes}} = N^{\text{init}} (1 - e^{-\lambda t}) = N^{\text{init}} \times f \quad (4.4)$$

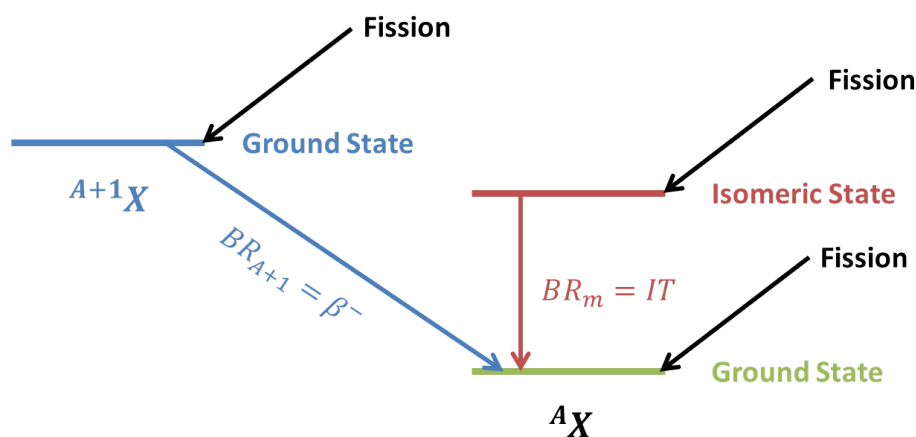


FIGURE 4.2 – Schéma des voies d'alimentation des états fondamental et isomère du noyau étudié. La décroissance  $\beta^-$  du noyau père sur l'état isomère est corrigée directement sur les données extraites (voir section ci après).

La courbe noire représente l'évolution du facteur correctif  $f$  en fonction de la durée de la porte exprimée en multiple de la période. L'erreur associée à la correction provenant de la période (courbe rouge) devient négligeable pour des largeurs de portes de l'ordre de  $10 T_{1/2}$ .

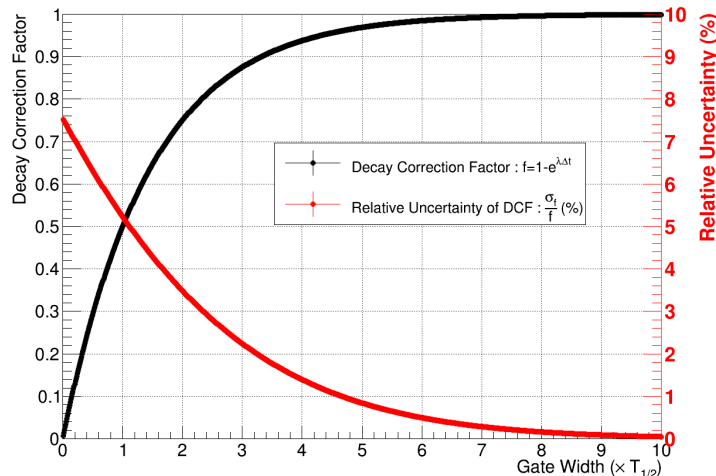


FIGURE 4.3 – Évolution du facteur correctif en fonction de la durée de la coïncidence. On remarque que l'erreur associée à ce facteur et provenant uniquement de l'incertitude sur la période radioactive est négligeable pour  $\Delta t \simeq 10T_{1/2}$ .

Pour certains isotopes, par exemple le  $^{132}\text{Te}$ , la décroissance  $\beta$  du noyau père ( $^{132}\text{Sb}$ ) n'est pas négligeable. Ainsi certains événements en coïncidence ne proviennent pas de la désexcitation de l'état isomère suite à un peuplement par fission, mais à la suite d'une décroissance  $\beta$  du père. Plus la porte sera grande, et plus cet effet sera important. On observe sur la figure 4.4 que les raies pour identifier les états microsecondes du  $^{132}\text{Te}$  (en rouges et vertes) correspondent

aussi aux raies servant à détecter l'état fondamental (marrons) et un état métastable (bleues) du  $^{132}\text{Sb}$  (suite à une décroissance  $\beta^-$ ).

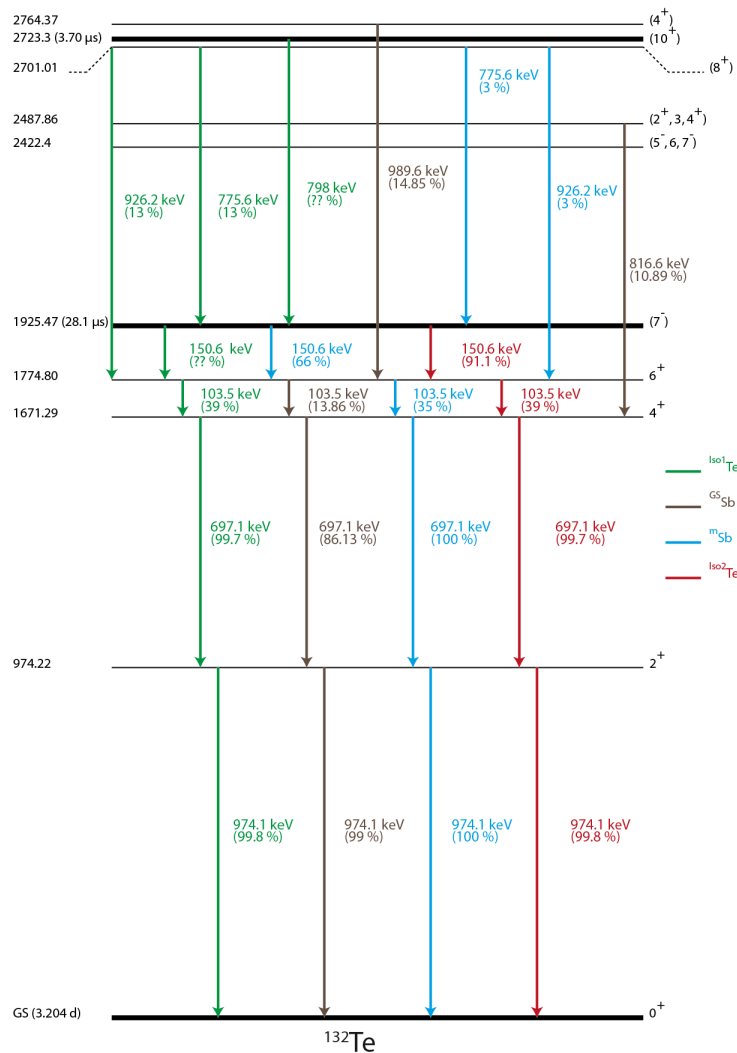


FIGURE 4.4 – Schéma simplifié de la structure nucléaire du  $^{132}\text{Te}$ . On constate que les raies utilisées pour identifier l'état isomère du  $^{132}\text{Te}$  sont communes à la décroissance  $\beta$  de  $^{132}\text{Sb}$  et  $^{132m}\text{Sb}$ .

Cependant les événements provenant de la décroissance  $\beta$  sont fortuits, autrement dit il n'y a pas de corrélation temporelle entre leur détection et celle de l'ion incident. La prise en compte des événements fortuits est obtenue en générant un spectre  $\gamma$  juste avant le déclenchement de la chambre d'ionisation. La figure 4.5 illustre la différence entre ces deux méthodes.

On observe aussi la distribution en temps de ces deux spectres issus de la méthode en coïncidence et celle des fortuits. On observe dans le premier cas une dépendance exponentielle du taux de comptage en fonction de la différence de temps entre le signal de la chambre d'ionisation et celui des détecteurs  $\gamma$ . Ceci signe la présence d'un état microseconde isomère. Néanmoins la distribution en temps, qui tient compte de l'ensemble du spectre, présente aussi un fond constant correspondant aux raies  $\gamma$  fortuites. Elles proviennent à la fois de la décroissance  $\beta$  du noyau

père, mais aussi du bruit ambiant, ou de la décroissance d'un autre noyau sélectionné par le spectromètre LOHENGRIN.

Le résultat de la soustraction des événements fortuits sur le spectre  $\gamma$  est présenté sur la figure 4.6. Sur ce spectre corrigé, seule la contribution des raies  $\gamma$  induites par la désexcitation des états isomères, peuplés directement par le processus de fission est présente. L'incertitude associée au taux de comptage est assez faible car le rapport signal sur bruit est très bon, ce qui engendre uniquement une incertitude statistique ( $\sim 1 - 6\%$ ).<sup>1</sup>

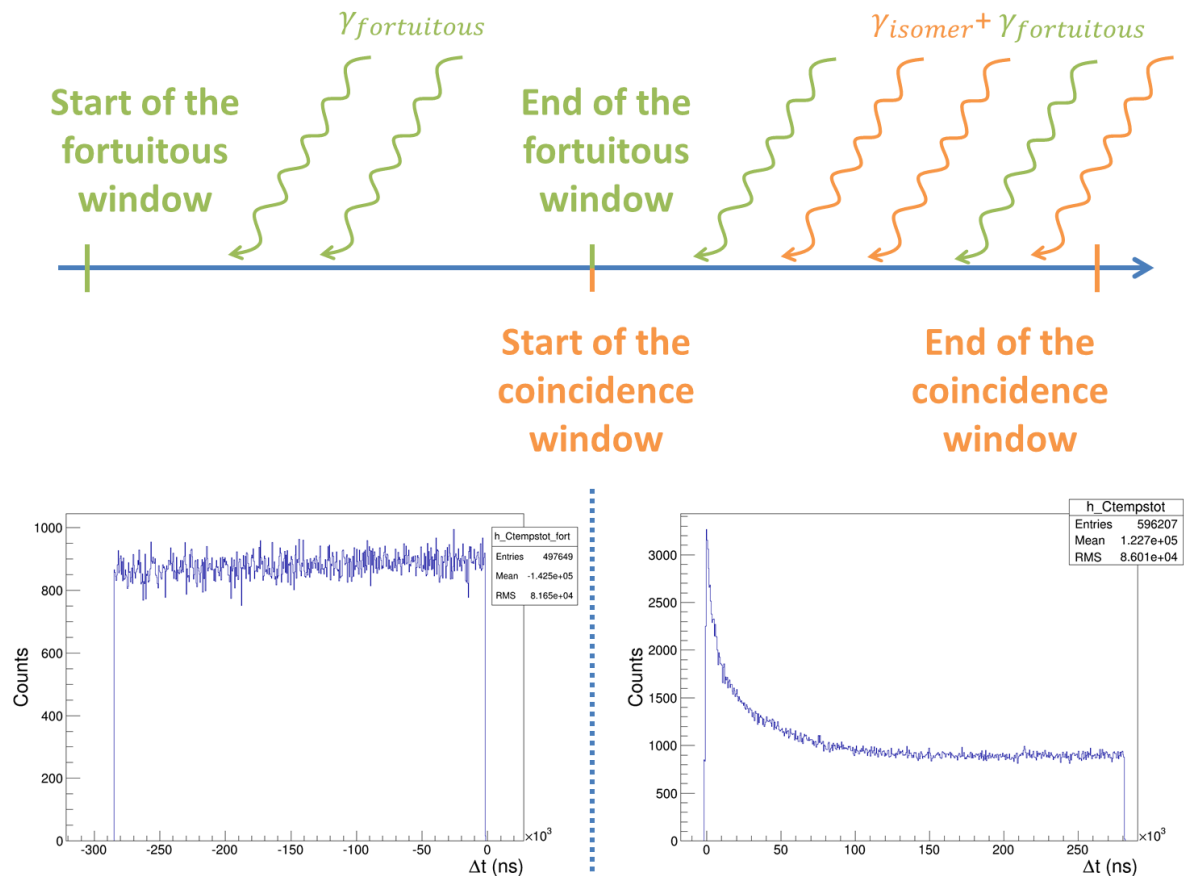


FIGURE 4.5 – En haut : illustration de la coïncidence entre la chambre d'ionisation et les détecteurs  $\gamma$  afin de déterminer le taux de comptage issue de la désexcitation d'un état isomère, mais aussi du taux de fortuit. En bas : évolution du taux de comptage  $\gamma$  en fonction de la différence de temps entre le signal des détecteurs Ge et de la chambre d'ionisation ; cas des événements fortuits (gauche) et des événements en coïncidence (droite). Ces spectres sont issus de la mesure de la masse 132 à l'énergie de 75 MeV pour une cible fine de  $^{235}\text{U}$  avec une fenêtre en temps de  $\Delta t = 280 \mu\text{s}$ .

1. Il faut noter que certains rares événements peuvent être traités dans les deux procédures. On élimine du spectre fortuit tous les événements qui apparaissent aussi dans le spectre en coïncidence.

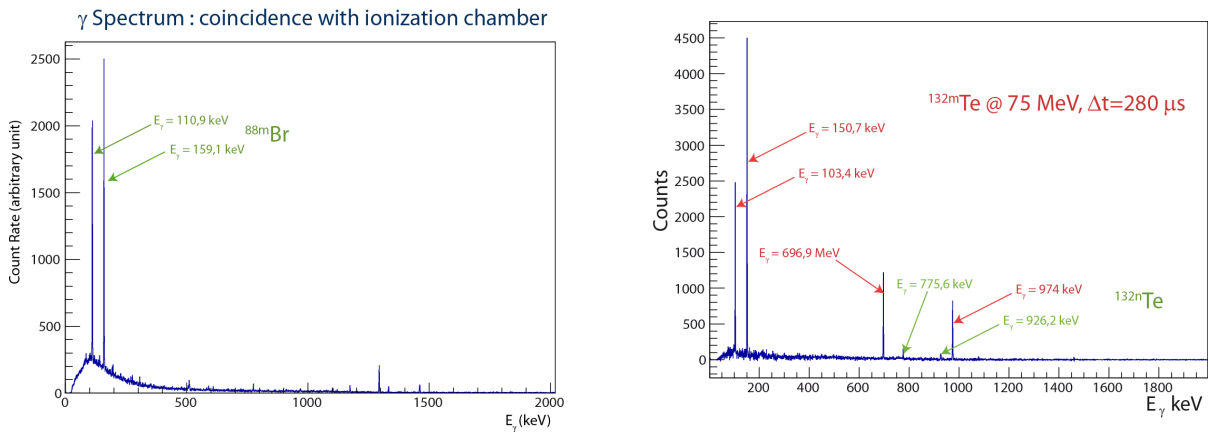


FIGURE 4.6 – Illustration de la coïncidence entre la chambre d’ionisation et les détecteurs  $\gamma$  afin de déterminer le taux de comptage issu de la désexcitation d’un état isomère. À gauche : cas du  $^{88}\text{Br}$  pour lequel la décroissance du noyau père est négligeable ; spectre non soustrait des événements fortuits. À droite : cas du  $^{132}\text{Te}$  pour lequel le spectre est soustrait du spectre “fortuit”.

### Extraction des raies $\gamma$ pour l’état fondamental

Pour détecter la population de l’état fondamental, on utilise le spectre  $\gamma$  sans coïncidence. L’extraction des raies caractéristiques de l’état fondamental est plus difficile à cause du bruit de fond provenant du milieu ambiant mais aussi de la désexcitation des autres isotopes sélectionnés par LOHENGRIN. La figure 4.7 montre un spectre  $\gamma$  obtenu pour la masse 88. On note que de nombreuses raies  $\gamma$  sont présentes. L’incertitude associée à l’extraction de l’état fondamental est bien plus importante que pour l’état isomère ( $\sim 6 - 15 \%$ ).

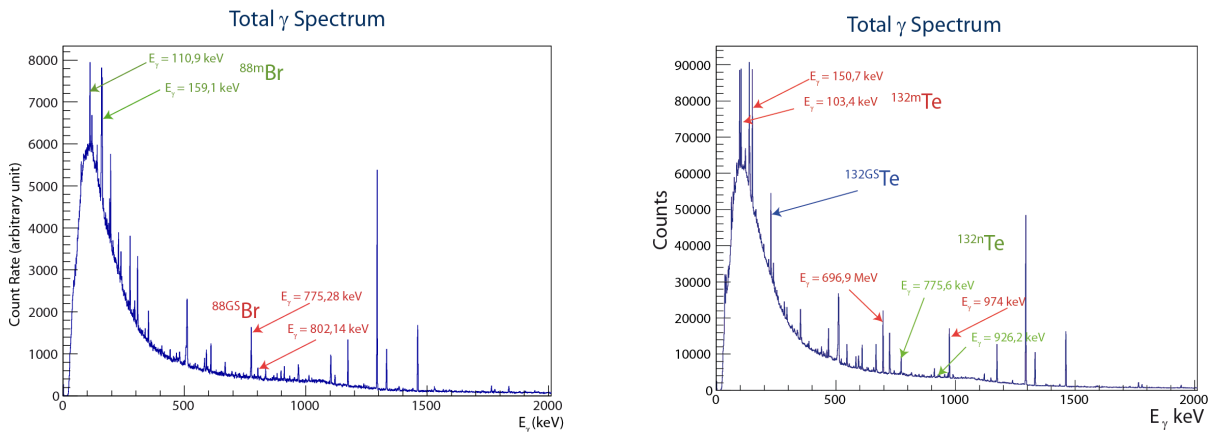


FIGURE 4.7 – Spectre  $\gamma$  sans coïncidence temporelle. On y observe des raies  $\gamma$  provenant de la désexcitation de l’état isomère et de la désintégration de l’état fondamental. De nombreuses raies  $\gamma$  proviennent du bruit de fond ambiant ainsi que des autres isotopes sélectionnés par le spectromètre de masse LOHENGRIN. À gauche : spectre du  $^{88}\text{Br}$ . À droite : spectre du  $^{132}\text{Te}$ .

### Efficacité de détection et effet de somme

L’efficacité des détecteurs  $\gamma$ ,  $\varepsilon_\gamma$  et l’effet de somme  $C_\gamma$  ont déjà été discutés dans le paragraphe 2.4.2. Pour rappel, l’efficacité est déduite d’une simulation MCNP validée sur points



expérimentaux issus d'une source ponctuelle ( $^{60}\text{Co}$ ) et d'une source étendue (faisceau de  $^{134}\text{Te}$ ). La courbe d'efficacité est validée avec une incertitude de 2.5 %. L'effet de somme est calculé à l'aide du logiciel TrueCoinc.

### Données de structure et de décroissance nucléaire

Ces quantités telles que l'intensité  $\gamma$  ou la probabilité de décroissance  $\lambda$  proviennent des bases de données [McCutchan et Sonzogni(2014), Khazov *et al.*(2005)]. De même le branching ratio BR est une donnée qu'on retrouve dans ces bases. Il correspond à la probabilité de décroître par un mode (ici  $\beta$  ou désexcitation interne) par rapport à l'ensemble des modes de décroissance ( $\beta n$  par exemple). Notons que les intensités  $\gamma$  par décroissance sont fournies à un facteur de normalisation,  $I_{norm}$  près. Ainsi lorsqu'on souhaite propager l'incertitude des intensités  $\gamma$  dans notre analyse, il faut veiller à ne pas considérer l'incertitude sur le facteur de normalisation plusieurs fois. Lorsqu'on a plusieurs raies  $\gamma$  pour identifier un état, on va moyenner arithmétiquement chacune des contributions suivant la formule (4.5) :

$$\begin{aligned}\widetilde{N}_{\gamma_i} &= \frac{N_{\gamma_i}}{I_{\gamma_i}^{\text{rel}} \varepsilon_{\gamma_i} C_{\gamma_i}} \\ \left(\frac{\sigma_{\widetilde{N}_{\gamma_i}}}{\widetilde{N}_{\gamma_i}}\right)^2 &= \left(\frac{\sigma_{N_{\gamma_i}}}{N_{\gamma_i}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{I_{\gamma_i}}}{I_{\gamma_i}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{C_{\gamma_i}}}{C_{\gamma_i}}\right)^2 \\ \widetilde{N} &= \frac{\sum \frac{\widetilde{N}_{\gamma_i}}{\text{Var}(\widetilde{N}_{\gamma_i})}}{\sum \frac{1}{\text{Var}(\widetilde{N}_{\gamma_i})} I_{norm}} \\ \text{Var}(\widetilde{N}) &= \frac{1}{I_{norm}^2} \left( \sum \frac{1}{\text{Var}(\widetilde{N}_{\gamma_i})} + \widetilde{N}^2 \text{Var}(I_{norm}) \right)\end{aligned}\quad (4.5)$$

avec  $I_{\gamma} = I_{norm} I_{\gamma}^{\text{rel}}$  où  $I_{norm}$  est le facteur de normalisation. Avec cette écriture on décorrèle les intensités  $\gamma$  et ne compte qu'une fois l'incertitude provenant du facteur de normalisation<sup>2</sup>. Toutes ces données se trouvent dans le tableau 4.2. Le nombre de coups, pour une raie  $\gamma_i$ , est notée  $N_{\gamma_i}$  tandis que  $\widetilde{N}$  correspond à la population totale d'un état (isomère ou fondamental).

### Correction due au parcours de l'isomère dans le spectromètre LOHENGRIN

Une quantité non négligeable d'états isomères se sont désexcités entre l'instant où ils ont été peuplés et celui où ils ont été détectés. Le temps de vol (tof) entre la cible et le système de détection est de l'ordre de 2  $\mu\text{s}$ . Il faut alors résoudre le système (4.6) pour revenir au rapport isomérique induit par la fission :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\tau_m^{\text{Target}}}{dt} = -\lambda_m \tau_m^{\text{Target}} \\ \frac{d\tau_{GS}^{\text{Target}}}{dt} = -\lambda_{GS} \tau_{GS}^{\text{Target}} + BR_m^{\gamma} \lambda_m \tau_m^{\text{Target}} \\ \tau^{\text{Target}}(\text{tof}) = \tau^{\text{Red}} \\ \text{tof} = L \sqrt{\frac{M(A_X)}{2E_K}} \text{ avec } L = 23.15 \text{ m} \end{array} \right. \quad (4.6)$$

où  $\tau^{\text{Target}}$  et  $\tau^{\text{Red}}$  correspondent aux taux de production de l'état (isomère ou fondamental) induit par la fission au niveau de la cible et du système de détection. Le paramètre  $\lambda$  est la probabilité de décroissance. La masse et l'énergie cinétique du noyau étudié sont indiqués par les

2. Notons que la variance noté  $\text{Var}$  n'est que le carré de l'écart-type :  $\text{Var}(X) = \sigma^2(X)$ .

## Chapitre 4. Mesures de rapports isomériques pour l'étude du processus de fission

### 90

facteurs  $M$  et  $E_K$ .  $L$  est la distance entre le système de détection et la cible. Enfin, à cause de la sélection particulière du spectromètre de masse LOHENGRIN,  $BR_m^\gamma$  correspond à la probabilité de décroître de l'état isomère à l'état fondamental uniquement par émission  $\gamma$ . En effet, si l'état isomère se désexcite par conversion interne (émission d'électrons) entre la cible et le système de détection, alors le noyau changerait de charge ionique et donc de direction. Il ne serait ainsi plus sélectionné par LOHENGRIN et donc détecté par la chambre d'ionisation.

On remarque que certains paramètres tels que la période radioactive apparaissent à plusieurs étapes de l'analyse. Il est donc très difficile d'extraire analytiquement l'incertitude associée au rapport isomérique. La solution pour évaluer cette incertitude est d'utiliser un calcul qui s'appuie sur la méthode dite de "Total Monte Carlo".

TABLE 4.2 – *Données nucléaires utilisées pour l'analyse. Les données pour  $^{88}\text{Br}$ ,  $^{132}\text{Sn}$  et  $^{132}\text{Te}$  proviennent des références [McCutchan et Sonzogni(2014)], [Khazov et al.(2005)] et [Khazov et al.(2005)] respectivement.*

$E_\gamma$ (keV)	$I_\gamma$ (relative)	$E_\gamma$ (keV)	$I_\gamma$ (relative)
$^{88\text{m}}\text{Br}$ (5.3(4) $\mu\text{s}$ ) $J^\pi = 4^-, 5^-$		$^{88\text{GS}}\text{Br}$ (16.34(8) s) $J^\pi = 2^-$	
$BR = 0.938(2)$	$BR^\gamma = I_{110.9} \times I_{159.1}$	$BR = 1$	
110.9(5)	62.54(55)	775.28(6)	100(2)
159.1(5)	96.18(12)	802.14(6)	20.84(20)
$I_{\text{norm}} = 1(0)$		$I_{\text{norm}} = 0.625(36)$	
$^{132\text{m}}\text{Sn}$ (2.03(4) $\mu\text{s}$ ) $J^\pi = 8^+$		$^{132\text{GS}}\text{Sn}$ (39.7(8) s) $J^\pi = 0^+$	
132.3(3)	62.657	246.87(5)	86(4)
299.2(3)	96.544	340.53(5)	100(0)
374.3(3)	84.2(24)	899.04(5)	91(5)
$I_{\text{norm}} = 1(0)$		$I_{\text{norm}} = 0.488(12)$	
$^{132\text{n}}\text{Te}$ (3.70(9) $\mu\text{s}$ ) $J^\pi = 10^+$		$^{132\text{m}}\text{Te}$ (28.1(15) $\mu\text{s}$ ) $J^\pi = 7^-$	
775.6(2)	13(3)	103.4(1)	39.68
926.2(1)	13(3)	696.9(1)	99.66
$I_{\text{norm}} = 1(0)$		$I_{\text{norm}} = 1(0)$	

### 4.1.3 Méthode Total Monte Carlo

Le principe est de tirer aléatoirement chacun des paramètres indépendants afin d'obtenir la distribution des résultats de l'analyse<sup>3</sup>. Ainsi pour chaque tirage, on obtient une valeur du rapport isomérique. On répète ces opérations suffisamment de fois afin d'obtenir une valeur convergente (voir figure 4.8). L'ensemble des rapports isomériques ainsi obtenus suit une loi de probabilité appelée fonction de densité de probabilité, *pdf*, du rapport isomérique. Ce concept donne une information complète sur la reproductibilité d'une expérience. Par exemple, dans le cas d'une mesure d'un taux de comptage  $N$ , si l'expérience était faite un grand nombre de fois, alors la variable  $N$  suivrait une loi normale décrite par une valeur moyenne  $\mu$  et un écart-type  $\sigma = \sqrt{\mu}$ . Dans ce cas, la *pdf* est exactement une distribution gaussienne.

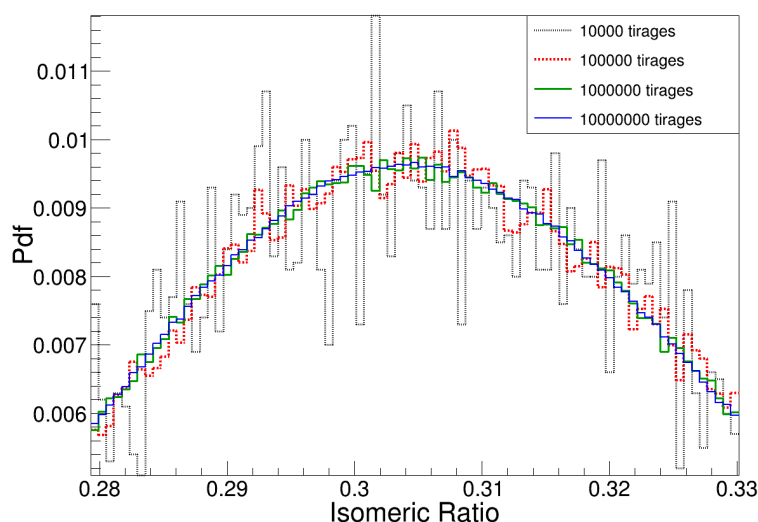


FIGURE 4.8 – Évolution de la précision de la fonction de densité probabilité en fonction du nombre de tirages.

À partir de la *pdf* on peut extraire la valeur moyenne et l'écart-type de la variable aléatoire étudiée (ici le rapport isomérique). Dans notre cas, la plupart du temps la *pdf* a un profil qui est proche d'une distribution gaussienne (voir figure 4.9).

Cependant pour certaines mesures, les taux de comptage des raies  $\gamma$  sont extraits avec des incertitudes très importantes. Lors du tirage de cette variable, sa valeur peut être négative. Pour éviter ces valeurs non physiques, on suppose que la variable est distribuée selon une gaussienne tronquée, i.e on ne considère que les tirages supérieurs à l'unité. La *pdf* associée à ce type de mesure devient alors asymétrique. Ceci permet de mettre en avant l'intérêt d'une méthode Monte Carlo : plus qu'une incertitude, on obtient la densité de probabilité de l'observable. La figure 4.9 présente le résultat de la méthode Monte Carlo (histogramme en noir), le fit gaussien (courbe rouge) et la distribution gaussienne en considérant la moyenne et l'écart type obtenus avec la *pdf* (courbe bleue).

3. On a vu que l'effet de somme,  $C_\gamma$ , était peu sensible à l'efficacité. Néanmoins même s'il paraît évident qu'il est dépendant du schéma de structure nucléaire, et donc des intensités  $\gamma$  associées, on va supposer que  $C_\gamma$  est indépendant au regard des autres paramètres.

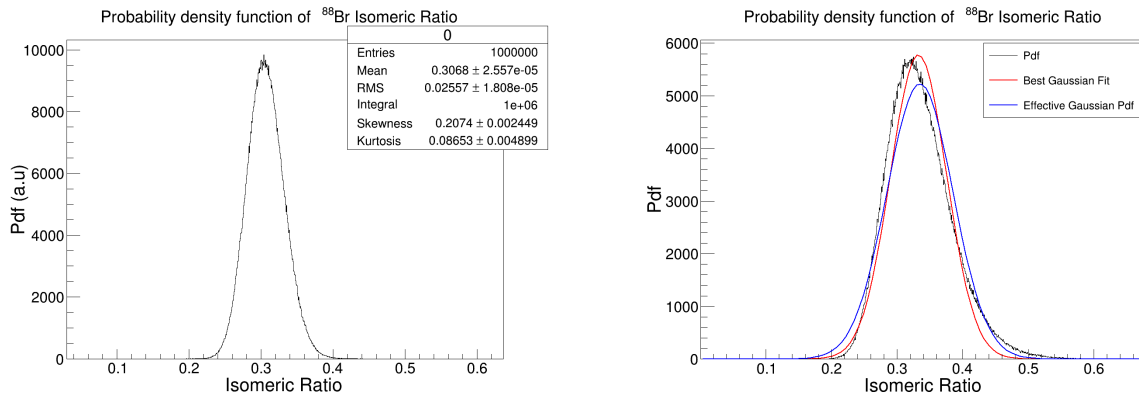


FIGURE 4.9 – Fonction de densité de probabilité pour une mesure du  $^{88}\text{Br}$ . On note qu'elle peut être approximée par une fonction gaussienne, dans la limite où l'erreur statistique vérifie :  $\sigma_{stat} < 10\%$  (à gauche). Lorsque ce n'est pas le cas, et que l'un des paramètres est distribué selon une gaussienne tronquée, la pdf est asymétrique (à droite). Les courbes correspondent au meilleur fit de la pdf, et à la distribution effective utilisée.

### Construction de la matrice de corrélation

Lors d'une expérience, pour une même cible, on mesure une série de rapports isomériques selon l'énergie cinétique sélectionnée par le spectromètre de masse LOHENGRIN, qu'on note  $IR(E_i)$ . On vient de voir que la plupart des corrections proviennent des tables de structure nucléaire qui constituent une partie importante des incertitudes systématiques de la méthode. On peut évaluer à l'aide de notre méthode d'analyse la proportion d'incertitude statistique et systématique. Cependant l'information la plus complète que l'on puisse fournir est la matrice de variances-covariances.

En effet, pour toute une série de mesures, certains paramètres correctifs sont communs (L'efficacité de détection, l'intensité des raies  $\gamma$ , la durée de vie des états isomère et fondamental, ...). La matrice de covariances permet de représenter la part de l'incertitude systématique dans l'analyse. Puisque les paramètres peuvent être considérés indépendants entre eux, la matrice de covariances s'écrit comme le produit des sensibilités ( $S_{ik}$ ) des paramètres correctifs ( $\{a_k\}$ ) à la mesure  $IR(E_i)$  avec les incertitudes sur ces paramètres correctifs :

$$\begin{aligned}
 IR(E_i) &= f(\{a_k\}) \\
 S_{ik} &= \frac{\partial f_i}{\partial a_k} \frac{\overline{a_k}}{f(\{\overline{a_k}\})} \\
 \frac{\text{Cov}(IR(E_i), IR(E_j))}{IR(E_i)IR(E_j)} &= \sum_k S_{ik} S_{jk} \frac{\sigma_{a_k}^2}{\overline{a_k}^2}
 \end{aligned} \tag{4.7}$$

où  $f$  est la fonction qui permet de relier l'ensemble des paramètres  $\{a_k\}$  aux rapports isomériques  $IR(E_i)$  mesuré à l'énergie cinétique  $E_i$ . Les sensibilités  $S_{ik}$ , sont calculées à partir de la méthode Monte Carlo. Pour chaque paramètre (les autres étant fixés) on tire aléatoirement sur une distribution gaussienne. On obtient alors une variation du rapport isomérique en fonction de la valeur du paramètre comme on peut le voir sur la figure 4.10. Pour déterminer la sensibilité  $S_{ik}$ , on extrait la valeur de la pente, autour de la valeur moyenne. En effet la sensibilité est un paramètre local, et n'a donc de sens qu'au voisinage de la valeur moyenne [voir équation (4.7)]. De même sur la figure 4.10 on peut observer la dépendance de la valeur de la sensibilité avec le nombre de points simulés.

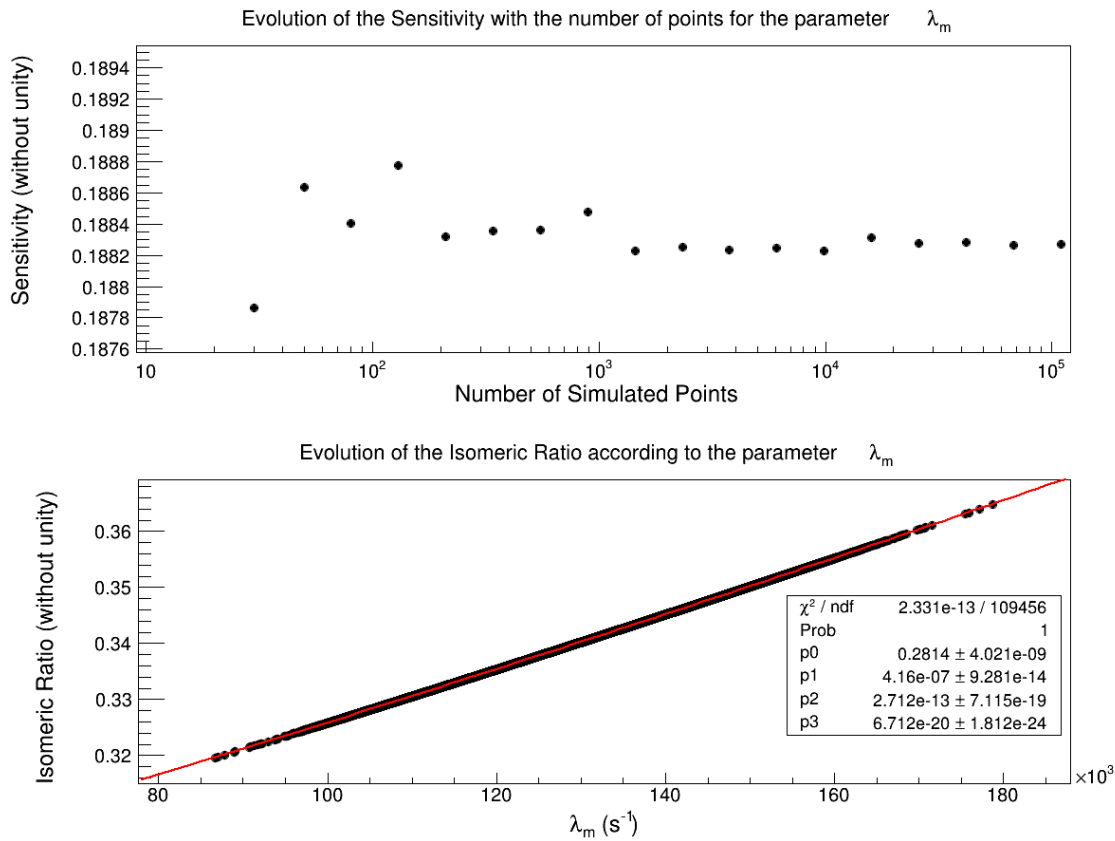


FIGURE 4.10 – Évolution de la sensibilité en fonction du nombre de tirage (haut). Évolution du rapport isomérique en fonction de la constante de désintégration radioactive de l'état isomère du  $^{88}\text{Br}$  (bas).

Finalement, on construit la matrice de corrélation qui correspond à la normalisation de la matrice de covariance. Cette matrice représente le degré d'interdépendance entre toutes les mesures.

$$\text{Cor}(IR(E_i), IR(E_j)) = \frac{\text{Cov}(IR(E_i), IR(E_j))}{\sigma_{IR(E_i)}\sigma_{IR(E_j)}} \quad (4.8)$$

Le tableau 4.3 présente la part de l'incertitude de chacun des paramètres correctifs lors de l'évaluation du rapport isomérique du  $^{88}\text{Br}$  (pour la cible épaisse de  $^{233}\text{U}$ ) pour deux énergies cinétiques différentes. La corrélation entre ces deux mesures y est aussi représentée.

$IR(E_k = 82) = 0.327 \pm 0.007 (stat) \pm 0.021 (syst); \sigma_{tot} = 2.30 (stat) + 6.55 (syst) \%$						
$IR(E_k = 88) = 0.341 \pm 0.008 (stat) \pm 0.022 (syst); \sigma_{tot} = 2.37 (stat) + 6.56 (syst) \%$						
Identification état isomère ( <i>iso</i> ) : $E_{\gamma_1} = 110.9$ keV ; $E_{\gamma_2} = 159.1$ keV						
Identification état fondamental ( <i>gs</i> ) : $E_{\gamma_3} = 775.28$ keV ; $E_{\gamma_4} = 802.14$ keV						
Paramètre	$\bar{\theta}$	$\sigma_{\theta}$ (%)	$S_1$	$\sigma_1^{syst}$ (%)	$S_2$	$\sigma_2^{syst}$ (%)
$I_{\gamma_1}^{rel}$	0.6254	0.88	-0.420	0.37	-0.436	0.40
$I_{\gamma_2}^{rel}$	0.9618	0.12	-0.475	0.06	-0.459	0.06
$I_{\gamma_3}^{rel}$	1	2.00	0.747	1.49	0.776	1.62
$I_{\gamma_4}^{rel}$	0.2084	0.96	0.227	0.22	0.197	0.20
$\varepsilon_{\gamma_1}$	0.014955	2.5	-0.465	1.16	-0.487	1.27
$\varepsilon_{\gamma_2}$	0.012754	2.5	-0.508	1.27	-0.484	1.26
$\varepsilon_{\gamma_3}$	0.003421	2.5	0.748	1.87	0.775	2.02
$\varepsilon_{\gamma_4}$	0.003149	2.5	0.227	0.57	0.197	0.51
$I_{norm}^{gs}$	0.625	5.76	0.974	5.61	0.974	5.84
$BR^{gs}$	0.93826	0.17	0.974	0.16	0.973	0.17
$\lambda^{iso} (s^{-1})$	130782	7.55	7.55	1.48	0.188	1.48
$\lambda^{gs} (s^{-1})$	0.0425505	0.37	0.013	0	0.013	0
Distance cible-détecteurs (m)	23.15	0.43	0.196	0.08	0.188	0.08
$Cor(IR(E_k = 82), IR(E_k = 88)) = 0.886$						

TABLE 4.3 – Impact de paramètres correctifs sur l'incertitude systématique du rapport isomérique du  $^{88}\text{Br}$  mesurée à  $E_k = 82$  MeV et  $E_k = 88$  MeV lors de la campagne de 2012 (cible épaisse de  $^{233}\text{U}$ ). La valeur de la corrélation, provenant de l'utilisation de facteurs communs, est indiquée. Le paramètre  $I_{\gamma}^{rel}$  correspond à l'intensité relative d'une raie  $\gamma$ . Le facteur  $I_{norm}$  permet de normaliser l'intensité  $\gamma$ . L'efficacité de détection est notée  $\varepsilon_{\gamma}$ . Le rapport de branchement et la probabilité de décroissance correspondent respectivement aux paramètres  $BR$  et  $\lambda$ .  $S_1$  est associée à la sensibilité calculée pour la mesure à  $E_k = 82$  MeV et  $S_2$  à celle pour  $E_k = 88$  MeV. Enfin  $\sigma^{syst}$  est la part de l'incertitude d'un paramètre sur l'incertitude systématique totale.

#### 4.1.4 Limite de la méthode auprès du spectromètre LOHENGRIN

La technique de mesure du rapport isomérique dans la gamme de quelques  $\mu s$  permet d'obtenir des résultats très précis. Néanmoins l'utilisation d'une circulation de gaz à l'intérieur de la chambre d'ionisation implique une perte d'ions qui ne vont pas s'implanter dans la feuille d'arrêt. Le schéma 4.11 permet de visualiser l'évolution de la population d'un état (fondamental ou isomère) d'un noyau. Expérimentalement, on a accès à l'intégrale de la courbe "Total". Or la quantité qui nous intéresse est le taux de production induit par la fission, qui dépend notamment de la charge ionique et de l'énergie cinétique du noyau étudié. Cette quantité est directement liée à l'intégrale sous les courbes de couleurs. Lorsqu'un noyau a une durée de vie assez longue par rapport au temps de mesure, les différents points expérimentaux sont corrélés.

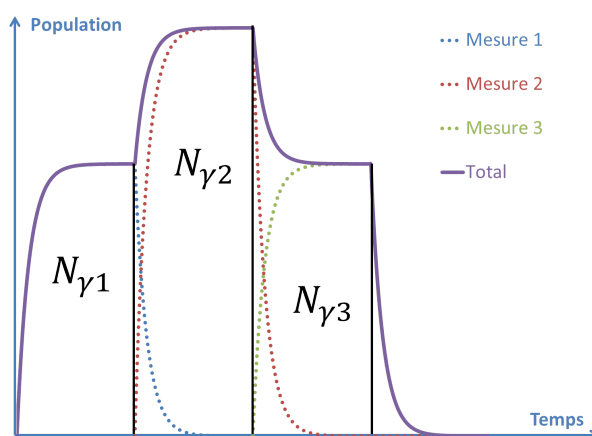


FIGURE 4.11 – Évolution de la population d'un noyau en fonction du temps. Chaque mesure est effectuée à une énergie cinétique et/ou charge ionique différente. Lorsque la durée de vie du noyau est trop longue, les mesures successives sont contaminées.

La figure 4.12 présente l'évolution du taux de fission en fonction du temps pour l'état fondamental du  $^{132}\text{Te}$  dont la période est de  $T_{1/2} = 3.2$  jours. Chaque mesure a lieu immédiatement après la précédente. On remarque alors que le taux de production est négatif lors de la seconde mesure après correction de la contamination de la première mesure. Cela signifie que le taux de comptage est inférieur à ce qui est attendu si le  $^{132}\text{Te}$  étant encore présent dans la chambre d'ionisation. On remarque qu'il faut alors prendre une période radioactive effective de l'ordre de 200 min pour observer un taux de fission positif :  $\lambda_{eff} = \lambda_{nucl} + \lambda_{gaz}$ . L'interprétation de ce résultat indique qu'une partie non négligeable des produits de fission s'échappe de la chambre d'ionisation. La conclusion de cette étude est que tous les états dont la durée de vie est inférieure à quelques minutes sont peu sensibles à cette perte. C'est la raison pour laquelle dans ce travail, nous exprimons le rapport isomérique du  $^{132}\text{Te}$  comme le rapport isomérique de ses deux états isomères.

#### 4.1.5 Perspectives pour ce type de mesures

Afin d'améliorer la prise de données et explorer des noyaux dont l'état fondamental a une durée de vie assez longue, une nouvelle chambre d'ionisation a été développée (voir figure 4.13). Pour éviter la perte d'ions cette chambre fonctionnera sans circulation durant la mesure mais

sous faible pression afin d'implanter les ions sur une bande magnétique ou une feuille amovible. Cette chambre permettra aussi d'améliorer le pilotage du GFM car elle présente à la fois une haute résolution et permet aux rayonnements  $\gamma$  d'être détectés grâce à la présence d'une paroi mince ( $\sim 1$  mm) dans la partie supérieure.

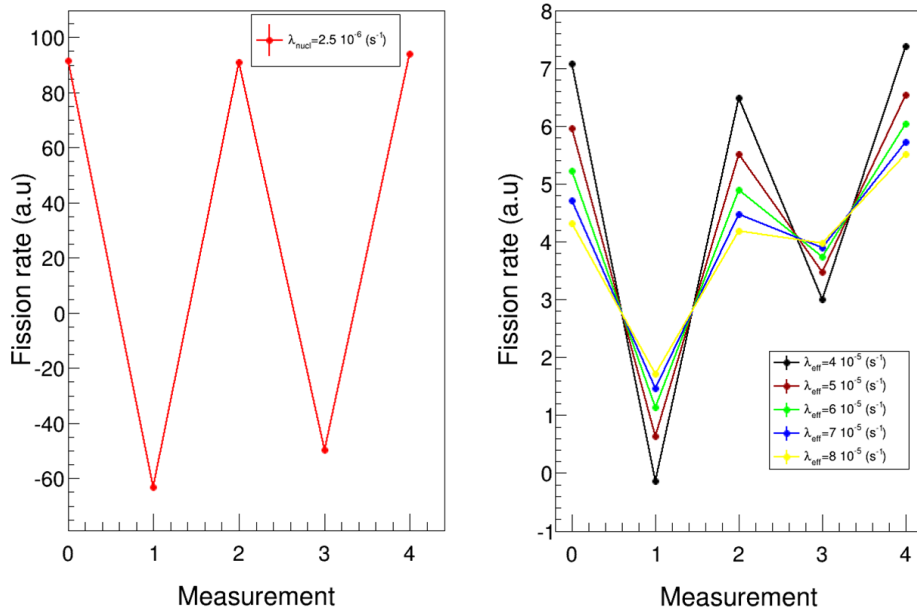


FIGURE 4.12 – Évolution du taux de fission de l'état fondamental du  $^{132}\text{Te}$  en fonction du temps : les corrections successives des données aboutit a des résultats négatifs, ce qui est naturellement impossible (gauche). Chaque mesure a lieu immédiatement après la précédente. La figure de droite représente le cas où l'on utilise une probabilité de décroissance effective.

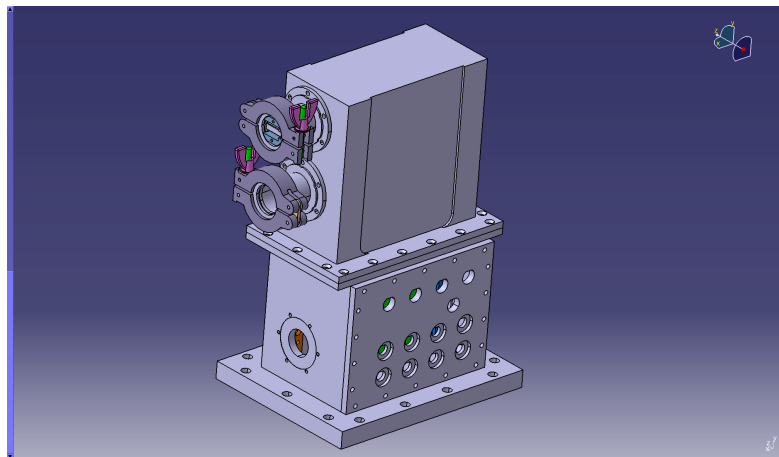


FIGURE 4.13 – Schéma de la nouvelle chambre d'ionisation. Deux positions sont disponibles afin d'implanter les ions sur une bande mobile ou statique. Cette chambre servira aussi au pilotage du GFM.



### 4.1.6 Résultats expérimentaux

Pour chaque noyau étudié, un rapport isomérique en fonction de l'énergie cinétique a été mesuré. La figure 4.14 représente les résultats obtenus pour le  $^{88}\text{Br}$  pour chaque campagne (voir le tableau 4.1 pour obtenir les caractéristiques de chaque campagne). On remarque que le rapport isomérique, pour une cible épaisse de  $^{233}\text{U}$ , n'évolue pas avec l'énergie cinétique. Au contraire une structure est présente pour les deux dernières expériences effectuées avec des cibles fines. Cet effet est encore plus important sur le  $^{132}\text{Te}$  comme on peut le voir sur la figure 4.15. L'épaisseur de la cible permet d'expliquer cette observation. En effet, si la cible est trop épaisse, le rapport isomérique mesuré correspond à la moyenne des rapports isomériques induits par le processus de fission. À l'opposé si la cible est suffisamment fine, l'énergie sélectionnée par le spectromètre LOHENGRIN est très proche de celle induite par la fission. Dans ce cas l'information provenant du processus de fission est mieux retranscrite par le rapport isomérique.

Expérimentalement l'impact de l'épaisseur de la cible se voit à travers la distribution en énergie cinétique d'une masse. Sur la figure 4.15 on note que pour la cible épaisse (courbe orange) la distribution est centrée autour de 60 MeV avec une largeur à mi hauteur de 20 MeV, alors que pour la cible fine (courbe violette), cette même distribution est centrée autour de 80 MeV avec une largeur à mi hauteur de 10 MeV. Cet effet avait déjà été observé par Denschlag *et al.* [Denschlag *et al.*(1980)].

L'extraction du rapport isomérique du  $^{132}\text{Sn}$  en fonction de l'énergie cinétique n'a pu être effectuée que lors d'une seule expérience (voir figure 4.16). En effet, l'expérience avec la cible épaisse de  $^{233}\text{U}$  ne permet pas d'extraire l'état fondamental du  $^{132}\text{Sn}$ .

La discussion de ces résultats est proposée dans la dernière partie de ce chapitre 4.4, avec l'extraction de ces mesures du moment angulaire induit par la fission.

Enfin, la matrice de corrélation qui permet d'estimer la part de l'incertitude systématique sur l'incertitude totale a été calculée pour chaque campagne expérimentale. On remarque alors que hormis la série de mesure du rapport isomérique du  $^{88}\text{Br}$  avec une cible fine de  $^{235}\text{U}$  et celle du  $^{132}\text{Sn}$ , une part très importante ( $> 80\%$   $\equiv$  zones rouges) de l'incertitude provient des systématiques. Afin d'améliorer la précision des données, il est nécessaire d'améliorer la connaissance des schémas de structures nucléaires qui est la première source d'incertitudes systématiques (voir tableau 4.3).

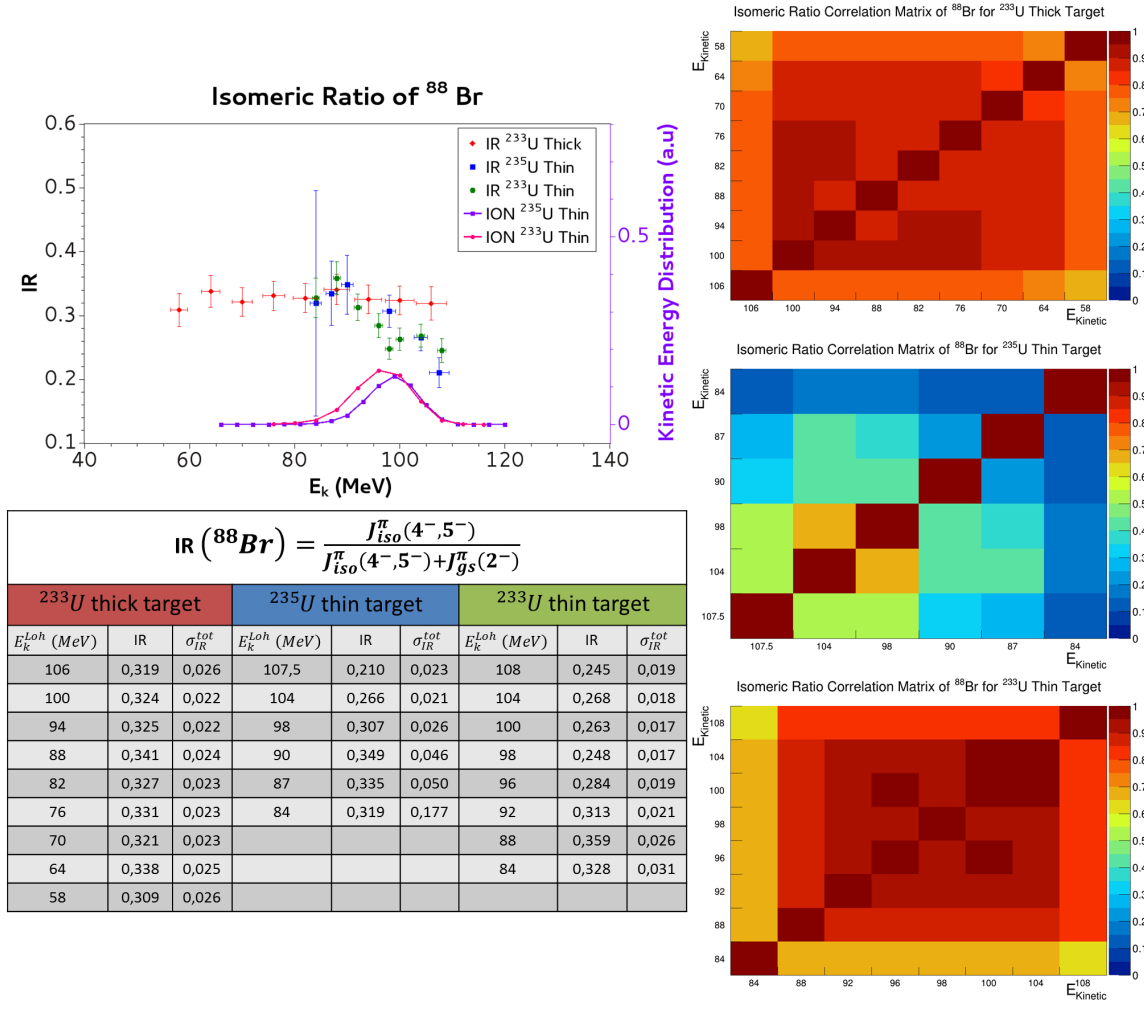


FIGURE 4.14 – Pour une cible mince (points bleus et vert) une dépendance des rapports isomériques du  $^{88}\text{Br}$  avec l'énergie cinétique est observée. Aucune structure n'est visible lorsque la cible est épaisse (points rouges). Les courbes (rose et bleue) correspondent à la distribution en énergie cinétique mesurée pour la masse  $A = 88$  à l'aide de la chambre d'ionisation respectivement pour la cible fine de  $^{233}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$ . Pour chaque campagne expérimentale une matrice de covariance est construite.

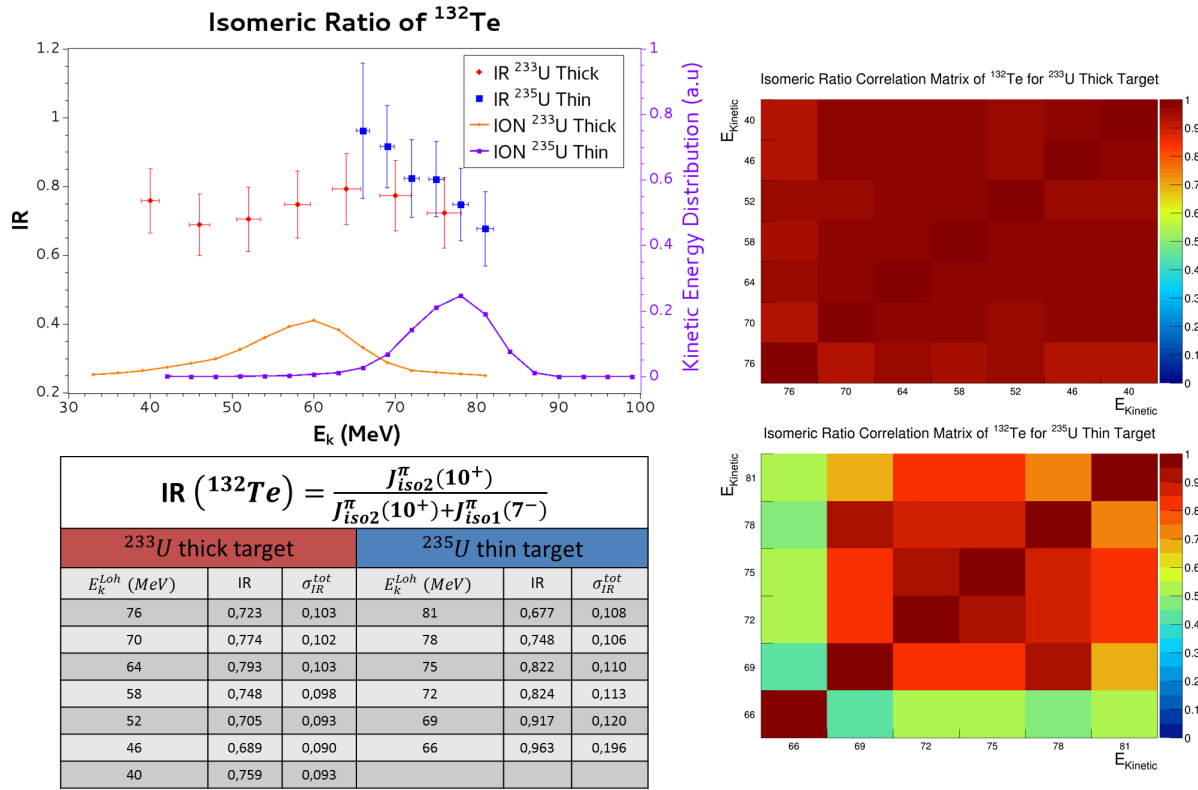


FIGURE 4.15 – Pour une cible mince (points bleus) une dépendance des rapports isomériques du  $^{132}\text{Te}$  avec l'énergie cinétique est observée. Aucune structure n'est visible lorsque la cible est épaisse (points rouges). L'impact de l'épaisseur de la cible se traduit par un élargissement et un décalage au niveau de la distribution de l'énergie cinétique mesurée à l'aide de la chambre d'ionisation. Pour chaque campagne expérimentale une matrice de covariance est construite.

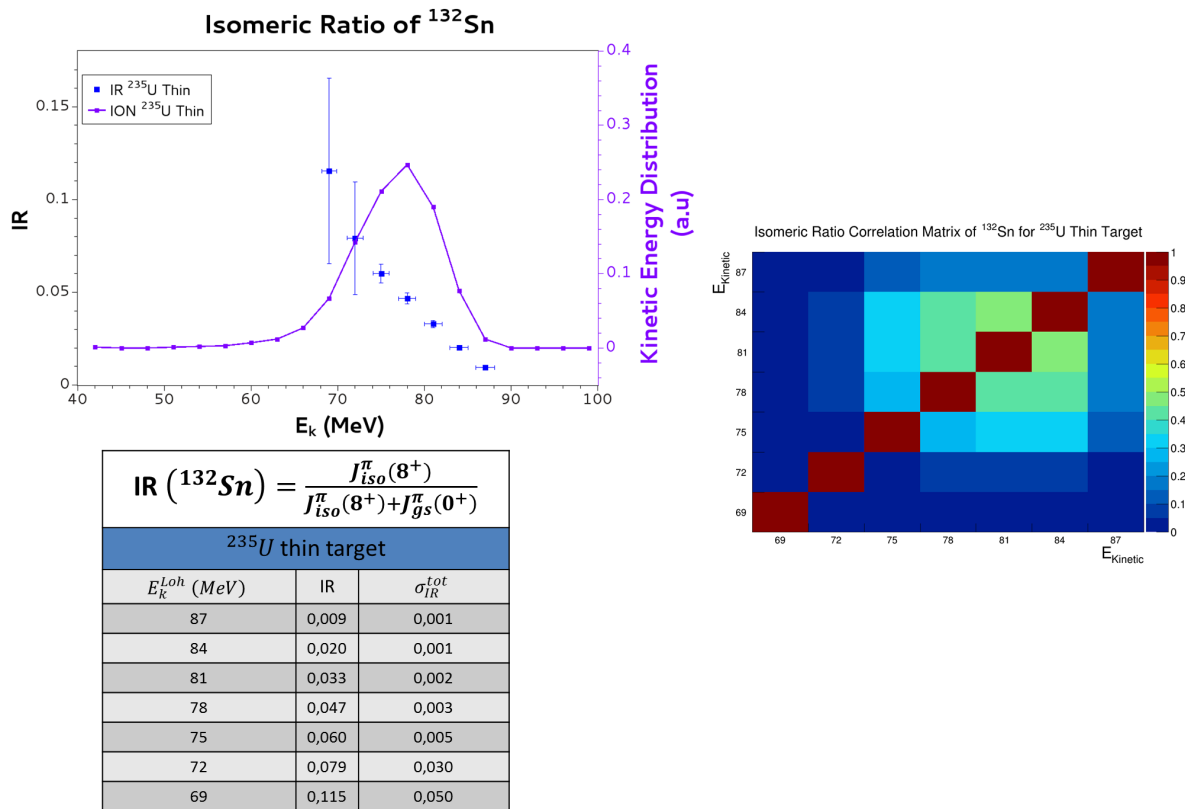


FIGURE 4.16 – Évolution du rapport isomérique en fonction de l'énergie cinétique sélectionnée par LOHENGRIN pour le  $^{132}\text{Sn}$ .

## 4.2 Rapports isomériques de la milliseconde à la minute

Ce type d'isomère, appelé aussi état métastable, a largement été étudié en radiochimie [Naik *et al.*(2005)], ou auprès des séparateurs de masse. La grande majorité de ces états se désexcite par désintégration  $\beta$ . Les mesures nécessitent d'avoir une transition  $\gamma$  identifiant parfaitement l'état isomère. Cependant, cette signature  $\gamma$  est pour certains isomères polluée par l'état fondamental, ou la présence d'état isomère dans le noyau fils. La méconnaissance des rapports d'embranchement rend très difficile l'extraction d'un taux de production induit par la fission nucléaire. Pour lever ce problème, nous avons développé sur le spectromètre LOHENGRIN, une méthode permettant d'exploiter l'évolution de population des différents états et d'en extraire leur taux de production. Pour cela un dispositif de "beam chopping" est implanté dans l'aimant RED, qui permet de laisser passer ("open") et d'arrêter ("close") le faisceau incident à l'aide d'un champ électrique. Celle-ci requiert un contrôle simultané de l'instrument et de l'acquisition, chose que NOMAD (voir la partie 2.5 du chapitre 2) est désormais à même de réaliser. Au cours de cette partie, nous présenterons la méthode classique pour extraire un rapport isomérique (pour des états dont la durée de vie est de quelques millisecondes à quelques minutes) ainsi que la nouvelle méthode mise en place. Une comparaison entre les deux permettra de valider cette nouvelle approche.

### 4.2.1 Dispositif expérimental

Usuellement pour mesurer le nombre de noyaux d'un isotope, l'ion est implanté sur une bande passante pour réaliser sa spectrométrie  $\gamma$ . Lorsque la raie  $\gamma$  d'intérêt est alimentée par différents états, il est très difficile de remonter au taux de fission de l'isotope. L'idée ici est de multiplier les mesures afin de distinguer les différentes alimentations. Dans un premier temps, on implante le faisceau sur la bande passante. Cette mesure, appelée "open" reflète l'alimentation totale d'une transition  $\gamma$ . Dans un second temps, on arrête le faisceau pour mesurer la décroissance des états. Pour couper le faisceau, on polarise deux plaques électriques ( $\pm 10$  kV) présentes à l'intérieur de l'aimant de refocalisation RED. Les ions incidents vont alors être déviés par le champ électrique ainsi généré. Lorsque la durée de vie des états est très différente, alors la mesure permet de déterminer l'alimentation d'un seul état. On nomme cette mesure "close". La bande est ensuite déplacée afin de réduire le bruit de fond qui provient de la décroissance d'états de plus longue durée de vie. Ce cycle de prise de données est renouvelé autant de fois que nécessaire pour obtenir une statistique suffisante. La figure 4.17 illustre le principe de cette mesure ainsi que le dispositif utilisé.

### 4.2.2 Méthode d'analyse

Dans cette partie, nous allons présenter la méthode d'analyse classique ainsi que celle utilisant l'interruption de faisceau dans le cas de la masse 136 dont on souhaite extraire le rapport isomérique de  $^{136}\text{I}$ . Ce noyau est choisi car il est possible de réaliser les deux analyses pour vérifier les éventuels biais dans la méthode.

#### Description du schéma de désintégration de la masse 136

La figure 4.18 illustre les différentes raies  $\gamma$  permettant d'identifier les différents états présents dans cette chaîne isobarique. Dans cette figure l'état isomère du  $^{136}\text{I}$  est caractérisé par les transitions  $\gamma$  bleues. De même l'état fondamental du  $^{136}\text{I}$  est identifié par les raies  $\gamma$  vertes.

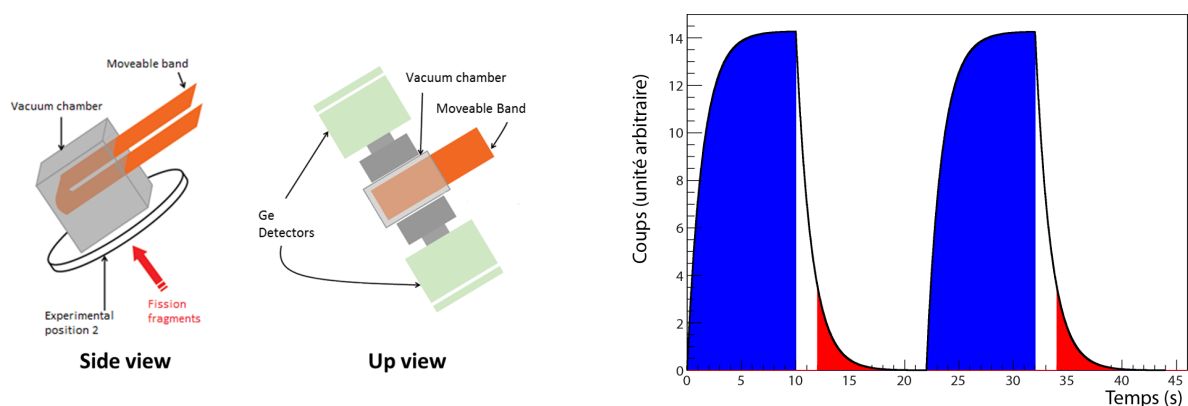


FIGURE 4.17 – À gauche présentation du dispositif expérimental. L'ion incident s'implante sur une bande magnétique mobile. Autour deux clovers de germanium permettent d'obtenir un spectre  $\gamma$ . À droite, schéma de la méthode dite du "beamcut", qui permet d'extraire d'une raie contaminée l'alimentation de différents états. La zone bleue correspond à l'implantation du faisceau (phase "open") tandis que la zone rouge est la mesure lorsque le faisceau est arrêté (phase "close").

Les raies  $\gamma$  qui sont entourées représentent les transitions communes aux états de  $^{136}\text{I}$  et à l'état isomère du  $^{136}\text{Xe}$ . Le tableau 4.4 synthétise les différentes raies utilisées pour identifier la population des états de  $^{136}\text{I}$ . Lorsque les transitions sont "indépendantes", cela signifie qu'on peut appliquer la méthode classique afin de remonter au taux de production. Au contraire si les raies sont communes, la méthode du beamcut permettra de lever la contribution non souhaitée et de déterminer le taux de production des états de  $^{136}\text{I}$ .

TABLE 4.4 – Transitions  $\gamma$  utilisées lors de l'analyse classique, et celles reposant sur la méthode du "beamcut".

Isotope	Transitions $\gamma$ indépendantes (méthode classique)	Transitions $\gamma$ communes (méthode du "beamcut")
$^{136m}\text{I}$	369.8, 750.0 keV	197.3, 381.4, 1313.0 keV
$^{136}\text{I}$	1321.08, 2289.6, 2414.6, 2634.2 keV	1313.0 keV
$^{136m}\text{Xe}$	$\emptyset$	197.3, 381.4, 1313.0 keV

### Méthode classique

Comme décrit ci-dessus, pour cette méthode on n'utilise que la phase d'implantation des ions sur la bande magnétique, ou phase "open". Pour remonter aux taux de production des états isomère et fondamental de l' $^{136}\text{I}$ , on utilise les raies  $\gamma$  indépendantes qui permettent d'identifier chacun des états. Ensuite on applique les différents facteurs de correction qui ont été décrits dans la partie précédente (sur les états microsecondes). Des taux de comptage extraits des différents spectres  $\gamma$ , on doit corriger de l'intensité des transitions  $I_\gamma$ , de l'effet de somme  $C_\gamma$ , de l'efficacité de détection  $\varepsilon_\gamma$  et d'utiliser les équations de Bateman afin de remonter au taux de fission des différents états.

Concernant cette dernière correction, d'après la figure 4.18, seul l'état fondamental est alimenté par la décroissance  $\beta$  du  $^{136}\text{Te}$ . Il s'est avéré que si on utilise les transitions  $\gamma$  suivantes,

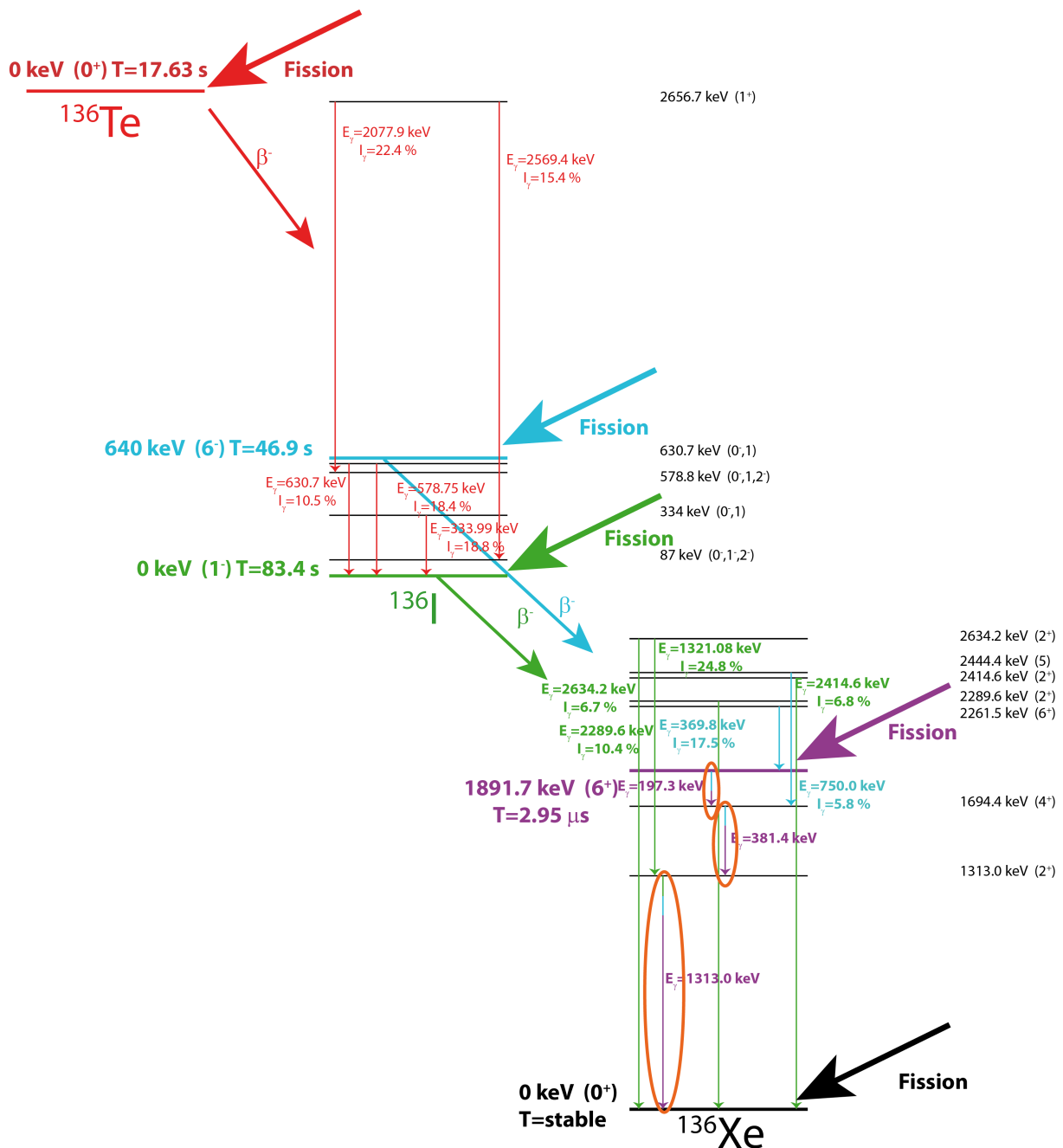


FIGURE 4.18 – Schéma simplifié de la chaîne radioactive  $A = 136$ . Les différentes raies  $\gamma$  utilisées lors de l'analyse sont présentées.

$E_\gamma = 333.99, 578.75, 630.70$  keV, pour déterminer le taux de production du  $^{136}\text{Te}$ , celui du  $^{136}\text{I}$  devenait négatif! Ces raies conduisent alors à des résultats non physiques. Par contre, lorsqu'on utilise les raies  $\gamma$   $E_\gamma = 2077.9$  et  $2569.4$  keV, alors le taux de production de l'état fondamental du  $^{136}\text{I}$  est positif. La figure 4.19 présente la différence du taux de comptage (corrigé de l'intensité  $\gamma$  et de l'efficacité de détection) des différentes transitions en fonction de la charge ionique. Ce ré-

sultat va à l'encontre des interprétations communes sur l'effet Pandemonium<sup>4</sup>. En effet, celui-ci indique que les raies à hautes énergies sont biaisées par la mauvaise évaluation de l'efficacité de détection des détecteurs  $\gamma$ . Ceci est sans doute correct, lorsqu'on utilise un fit pour extrapoler l'efficacité  $\gamma$ . Ici, on utilise un code Monte Carlo (MCNP) qui repose sur la modélisation des phénomènes physiques ayant lieu entre le rayonnement  $\gamma$  et le détecteur et permet de réduire les biais sur l'évaluation de l'efficacité. Enfin expérimentalement, l'analyse des spectres  $\gamma$  à haute énergie est beaucoup plus facile car ils sont très peu pollués.

### Méthode "beamcut"

Pour la méthode du "beamcut", afin de caractériser l'état isomère du  $^{136}\text{I}$ , on utilise uniquement les raies contaminées  $E_\gamma = 197.3$  et  $381.4$  keV. En effet la transition à  $1313.0$  keV est alimentée par trois états différents. Avec uniquement deux mesures ("open" et "close"), il est très compliqué de découpler leurs alimentations respectives. Lors de la mesure "open", le taux de comptage extrait de ces deux transitions dépend du taux de production de l'état isomère du  $^{136}\text{I}$  et du  $^{136}\text{Xe}$ . Par contre la mesure "close" ne dépend que du taux de production de l'état isomère du  $^{136}\text{I}$ . Ainsi il est possible d'extraire ce taux de production uniquement en exploitant les données de la phase "close".<sup>5</sup>

Pour évaluer le rapport isomérique, qui correspond au quotient du taux de production de l'état isomère sur la somme du taux de production des états isomère et fondamental, on utilise la méthode "Total Monte Carlo" décrite précédemment (voir partie 4.1.3).

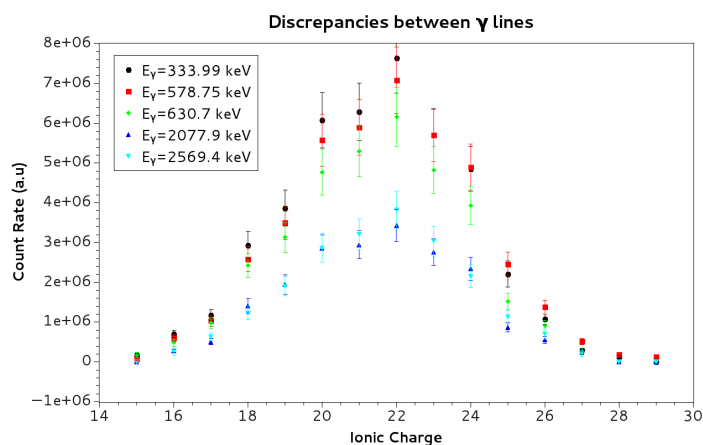


FIGURE 4.19 – Comparaison des taux de comptages, corrigés par l'efficacité de détection et l'intensité  $\gamma$  en fonction de la charge ionique, pour le  $^{136}\text{Te}$ . On remarque deux groupes (basse et haute énergie) incompatibles entre eux.

4. Correspond à une sous-évaluation des rapports de branchement de la décroissance  $\beta$ .

5. Par suite, on peut déterminer le taux de production de l'état isomère du  $^{136}\text{Xe}$  en utilisant les données de la phase "open"



### 4.2.3 Limite de la méthode

La limite de cette méthode correspond à la durée de vie des états. En effet, les ions ne s'implantant pas exactement sur la bande magnétique, une part non négligeable se trouve sur le cadre autour de la bande. Plus de détails sont disponibles dans la thèse de F. Martin [Martin(2013)]. De plus, dès l'instant où l'on utilise une identification par rayonnement  $\gamma$ , on est alors dépendant du schéma de structure nucléaire. Concernant le "beamcut", cette méthode est robuste dès lors que les taux de comptage de la phase "close" sortent du bruit de fond du spectromètre LOHENGRIN. Enfin si une raie  $\gamma$  est polluée par plus de deux états, il devient alors très difficile de les distinguer avec uniquement deux mesures différentes. C'est pourquoi pour certaines masses, on effectue jusqu'à trois mesures. Au-delà le temps de mesure et d'analyse est très contraignant.

### 4.2.4 Résultats

Pour tester la méthode, nous avons réalisé les mesures "beamcut" pour toute la distribution en charge ionique de la chaîne isobarique. En effet l'objectif de cette méthode est d'élargir les méthodes de mesures de rendements isotopiques ( $Y(A, Z)$ ) par spectrométrie  $\gamma$  aux mesures de rapports isomériques ( $IR$ ). Dès lors en une campagne de données, il est possible d'extraire l'observable  $Y(A, Z, IR)$ .

La figure 4.20 présente les rapports isomériques du  $^{136}\text{I}$  obtenus en utilisant la méthode classique (points noirs) et la méthode du "beamcut" (point rouges). On rappelle que les deux analyses (classiques et "beamcut") utilisent des raies différentes. La combinaison des deux analyses permet de réduire l'incertitude (points bleus). La matrice de variances-covariances a aussi été déterminée et utilisée afin d'estimer l'incertitude sur la valeur moyenne. Les deux méthodes sont compatibles. Ceci permet de valider la méthode du "beamcut". Par conséquent le rapport isomérique final combine les deux méthodes. Finalement on remarque une légère dépendance en fonction de la charge ionique du rapport isomérique. Ceci n'est pas surprenant car la charge ionique est corrélée à l'énergie cinétique. Ceci a été présenté en détail dans la thèse de F. Martin [Martin(2013)] et sera rediscuté dans le chapitre 5.

Finalement, la figure 4.21 présente notre mesure moyennée sur toute la distribution ionique, par rapport aux autres mesures existantes de ce rapport isomérique. On remarque alors qu'on est en très bon accord avec ces différentes mesures qui ont été effectuées avec des installations et des détecteurs différents. Ceci permet de valider la technique de mesure mise en place auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN. L'interprétation de ces résultats sera effectuée dans la dernière partie de ce chapitre.

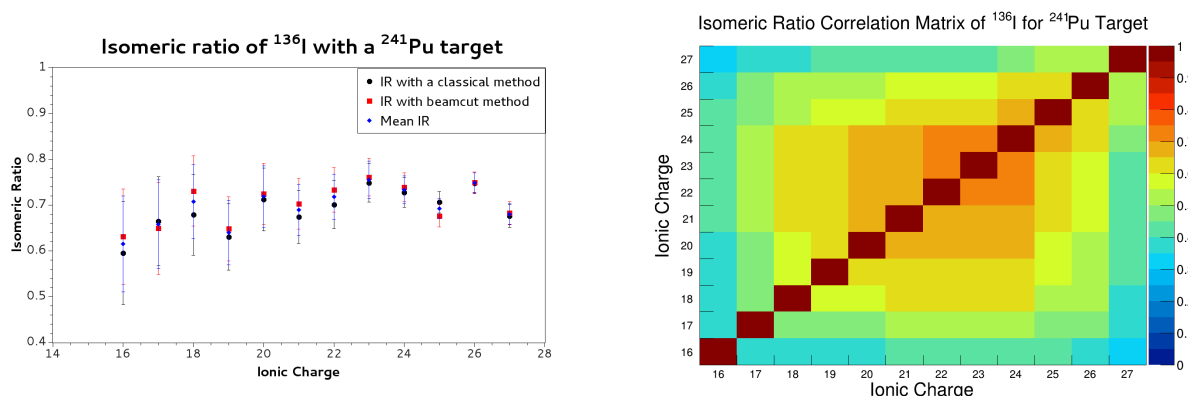


FIGURE 4.20 – Rapport isomérique du  $^{136}\text{I}$  en fonction de la charge ionique. Une comparaison entre la méthode du beamcut et l'extraction classique des taux de fission permet de valider la première approche (à gauche). La matrice de variances-covariances, correspondant à la prise en compte des deux méthodes, a été calculée (à droite).

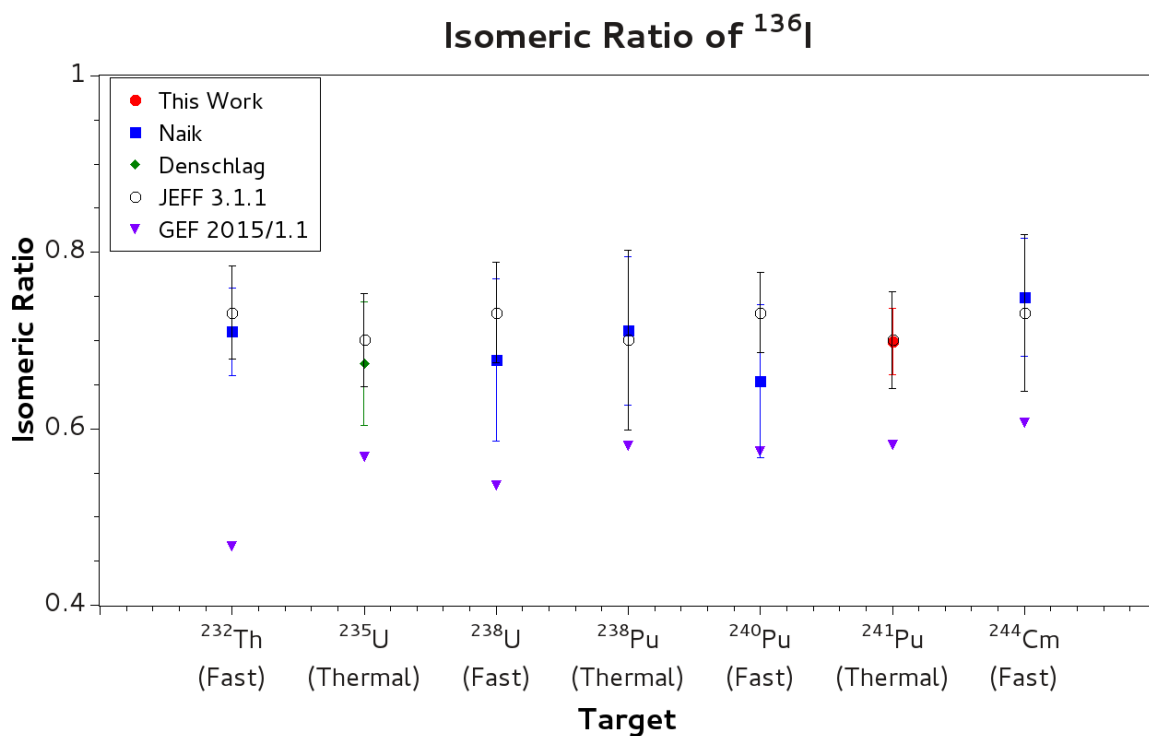


FIGURE 4.21 – Comparaison du rapport isomérique moyen mesuré avec d'autres mesures effectuées avec des techniques différentes ainsi qu'avec la bibliothèque de données JEFF et avec un calcul GEF [Schmidt et al.(2014)].

### 4.3 Étude des états isomères à l'échelle de la nanoseconde

La dernière méthode mise en place permet, à ce jour, de mettre en avant la présence d'états isomériques dont la durée de vie est de l'ordre de quelques nanosecondes. Il est prématuré d'affirmer qu'un rapport isomérique puisse en être déduit. Néanmoins une nouvelle observable peut être construite et servir de test pour différents modèles. En outre, les outils statistiques mis au point ont permis de signer avec une grande certitude l'influence de ces isomères sur la distribution en charge ionique des nucléides mesurés.

#### 4.3.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est identique à celui utilisé pour le beamcut. Après sélection par le spectromètre LOHENGRIN (et passage par le RED), les fragments de fission vont terminer leur parcours sur une bande magnétique. Des détecteurs  $\gamma$  disposés autour de cette bande vont permettre l'obtention de spectres  $\gamma$  à partir desquels on va pouvoir déduire l'activité des différents isobares de la masse sélectionnée. Pour chaque charge ionique (mais à énergie cinétique constante), la bande est déplacée afin d'implanter les nouveaux ions sur une bande "propre". Ainsi on réduit le bruit de fond issu de la mesure précédente.

Des corrections sont nécessaires afin de remonter aux taux de production de chaque isotope issu du processus de fission nucléaire. Il faut prendre en compte les différentes données de structure nucléaire, l'efficacité des détecteurs ainsi que la résolution des équations de Bateman. A la suite de ces opérations on obtient les distributions en charge ionique pour le  $^{138}\text{Xe}$  et  $^{140}\text{Cs}$  par exemple (voir figure 4.22 et 4.23). On remarque que dans le cas du  $^{140}\text{Cs}$  la distribution n'est absolument pas gaussienne. Or la charge ionique provient des multiples collisions du fragment de fission avec les électrons de la cible ainsi que ceux de la feuille, placée juste devant, qui a pour objectif de réduire le self-sputtering [Köster *et al.*(2010)]. On a vu dans le chapitre précédent que cette distribution doit suivre une loi normale [Betz(1972)]; ce qui est le cas pour la plupart des nucléides tels que le  $^{138}\text{Xe}$  par exemple. Cela implique qu'un autre effet doit être présent pour rendre asymétrique la distribution en charge ionique.

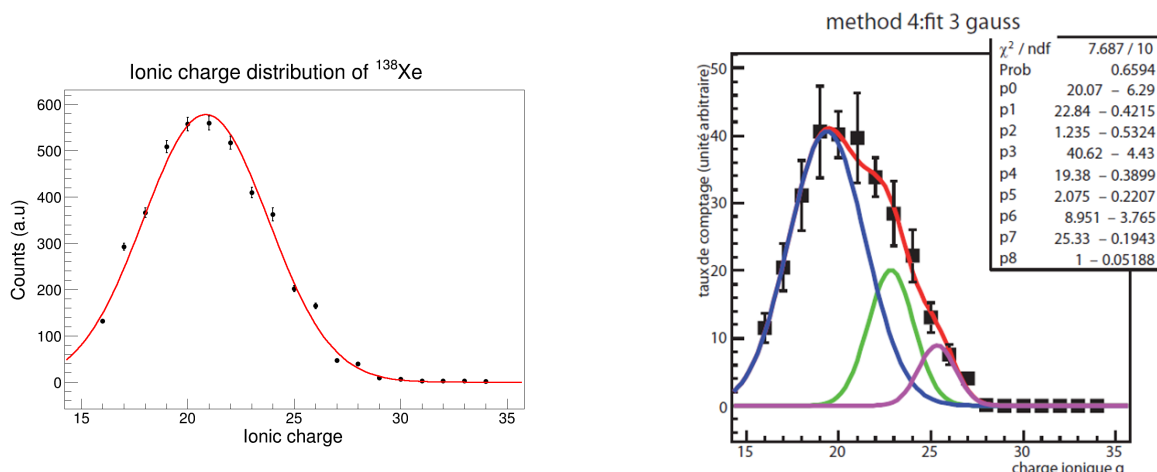


FIGURE 4.22 – À gauche, distribution en charge ionique pour le  $^{138}\text{Xe}$  qui ne présente pas d'états nanosecondes isomères. La distribution suit une loi normale. À droite la distribution en charge ionique pour le  $^{140}\text{Cs}$  est déformée. Cela signe la présence d'états nanosecondes isomères.

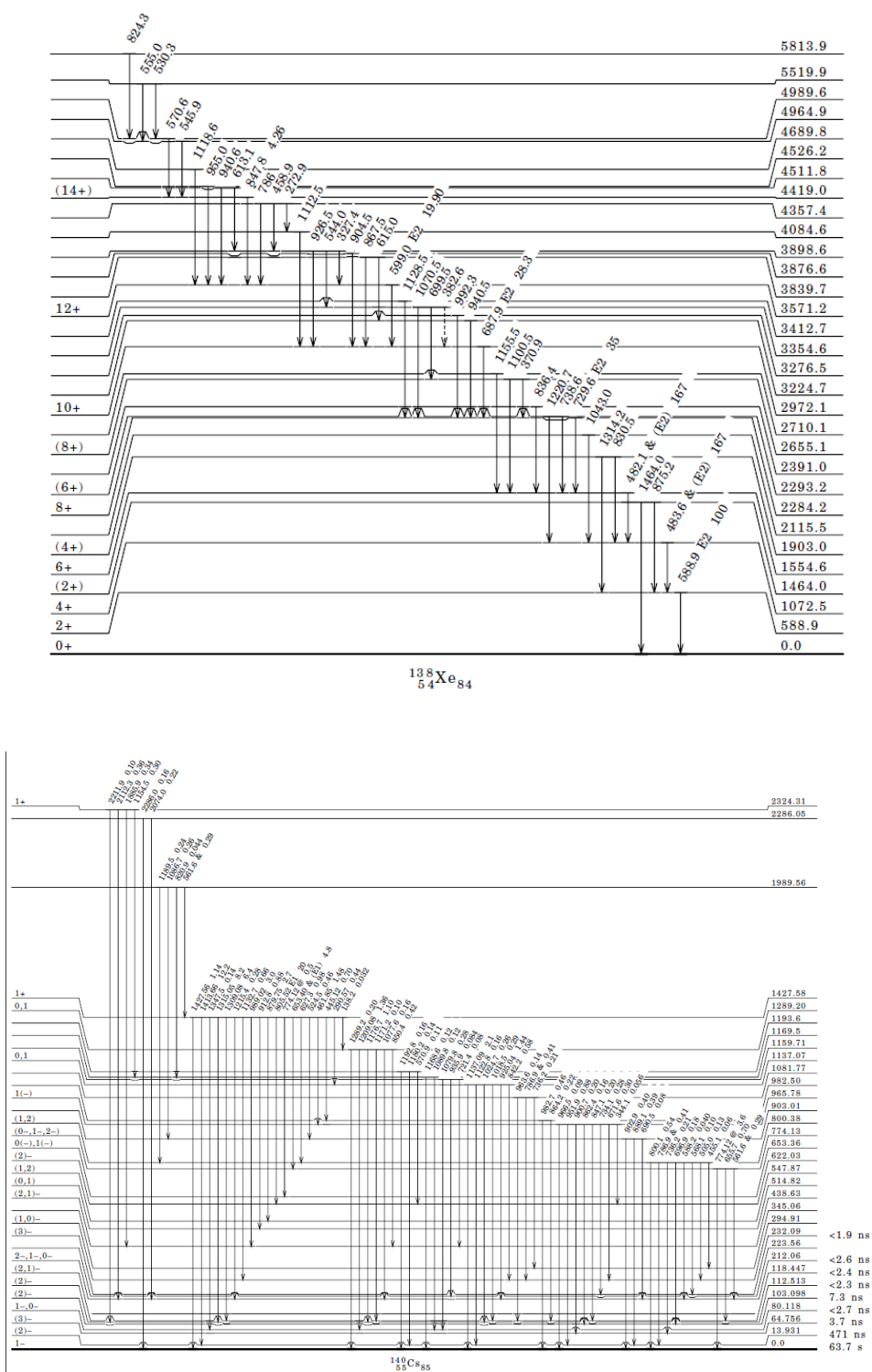


FIGURE 4.23 – Les schémas de niveaux du  $^{138}\text{Xe}$  (haut) et  $^{140}\text{Cs}$  (bas) sont représentés.

Si un état nanoseconde isomère se désexcite par conversion interne (suivie par l'émission d'électrons Auger) après la traversée de la feuille, mais avant d'être sélectionné par le spectromètre LOHENGRIN, il va alors pouvoir influencer de façon non négligeable la forme de la distribution [Rzāca-Urban *et al.*(2009)]. La figure 4.24 illustre le principe de cet effet. Si l'état isomérique a une durée de vie trop faible, alors il va se désexciter dans la cible et l'ion va pouvoir se rééquilibrer en charge ionique. Si la durée de vie est trop longue, l'isomère va se désexciter dans le champ magnétique, i.e. qu'il va changer de charge ionique et donc ne plus être dévié correctement par le spectromètre LOHENGRIN ; il ne sera donc pas détecté. Ainsi seuls quelques états isomères peuvent influencer de façon significative la distribution en charge ionique.

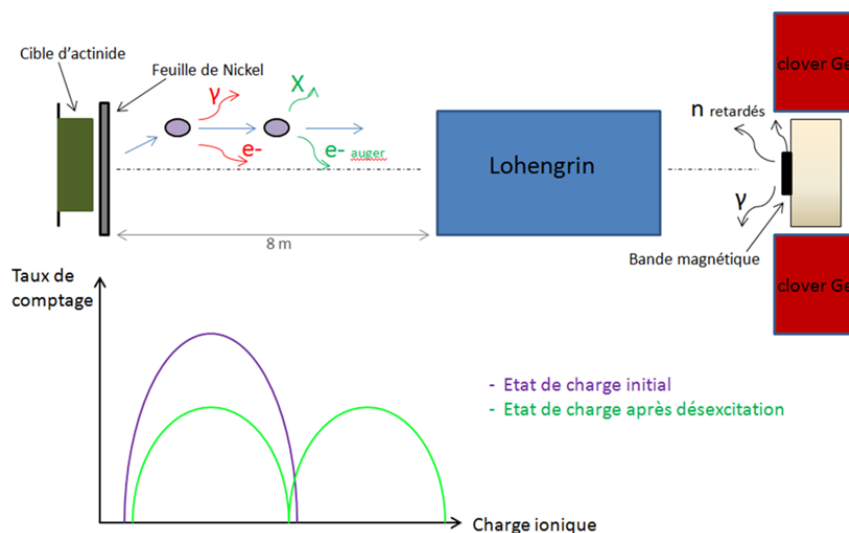


FIGURE 4.24 – Explication de l'impact des états nanosecondes isomères sur la distribution en charge ionique.

### 4.3.2 Méthode d'analyse

L'objectif désormais est d'extraire les différentes composantes de la distribution en charge. La plupart des noyaux, dans la région des masses légères, ne présentent pas d'états nanosecondes isomères et n'ont pas une distribution en charge déformée. Lorsqu'on mesure la charge moyenne pour ces isotopes, on retrouve une valeur centrée autour de  $\bar{q} = 20$ . Cette valeur dépend de l'énergie du fragment de fission, mais aussi de l'épaisseur de la cible et de la feuille.

L'idée est de déconvoluer la distribution en charge ionique à l'aide uniquement de fonctions gaussiennes et d'outils statistiques similaires à ceux décrits dans la partie 4.4.2. Les hypothèses testées sont la possibilité de déconvoluer les distributions en charge ionique suivant des modes gaussiens. Cette restriction aux modes gaussiens se base sur les travaux de Betz sur la modélisation de la distribution en charge [Betz(1972)]. La première hypothèse consiste à modéliser notre distribution expérimentale à l'aide d'une seule gaussienne. La seconde repose sur une modélisation à deux gaussiennes. Le troisième test est identique au second avec une condition supplémentaire qui est de considérer les deux largeurs de nos distributions gaussiennes identiques. Ainsi de suite jusqu'au cas où 4 gaussiennes entrent en jeu<sup>6</sup>. La figure 4.25 illustre la méthode d'analyse d'extraction des états nanosecondes isomères. Les sept premiers graphes représentent le résultat des déconvolutions. Le graphique "Proba Bayes" fournit un indicateur relatif de la pertinence de la déconvolution. Le dernier graphique " $P_{values}$ " indique la probabilité que l'ajustement soit compatible avec les données (d'un point de vue fréquentiste). Si on choisit un niveau de confiance de 90 %, alors les méthodes 2 et 4 sont acceptables (voir la section 4.4.2 pour plus de détails).

### 4.3.3 Résultats

Pour chaque noyau, on sélectionne à l'aide de l'inférence bayésienne<sup>7</sup> l'hypothèse la plus probable dont on extrait les valeurs de charge ionique moyenne ainsi que leurs écart-type. On superpose à ces données celle issue d'un calcul effectué avec le modèle de Betz (dans le cas de fragments de fission qui traversent un solide) :

$$q_{Betz} = Z \left( 1 - C \exp \left( - \frac{Bv^\delta}{Z^\gamma} \right) \right). \quad (4.9)$$

avec  $Z$  et  $v$  la charge nucléaire et la vitesse du fragment de fission. Dans cette expression la vitesse est exprimée en unité de  $v_0$  qui est la vitesse de Bohr. Dans cette expression,  $v$  est donc sans unité. Les paramètres  $C = 1.041$ ,  $A = 0.851$ ,  $\delta = 0.847$  et  $\gamma = 0.432$  ont été fixés à l'aide de mesures expérimentales sur des cibles solides [Datz *et al.*(1970)].

Au cours des mesures de rendements isotopiques effectuées par F. Martin [Martin(2013)], des distributions en charge ionique déformées ont été observées. La figure 4.26 présente les résultats de la déconvolution de ces distributions.

On remarque alors sur la figure 4.26 que pour chaque noyau mesuré la charge ionique moyenne la plus basse est toujours en accord avec celle de Betz. Nos résultats permettent d'affirmer que l'état fondamental est celui correspondant à la charge ionique la plus faible ; et qu'il suit la loi de Betz. Cela permet de clore la question de l'état de charge pour les fragments de fission lourds qui a été discutée dans les thèses précédentes, où des modèles semi-empiriques (Shima, Robinet)

---

6. Il faut savoir qu'il est impossible de tester un modèle pour lequel le nombre de degré de liberté est nul ou négatif.

7. Cette méthode sera expliquée plus en détail dans la section 4.4.2.

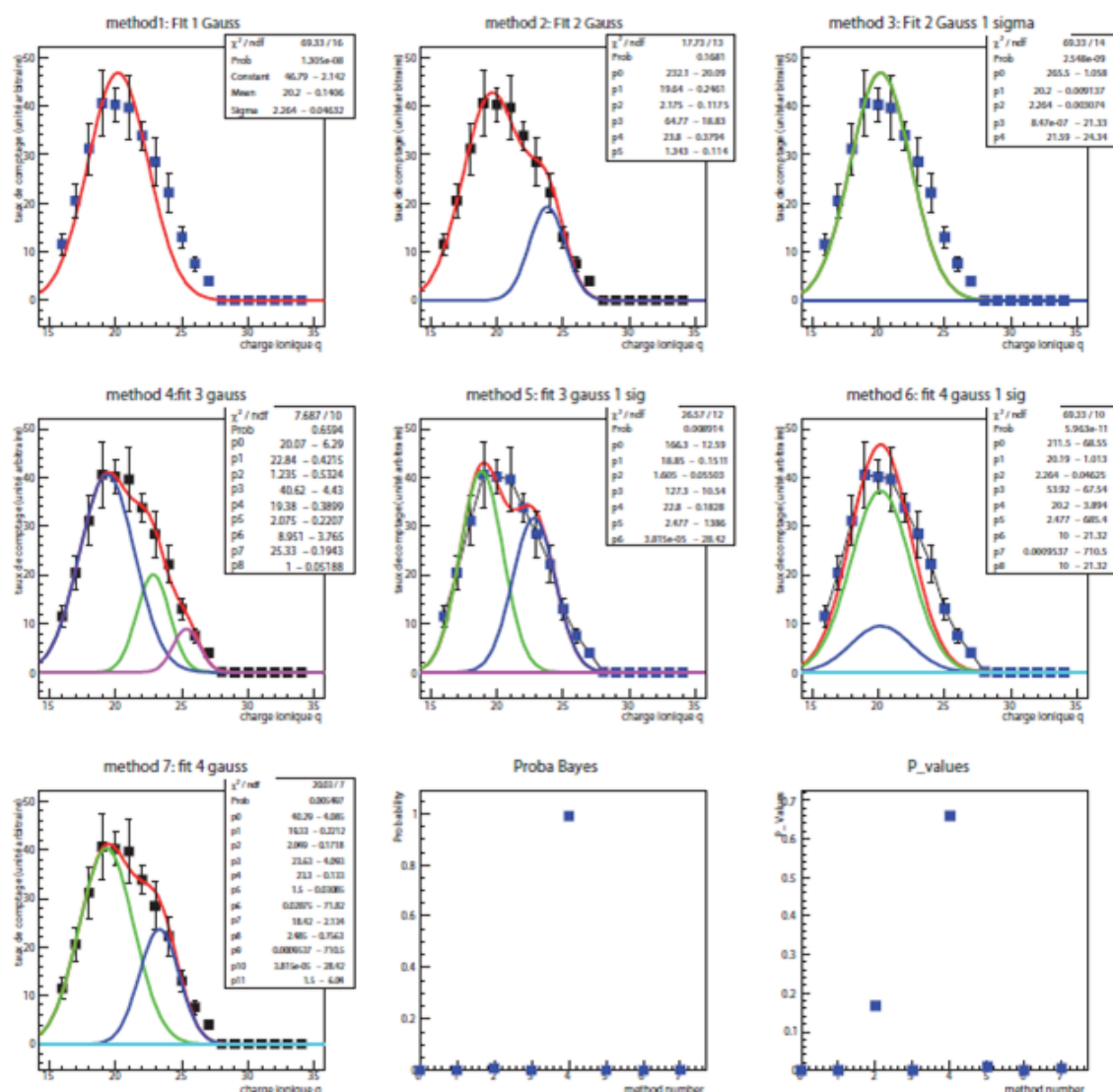


FIGURE 4.25 – Différentes hypothèses sont testées. Dans le cas du  $^{140}\text{Xe}$  l'ajustement à trois gaussiennes est le meilleur.

essayaient de reproduire ce comportement [Martin(2013), Amouroux(2014), Bail(2009)]. Notons qu'aucun *a priori* sur la valeur de la charge ionique de l'état fondamental n'a été pris en compte dans l'analyse. Le second résultat de cette analyse est l'obtention du rapport d'état isomère converti, sur le nombre d'ions (voir figure 4.27).

#### 4.3.4 Limite de la méthode

Cette méthode permet de mettre en évidence la présence d'états isomères dont la durée de vie est de l'ordre de quelques nanosecondes. Il est néanmoins difficile d'extraire de ces données des rapports isomériques. Pour la première composante on ne peut pas affirmer qu'elle corresponde exclusivement à l'alimentation de la fission sur l'état fondamental. En effet si l'état isomérique

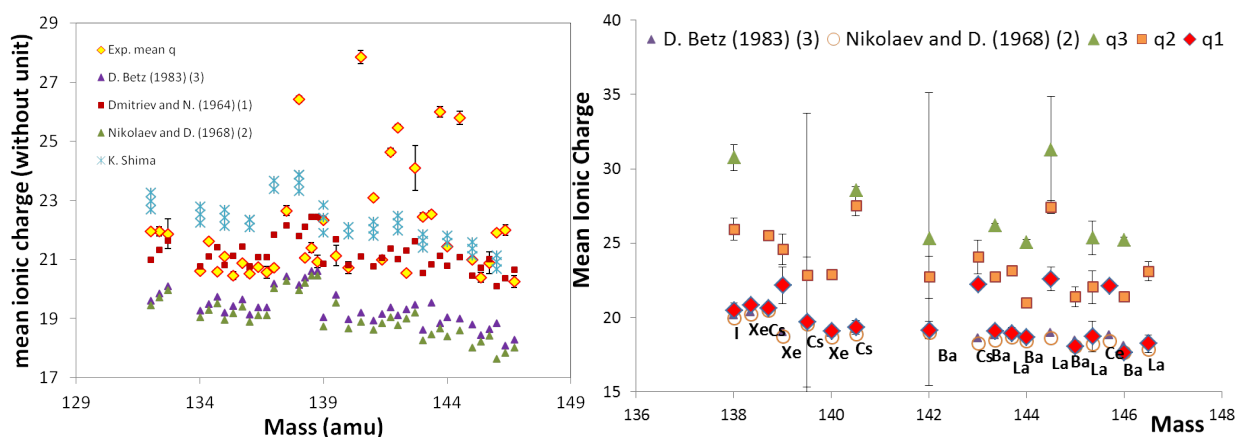


FIGURE 4.26 – À gauche : comparaison de la charge moyenne expérimentale avec différents modèles. Aucun modèle ne permet d'expliquer l'observation. À droite : résultat de la décomposition de la distribution en charge ionique. L'état fondamental est en parfait accord avec le modèle de Betz et celui de Nikolaiev.

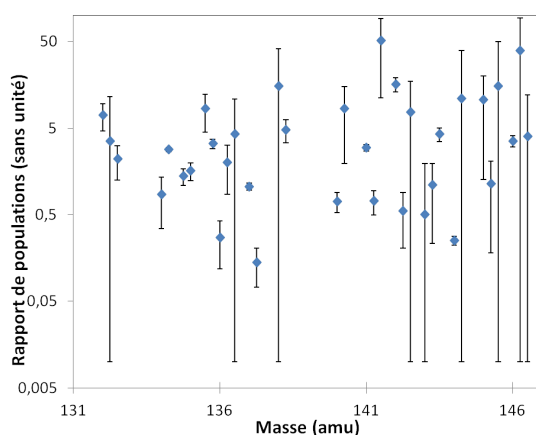


FIGURE 4.27 – Résultat du rapport du nombre d'ion converti sur le nombre total d'ions.

s'est désexcité dans la cible alors le noyau a eu le temps de se rééquilibrer. Ainsi on surestime-rait l'alimentation de l'état fondamental par la fission nucléaire. Néanmoins lorsqu'on souhaite déterminer un rapport isomérique, le dénominateur correspond à la somme des alimentations provenant de l'état isomérique et de celle de l'état fondamental. En fait il est inexact d'affirmer qu'un rapport isomérique peut être déduit de ces mesures. En effet à cause de l'émission Auger, le décalage dû à la présence d'un état isomère est difficile à prédire. De plus la méconnaissance des durées de vie des noyaux mesurés a un impact très fort sur l'interprétation qu'on peut avoir de ces résultats.

Cependant ces données permettent d'extraire un rapport de conversion, noté  $RIC$  et qui correspond au rapport du nombre d'ions convertis sur le nombre d'ion total :

$$RIC = \frac{N_{convert}}{N_{tot}} \quad (4.10)$$



Cette observable est plus facilement calculable, notamment par des codes de désexcitation nucléaire tel que FIFRELIN.

#### 4.3.5 Perspectives pour ce type de mesures

Pour aller plus loin et extraire un “vrai” rapport isomérique de ces données, une collaboration avec l’université de Canberra a été mise en place. Ces derniers disposent d’un modèle de désexcitation atomique qui calcule la multiplicité et le spectre des électrons Auger [Lee *et al.*(2012), Lee, Boon Q. *et al.*(2015)]. Nos données leur permettront de valider leur modèle, tandis que de notre côté cela permettra d’estimer la population initiale des états isomères nécessaires pour retrouver la distribution ionique expérimentale. La figure 4.28 présente les premiers résultats très prometteurs quant à la capacité de modéliser cette désexcitation atomique. Notons que la distribution test est issue d’un article de Urban *et al* afin de valider la méthode pour ensuite l’appliquer sur toutes nos distributions expérimentales. Néanmoins cette interprétation restera dépendante du fichier de structure nucléaire et de la modélisation des probabilités de conversion interne. Il est alors nécessaire de conserver l’observable *RIC* qui reste la moins biaisée. La seule limite constitue l’hypothèse gaussienne pour les ions n’ayant pas subi de conversion interne. Cette hypothèse reste très solide et est validée par de nombreuses données de physique atomique [Betz(1972)].

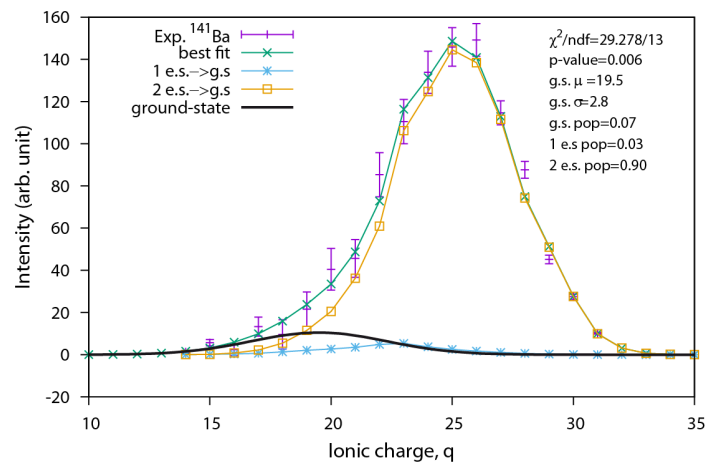


FIGURE 4.28 – Premiers résultats issus du code de désexcitation atomique. La distribution de chaque état isomère est présentée ainsi que la distribution totale. Les résultats sont très prometteurs.

## 4.4 Comparaison avec un code de désexcitation nucléaire

On a vu dans le chapitre 1 que les modèles de fission permettent de définir le rendement d'un fragment suivant la relation :  $Y(A, Z, E^*, J^\pi)$ . On rappelle qu'expérimentalement, l'effet de la distribution du moment angulaire générée par le processus de fission  $P(E^*, J^\pi)$  est déduite des observables expérimentales suivantes :

- le spectre de particules promptes
- les rapports isomériques

Pour remonter à la quantité  $P(E^*, J^\pi)$ , qui par la suite permettra de comparer nos résultats avec différents modèles théoriques de génération du moment angulaire, il est nécessaire de considérer un code de désexcitation nucléaire. Pour ce faire nous avons utilisé le code FIFRELIN développé par le CEA Cadarache.

### 4.4.1 FIFRELIN

FIFRELIN (FISSION FRAGMENT EVAPORATION LEADING TO AN INVESTIGATION OF NUCLEAR DATA) est un code Monte Carlo développé par le CEA Cadarache qui a pour ambition de décrire le processus de fission après la phase d'accélération des fragments jusqu'aux produits de fission [Litaize et Serot(2010), Regnier *et al.*(2013), Regnier *et al.*(2015)]. Son objectif principal est de produire un spectre en énergie des neutrons et  $\gamma$  prompts. Dans le cadre de ce travail de thèse, FIFRELIN est utilisé uniquement comme un code de désexcitation nucléaire qu'on va appeler FIFRELIN-decay. La particularité de ce code est d'intégrer les états discrets des noyaux et non uniquement les états du continuum.

Cet outil va nous permettre de répondre à la question suivante : "quels sont les états du fragment de fission ( $E^*, J^\pi$ ) (après l'émission de neutrons) compatibles avec les rapports isomériques mesurés expérimentalement ?"

On a donc développé la procédure suivante. Pour chaque état ( $E^*, J^\pi$ ) accessible après l'émission de neutrons, on calcule un rapport isomérique à l'aide de FIFRELIN-decay. La figure 4.29 illustre l'évolution du rapport isomérique en fonction de l'état initial. Notons que l'ensemble des états accessibles ne provient pas d'un calcul simulant le processus de fission. On échantillonne les états d'entrée par pas de  $\Delta E^* = 200$  keV et de  $\Delta J = 1 \hbar$ . La limite haute en énergie d'excitation correspond à l'énergie de liaison du neutron.<sup>8</sup> La limite basse en énergie d'excitation correspond à l'énergie de l'état isomérique. La gamme du moment angulaire est :  $J^\pi = [30^-, 30^+] \hbar$  par pas de une unité de moment angulaire. Afin de fonctionner, FIFRELIN-decay a besoin de quelques ingrédients : le schéma de niveaux expérimental, d'un modèle de densité de niveau nucléaire et d'une fonction de forces  $\gamma$ .

### Modèles de densité de niveaux nucléaires

Lorsque l'énergie d'excitation augmente, l'écart entre deux niveaux successifs diminue jusqu'à ce qu'ils deviennent impossibles à distinguer. La description de ces niveaux se fait alors à travers une densité de niveaux nucléaires. Pour un intervalle  $\Delta E$  donné, plusieurs niveaux existent et sont caractérisés par leur spin et leur parité :  $J^\pi$ . Différents modèles de densités de niveaux nucléaires sont implémentés dans le code FIFRELIN. Néanmoins, la connaissance des états

---

8. La mesure ayant lieu après l'émission de neutrons, la distribution après cette émission est celle qui a le plus d'impact sur le rapport isomérique expérimental. Si l'on devait remonter à la distribution avant l'émission de neutrons, il faudrait alors aussi introduire une compétition entre cette émission et la désexcitation  $\gamma$ . Le résultat dépendrait alors du modèle introduit pour gérer ce processus.

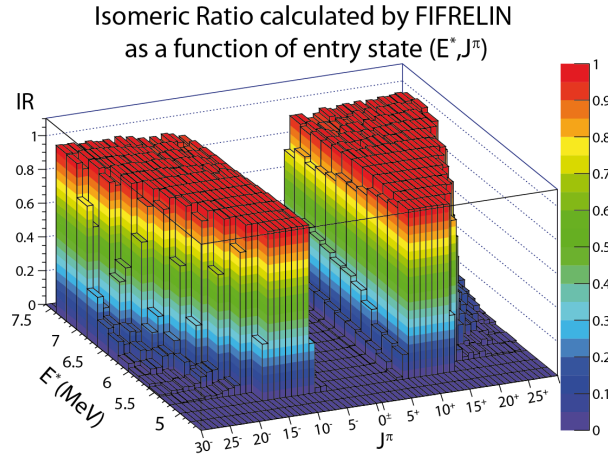


FIGURE 4.29 – Rapport isomérique calculé par FIFRELIN-decay en fonction de l'état ( $E^*$ ,  $J^\pi$ ) initial pour le  $^{132}\text{Sn}$ . La mesure expérimentale ayant lieu après l'émission de neutron, on a supposé que l'état accessible le plus élevé en énergie d'excitation correspond à l'énergie de liaison du neutron. L'état de plus basse énergie correspond quant à lui à l'état isomérique.

discrets est limitée et incomplète. Le recours aux modèles de densité de niveaux commence bien en-dessous des états du continuum.

Tous ces modèles reposent sur un formalisme de physique statistique dans laquelle on suppose le système (un noyau) dans un équilibre thermodynamique [Ericson(1960)]. La densité de niveaux s'écrit alors :

$$\rho(E) = \frac{dN(E)}{dE} \quad (4.11)$$

où  $N(E)$  correspond au nombre de niveaux compris entre  $E$  et  $E + \Delta E$ . Le lien entre la densité de niveaux et l'entropie est :

$$\rho(E) \propto e^S \quad (4.12)$$

Cette relation est une réécriture de la relation de Boltzmann où l'entropie est proportionnelle au logarithme du nombre d'états accessibles. En physique statistique, la fonction de partition est la grandeur qui permet de décrire l'entropie ainsi que toutes les grandeurs thermodynamiques du système telle que la température. Il existe différentes manières de calculer une densité de niveaux. Le code FIFRELIN utilise des modèles semi-empiriques ou des calculs microscopiques.

Le Constant Temperature Model (CTM) est un modèle semi-empirique dont la densité de niveaux s'écrit :

$$\rho(E) = \frac{1}{T_0} \exp\left(\frac{E - E_0}{T_0}\right) \quad (4.13)$$

où les paramètres  $E_0$  et  $T_0$  sont ajustés pour chaque noyau et tabulés dans la bibliothèque RIPL-3 [Capote et al.(2009)]. Ces grandeurs sont ajustées afin de retrouver (lorsque cela a été mesuré) les densités de niveaux au niveau de l'énergie de liaison du neutron, qui sont extraites des résonances des mesures de sections efficaces. Un autre modèle semi-empirique est le Composite Gilbert and Cameron Model (CGCM) [Gilbert et Cameron(1965)]. Dans ce modèle, la densité de niveaux est décrite en deux parties. Au dessus d'une énergie d'excitation propre à chaque noyau, la densité de niveaux est celle calculée dans le cadre du modèle de gaz de Fermi. En-dessous de

cette énergie, la densité de niveaux suit celle du CTM :

$$\rho(E) = \begin{cases} \rho_{CTM}(E) & \text{if } E < E_{match} \\ \rho_{FGM}(E) = \frac{\sqrt{\pi}}{12} \frac{e^{2\sqrt{aU}}}{a^{1/4}U^{5/4}} & \text{else} \\ U = E - \Delta \end{cases} \quad (4.14)$$

où  $\Delta = n \frac{12}{\sqrt{A}}$  correspond à l'énergie d'appariement, communément appelé "pairing", avec  $n=0$  pour les noyaux impairs-impairs,  $n=1$  pour les noyaux pairs-impairs et  $n=2$  pour les noyaux pairs-pairs. Le paramètre de densité de niveaux  $a$  s'écrit :  $a = \frac{\pi^2 A}{4\varepsilon_f}$  avec  $\varepsilon_f$  l'énergie du niveau de fermi.

### Modèles de forces $\gamma$

Lorsqu'on souhaite calculer la probabilité de passer d'un niveau initial à un niveau final (en prenant en compte tous les chemins possibles) une quantité importante entre en jeu : la fonction de force  $\gamma$ . Elle s'écrit :

$$f_{XL}(E_\gamma) = \frac{\rho(E_i, J_i^{\pi_i}) \bar{\Gamma}(i \rightarrow f, XL)}{E_\gamma^{2L+1}} \quad (4.15)$$

où  $E_\gamma$  est l'énergie de la transition,  $\bar{\Gamma}$  la moyenne des largeurs partielles et  $L$  le moment angulaire emporté par le photon.

Différents modèles sont implémentés dans FIFRELIN-decay afin de simuler la désexcitation  $\gamma$  du noyau. Certains ont une approche macroscopique, tel que le modèle Standard Lorentzian model, SLO [Axel(1962)]. D'autres ont une approche plus empirique, c'est le cas du Enhanced Generalized Lorentzian, EGLO [Kopecky et Uhl(1990)]. Enfin un calcul microscopique HFB [Goriely *et al.*(2004)] permet aussi de déterminer ces fonctions de forces  $\gamma$ .

### Fonctionnement de FIFRELIN-decay

A l'aide de la bibliothèque de données RIPL-3, FIFRELIN-decay va compléter le schéma de niveaux expérimental, à partir d'un niveau d'énergie donné  $E_{cut}$ . En dessous de ce niveau d'énergie, le schéma expérimental est considéré comme complet. Ce niveau est déterminé à l'aide d'un fit basé sur le modèle CTM [Capote *et al.*(2009)]. Ce processus est effectué de manière itérative. Initialement tous les niveaux expérimentaux sont considérés. Un fit est effectué avec le modèle CTM. De ce fit, une valeur du  $\chi^2$  est extraite (voir la section suivante pour plus de précisions sur la signification de cette quantité). Ensuite un autre fit est effectué (les paramètres  $E_0, T$  peuvent différer par rapport au fit précédent!) mais avec un nombre de niveaux expérimentaux plus faible. Pour chaque nombre de niveaux considérés, une valeur du  $\chi^2$  est calculée. L'énergie de coupure correspond à celle qui permet d'obtenir la valeur du  $\chi^2$  la plus faible. Au-dessus de cette énergie  $E_{cut}$ , le schéma est complété à l'aide d'un modèle de densité de niveau nucléaire. À la différence d'autres codes, FIFRELIN considère une zone intermédiaire où le schéma de niveau est complété de manière discrète de  $E_{cut}$  jusqu'à une densité limites de  $n \sim 5.10^4$  niveaux.MeV<sup>-1</sup>. Les probabilités de décroître d'un niveau à un autre vont, à partir de  $E_{cut}$ , être générées à l'aide des fonctions de forces  $\gamma$ . La figure 4.30 illustre la philosophie générale de FIFRELIN. Dans notre cas, seule la désexcitation à partir de l'énergie de liaison du neutron est considérée. Des informations plus précises sur la comparaison des modèles utilisés mais aussi les algorithmes développés afin de retranscrire le plus précisément possible une désexcitation d'un noyau sont disponibles dans la thèse de D. Regnier [Regnier(2013)].

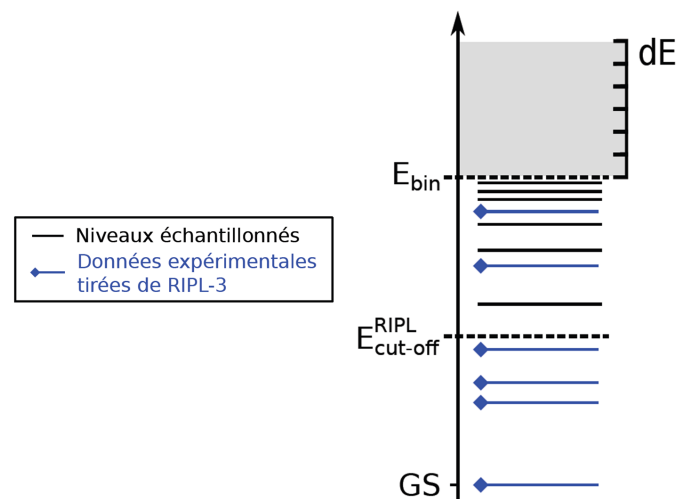


FIGURE 4.30 – Illustration de la reconstruction du schéma de niveau par FIFRELIN. Au-delà de  $E_{cut}$ , la densité de niveaux expérimentale est complétée par des niveaux supplémentaires pour satisfaire le modèle de densité de niveaux considéré. Figure extraite de la Ref. [Regnier(2013)]

#### 4.4.2 Test d'hypothèses : approche fréquentiste et bayésienne

Afin de comparer un modèle (ici FIFRELIN-decay) avec des données expérimentales, on utilise usuellement des outils statistiques. Dans cette section nous présenterons les deux approches qui permettent de tester la validité d'un modèle, par rapport à une série de données.

##### Approche fréquentiste

Le test le plus simple à utiliser est le test du  $\chi^2$ . L'idée est de calculer l'écart quadratique entre le modèle et les données expérimentales :

$$\chi^2(\vec{\theta}) = \sum_i \left( \frac{d_i - f(d_i, \vec{\theta})}{\sigma_i} \right)^2 \quad (4.16)$$

avec  $d_i$  les données expérimentales,  $\sigma_i$  les incertitudes expérimentales et  $f$  un modèle avec  $\vec{\theta}$  paramètres. Ceci est rigoureusement vrai pour une distribution gaussienne des incertitudes. Notons que si on cherche à déterminer les paramètres  $\vec{\theta}$  à l'aide des données expérimentales, on peut utiliser une méthode des moindres carrés, appelée aussi une minimisation du  $\chi^2$ . Ici on s'intéresse au test du  $\chi^2$  (validation du modèle). On suppose alors que les paramètres  $\vec{\theta}$  du modèle ont déjà été déterminés par une minimisation du  $\chi^2$ , ou par une quelconque méthode. On se doit aussi de mentionner la notion de nombre de degrés de liberté  $\nu$ , qui suit la relation suivante :

$$\nu = n - p - 1 \quad (4.17)$$

où  $n$  est le nombre de mesures et  $p$  le nombre de paramètres  $\vec{\theta}$ . Pour simplifier, on suppose que toutes nos mesures sont indépendantes. Le terme  $-1$  provient du fait qu'on effectue un test.<sup>9</sup> Ainsi notre modèle et nos données sont reliées via ce test. On définit aussi la valeur réduite du  $\chi^2$ , notée  $\chi_r^2$  :

$$\chi_r^2 = \frac{\chi^2}{\nu} \quad (4.18)$$

L'adage consistant à dire "plus le  $\chi_r^2$  est proche de 1, mieux c'est" n'est pas satisfaisant. Pour être "statistiquement rigoureux", plusieurs notions doivent être définies : la  $p$ -value, l'intervalle de confiance  $(c_1, c_2)$  et le niveau de confiance  $1 - \alpha$ . La  $p$ -value s'écrit :

$$p\text{-value} = \int_{\chi^2}^{\infty} g_\nu(x) dx \quad (4.19)$$

où  $g_\nu$  est la distribution de probabilité du  $\chi^2$  et s'écrit :

$$g_\nu(x) = \frac{\left(\frac{x}{2}\right)^{\frac{\nu}{2}-1} \exp\left(-\frac{x}{2}\right)}{2\Gamma\left(\frac{\nu}{2}\right)} \quad (4.20)$$

où  $\Gamma$  est la fonction gamma d'Euler.

Soit un paramètre  $\theta$ , la probabilité que ce paramètre soit compris dans l'intervalle de confiance s'écrit :

$$P(c_1 \leq \theta \leq c_2) = 1 - \alpha \quad (4.21)$$

Il se trouve qu'en affirmant que la "vraie" valeur du paramètre  $\theta$  appartient bien à l'intervalle de confiance  $(c_1, c_2)$ , on commet une erreur égale à  $\alpha$ . En ce sens, plus l'intervalle de confiance est

---

9. Un test de  $\chi^2$  est la recherche d'un hyperplan de dimension  $n - p - 1$  dans un espace à  $n - p$  dimensions.

grand, et plus la probabilité que le paramètre  $\theta$  s'y trouve est grande (*a fortiori* la probabilité qu'il n'appartienne pas à cet intervalle est d'autant plus faible). Il est donc évident que  $(c_1, c_2)$  est lié à  $\alpha$ .

On peut reformuler ce qu'on vient de voir de la manière suivante : lors d'un test d'hypothèses (comparaison avec un modèle), on peut être amené à commettre des erreurs. C'est la notion de  $p$ -value qui permet de qualifier une hypothèse. Supposons que le modèle soit correct : cette hypothèse est appelée hypothèse nulle. L'objectif d'un test d'hypothèses est de vérifier la validité des hypothèses. Quatre cas se présentent à nous :

- Acceptation de l'hypothèse nulle ("modèle vraie") alors qu'elle est vraie
- Rejet de l'hypothèse nulle alors qu'elle est vraie
- Acceptation de l'hypothèse nulle alors qu'elle est fautive
- Rejet de l'hypothèse nulle alors qu'elle est fautive

Le premier et le dernier conduisent à des conclusions correctes. L'erreur qui consiste à rejeter l'hypothèse nulle est appelée erreur de première espèce. La seconde se nomme erreur de seconde espèce. On ne s'intéresse ici qu'à l'erreur de première espèce. Autrement dit, on veut savoir si notre modèle peut être rejeté. Pour ce faire on utilise une limite supérieure du risque de première espèce, ou encore appelé seuil de confiance  $\alpha$ . Si le critère  $p$ -value  $\leq \alpha$  est vérifié, alors on dit que l'hypothèse nulle est rejetée avec une erreur  $\alpha$ . Si  $\alpha = 10\%$ , cela signifie que 10 fois sur 100 l'hypothèse nulle est rejetée alors qu'elle est correcte. Par conséquent plus le seuil de confiance est faible, et plus la probabilité de faire une erreur sur le rejet de l'hypothèse nulle est faible. In fine, on peut affirmer avec une confiance de  $1 - \alpha = 90\%$ , dans ce cas, que l'hypothèse nulle est rejetée, i.e. que notre modèle associé est faux. Dans le cas contraire c'est-à-dire si  $p$ -value  $\geq \alpha$ , on peut seulement dire que l'hypothèse nulle est acceptable et qu'on ne peut la rejeter. C'est la limite de l'approche fréquentiste. On ne peut que rejeter des modèles, avec une certaine confiance  $(1 - \alpha)$ . Si plusieurs modèles résistent à ce test, il n'est pas possible de savoir si l'un est meilleur que l'autre. On a donc besoin d'utiliser une autre approche.

### Inférence bayésienne

L'approche bayésienne permet de rendre probabilisable l'espace des modèles (hypothèses) qui ne peuvent être rejetés [Neyman et Pearson(1933), Gregory(2005)]. Si le modèle n'appartient pas à cet espace, il est inutile d'aller plus loin. Cette vision repose sur le théorème de Bayes, on écrit :

$$p(\vec{\theta} | D) = \frac{p(D | \vec{\theta})p(\vec{\theta})}{\int p(D | \vec{\theta}')p(\vec{\theta}')d\vec{\theta}'} \quad (4.22)$$

où  $p(\vec{\theta} | D)$  est la distribution de probabilité postérieure,  $p(\vec{\theta})$  la distribution de probabilité *a priori* et  $p(D | \vec{\theta})$  est la fonction de vraisemblance.  $\vec{\theta}$  est l'ensemble des paramètres du modèle et  $D$  celui des données.

Les paramètres  $\theta$  reproduisent d'autant mieux les résultats que la fonction de vraisemblance est grande. Dans le cas où l'on suppose une distribution gaussienne des données, la fonction de vraisemblance s'écrit [Gregory(2005), Kessedjian et al.(2010)] :

$$p(D | \vec{\theta}) = \mathcal{L}(\vec{\theta} | D) \propto \prod_i \exp - \left( \frac{(d_i - f(d_i, \vec{\theta}))^2}{2\sigma_i^2} \right) = \exp \left( -\frac{\chi^2}{2} \right) \quad (4.23)$$

### 4.4.3 Extraction d'un spin cutoff

Appliquons le formalisme décrit ci-dessus. Les données correspondant aux rapports isomériques expérimentaux. Ici le modèle s'écrit :

$$IR_{\text{calc}}(E^*) = \sum_J \sum_{\pi} P(\pi)P(J)IR_{\text{calc}}(E^*, J^{\pi}) \quad (4.24)$$

avec  $P(\pi) = P(\pm 1) = \frac{1}{2}$  et  $P(J)$ , la distribution de moment angulaire qui suit l'expression communément admise [Wagemans(1991)] :

$$P(J) \propto (2J + 1) \exp\left(-\frac{(J + 1/2)^2}{J_{\text{rms}}^2}\right) \quad (4.25)$$

avec  $J_{\text{rms}}$ , appelé spin cutoff, le paramètre qu'on souhaite déterminer.

La fonction de vraisemblance (4.23) s'écrit alors :

$$\mathcal{L}(\theta|D) \propto \exp\left(-\frac{(IR_{\text{exp}} - IR_{\text{calc}})^2}{2(\sigma_{\text{exp}}^2 + \sigma_{\text{calc}}^2)}\right) \quad (4.26)$$

Ainsi pour chaque rapport isomérique expérimental, on va obtenir une probabilité dans l'espace  $(E^*, J_{\text{rms}})$ . On rappelle qu'une hypothèse forte dans l'approche bayésienne est que l'ensemble des modèles évalués doit reproduire les données expérimentales [Neyman et Pearson(1933)]. Autrement dit, si les rapports isomériques calculés par FIFRELIN-decay ne sont pas compatibles avec les données expérimentales, alors la fonction de vraisemblance construite n'a pas de sens; on ne pourra conclure quant à la valeur de  $J_{\text{rms}}$ . La figure 4.31 présente la comparaison entre les rapports isomériques mesurés et ceux calculés à l'aide de FIFRELIN.

Cette procédure d'extraction d'une distribution du moment angulaire a été appliquée à quelques rapports isomériques à l'échelle de la microseconde. Ainsi, comme on vient de le voir, pour chaque rapport isomérique on construit une carte de probabilité. Plus la fonction de vraisemblance est élevée, plus la valeur calculée est proche de la valeur expérimentale. La figure 4.32 illustre cette carte de probabilité dans le cas du rapport isomérique mesuré à  $E_K^{Loh} = 75$  MeV.

Cette carte correspond à un diagramme d'exclusion présentant les solutions mathématiques compte-tenu des hypothèses de travail. Ici la figure 4.32 présente les spins cutoff compatibles avec nos mesures pour une distribution de moment angulaire choisie [voir equation (4.25)]. Ainsi, sachant le schéma de structure nucléaire considéré, il est possible d'exclure, par exemple, un spin cutoff de  $3 \hbar$  ou de  $6 \hbar$  avec une grande confiance.

Finalement, le point de comparaison avec des calculs théoriques du processus de fission est ce type de carte (fonction de densité de probabilité ou *pdf* à deux dimensions). Si l'un de ces calculs prédit une distribution du moment angulaire non compatible avec les différentes cartes extraites, alors on pourra affirmer que le modèle de fission nucléaire mis en jeu ne peut pas reproduire nos données expérimentales que sont les rapports isomériques. Les diagrammes d'exclusion jouent le rôle d'intermédiaire entre nos mesures expérimentales et des calculs théoriques du processus de fission nucléaire.

A l'aide de ces cartes, on extrait un rapport isomérique moyen ainsi que le "best  $J_{\text{rms}}$ " qui correspond à la valeur de spin cutoff qui maximise la fonction de vraisemblance  $\mathcal{L}$ . On extrait aussi la valeur moyenne  $\overline{J_{\text{rms}}}$  (i.e qu'on pondère chaque  $J_{\text{rms}}$  par la valeur de la fonction de vraisemblance) avec l'écart-type pour chaque point expérimental. Cette quantité finale permet d'effectuer des comparaisons avec les modèles de fission de manière plus synthétique. La figure 4.33 montre l'évolution du spin cutoff en fonction de l'énergie cinétique.



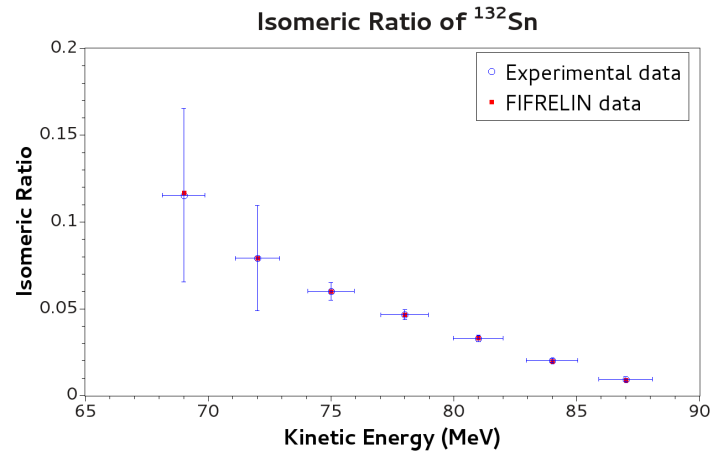


FIGURE 4.31 – Comparaison du rapport isomérique expérimental du  $^{132}\text{Sn}$  avec le calcul FIFRELIN. Pour ce dernier, les rapports isomériques sont calculés avec le meilleur  $J_{rms}$ .

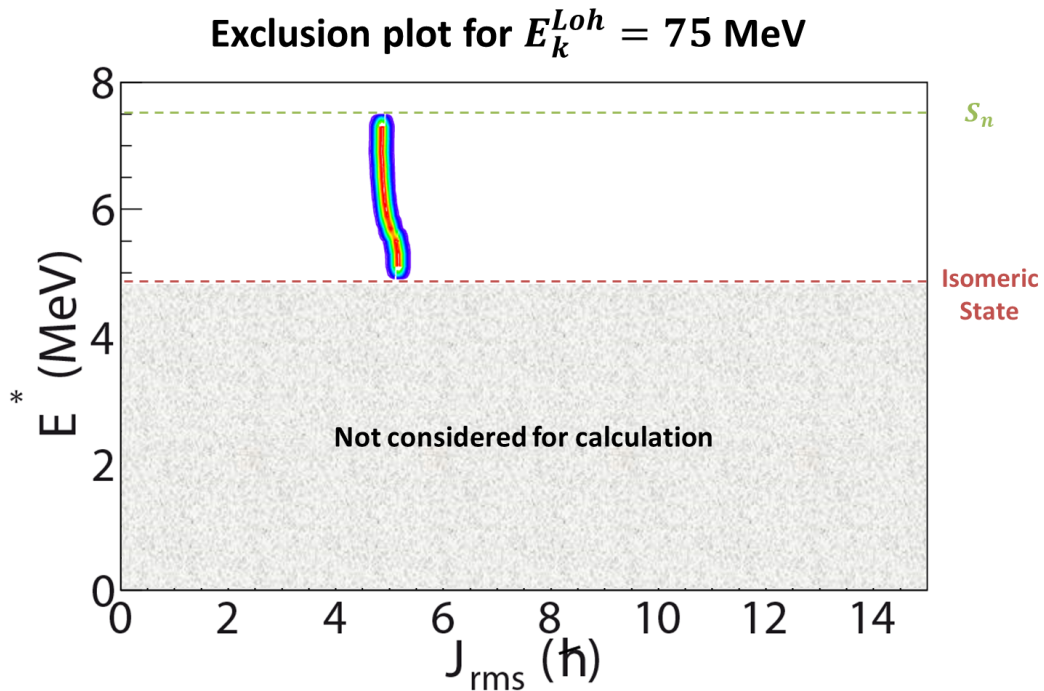


FIGURE 4.32 – Carte de probabilité pour  $^{132}\text{Sn}$  à  $E_K^{Loh} = 75$  MeV issue de la comparaison entre le rapport isomérique expérimental et FIFRELIN-decay. EGLO a été utilisé en tant que fonction de force  $\gamma$  et CTM comme modèle de densité de niveaux nucléaires.

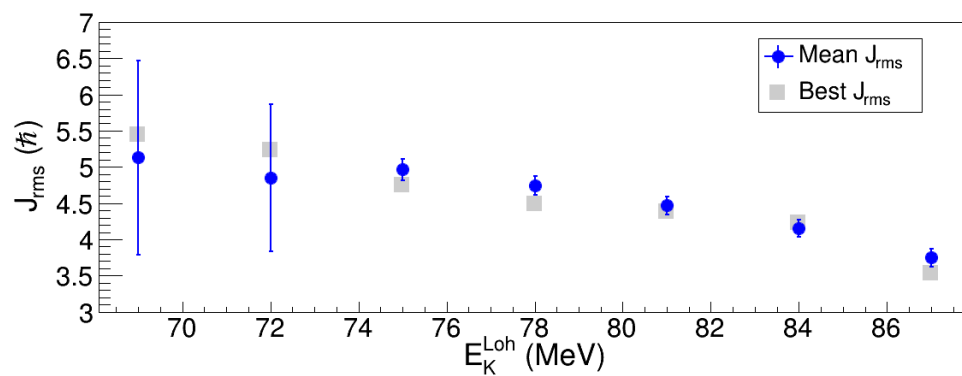


FIGURE 4.33 – Ce graphique illustre une claire dépendance du spin cutoff en fonction de l'énergie cinétique pour  $^{132}\text{Sn}$ .

#### 4.4.4 Interprétation des résultats

On vient de le voir, l’observable d’intérêt pour la comparaison avec les différents calculs théoriques est la distribution du moment angulaire caractérisé par un spin cutoff noté  $J_{\text{rms}}$ . Très peu de théories sont disponibles dans la littérature pour décrire le mécanisme de création du moment angulaire.

##### Mesures antérieures

L’évolution du rapport isomérique en fonction de l’énergie cinétique a déjà été mesurée sur le spectromètre de masse LOHENGRIN par J.P Bocquet *et al.* [Bocquet *et al.*(1980)] et Denschlag *et al.* [Denschlag *et al.*(1980)] où une légère dépendance avec l’énergie cinétique a été observée. Au contraire une expérience de F.Gönnenwein *et al.* [Gönnenwein *et al.*(2007)] n’a pas observé de dépendance marquée. Ces résultats sont illustrés par la figure 4.34. L’une des motivations de ce travail a été de lever une incohérence entre les résultats de J.P. Bocquet [Bocquet *et al.*(1980)] et F. Gönnenwein [Gönnenwein *et al.*(2007)] sur l’évolution du rapport isomérique du  $^{132}\text{Te}$  avec l’énergie cinétique. On a pu conclure que l’invariance du rapport isomérique sur quasiment toute la gamme en énergie cinétique de la seconde mesure provient d’un effet de cible. En effet on a vu dans la section 4.1.6 que l’impact de l’épaisseur de la cible sur le rapport isomérique était très important. On peut noter que dans le cas de la mesure de F. Gönnenwein seule une mesure du rapport entre les taux de comptage issus des deux états isomériques est effectuée. Au cours de notre analyse, on s’est aussi aperçu que la grande partie de l’incertitude provenait des corrections, notamment de la structure nucléaire. Ceci est visible sur les matrices de corrélation 4.15 où les données sont extrêmement corrélées<sup>10</sup>. Ainsi les effets qui sembleraient apparaître au niveau des extrémités en énergie cinétique, risquent fortement de s’estomper. Dans la suite nous ne discuterons que des résultats qui présentent une structure (ie sans effet de “lissage” dû à l’épaisseur de la cible). Il faut noter, que les valeurs des rapports isomériques déterminées par J.P Bocquet *et al.* sont en désaccords avec nos mesures. Cela pourrait provenir d’un biais dans les facteurs correctifs ou des données de structure nucléaire pour lesquelles aucune information n’est fournie dans l’article.

##### Bending et wriggling modes

L’une des théories la plus communément utilisée dans la communauté est celle de bending et wriggling modes. Ces deux modes définis initialement par Nix *et al.* [Nix et Swiatecki(1965)] mettent en jeu des vibrations collectives entre deux fragments déformés à la scission. La figure 4.35 illustre ces deux modes. Le premier (bending) peut être vu comme le battement d’aile d’un papillon tandis que le second mode (wriggling) correspond à une rotation simultanée des noyaux par rapport à un axe parallèle à l’axe de symétrie. Ces deux modes prévoient que le moment angulaire issu de ces modes de vibration ait une origine au niveau de la scission qui est considérée comme étant dans un équilibre thermique. Il présuppose que les deux fragments soient déformés. En outre, selon ce modèle plus la déformation est importante et plus le spin cutoff sera élevé [Rasmussen *et al.*(1969), Zielinska-Pfabé et Dietrich(1974)].

##### Pumping mechanism

Récemment des travaux de L.Bonneau *et al.* [Bonneau *et al.*(2007)] ont mis en évidence un

---

10. On rappelle que ces matrices expérimentales permettent d’estimer le poids de l’incertitude systématique sur l’incertitude totale.

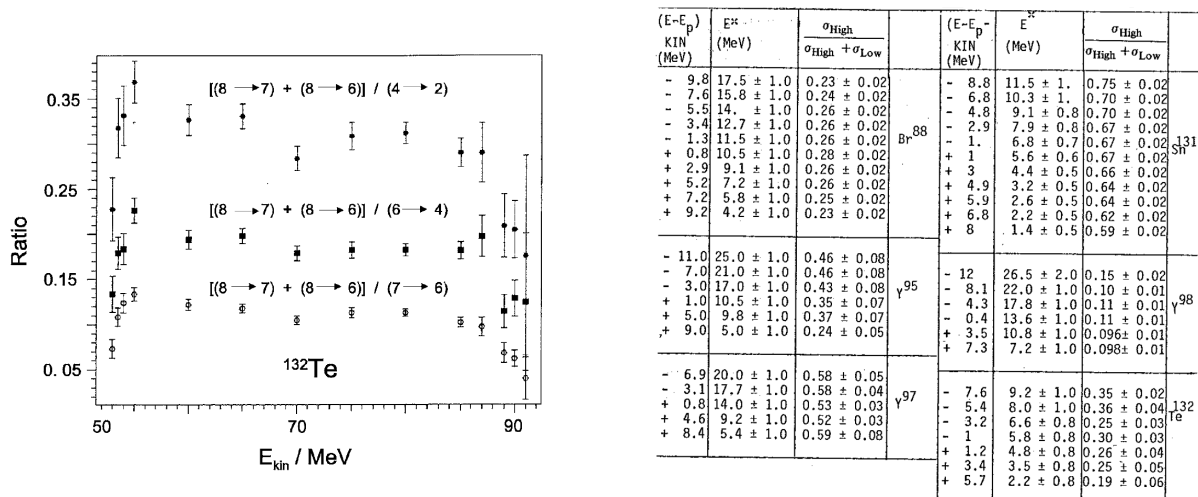


FIGURE 4.34 – À gauche : rapport de taux de comptage de raies  $\gamma$  issues des deux états isomères du  $^{132}\text{Te}$  extrait de la Ref. [Gönnenwein et al.(2007)]. À droite : rapports isomériques issus de [Bocquet et al.(1980)] pour différents isotopes.

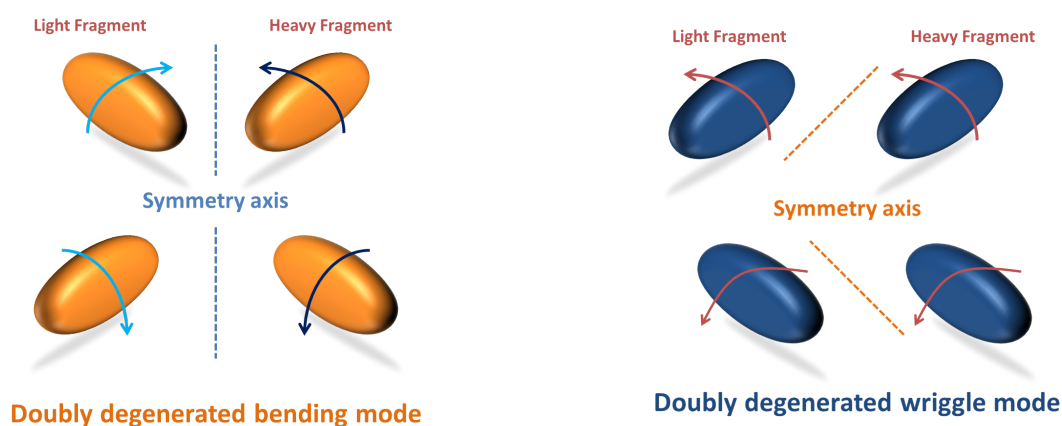


FIGURE 4.35 – Illustration des modes bending and wriggle.

mécanisme, dit de pumping effect, qui traite la génération du moment angulaire de manière microscopique. Ce modèle traite des noyaux déformés à la scission. De plus, seuls les états présents dans une bande rotationnelle peuvent être étudiés. Ainsi les états isomères, qui sont considérés comme des états de quasiparticules, ne peuvent être pris en compte dans ce calcul. Les résultats issus des rapports isomériques ne peuvent être considérés comme un test de cette théorie. Néanmoins ce modèle interprète le moment angulaire comme la conséquence d'une excitation thermique du fragment de fission. Au point de scission, les forces mises en jeu vont permettre d'aligner les fragments le long de l'axe de fission. Cet alignement suffit alors à générer un moment angulaire aux fragments : "the orientation pumps angular momentum". Il est supposé qu'à la scission, avant l'alignement, les fragments de fission ne possèdent pas de moment angulaire. De plus, par conservation, les deux fragments de fission possèdent alors le même moment angulaire. Une conclusion importante est la suivante : si l'un des fragments est supposé sphérique, alors le moment angulaire sera nul.

### Interprétations des résultats pour des noyaux déformés

Dans le cas de noyaux déformés au niveau de la scission tels que le  $^{88}\text{Br}$  et  $^{132}\text{Te}$ , on constate une augmentation du rapport isomérique avec l'énergie d'excitation. D'après plusieurs auteurs [Gönnenwein *et al.*(2007), Litaize et Serot(2010)], l'énergie d'excitation est issue de l'énergie intrinsèque et d'une énergie issue de la déformation du noyau à la scission. On peut alors se demander si l'on peut signer par des mesures la présence de cette énergie de déformation. Dans les travaux de Naik *et al.* [Naik *et al.*(2005)], un effet de structure pair-impair dans les rapports isomériques (et donc dans le spin cutoff déduit) a été observé comme on peut le voir sur la figure 4.36. Il est connu que l'effet de parité en charge nucléaire diminue avec le paramètre de fissilité du noyau fissionnant. Cette diminution est attribué à l'augmentation de l'énergie intrinsèque qui permet alors de rompre de plus en plus facilement les paires de protons et ainsi de réduire l'effet pair-impair [Wagemans(1991)]. Néanmoins, l'effet de structure en spin cutoff persiste malgré le changement du noyau fissionnant. Les auteurs en ont donc conclu que le mécanisme de génération du moment angulaire était peu sensible à l'énergie intrinsèque. Par déduction, la variation avec l'énergie cinétique, des rapports isomériques mesurés au cours de ce travail, signerait alors le rôle majeur de l'énergie de déformation sur le spin cutoff. Il est à noter que les modes de vibration prédisent une valeur du spin cutoff d'autant plus importante que le noyau est déformé [Bonneau *et al.*(2007), Rasmussen *et al.*(1969), Gönnenwein *et al.*(2007)].

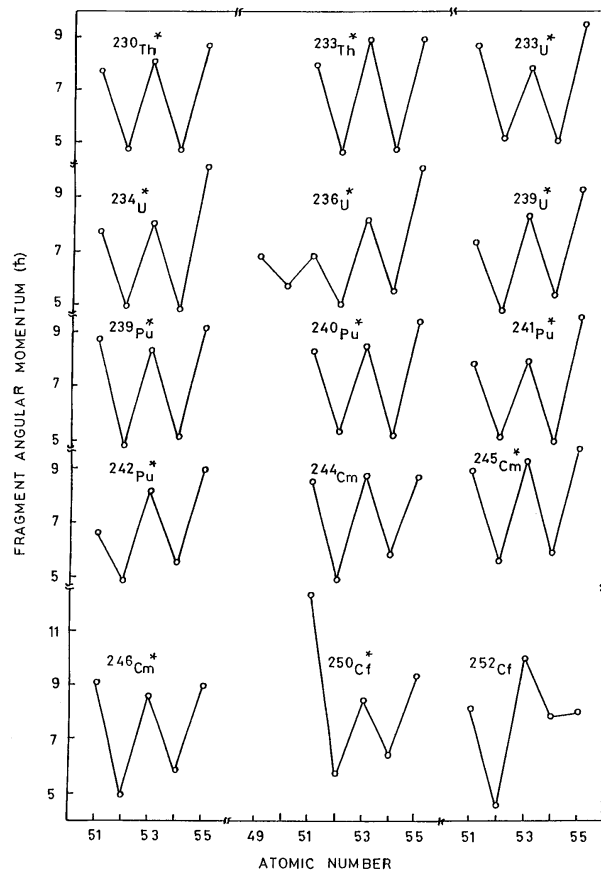


FIGURE 4.36 – Effet pair-impair sur le spin cutoff indépendamment du noyau fissionnant. Figure extraite de [Naik *et al.*(2005)].

### Interprétations des résultats pour des noyaux sphériques

Cependant lorsqu'on étudie le cas de  $^{132}\text{Sn}$  qui est un noyau doublement magique, on observe une claire dépendance du spin cutoff en fonction de l'énergie d'excitation (voir figure 4.33). Il est communément admis que le  $^{132}\text{Sn}$  est sphérique à la scission. Cela a pour conséquence directe d'affirmer que les modes de vibration ne sont pas les seuls responsables de la génération du moment angulaire des fragments de fission. De même, les récents calculs de L. Bonneau *et al.* indiquent que si le noyau est sphérique, le spin cutoff doit être nul<sup>11</sup>. La question reste ouverte quant au mécanisme responsable du moment angulaire des fragments de fission sphérique à la scission.

Une approche ne tenant pas compte de la déformation du noyau prédit l'existence d'un moment angulaire pour les fragments de fission sphériques : le modèle thermodynamique [Faust et Bao(2004)]. Dans cette approche, la valeur du moment angulaire est directement liée à la température  $T$  du système à travers la densité de niveaux  $a$  et la masse du fragment de fission  $A$  [Faust(2012)] :

$$J_{\text{rms}}^2 = 2 \times 0.0888 \times a \times k_b T \times A^{1/3} \quad (4.27)$$

où  $k_b$  est le facteur de Boltzmann.

Un calcul préliminaire a permis de calculer l'évolution du spin cutoff en fonction de l'énergie cinétique du  $^{132}\text{Sn}$ . La figure 4.37 illustre le résultat dans le cas où aucun neutron n'est émis. Pour parvenir à ce résultat, on calcule tout d'abord la chaleur de réaction  $Q$  à laquelle on ajoute l'énergie de liaison du neutron  $B_n$  du noyau fissionnant étudié. Puis pour toutes les énergies cinétiques  $E_k^H$  possibles pour un fragment lourd, par conservation de la quantité de mouvement, on en déduit l'énergie cinétique du fragment léger  $E_k^L$ . On calcule ensuite l'énergie d'excitation totale, notée  $TXE = Q + B_n - TKE = Q - E_k^H - E_k^L$ , qui va nous permettre de déterminer la température d'équilibre des fragments :

$$k_b T = \sqrt{\frac{TXE}{a_L + a_H}} \quad (4.28)$$

avec  $a_L = 12.25 \text{ MeV}^{-1}$  et  $a_H = 8.02 \text{ MeV}^{-1}$  les densités de niveaux du fragment léger et lourd respectivement évaluées par [Budtz-Jørgensen et Knitter(1988)]. Ceux-ci n'expliquent cependant pas la pente observée. Cette dernière provient notamment de la non-prise en compte de l'émission de neutrons. On rappelle que la pente du spin cutoff (issue du rapport isomérique) dépend de l'épaisseur de la cible. De même, les énergies cinétiques (pour les points expérimentaux) correspondent à l'énergie sélectionnée par LOHENGRIN. Notons que la distribution en énergie cinétique mesurée auprès du spectromètre LOHENGRIN résulte de la convolution entre la distribution induite par la fission et l'énergie perdue au cours de la traversée de la cible et de la feuille (ou de l'évaporation de tantale) la recouvrant. Ce travail de correction complexe reste à faire.

Il faut insister sur le fait que ce modèle ne considère pas la déformation du noyau pour expliquer l'apparition d'un moment angulaire. Pour aller plus loin, on peut s'intéresser uniquement au spin cutoff moyen. En considérant que  $\overline{J_{rms}} = 4.7 \hbar$ , à l'aide du modèle statistique on en déduit le moment angulaire moyen du fragment de fission complémentaire (sans émission neutron)  $^{104}\text{Mo}$  :

$$\overline{J_{rms}}(^{104}\text{Mo}) = \overline{J_{rms}}(^{132}\text{Sn}) \sqrt{\frac{a_L}{a_H}} \left( \frac{A_L}{A_H} \right)^{2/3} = 5.4 \hbar \quad (4.29)$$

11. Il existe néanmoins une nuance ; dans leurs travaux, les résultats issus de rapports isomériques n'ont pas été considérés car ils mettent en jeu l'existence d'un état de noyau particulier (état isomère).

Il n'existe pas de moment angulaire du  $^{104}\text{Mo}$  mesuré pour la réaction  $^{233}\text{U}(n,f)$ . Néanmoins celui-ci a été mesuré pour la fission spontanée du  $^{252}\text{Cf}$  :  $\overline{J_{rms}}(^{104}\text{Mo}) = 6.7 \hbar$  [Wilhelmy *et al.*(1972)]. Ce léger écart peut s'expliquer par la différence du système fissionnant. Ces résultats permettent de valider en moyenne l'approche de ce modèle dans le cas de noyaux sphériques.

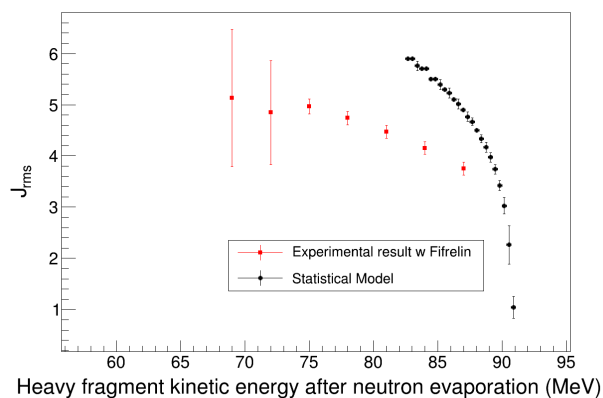


FIGURE 4.37 – Comparaison du *spin cutoff* expérimental avec un calcul (sans émission de neutron) reposant sur le modèle thermodynamique.

## Conclusion

Au cours de ce travail, de nouvelles méthodes expérimentales auprès du spectromètre LO-HENGRIN ainsi que de nouvelles méthodes d'analyses ont été développées. L'extraction d'un moment angulaire avec un code de désexcitation nucléaire, FIFRELIN, dont la particularité est de prendre en compte les niveaux nucléaires expérimentaux en plus des états statistiques a été effectuée.

La variété des données obtenues a permis de discuter des mécanismes de génération de moment angulaire. Les résultats sur les noyaux déformés ne permettent pas de remettre en question les hypothèses formulées par les modèles classiques (bending et wriggling). Seul un calcul théorique permettra de tester la robustesse de ces approches. L'extraction en cours du spin cutoff du  $^{132}\text{Te}$  fournira aux théoriciens une base de comparaison avec leurs calculs. Des études préliminaires sur le  $^{88}\text{Br}$  ont montré une incompatibilité entre le calcul de désexcitation nucléaire issu de FIFRELIN et nos données expérimentales. Cela nous a conduit à douter du schéma de structure nucléaire de ce noyau. Des récentes mesures à l'ILL (campagne EXILL) permettront de dissiper les doutes sur l'exactitude de l'évaluation du schéma de structure nucléaire.

Concernant le  $^{132}\text{Sn}$ , qui est un noyau sphérique, la mesure d'un spin cutoff non nul ( $J_{rms} \sim 4.5 \hbar$ ) met en lumière la limite des approches classiques. Au contraire le modèle thermodynamique discuté, qui ne s'appuie pas sur la déformation des fragments de fission, semble suffisant pour interpréter le moment angulaire moyen du  $^{132}\text{Sn}$ . Ce modèle prédit aussi un moment angulaire moyen du fragment complémentaire en relativement bon accord avec les données expérimentales. Cela est un premier pas vers la validation des hypothèses de ce modèle au regard du mécanisme de génération du moment angulaire. On notera cependant que la dépendance du moment angulaire avec l'énergie cinétique n'est pas exempte de biais à la fois d'un point de vue expérimental (épaisseur de la cible) et théorique (émission de neutrons).

À travers ce travail, la volonté est de mettre en avant le rapport isomérique comme une sonde permettant de déterminer le moment angulaire du fragment induit par la fission nucléaire. Le développement de nouvelles méthodes expérimentales, dédiées à l'étude de ces rapports isomériques, permet d'obtenir des résultats qui mettent en avant la nécessité d'avoir des schémas de structure aussi complets que possible. La validation de ces techniques, différentes selon la gamme en temps des états isomères, permet d'envisager un programme de mesures étendues, à la fois en terme de noyaux fissionnants et de noyaux étudiés. L'utilisation d'un code de désexcitation nucléaire, qui traite le noyau à la fois de manière statistique (états continus) et de manière discrète (état discrets expérimentaux) est indispensable pour interpréter nos résultats et les confronter aux modèles de fission. Le cas du  $^{132}\text{Sn}$  développé au cours de ce chapitre est symptomatique des limites actuelles des modèles usuels de génération du moment angulaire. C'est pourquoi, l'ensemble de ce programme expérimental permettra *in fine* d'obtenir des contraintes fortes sur les modèles de fission nucléaire afin de pouvoir fiabiliser la démarche d'évaluation des données nucléaires pour les applications, en particulier celle concernant la modélisation des spectres de  $\gamma$  prompts.



# Etude de la fission symétrique de $^{233}\text{U}$

## Sommaire

<b>5.1</b>	<b>Dispositif expérimental</b> . . . . .	<b>130</b>
<b>5.2</b>	<b>Mesure d'un rendement en masse</b> . . . . .	<b>130</b>
<b>5.3</b>	<b>Phénomène de contamination</b> . . . . .	<b>134</b>
<b>5.4</b>	<b>Méthodologie d'analyse</b> . . . . .	<b>139</b>
5.4.1	Analyse du Burn-Up . . . . .	139
5.4.2	Analyse d'un haut rendement en masse ( $Y(A) > 4\%$ ) . . . . .	140
5.4.3	Analyse d'un rendement symétrique . . . . .	145
<b>5.5</b>	<b>Résultats et interprétation</b> . . . . .	<b>151</b>
<b>5.6</b>	<b>Perspectives pour l'étude de la région symétrique sur le spectromètre LOHENGRIN</b> . . . . .	<b>163</b>

## Introduction

*All models are wrong, but some are useful.* Cette citation de George E.P. Box permet de mettre en lumière le sens d'un modèle : une approximation de la nature. Fondamentalement un modèle n'est jamais vrai, au mieux on ne peut l'exclure avec une certaine confiance. Néanmoins ils sont très utiles pour prédire le comportement d'un processus, d'un réacteur ... A ce jour, les modèles de fission permettent de reproduire assez fidèlement l'allure générale des rendements de fission et ainsi mettre en évidence certains mécanismes de ce processus comme on l'a décrit dans le chapitre 1. Afin d'améliorer les incertitudes associées aux rendements, une nouvelle campagne de mesures et un travail sur les corrections des effets "systématiques" ont été effectués [Martin(2013)]. Au cours de ce travail de thèse, on s'est intéressé à la région symétrique de la fission de  $^{233}\text{U}$ . Les mesures de rendements dans cette région (pour une fission induite par neutron thermique) sont issues de techniques de radiochimie. Ici, on souhaite à la fois mesurer les rendements des masses symétriques, mais aussi leurs distributions en énergie cinétique. Ces données fournissent un test pour les modèles qui prédisent ou non la présence de différents modes, dont un mode symétrique (ou superlong). Lors des mesures précédentes, une surestimation des rendements dans la descente à la symétrie par rapport aux évaluations (ou aux calculs) a été observée (voir figure 5.1).

Après une rapide présentation du dispositif expérimental et un rappel de la procédure pour mesurer un rendement en masse sur le spectromètre LOHENGRIN, nous détaillerons les raisons pour lesquelles on peut expliquer l'origine de l'incompatibilité des anciennes mesures avec les évaluations. Ensuite une nouvelle méthode d'analyse sera présentée ainsi que l'interprétation

des résultats sur les rendements et les distributions en énergie cinétique des masses symétriques. Finalement, la nécessité d'améliorer le dispositif expérimental pour obtenir des mesures plus précises et sans ambiguïté sera discutée.

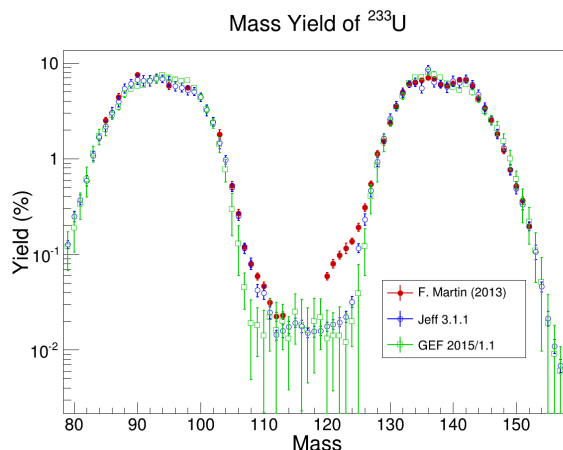


FIGURE 5.1 – Rendements de  $^{233}\text{U}$  issus des mesures de F.Martin suivant la méthode usuelle [Martin(2013)]. On note que les rendements dans la descente vers la symétrie sont supérieurs à ceux des évaluations avec une asymétrie très prononcée. Dans cette région, les calculs issus du code GEF sont très peu précis, malgré un calcul avec  $N_0 = 10^6$  tirages.

## 5.1 Dispositif expérimental

Le spectromètre LOHENGRIN permet une sélection suivant les rapports masse sur charge ionique ( $\frac{A}{q}$ ) et énergie cinétique sur charge ionique ( $\frac{E_k}{q}$ ). On a vu dans le chapitre 2 que pour lever la dégénérescence de la sélection du spectromètre, l'utilisation d'une chambre d'ionisation est nécessaire. Ainsi lorsqu'on souhaite mesurer le rendement d'une masse, on place une chambre d'ionisation au niveau du plan focal de la sortie 1<sup>1</sup>, comme on peut le voir sur la figure 5.2

## 5.2 Mesure d'un rendement en masse

Dans cette section, l'évolution des méthodes pour déterminer un rendement en masse sur le spectromètre de masse LOHENGRIN est présentée.

### Méthode usuelle

Pour un champ magnétique et électrique donné, on obtient uniquement une mesure pour un triplet ( $A$ ,  $q$ ,  $E_k$ ). Un rendement en masse correspond au taux de production induit par le processus de fission pour une masse donnée. L'ensemble des rendements en masse est normalisé à 2<sup>2</sup>. Pour déterminer un rendement en masse, on doit alors effectuer une mesure pour chaque

1. Cette position possède le maximum de résolution en énergie du spectromètre

2. Les particules ternaires ne sont pas considérées dans l'évaluation des rendements.

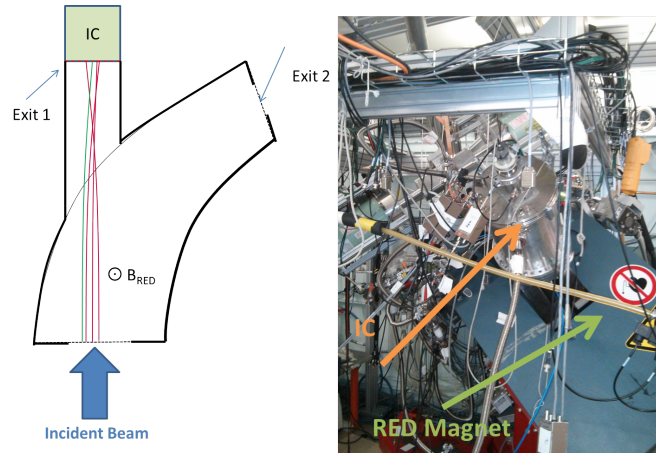


FIGURE 5.2 – Schéma du dispositif expérimental utilisé pour mesurer des rendements en masse sur le spectromètre LOHENGRIN de l'ILL.

charge et énergie cinétique.

$$\mathcal{N}(A) = \sum_q \int_{E_k} \mathcal{N}(A, q, E_k) dE_k \quad (5.1)$$

où  $\mathcal{N}(A, q, E_k)$  est le nombre de coups mesurés par unité de temps.

On remarque immédiatement qu'il est impossible de mesurer cette quantité pour plusieurs raisons. La première repose sur le fait que le spectromètre LOHENGRIN a une résolution en énergie non nulle (qui est aussi dépendante de la longueur de la cible). La seconde provient du manque de temps pour décrire l'ensemble de la distribution. On doit alors faire des compromis. On va commencer par effectuer des mesures par bin d'énergie. On a alors la relation suivante :

$$\mathcal{N}(A, q, E_k) = \frac{N_{ion}(A, q, E_k \pm \Delta E_k)}{t \times \Delta E_k} \quad (5.2)$$

avec  $N_{ion}(A_i, q, E_k \pm \Delta E_k)$  le nombre de coups mesurés par la chambre d'ionisation,  $t$  le temps de mesure et  $\Delta E_k$  la résolution en énergie du spectromètre LOHENGRIN. Cette résolution dépend de l'énergie cinétique ainsi que de l'ouverture à la sortie du condensateur. L'ouverture est contrôlée par des shutters.

$$\Delta E_k = C_{shutter} \times E_k \quad (5.3)$$

où  $C$  ne dépend que du nombre de shutters. Pour un shutter de 3.24 cm,  $C \sim 0.5\%$ . Chaque mesure étant effectuée avec le même nombre de shutters, on peut alors réécrire l'équation (5.2) :

$$\mathcal{N}(A, q, E_k) \propto \frac{N_{ion}(A, q, E_k \pm \Delta E_k)}{t \times E_k} \quad (5.4)$$

Il faut noter que l'acceptance de la chambre d'ionisation est supposée identique pour chaque masse. Autrement dit l'image de la cible ne dépend pas de la masse mesurée. On utilise volontairement une ouverture au niveau de la chambre d'ionisation suffisamment grande pour que l'image de la cible  $y$  soit incluse (au niveau du point focal). Afin de contrôler le temps mort, un

signal provenant d'un pulseur, dont on connaît les caractéristiques (fréquence, stabilité, ...) est injecté dans le système d'acquisition. Ainsi le taux de comptage effectif s'écrit :

$$\mathcal{N}(A, q, E_k) = \frac{N_{ion}(A, q, E_k \pm \Delta E_k)}{E_k} \frac{f_{pulse}}{N_{pulse}(A, q, E_k)} \quad (5.5)$$

Usuellement, la charge ionique et l'énergie cinétique d'un fragment de fission sont deux quantités considérées indépendantes alors l'équation (5.1) s'écrit simplement :

$$\mathcal{N}(A) = \frac{\int_{E_k} \mathcal{N}(A, q^m, E_k) dE_k}{P(q^m | E_k^m)} \quad (5.6)$$

avec  $P(q^m, E_k^m) = \frac{\mathcal{N}(A, q^m, E_k^m)}{\sum_q \mathcal{N}(A, q, E_k^m)}$  la probabilité d'obtenir la charge ionique  $q^m$  pour une énergie cinétique  $E_k^m$ . En effet pour chaque charge ionique, la distribution en énergie est identique. Par conséquent il suffit d'effectuer un scan en énergie cinétique à la charge ionique  $q^m$  et un scan en charge ionique à l'énergie cinétique  $E_k^m$  pour obtenir le rendement de la masse  $A$ <sup>3</sup>.

### Prise en compte de la corrélation énergie cinétique-charge ionique ( $E_k, q$ )

Finalement si l'on suppose que les variables ( $q, E_k$ ) sont corrélées, i.e. que la distribution en énergie cinétique dépend de la charge ionique, alors l'expression (5.1) est plus compliquée. La figure 5.3 illustre l'impact de la corrélation sur la forme du rendement dans le plan ( $E_k, q$ ). Une attention particulière sur cet effet a été portée dans le travail de thèse de F. Martin [Martin(2013)]. Ce phénomène a été traité comme un effet systématique (dépendant de la masse). Pour déterminer son impact, des scans supplémentaires (en énergie cinétique) ont été effectués. Les scans en énergie vont permettre de déterminer la corrélation entre la charge ionique et l'énergie moyenne, qu'on considérera linéaire dans un premier temps.

$$\overline{E_k}(q) = aq + b \quad (5.7)$$

La correction due à la corrélation ( $E_k, q$ ) est présente à travers la valeur de la probabilité  $P(q^m | E_k^m)$ . Cela revient à donner une solution à l'interrogation suivante : quel serait le poids de la charge ionique  $q^m$  si le scan en charge ionique avait été effectué à  $\overline{E_k}(q)$  et non à  $E_k^m$  ? Par conséquent la distribution en charge ionique se réécrit :

$$P(q | \overline{E_k}(q)) \propto P(q | E_k^m) \exp \left( - \frac{(\overline{E_k}(q) - E_k^m)^2}{2\sigma_{E_k}(q)^2} \right) \quad (5.8)$$

Dans cette expression, on approxime la distribution en énergie à une distribution gaussienne. Cette approximation est relativement juste dans le cas où la cible est fine. On fait le calcul avec et sans considérer une corrélation entre l'écart-type de la distribution en énergie cinétique et la charge ionique. Il a été montré dans la thèse de F. Martin que la prise en compte de la corrélation modifiait la valeur du rendement déterminée par la méthode usuelle de 5 % [Martin(2013)]. De même si les scans étaient effectués à une charge  $q^m$  éloignée de la valeur moyenne  $\bar{q}$  alors le biais était encore plus important. L'une des recommandations était alors d'estimer simultanément la corrélation ( $E_k, q$ ) lors de la mesure du rendement d'une masse, car cet effet dépend des caractéristiques de la cible (épaisseur, couverture, ...).

3. Il faut noter que le rôle des variables ( $q, E_k$ ) peut être inversé. Ainsi on peut considérer que pour chaque énergie cinétique, la distribution en charge ionique est identique. On devra alors renormaliser la distribution en énergie cinétique (i.e.  $P(q, E_k^m)$  devient  $P(E_k, q^m)$ ).

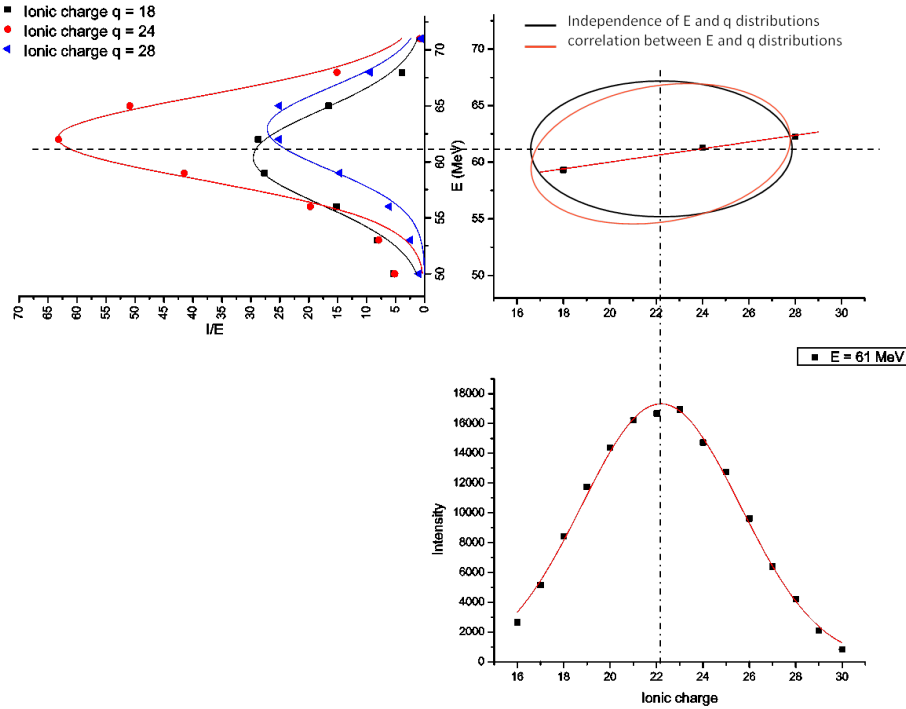


FIGURE 5.3 – Illustration de la corrélation  $(E_k, q)$ . Le rendement qui correspond à l'intégrale dans l'espace  $(E_k, q)$  a une forme d'ellipse dont l'orientation de l'axe principal dépend de la corrélation  $(E_k, q)$ .

### Nouvelle prise de mesure et évaluation d'un rendement en masse

Pour chaque mesure de masse, quatre scans sont effectués. Un scan en charge ionique, à l'énergie cinétique  $E_k^m$  ainsi que trois scans en énergie cinétique aux charges ioniques  $q_{i=1,2,3}$ . Ainsi on peut déterminer la corrélation  $(E_k, q)$  mais aussi évaluer trois fois le rendement d'une même masse :

$$\mathcal{N}(A, q_i) = \frac{\int_{E_k} \mathcal{N}(A, q_i, E_k) dE_k}{P(q_i | \overline{E_k}(q_i))} \quad (5.9)$$

Ces trois mesures de rendements sont corrélées via notamment l'utilisation d'une seule distribution en charge ionique. Pour obtenir la meilleure évaluation du rendement de la masse  $A$  il faut combiner ces trois mesures en prenant en compte le plus fidèlement possible les incertitudes et corrélations associées à ces données.

### Obtention d'un rendement absolu

Pour obtenir un rendement en masse absolu, il faut tout d'abord corriger les taux de comptage de l'évolution de la cible. Par définition, dès qu'une fission a lieu au sein de la cible, de la matière disparaît. Le taux de fission évolue alors au cours du temps. Si le burn-up nucléaire est quasi négligeable au bout d'une semaine, la diffusion de matière par les fragments (appelé aussi sputtering) est loin d'être anodine [Köster *et al.*(2010)]. La durée de vie d'une cible varie entre quelques jours et quelques semaines et dépend notamment de la couverture mise en place pour limiter le sputtering. On détaillera dans l'annexe A la procédure mise en place pour contrôler

l'évolution de la cible. Le taux de comptage extrait se réécrit alors :

$$\widetilde{\mathcal{N}}(A) = \frac{\mathcal{N}(A)}{BU(t)} \quad (5.10)$$

avec  $BU(t)$  le paramètre décrivant l'évolution de la cible au cours du temps.

Pour comparer nos données aux évaluations, ainsi qu'aux modèles, il faut normaliser les rendements extraits. Au cours du travail de thèse de F. Martin, le choix d'une autonormalisation a été effectuée :

$$Y(A) = \frac{\widetilde{\mathcal{N}}(A)}{\sum_A \widetilde{\mathcal{N}}(A)} \quad (5.11)$$

Ceci a l'avantage de fournir aux évaluateurs des données indépendantes (ainsi que la matrice de covariance de ce lot de données). Dans ce travail, on a normalisé les rendements hauts mesurés ( $Y(A) > 4\%$ ) à ceux déterminés par F. Martin :

$$Y(A) = k_{norm} \times \widetilde{\mathcal{N}}(A) \quad (5.12)$$

Au cours de cette thèse, on s'est intéressé à la mesure de rendement dans la région de la symétrie. Malheureusement il existe jusqu'à présent une ambiguïté dans le signal de la chambre d'ionisation qui rend très difficile l'extraction des données issues des masses symétriques. Il semble que cela provienne d'un effet de contamination propre au spectromètre de masse LOHENGRIN.

### 5.3 Phénomène de contamination

Dans les mesures antérieures [Martin(2013)], on a observé sur des distributions en énergie cinétique pour des masses inférieures à 130, l'apparition d'une deuxième composante à basse énergie. De plus sur le spectre issu de la chambre d'ionisation, la tâche correspondant à la masse mesurée s'élargissait d'autant plus que l'énergie cinétique était faible. Il est légitime de se poser la question d'une éventuelle contamination du faisceau extrait par le spectromètre LOHENGRIN.

On a vu dans la section 2.3 que l'aimant principal du spectromètre permettait une sélection en :

$$\frac{Av}{q} \quad (5.13)$$

avec  $A$  la masse,  $v$  la vitesse et  $q$  la charge ionique du fragment de fission. Le condensateur lui va sélectionner les ions satisfaisant la relation :

$$\frac{Av^2}{q} \quad (5.14)$$

La question posée est la suivante : est-il possible d'avoir des masses autres que celles imposées par les rapports  $\frac{A}{q}$  et  $\frac{E_k}{q}$  au niveau du plan focal ? Supposons qu'on s'intéresse au fragment de fission  $(A_0, q_0, v_0)$ , alors les fragments satisfaisant la relation (5.14) seront sélectionnés par l'aimant principal. Or expérimentalement, on cherche un contaminant à la même position dans la chambre d'ionisation, i.e. avec la même énergie cinétique :

$$Av^2 = A_0v_0^2 \quad (5.15)$$

Par conséquent, la sélection du condensateur (5.14) implique qu’au sein du déflecteur électrostatique la charge du fragment de fission et du contaminant soit identique :  $q = q_0$ . Cette condition est incompatible avec la sélection de l’aimant principal. En effet on obtiendrait l’égalité suivante :

$$AA_0 = A_0^2 \quad (5.16)$$

L’hypothèse mise en avant est la suivante : le contaminant proviendrait d’un changement de charge ionique entre l’aimant principal et le condensateur. Il obéit ainsi à la relation suivante :

$$A_1 = \left( \frac{q_{pre}}{q_0} \right)^2 A_0 \quad (5.17)$$

avec  $q_{pre}$  la charge ionique du contaminant avant l’aimant principal. Pour vérifier cette hypothèse, une première expérience a eu lieu. Durant cette campagne de mesure, la pression à l’intérieur du spectromètre a été modifiée. A cause des conditions de sécurité que doit remplir LOHENGRIN, il n’est pas possible d’insérer du gaz dans le condensateur et l’aimant principal. Ainsi pour augmenter la pression au sein du spectromètre, on a arrêté durant quelques minutes certaines pompes à vide. On a pu dégrader la pression d’un facteur 2 environ, puis revenir à la pression nominale pour vérifier la reproductibilité des données. La figure 5.4 illustre l’effet de la pression à l’intérieur du spectromètre sur la distribution en énergie cinétique de la masse 128. Ceci a permis de mettre en évidence la présence de contaminant (ici la masse 142). De même, ce supposé contaminant a une distribution en énergie cinétique qui est compatible avec la composante à basse énergie.

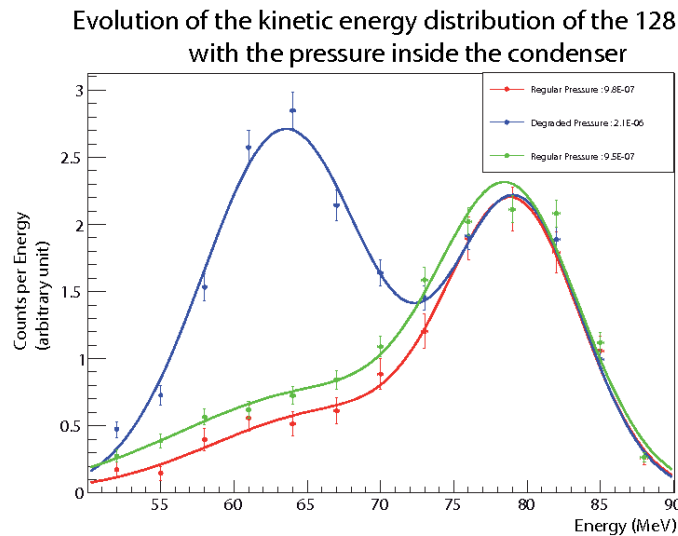


FIGURE 5.4 – Mise en évidence d’un contaminant en modifiant la pression de gaz résiduel présent dans le condensateur. Les distributions en rouge et verte ont été mesurée à une pression “normale” de  $10^{-6}$  mbar. La distribution en bleue correspond à une pression dégradée de  $2 \cdot 10^{-6}$ .

Ce phénomène de changement de charge, et de contamination n’est visible que lors de la mesure de bas rendements. En effet les hauts rendements sont contaminés par des masses provenant de la région symétrique et très asymétrique. Ce phénomène restant rare, la contamination est négligeable. Au contraire, les masses de la région symétrique sont contaminées par les masses ayant un rendement élevé. La correction à appliquer n’est alors plus négligeable.

La déformation à basse énergie de la distribution en énergie cinétique semble provenir du phénomène de contamination. Néanmoins lorsqu'on compare la largeur de cette composante à celle du contaminant, on note que la première est plus large que la suivante. La figure 5.5 illustre l'élargissement du contaminant<sup>4</sup>. Un autre élément qui porte à confusion est que si on élimine complètement cette composante, i.e. qu'on la considère provenant uniquement d'un contaminant, on ne retrouve pas les rendements en masse mesurés par radiochimie, qui ne souffrent pas de contamination de ce type. Il faut alors être prudent et ne pas considérer cette composante comme issue uniquement d'un contaminant.

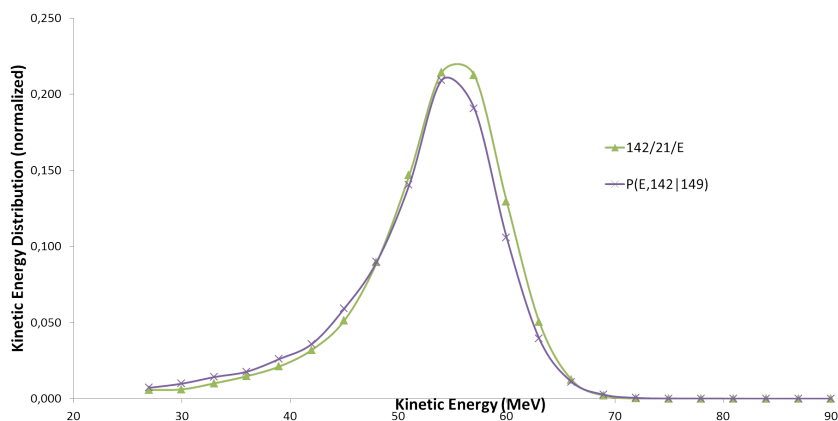


FIGURE 5.5 – Élargissement de la distribution en énergie cinétique d'une masse lorsque l'image n'est plus centrée à l'entrée de la chambre d'ionisation ( $\sim 7\%$ ). La courbe verte correspond à la mesure directe de la distribution en énergie cinétique de la masse  $A = 142$ . La courbe violette correspond à la mesure de la masse  $A = 142.2$  présente lors de la mesure de la masse  $A = 149$ .

Finalement cet effet de contamination est très visible sur les distributions en charge ionique. La distribution est très chaotique comme on peut le voir sur la figure 5.6. Pour corriger cette distribution, un indicateur de présence de contamination a été construit. Lorsqu'on applique la formule (5.17), la masse obtenue n'est pas entière. Cela signifie que l'image du contaminant n'est pas entièrement comprise dans la fenêtre d'entrée de la chambre d'ionisation. Cependant le profil de l'image de la cible est connu. En effet pour régler le spectromètre et s'assurer que l'image est bien centrée au niveau du point focal (i.e. la chambre d'ionisation) on effectue le scan d'un point (d'une masse à une charge et une énergie cinétique donnée) en fonction du champ magnétique de l'aimant principal. C'est ce dernier qui permet de régler la position de l'image de la cible en fonction de la masse. La figure 5.7 montre le profil de l'image ainsi que l'ouverture de la chambre d'ionisation. La position du contaminant  $y$  est aussi représentée dans le cas où sa masse est non entière. Ce profil est proche d'une gaussienne sur un fond continu. La première hypothèse qu'on fait est de supposer que le contaminant a le même profil que la masse d'intérêt.

4. Cette figure présente le cas où la sélection de LOHENGRIN à travers le rapport  $\frac{A}{q}$  ne correspond pas à des masses entières. Dans ce cas l'image de la masse n'est pas entièrement comprise dans la fenêtre d'entrée de la chambre d'ionisation. On constate alors un élargissement de la distribution en énergie cinétique qui traduit la limite des conditions de Gauss. Le phénomène de contamination est analogue à cette observation. Autrement dit les aberrations géométriques sont plus importantes lorsque la trajectoire d'un fragment de fission n'est pas centrée.



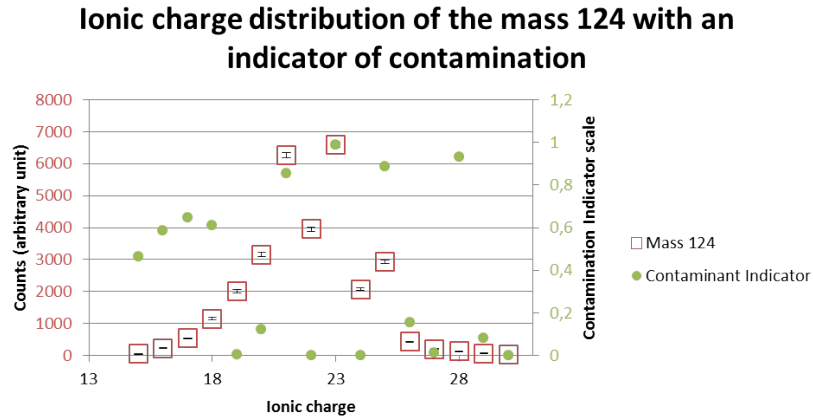


FIGURE 5.6 – Distribution en charge ionique de la masse 124. Un indicateur a été construit pour déterminer la présence d’un contaminant.

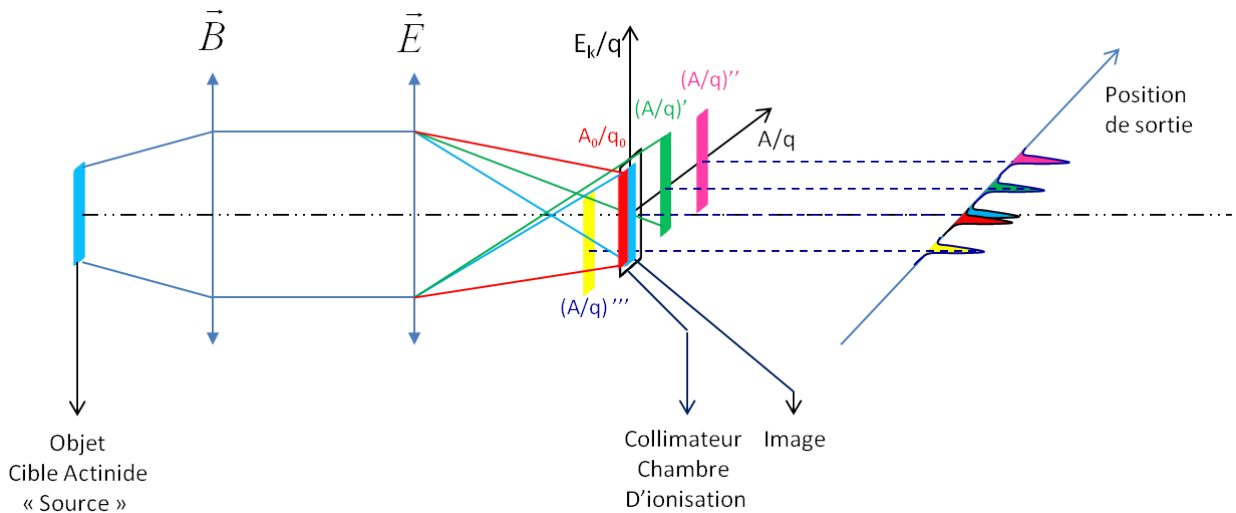


FIGURE 5.7 – Illustration du profil de l’image du contaminant. Une partie de l’image du contaminant est détectée par la chambre d’ionisation.

Il faut savoir que ce profil dépend très peu de la masse. Cette hypothèse revient à dire que le changement de charge ne modifie pas le profil. L’indicateur noté  $P_{Im}$ , s’écrit alors :

$$P_{Im} = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{L/2} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{x-x_{A_1}}{\sigma}\right)^2\right) dx - \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{-L/2} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{x-x_{A_1}}{\sigma}\right)^2\right) dx \tag{5.18}$$

On rappelle que la fenêtre d’entrée de la chambre d’ionisation est placée perpendiculairement à l’axe des masses. Elle est centrée en 0, avec une longueur  $L = 1$  cm. La largeur de l’image de la masse est déterminée à l’aide d’un scan selon le champ magnétique de l’aimant principal. En effet la déviation dans cet axe des masses dépend de l’aimant principal. Cette largeur dépend

de la taille de la cible ; ici  $\sigma = 0.17$  cm. Finalement le paramètre  $x_{A_1}$  correspond à la position de la masse contaminante  $A_1 = \left(\frac{q_{pre}}{q_0}\right)^2 A_0$  sur l'axe des masses :

$$x_{A_1} = (A_1 - \widetilde{A}_1) \times \frac{324}{\widetilde{A}_1} \quad (5.19)$$

où  $\widetilde{A}_1$  est la masse entière la plus proche de  $A_1$ . Le paramètre 324 reflète la dispersion du spectromètre LOHENGRIN : une dispersion de 1 % en rigidité magnétique équivaut à une dispersion de 3.24 cm. On constate alors que l'indicateur reflète la probabilité que l'image du contaminant soit compatible avec l'entrée de la chambre d'ionisation.

Cet indicateur doit aussi tenir compte du rendement du contaminant à la charge  $q_{pre}$  et à l'énergie cinétique  $E_k$  du scan en charge ionique. Il faut savoir que sur l'ensemble d'un scan, les contaminants présents sont relativement proches en masse et donc en rendement. L'impact de la position de l'image du contaminant dans la chambre d'ionisation est de loin le plus important quant à la valeur de l'indicateur.

On s'attend après l'application de cet indicateur à retrouver une distribution en charge ionique proche d'une gaussienne.

## 5.4 Méthodologie d'analyse

L'analyse qui va être présentée correspond à celle mise en place pour l'étude des rendements de  $^{233}\text{U}$ . Cette section est divisée en trois parties :

- Analyse du Burn-Up (BU) de la cible
- Analyse des rendements hauts ( $Y(A) > 4\%$ ) en tenant compte des corrélations
- Analyse des rendements faibles ( $Y(A) < 4\%$ ) au voisinage de la symétrie et application des corrections aux contaminants

### 5.4.1 Analyse du Burn-Up

Le Burn-UP ou BU, permet d'évaluer l'évolution de la cible. Cette quantité permet de lier directement la mesure d'une masse  $A_i$  avec une masse  $A_j$ . Il est donc très important de déterminer son évolution. Concrètement au cours des expériences sur le spectromètre de masse LOHENGRIN, le BU est décrit par la masse 136. On effectue le même scan en énergie et en charge ionique tout au long de l'expérience. La figure 5.8 montre l'évolution de la charge ionique moyenne, de l'énergie cinétique moyenne ainsi que de leurs écarts-types au cours du temps (en jours).

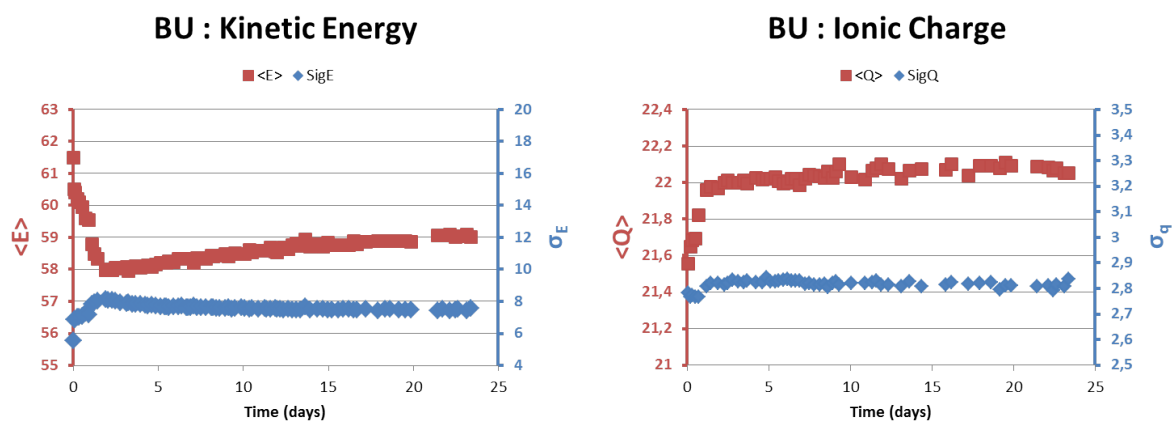


FIGURE 5.8 – Évaluation de la stabilité de la cible à l'aide de la distribution de la charge ionique et de l'énergie cinétique de la masse 136. Après un peu plus d'une journée, la cible évolue très lentement au cours du temps.

Lors des premiers jours, la cible évolue très rapidement à cause de la perte de matière par sputtering ainsi que de la température très élevée. Au bout d'environ deux jours, la cible atteint un équilibre thermo-chimique. L'évolution est alors plus conforme aux attentes : la cible perdant de la matière, l'énergie moyenne augmente à l'inverse de la largeur de la distribution cinétique qui indique que la cible s'affine. La cible a une évolution très lente et est donc d'une très grande stabilité. Les fluctuations locales signent la non perfection du spectromètre LOHENGRIN (instabilité du champ électromagnétique). Ces fluctuations sont plus visibles sur la courbe du BU (voir figure 5.9).

Les incertitudes pour chaque point de BU correspondent à l'incertitude statistique et systématique. L'incertitude systématique traduit les fluctuations du spectromètre LOHENGRIN et

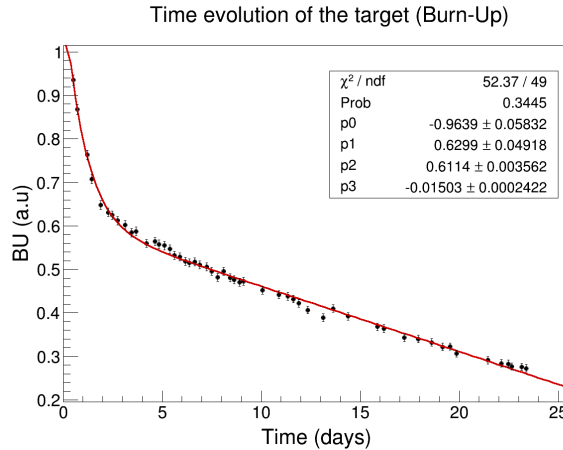


FIGURE 5.9 – Évolution de l'état de la cible (ou burn-up) en fonction du temps. Une allure exponentielle suivie d'une dépendance linéaire est modélisée.

de la cible (pression, température, ...). Le détail sur l'analyse du BU ainsi que des paramètres modélisant l'évolution de la cible est présenté dans l'annexe A.

#### 5.4.2 Analyse d'un haut rendement en masse ( $Y(A) > 4\%$ )

On a vu dans la section 5.2 comment la prise de mesure était effectuée et les étapes nécessaires pour obtenir un rendement en masse. Pour l'analyse on va utiliser la méthode dite de "Toy Monte Carlo". Derrière ce nom étrange se cache une technique d'analyse assez simple. Expérimentalement pour une masse on mesure différentes distributions en énergie cinétique et en charge ionique. Pour certaines masses ces mesures peuvent avoir eu lieu à des temps très différents. L'idée est de rejouer ces données expérimentales autant de fois qu'on le souhaite. En effet chaque mesure (i.e pour une charge ionique et une énergie cinétique) on extrait un taux de comptage  $\mathcal{N}(A, q_i, E_i)$  avec une incertitude statistique  $\sigma_{\mathcal{N}} = \sqrt{\mathcal{N}}$ . D'après la loi des grands nombres, ces points suivent chacun une loi normale. Un tirage aléatoire de tous les points définissant une distribution (en charge ionique, ou en énergie cinétique) permet alors d'obtenir une nouvelle distribution. Le schéma 5.10 illustre cette procédure. À chaque nouveau jeu de données (i.e des points de mesures des distributions en énergie cinétique et en charge ionique) on effectue la correction de corrélation  $(E_k, q)$  ainsi que du BU. L'avantage de cette technique est de faciliter la propagation de toutes les sources d'incertitude. En effet dans le cas où l'on corrige nos données de la corrélation  $(E_k, q)$ , la correction dépend des distributions initiales (valeur moyenne, écart-type). La propagation des incertitudes devient alors très complexe.

Dans le cas où l'on ne considère pas les corrélations  $(E_k, q)$ , la propagation des incertitudes est plus facile à écrire. On peut dès lors comparer la précision de la méthode Monte Carlo avec un calcul analytique du rendement en masse  $\tilde{\mathcal{N}}(A|q_i)$ . La figure 5.11 présente l'écart entre la valeur moyenne et l'écart type issus du calcul analytique avec le calcul Monte Carlo. On obtient un écart de 0.05 % pour la valeur moyenne pour un nombre de jeux de données créés de 100000 et de 0.5 % d'écart pour l'incertitude. En sachant que l'incertitude d'un rendement de masse (pour une seule distribution en charge ionique et énergie cinétique) est de l'ordre de 1.5 %, on en déduit que la précision atteinte est très performante et permet de valider cette démarche dans le

cas où l'on tient compte de la corrélation entre la charge ionique et l'énergie cinétique moyenne ( $E_k, q$ ).

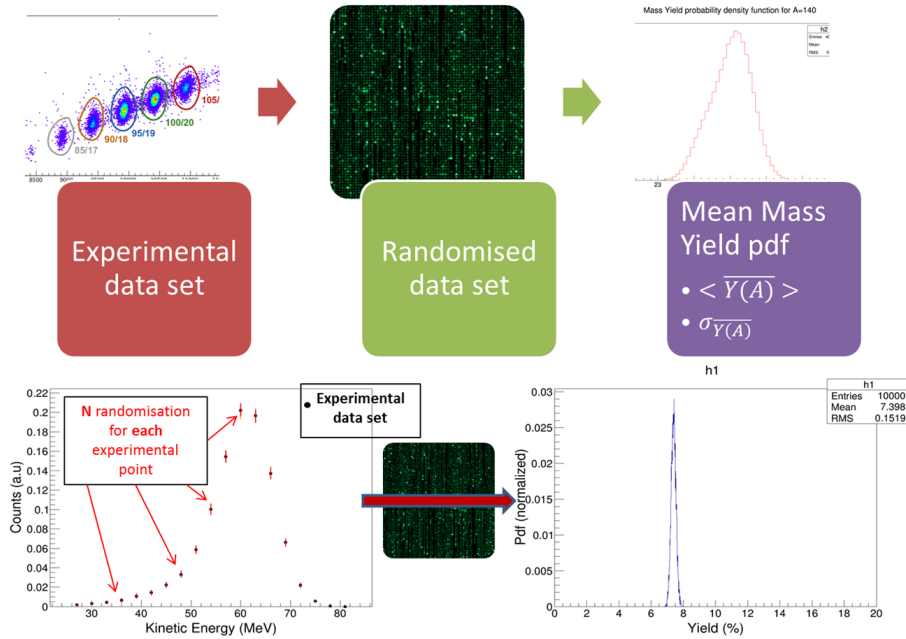


FIGURE 5.10 – Schéma de l'analyse. À partir des données expérimentales on fait  $N$  simulations de l'expérience. Finalement on obtient une évaluation du rendement moyen.

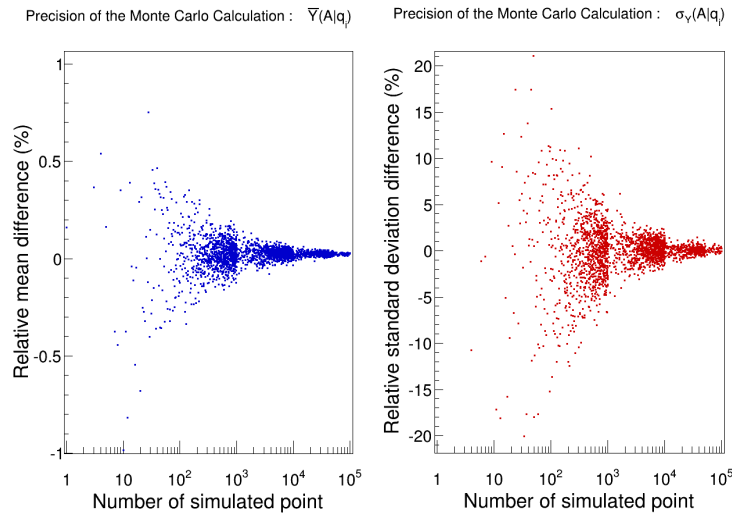


FIGURE 5.11 – Précision du calcul “Toy Monte Carlo” pour la détermination de la valeur moyenne (gauche) et de l'incertitude (droite) d'un rendement en masse  $\tilde{N}(A|q_i)$ .

On rappelle que pour chaque distribution en énergie cinétique (donc à différentes charges ioniques) on obtient un rendement en masse  $\tilde{N}(A|q_i)$ . Un rendement en masse est donc la

moyenne des  $\widetilde{\mathcal{N}}(A|q_i)$ . Il se trouve que malgré la prise en compte des corrélations, toutes les mesures ne donnent pas exactement le même rendement. Il y a deux arguments à cela. Le premier provient de la reproductibilité du spectromètre LOHENGRIN. On a vu précédemment qu'il existait une incertitude systématique de l'instrument. Ainsi lorsqu'on mesure la même masse mais à des temps très différents, l'évolution de la cible et de l'instrument ne nous autorise pas à déterminer exactement la même valeur du rendement à la seule incertitude statistique près. Le second argument concerne l'hypothèse linéaire de la corrélation entre la charge ionique et l'énergie cinétique moyenne qui n'est sans doute pas suffisante. Dans cette analyse, on ne considère pas d'évolution de l'écart-type en énergie cinétique avec la charge ionique  $\sigma_{E_k}(q)$ . En effet il est clair qu'il existe une corrélation entre ces paramètres, mais l'approximation linéaire est incorrecte. Du fait du nombre limité de mesures de distributions en énergie cinétique, seule une régression linéaire n'a de sens d'un point de vue statistique (sinon on est en manque de degrés de liberté). Néanmoins, la combinaison de l'ensemble des mesures pour une même masse permet d'obtenir des résultats assez précis. L'incertitude du rendement moyen provient majoritairement de l'écart entre les différents  $\widetilde{\mathcal{N}}(A|q_i)$  plutôt que de l'incertitude intrinsèque de ces rendements. Autrement dit, l'incertitude du rendement moyen reflète une part de systématique. La figure 5.12 illustre les trois estimateurs permettant de déterminer un rendement. Le premier (points bleus) est celui ne prenant pas en compte la corrélation  $(E_k, q)$ . Le second (points rouges) tient compte de la corrélation  $(E_k, q)$  et  $(\sigma_{E_k}, q)$ . Le troisième (points verts) ne considère que la corrélation  $(E_k, q)$ . C'est ce dernier qui permet d'obtenir des résultats minimisant la dispersion des données. On choisira alors cet estimateur pour déterminer la valeur des rendements en masse.

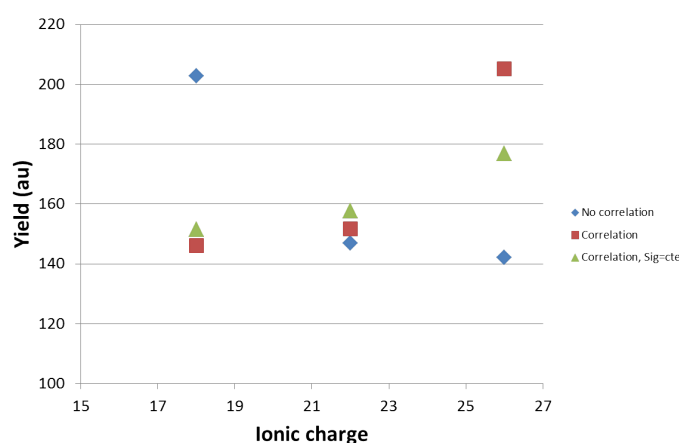


FIGURE 5.12 – Évaluation du rendement d'une masse à l'aide de trois méthodes. Le meilleur estimateur est celui pour lequel seule la corrélation  $(E_k, q)$  est prise en compte.

La figure 5.13 illustre ainsi la détermination du rendement moyen de la masse 140 et de la masse 134 à l'aide de 3 et 6 scans en énergie cinétique effectués à des temps très différents !

On note que la prise en compte de la corrélation améliore sensiblement la compatibilité des rendements  $\widetilde{\mathcal{N}}(A|q_i)$ . Ceci permet de valider la nécessité de tenir compte de cet effet pour déterminer, avec le moins de biais, le rendement moyen associé à une masse obtenu sur le spectromètre de masse LOHENGRIN. On remarque aussi que la distribution associée à la méthode perturbative, pour laquelle on suppose une densité de probabilité gaussienne, est une approche pour laquelle une partie de l'information est lavée (asymétrie de la pdf, ...).

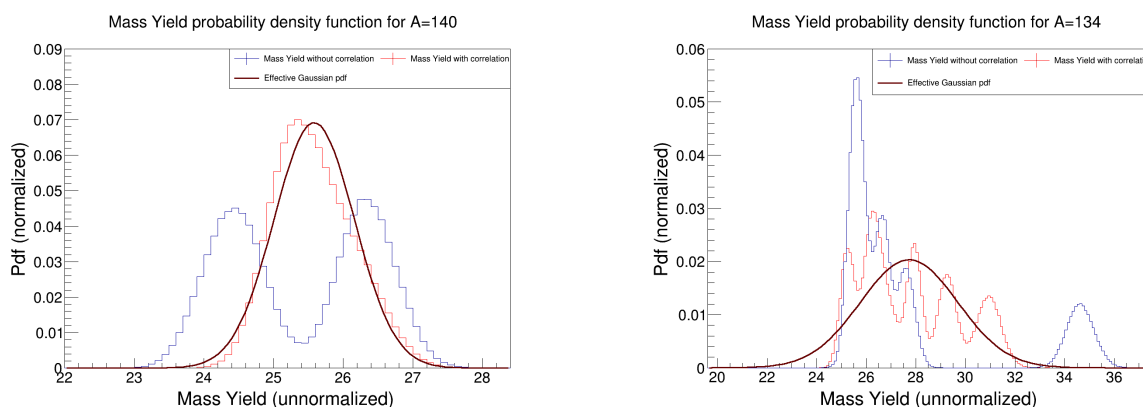


FIGURE 5.13 – Détermination du rendement en masse moyen pour  $A = 140$  (à gauche) et  $A = 134$  (à droite). On observe l'impact de la corrélation sur la mesure du rendement. L'incertitude finale prend en compte la part de systématique due à l'instrument.

La figure 5.14 présente l'écart entre le rendement déterminé avec et sans tenir compte de la corrélation, ainsi que des incertitudes liées à ces deux méthodes. On note alors que la prise en compte de la corrélation ne biaise pas la valeur moyenne, mais permet d'améliorer sensiblement l'incertitude du rendement mesuré. Or pour la suite, et la mesure des rendements des masses symétriques, une seule mesure de distribution en énergie cinétique a eu lieu. L'incertitude due à la non prise en compte de la corrélation sera déterminée par l'écart-type moyen des rendements (hauts) évalués en tenant compte de la corrélation. La figure 5.15 montre la valeur des coefficients de corrélation en fonction de la masse. Pour ces mesures utilisant une cible fine avec un dépôt évaporé de tantale, on discerne une évolution monotone du coefficient de corrélation en fonction de la masse, ce qui n'est pas du tout le cas pour des cibles plus épaisses ( $120 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ ) recouvertes d'une feuille de nickel (voir figure 5.16). La conclusion de ces différentes expériences est que les corrélations ( $E_k, q$ ) proviennent des effets électroniques et de perte d'énergie induits par la cible et sa couverture.

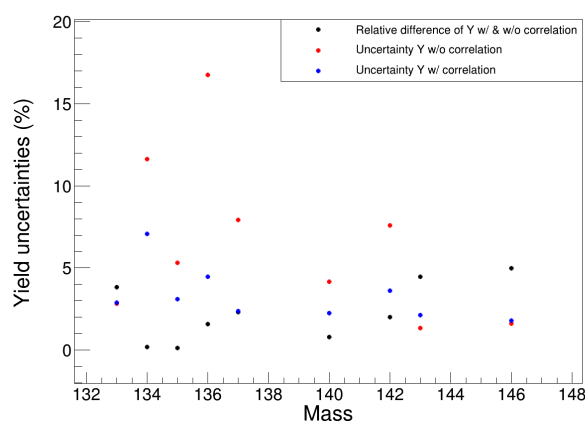


FIGURE 5.14 – Évolution des incertitudes suivant la prise en compte de la corrélation entre l'énergie cinétique moyenne et la charge ionique. Les rendements calculés avec la corrélation ne biaisent pas la valeur du rendement, mais réduisent d'un facteur 2 son incertitude.

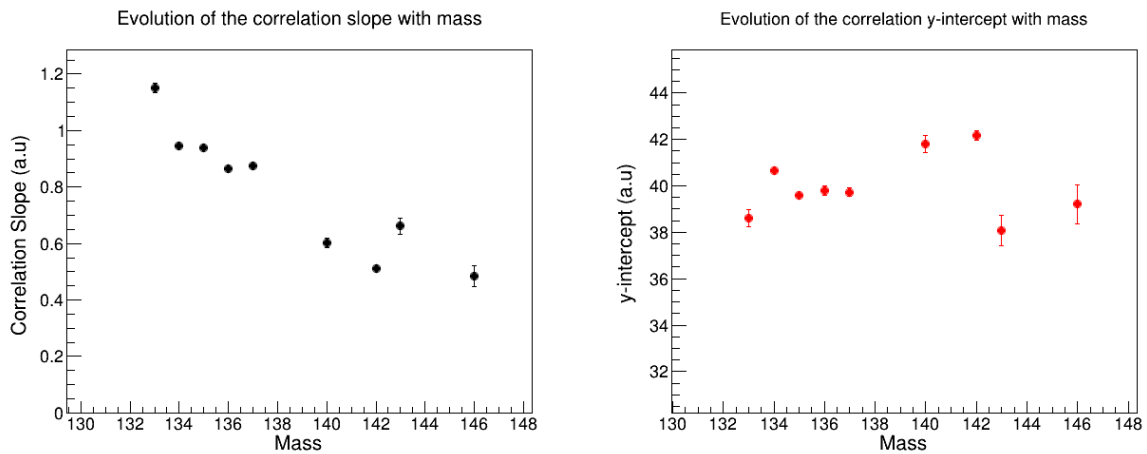


FIGURE 5.15 – Évolution des coefficients de la corrélation entre l'énergie cinétique moyenne et la charge ionique en fonction de la masse.

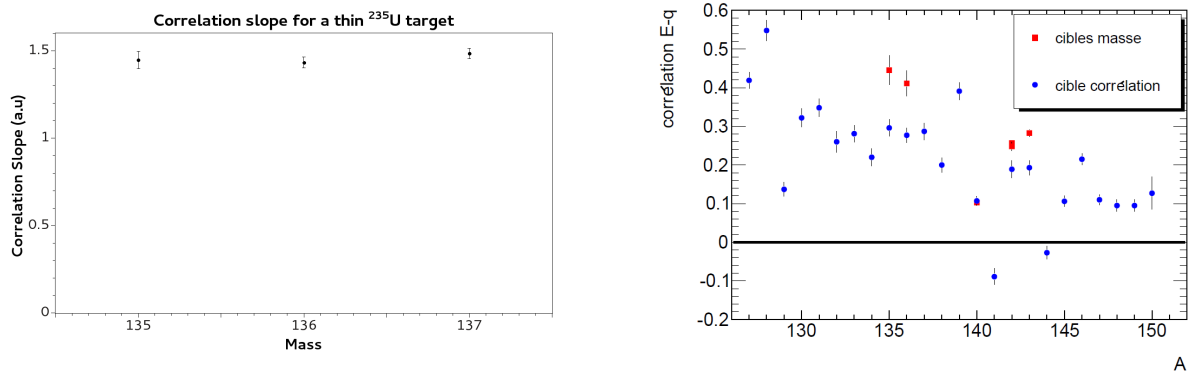


FIGURE 5.16 – À gauche : évolution des coefficients de la corrélation entre l'énergie cinétique moyenne et la charge ionique en fonction de la masse pour une cible épaisse de  $^{233}\text{U}$  (figure issue de la référence [Martin(2013)]). À droite : évolution des coefficients de la corrélation entre l'énergie cinétique moyenne et la charge ionique en fonction de la masse pour une cible fine de  $^{235}\text{U}$ .



### 5.4.3 Analyse d'un rendement symétrique

On a vu dans la section 5.3 que les masses symétriques étaient contaminées par des masses plus lourdes. Il est nécessaire d'appliquer des corrections afin d'évaluer leur rendement. Dans un premier temps, nous présenterons les différentes mesures qui permettent d'identifier et qualifier les contaminants. Dans un second temps, les deux méthodes de soustraction du contaminant utilisées afin de déterminer le rendement et la distribution en énergie cinétique de la masse symétrique seront comparées. Afin d'extraire la distribution en énergie cinétique de la masse symétrique, on utilise deux méthodes. La première, appelée méthode "raw" repose sur une soustraction brute de la distribution expérimentale avec la distribution en énergie cinétique des contaminants. La seconde, appelée méthode "soft" tient compte des coefficients de changements de charge, ainsi que de l'indicateur construit précédemment (voir section 5.3).

#### Identification et quantification du contaminant

Avant de décrire les deux méthodes utilisées pour extraire la distribution en énergie cinétique du contaminant, différentes mesures ont été effectuées afin de s'assurer de la validité des hypothèses sur l'origine des contaminants.

Premièrement lorsqu'on applique la formule (5.17), le contaminant est soit un produit de fission "léger" ou un produit lourd. Or sur un spectre issu de la chambre d'ionisation, il est très aisé d'identifier le contaminant léger. En effet, pour une même énergie cinétique, la perte d'énergie dans la chambre d'ionisation n'est pas identique. Cet effet de calibration illustré par la figure 5.17 permet d'identifier le contaminant "léger". La figure 5.18 présente un spectre issu de la chambre d'ionisation. On note alors qu'à haute énergie cinétique, les fragments de fission ne suivent pas la même courbe de calibration.

Le contaminant "lourd" est quant à lui plus difficile à identifier. La figure 5.19 présente le cas où la masse symétrique et le contaminant sont indissociables.

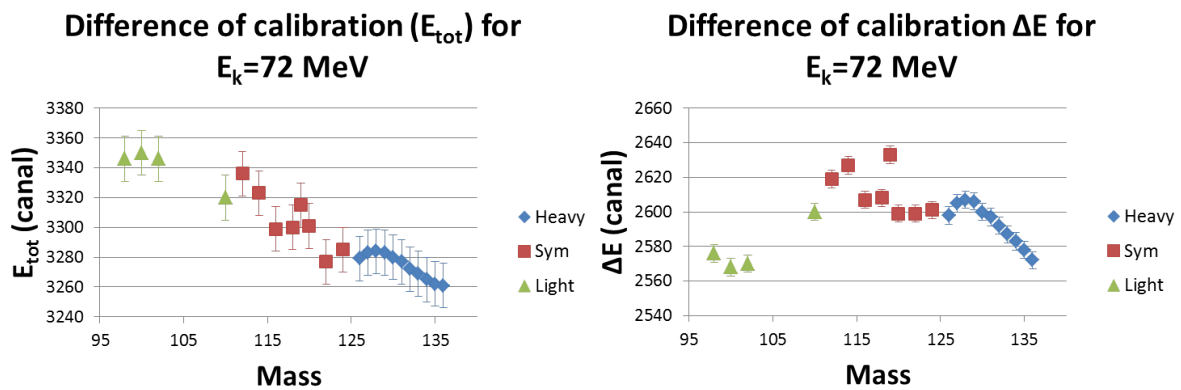


FIGURE 5.17 – Différence de calibration (en canaux) pour une même énergie cinétique selon la masse du fragment. À gauche : les points correspondent à l'énergie totale perdue dans la chambre d'ionisation. À droite : les points correspondent à l'énergie perdue dans la première partie de la chambre d'ionisation.

Afin de s'assurer que le contaminant qu'on observe est bien celui attendu, une identification

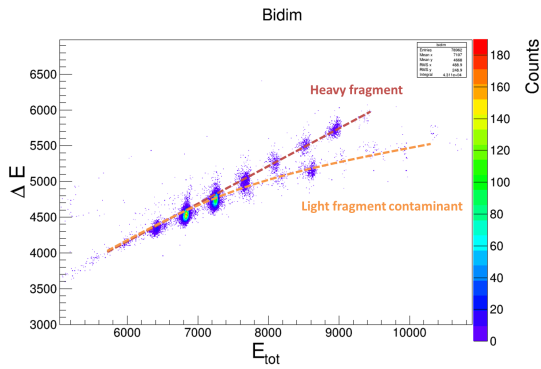


FIGURE 5.18 – Spectre issu de la chambre d’ionisation. On remarque alors que le contaminant léger se trouvent sous la tache identifiant la masse d’intérêt.

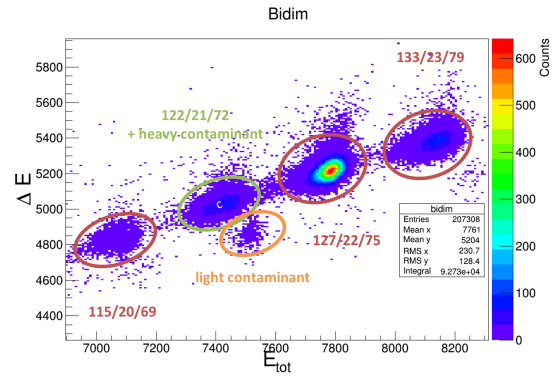


FIGURE 5.19 – Spectre issu de la chambre d’ionisation. On remarque alors que le contaminant lourd ne peut pas être dissocié de la masse d’intérêt.

par spectrométrie  $\gamma$  a été effectuée. On a mesuré la distribution en énergie cinétique de la masse  $A = 125$  à la charge ionique  $q = 24$ , qui est contaminée par la masse  $A = 136$ <sup>5</sup>. Pour identifier le contaminant on a utilisé la désexcitation du  $^{136}\text{Xe}$  qui possède un état  $\mu\text{s}$  isomère. Une coïncidence entre la chambre d’ionisation et les détecteurs  $\gamma$  permet d’obtenir une parfaite identification de ce contaminant<sup>6</sup>. La masse symétrique est quant à elle identifiée à l’aide de deux transitions  $\gamma$ ,  $E_\gamma = 1087.8$  keV et  $E_\gamma = 805.5$  keV provenant de la désexcitation d’un état  $\mu\text{s}$  isomère du  $^{125}\text{Sn}$ . La figure 5.20 présente les résultats. Les carrés rouges et les triangles verts correspondent au  $^{125}\text{Sn}$ . On note alors que la courbe bleue, issue de la mesure par spectroscopie  $\gamma$  est en accord avec la distribution en énergie cinétique mesurée à l’aide de la chambre d’ionisation, où la masse  $A = 136$  n’est pas un contaminant (mesure directe). La courbe violette en pointillé, correspond à la spectroscopie  $\gamma$  mesurée dans le cas où le  $^{136}\text{Xe}$  n’est pas un contaminant (mesure directe). La courbe noire est la distribution en énergie cinétique de la masse  $A = 125$ . Finalement la courbe orange correspond à la distribution en énergie cinétique de la masse symétrique déduite de la méthode “raw” qu’on traitera ci-après. On note alors que le contaminant correspond bien à la masse  $A = 136$  et que sa distribution ne semble pas être différente de celle mesurée directement. De plus la mesure du  $^{125}\text{Sn}$  semble être en désaccord avec la méthode de décontamination utilisée. Néanmoins les larges incertitudes et l’utilisation uniquement de deux transitions  $\gamma$  nous indique d’être prudents quant à la conséquence de cette mesure.

En effet, une autre mesure semble au contraire valider le protocole de décontamination mis en place. Lors de la mesure de la masse  $A = 111$ , le contaminant lourd attendu est la masse  $A = 122$ . Or celle-ci est produite avec le même rendement que la masse d’intérêt, le changement de charge restant un phénomène rare, on ne s’attend pas à observer une telle contamination. Toutefois, comme on peut le voir sur la figure 5.21 (à droite) une contamination est présente et correspond à la masse 133 qui a perdu simultanément deux électrons. Du fait de l’écart important entre ce contaminant et la masse symétrique, il est possible de dissocier complètement ces deux masses pour toute la distribution en énergie. La figure 5.22 présente le résultat de l’analyse tache

5. À noter que la masse  $A = 136$  n’est pas sélectionnée par le spectromètre LOHENGRIN à travers les rapports  $\frac{A}{q}$  et  $\frac{E}{q}$ .

6. Notons que ces mesures ont eu lieu au niveau de la sortie 2.

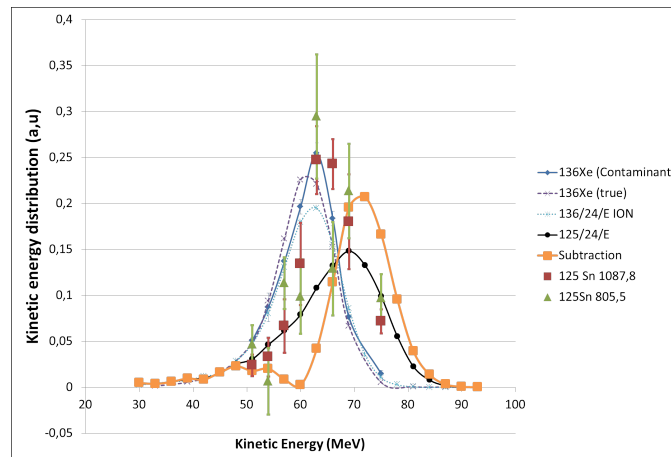


FIGURE 5.20 – Distribution en énergie cinétique de la masse  $A = 125$ . Le contaminant est bien identifié comme étant la masse  $A = 136$ . Il semble néanmoins que la méthode d'extraction de la distribution en énergie cinétique de la masse symétrique ne soit pas en accord avec la mesure par spectroscopie  $\gamma$  du  $^{125}\text{Sn}$ .

par tache, ainsi que de la méthode de décontamination. On remarque alors que la méthode mise en place permet de retrouver le résultat expérimental.

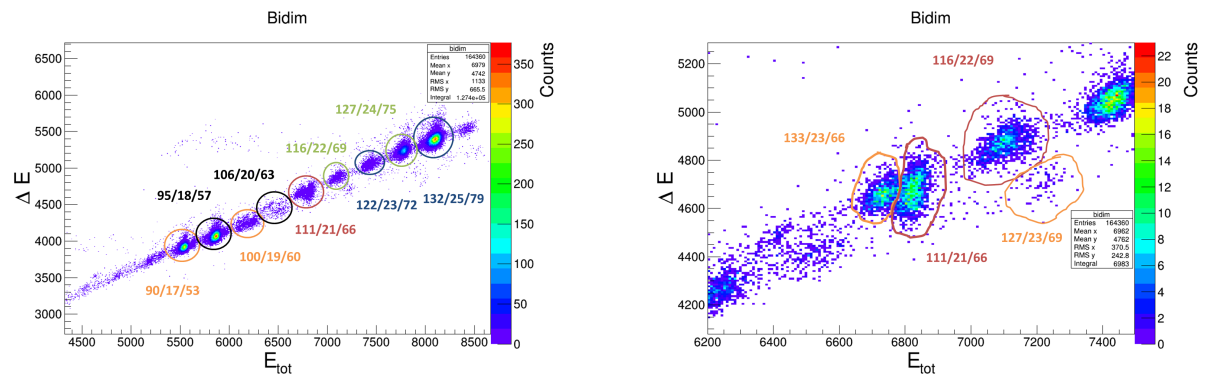


FIGURE 5.21 – Spectre issu de la chambre d'ionisation pour la masse  $A = 111$ . À gauche : identification des tâches. À droite : zoom autour de 66 MeV d'énergie cinétique ; séparation de la masse symétrique et du contaminant.

Enfin, une dernière expérience a eu lieu afin de mettre en évidence la multiplicité du changement de charge. Lors d'une collision l'ion peut perdre ou gagner plusieurs électrons simultanément<sup>7</sup>. Pour y parvenir, on a réglé le "main magnet" de sorte qu'il sélectionne la masse  $A$  à la charge ionique  $q_{ref}$ . Ensuite on règle le champ électrique de sorte à sélectionner une énergie  $E_k$  et les charges ioniques  $q_{final} = q_{ref} \pm 2, q_{ref} \pm 1, q_{ref}$ . Ainsi on détermine la probabilité de capturer ou de perdre 1 ou 2 électrons. On utilise pour déterminer cette quantité les transitions  $\gamma$  de l'état isomère du  $^{136}\text{Xe}$ ,  $^{132}\text{Te}$  et du  $^{98}\text{Y}$ . En effet à l'aide d'une coïncidence entre la chambre

7. Notons qu'ici la pression est très faible. Les sections efficaces décrites dans le chapitre 3 le sont pour un gaz dans lequel un certain équilibre existe. La nature du gaz étant inconnu, on ne peut utiliser le formalisme développé précédemment.

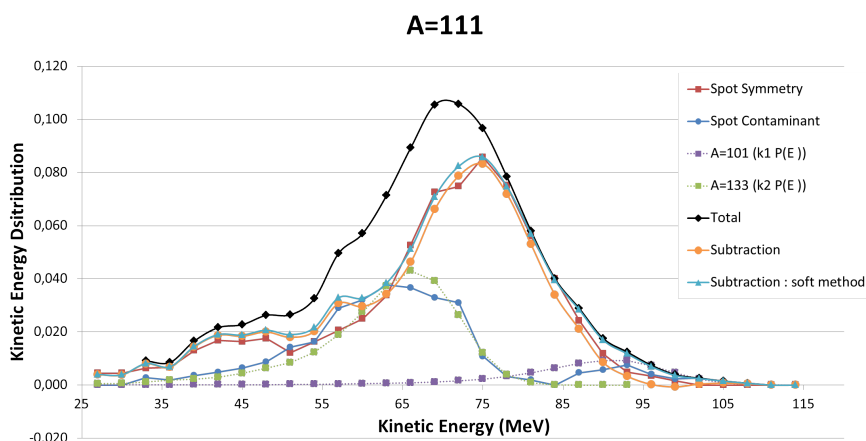


FIGURE 5.22 – Distribution en énergie cinétique de la masse  $A = 111$ . Une séparation du contaminant et de la masse symétrique est possible. Les méthodes de décontamination permettent de retrouver la distribution de la masse  $A = 111$ .

d’ionisation et des détecteurs  $\gamma$ , on a une identification parfaite de ces transitions. Les résultats sont indiqués sur le tableau 5.1. On remarque alors que pour les probabilités de changement de

TABLE 5.1 – Tableau récapitulatif de la probabilité de changement de charge pour  $^{136}\text{Xe}$ ,  $^{132}\text{Te}$  et  $^{98}\text{Y}$ .

Isotope	$q_{ref}$	$q_{final}$	$P(q_{ref} \rightarrow q_{final})$
$^{136}\text{Xe}$	21	19	$0.0013 \pm 0.0001$
	21	20	$0.0223 \pm 0.0005$
	21	21	1
	21	22	$0.0188 \pm 0.0004$
	21	23	$0.0003 \pm 0.0002$
$^{132}\text{Te}$	22	20	$0.0013 \pm 0.0003$
	22	21	$0.0211 \pm 0.0004$
	22	22	1
	22	23	$0.0432 \pm 0.0007$
	22	24	$0.0033 \pm 0.0002$
$^{98}\text{Y}$	21	19	$0.0003 \pm 0.0001$
	21	20	$0.0277 \pm 0.0007$
	21	21	1
	21	22	$0.0166 \pm 0.0005$
	21	23	$0.0047 \pm 0.0001$

charge qui nous intéresse,  $P(q \rightarrow q - 1)$  et  $P(q \rightarrow q - 2)$  semblent, pour les masses lourdes, identiques. Ces valeurs serviront de base pour la méthode “soft”.

Pour évaluer un rendement, une correction des distributions en énergie cinétique et en charge ionique doit être effectuée afin d'extraire uniquement la contribution de la masse symétrique. Deux méthodes ont été développées afin de corriger les distributions en énergie cinétique.

#### Méthode “raw” pour les distributions en énergie cinétique

On rappelle que chaque masse est décrite par une distribution en énergie cinétique et en charge ionique. À l'aide de l'indicateur construit, on effectue la mesure de la distribution en énergie cinétique pour une charge ionique la moins polluée. Malgré cette précaution, la masse est toujours contaminée.

D'après l'équation (5.17), les contaminants (ainsi que leur charge ionique) sont connus. Après chaque mesure de la masse symétrique, celle du contaminant est effectuée. Pour déterminer la part de la masse symétrique dans la distribution en énergie cinétique, on effectue une soustraction avec les distributions en énergie cinétique des contaminants :

$$\forall E_k, P(E_k|A_{sym}) = P(E_k)_{tot} - k_1P(E_k|A_1) - k_2P(E_k|A_2) \quad (5.20)$$

avec  $A_{sym}$  la masse symétrique,  $A_1$  et  $A_2$  les contaminants. Ici, on utilise les distributions en énergie cinétique normalisée,  $P(E_k)$ . Finalement les coefficients  $k_1$  et  $k_2$  correspondent aux poids des contaminants sur la distribution en énergie cinétique totale. Ces coefficients sont déterminés de sorte que la distribution  $P(E_k|A_{sym})$  soit définie positive quelle que soit l'énergie cinétique. Autrement dit ils correspondent à une valeur limite. Aucune incertitude n'est alors associée à ces coefficients.

#### Méthode “soft” pour la distribution en énergie cinétique

L'autre méthode pour extraire la distribution en énergie cinétique de la masse symétrique est d'utiliser la probabilité de changement de charge déterminée expérimentalement (voir ci dessus 5.3. On obtient alors l'équation suivante :

$$\begin{aligned} \forall E_k, P(E_k|A_{sym}) = P(E_k)_{tot} - \frac{Y(A_1)}{Y(A_{sym})}P(q \Rightarrow q-1)P_{Im}(A_1)P(E_k|A_1) \\ - \frac{Y(A_2)}{Y(A_{sym})}P(q \Rightarrow q-2)P_{Im}(A_2)P(E_k|A_2) \end{aligned} \quad (5.21)$$

avec  $P(q \Rightarrow q')$  la probabilité de passer de la charge  $q$  à la charge  $q'$  entre le “main magnet” et le condensateur. L'indicateur de contaminant est noté  $P_{Im}(A)$  et dépend de la position de l'image du contaminant par rapport à la fenêtre d'entrée de la chambre d'ionisation. Enfin  $Y(A)$  correspond au rendement de la masse  $A$ . Pour cette valeur on utilise les différentes bibliothèques de données. La différence avec la méthode précédente réside dans la détermination des facteurs correctifs expérimentalement (changement de charge) ou construits à l'aide d'hypothèses (position de l'image du contaminant sur le plan focal).

#### Évaluation des distributions en charge ionique

Pour obtenir un rendement, il faut aussi corriger la distribution en charge ionique. À ce jour, l'indicateur construit ne permet pas de retrouver une distribution gaussienne. On l'utilise alors pour choisir les charges les moins contaminées. A l'aide de ces charges, on fait passer une distribution gaussienne. Or il s'est avéré que pour les masses non contaminées, la distribution en

charge ionique n'était pas exactement compatible avec une loi normale. Cela provient du fait que chaque isotope d'une même masse suit une loi normale. La combinaison de ces isotopes ne semble pas être parfaitement décrite par une distribution gaussienne. On a alors estimé l'incertitude de cette régression à l'aide de ces distributions non contaminées. Il faut alors rajouter une erreur systématique de 7 % sur l'ensemble des points de la distribution pour obtenir des critères de fit satisfaisant. Avec ces considérations, la distribution en charge ionique corrigée permet d'estimer le poids  $P(q|E_k)$ .

Un dernier point porte sur l'effet de la corrélation  $(E_k, q)$ . Puisqu'on n'effectue pas de mesure en corrélation dans la région symétrique, pour des raisons de temps de prise de mesure<sup>8</sup>, on ajoute une erreur systématique de 8 %, qui correspond à l'écart-type maximum pour les mesures de rendements hauts. Notons qu'à partir de la masse 133, la contamination est considérée comme négligeable. En effet les masses contaminantes ont alors un rendement du même ordre de grandeur que la masse mesurée.

---

8. Un point de mesure dans la région symétrique est de trente minutes. Un scan en énergie consiste en la mesure d'une trentaine de points. Un scan en charge ionique comprend une quinzaine de mesures. Ainsi pour décrire une masse symétrique, une journée de mesures est nécessaire !

## 5.5 Résultats et interprétation

À la suite de toutes les corrections effectuées, on obtient la courbe de rendements présentée sur la figure 5.23. Il faut noter que les points rouges dans la région symétrique ( $A < 133$ ) correspondent à une limite inférieure du rendement obtenue par la méthode “raw”. On rappelle que seules les incertitudes de mesure sont représentées. Pour la méthode “raw”, par définition le coefficient de correction ne peut avoir d’incertitude car on cherche une limite inférieure. On remarque alors que lorsqu’on prend en compte la contamination par les fragments lourds, on retrouve, pour la majorité des masses, les rendements tabulés. L’évaluation de ces rendements provient très souvent de mesures radiochimiques qui ne souffrent pas de ce type de contamination. D’une certaine manière cela permet de valider la démarche mise en œuvre.

Concernant la méthode “soft”, l’indicateur repose sur des considérations géométriques de l’instrument avec de faibles incertitudes. Les probabilités de changement de charge ont été déterminées avec une grande précision. Il faut cependant noter que dans la démarche mise en place, on applique la même systématique de correction pour toutes les masses. Il est fort probable que le changement de charge soit dépendant de l’énergie et de la masse.

L’une des conséquences de la méthode de décontamination est présentée sur la figure 5.24 où l’on observe la distribution en énergie cinétique pour les masses  $A = 111 - 131$ . On remarque alors que deux modes sont présents après la décontamination. Pour s’assurer de la robustesse de ces modes, un élargissement des distributions des deux contaminants<sup>9</sup> de 10 % a été effectué (voir la figure 5.25). On note alors que les deux modes sont encore présents. Il serait bien entendu inexact d’affirmer avec certitude que ces résultats prouvent la modalité de la fission induite par neutron thermique tant les corrections appliquées sont importantes. Néanmoins ces modes apparaissent sur toutes les masses mesurées et ce, qu’importe la méthode utilisée. De plus la figure 5.26 illustre les caractéristiques des deux modes, à savoir leurs énergies cinétiques moyennes, leurs écart-type ainsi que leurs intensités relatives.

---

9. Cette hypothèse a déjà été discutée (voir figure 5.5)

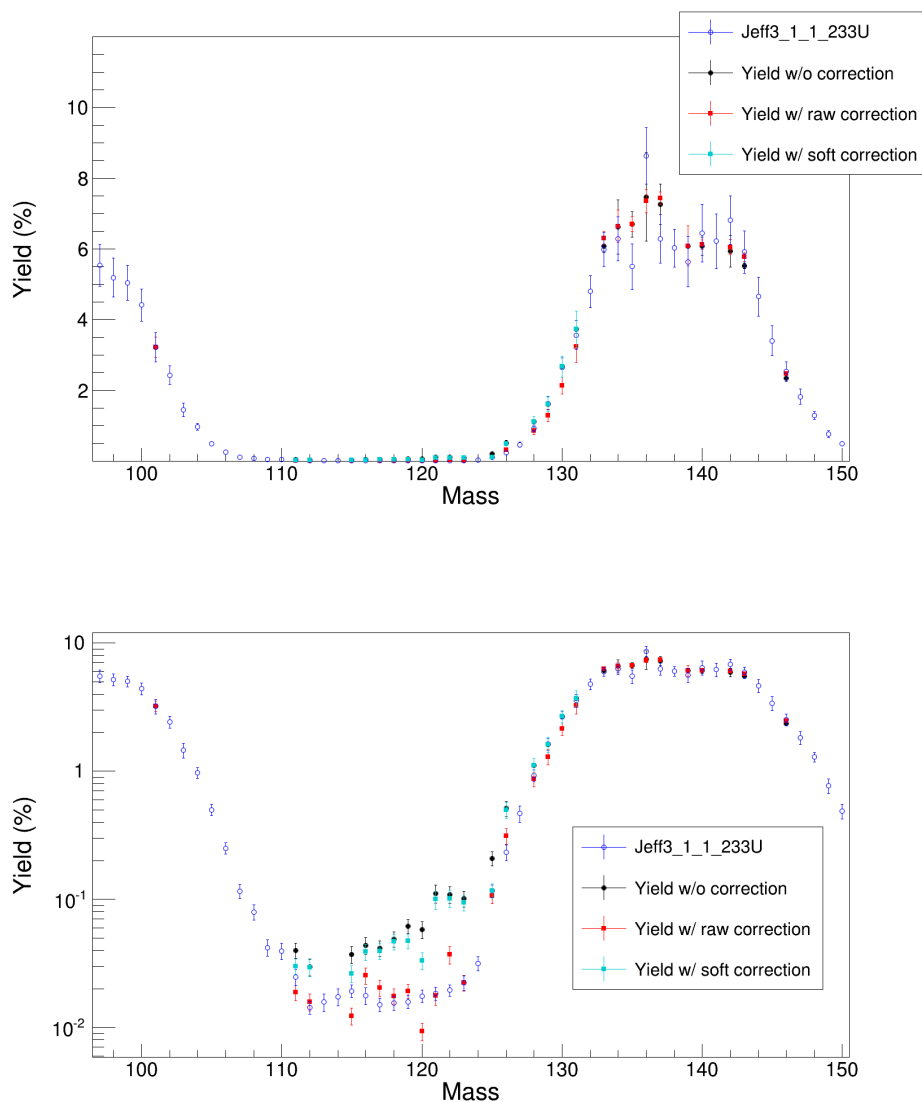
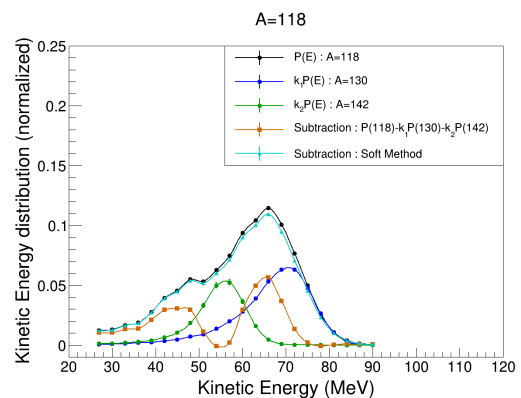
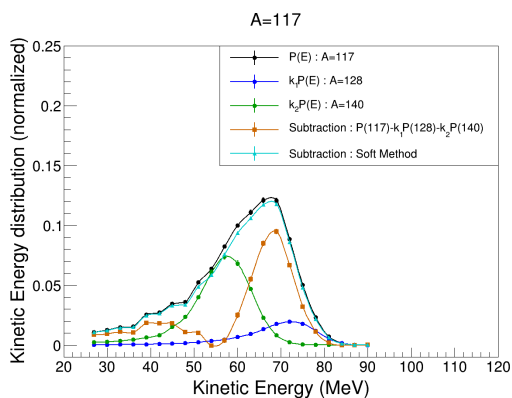
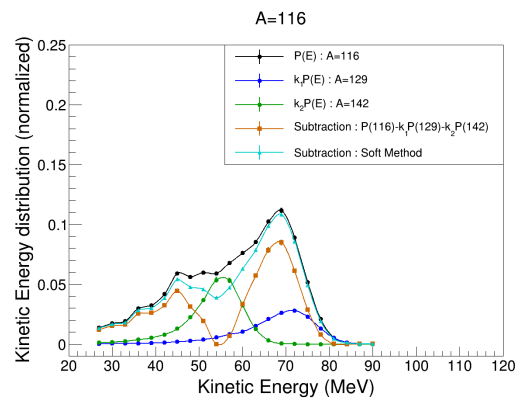
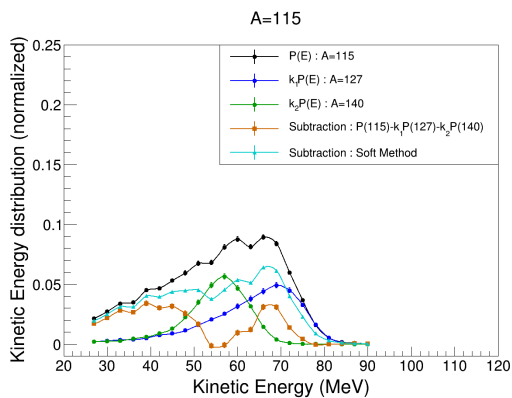
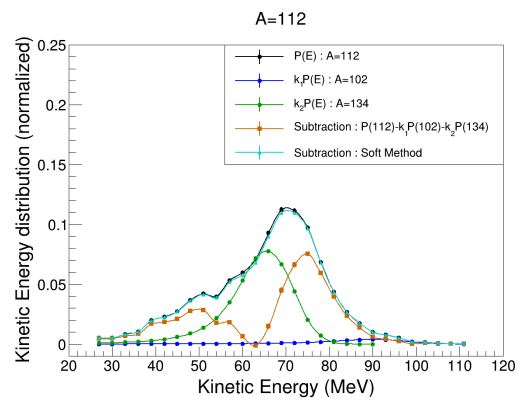
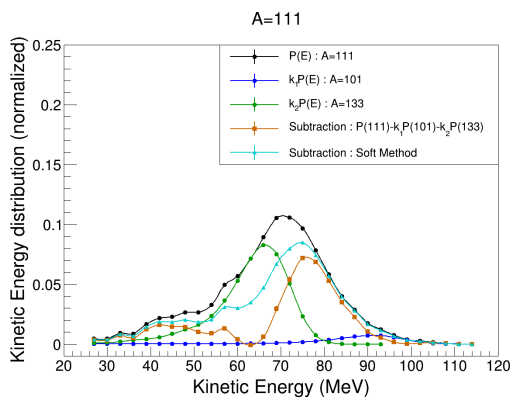
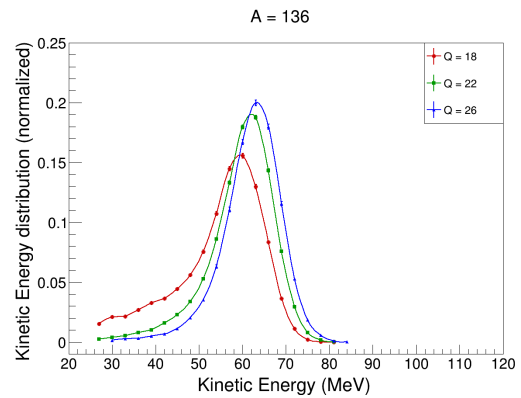
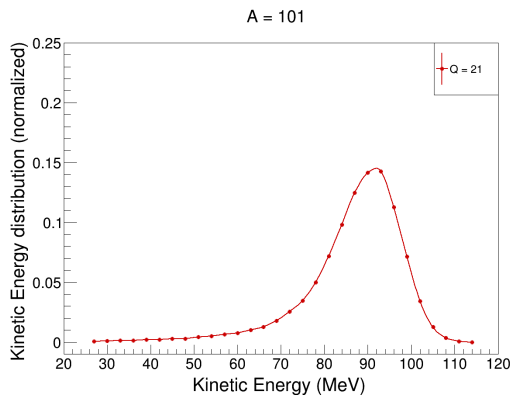
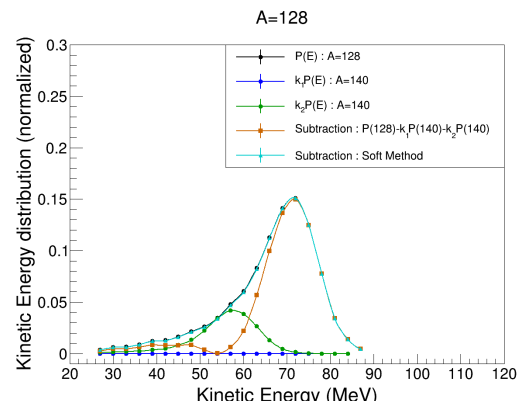
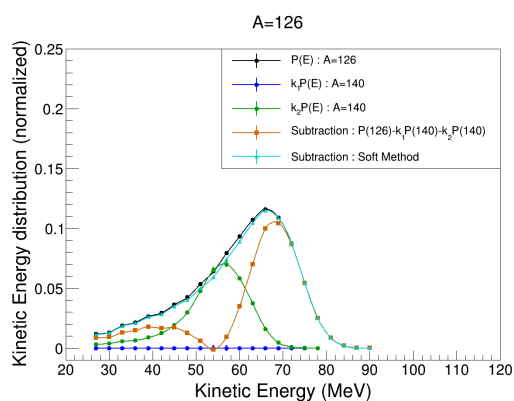
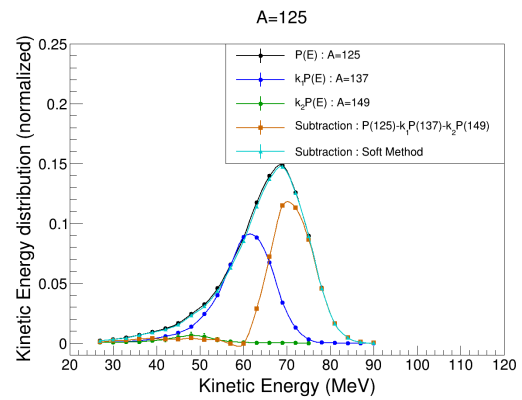
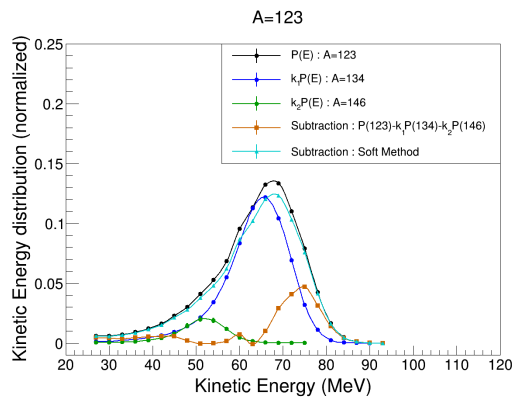
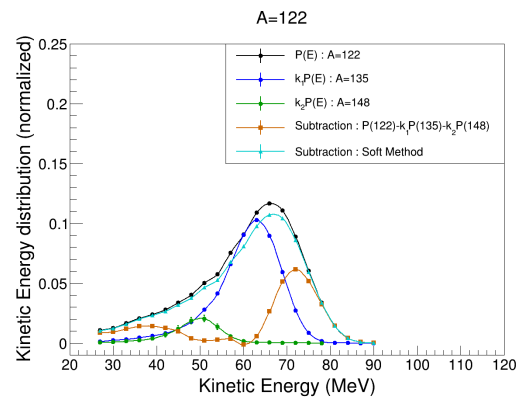
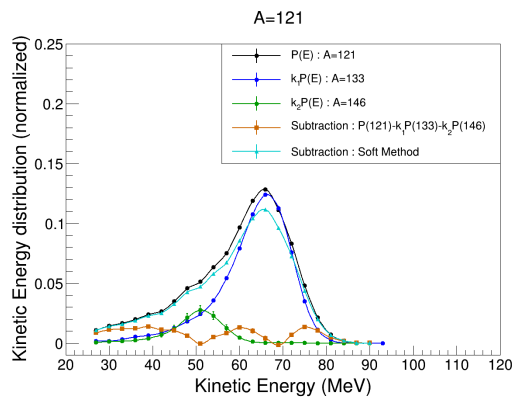
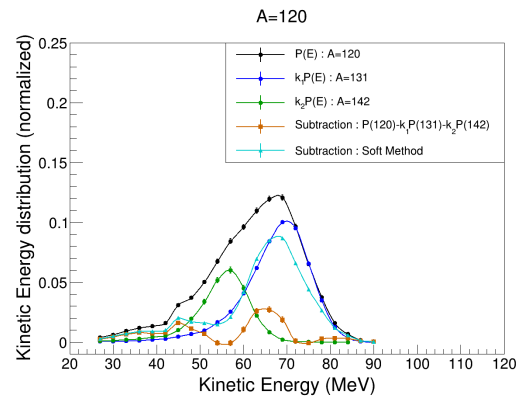
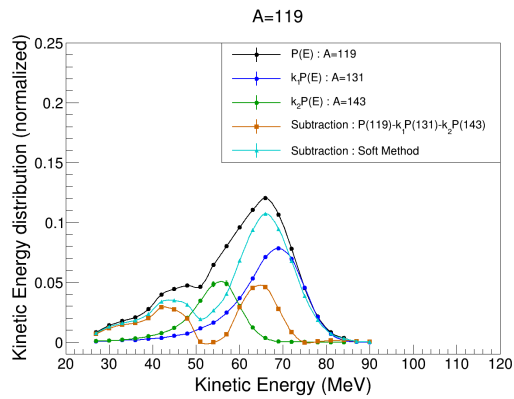


FIGURE 5.23 – Rendement en masse pour une cible de  $^{233}\text{U}$ . Les points bleus correspondent aux données issues des bases de données. En noir, les résultats non corrigés : pour  $A \geq 133$  cela signifie que la corrélation entre la charge ionique et l'énergie cinétique n'est pas prise en compte. Pour  $A < 133$ , cela est associé à la non décontamination des distributions en énergie cinétique. Les points rouges se réfèrent à la prise en compte de la corrélation ( $A \geq 133$ ) ou à la décontamination de la distribution en énergie cinétique. Les points en bleu clair correspondent au résultat de la décontamination avec la méthode "soft".







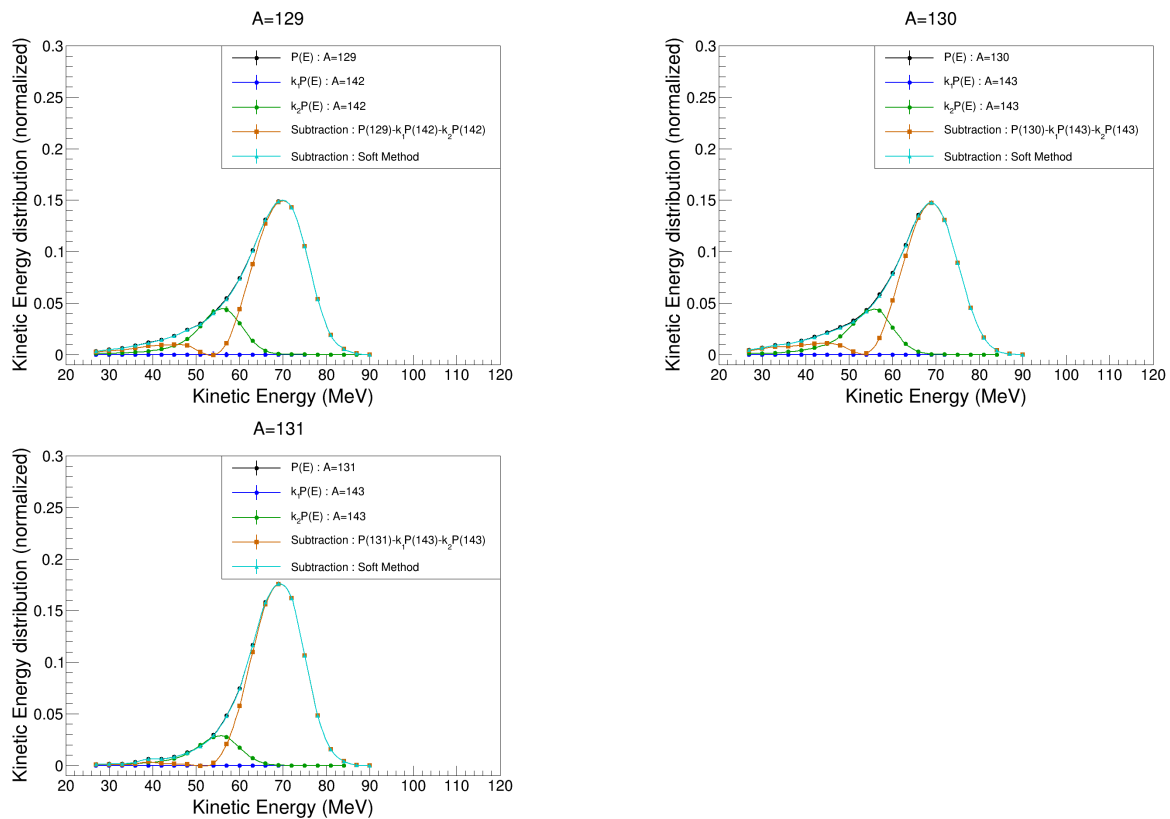


FIGURE 5.24 – Distribution en énergie cinétique des masses symétriques. Lorsqu'on applique la méthode "raw" de décontamination, deux modes sont présents. Notons qu'en l'absence de contaminant, les distributions présentes une queue de distribution.

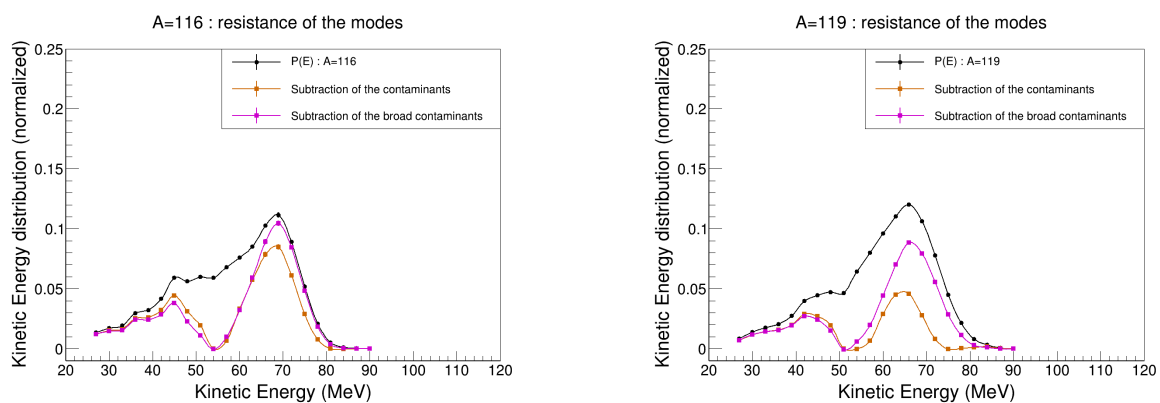


FIGURE 5.25 – Test de résistance des modes présents dans les distributions en énergie cinétique. Un élargissement de 10 % des distributions des contaminants a été effectué. Les modes sont toujours présents.

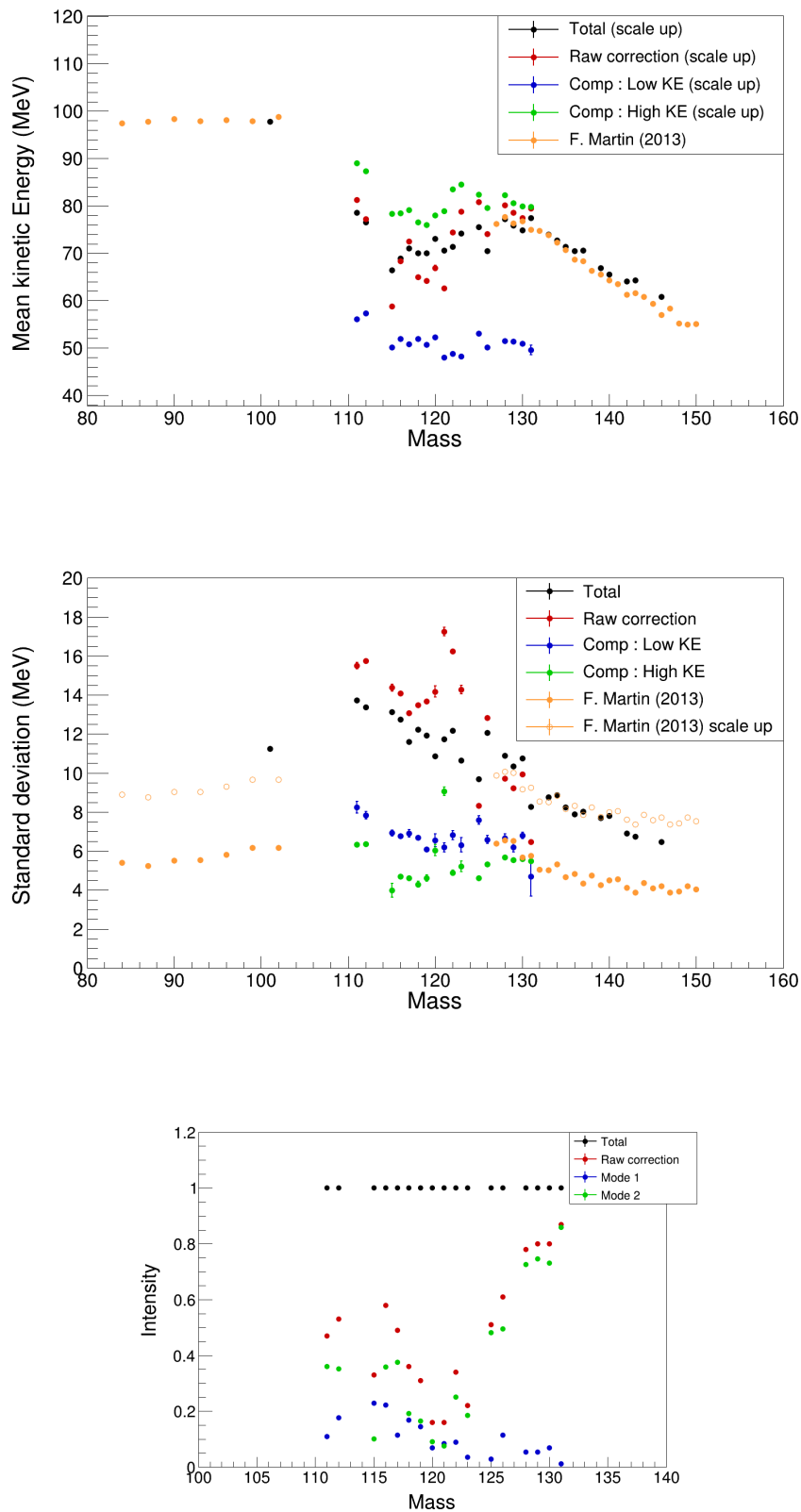


FIGURE 5.26 – Caractéristiques des deux modes. L'énergie cinétique moyenne, l'écart-type ainsi que l'intensité des modes sont représentés en fonction de la masse symétrique.

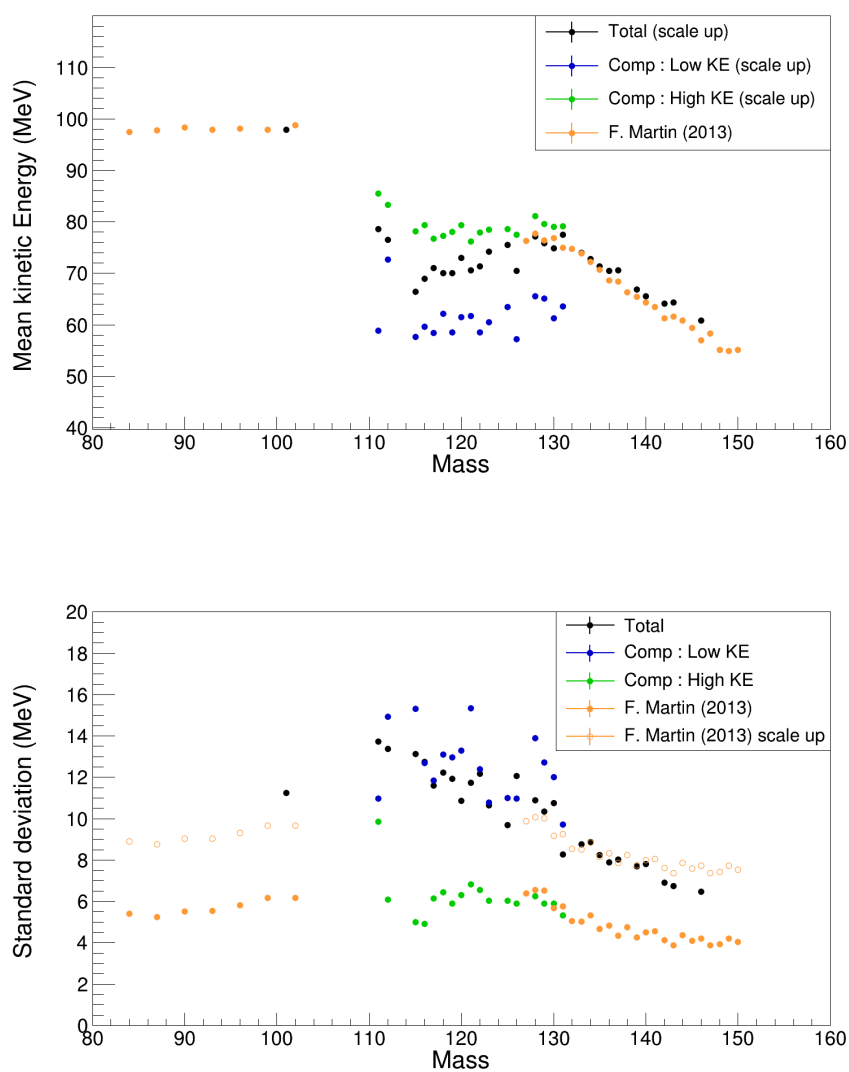


FIGURE 5.27 – Caractéristiques des deux composantes issues d’une déconvolution de la distribution en énergie cinétique extraite à l’aide de la méthode “soft”. L’énergie cinétique moyenne et l’écart-type sont représentés en fonction de la masse symétrique.

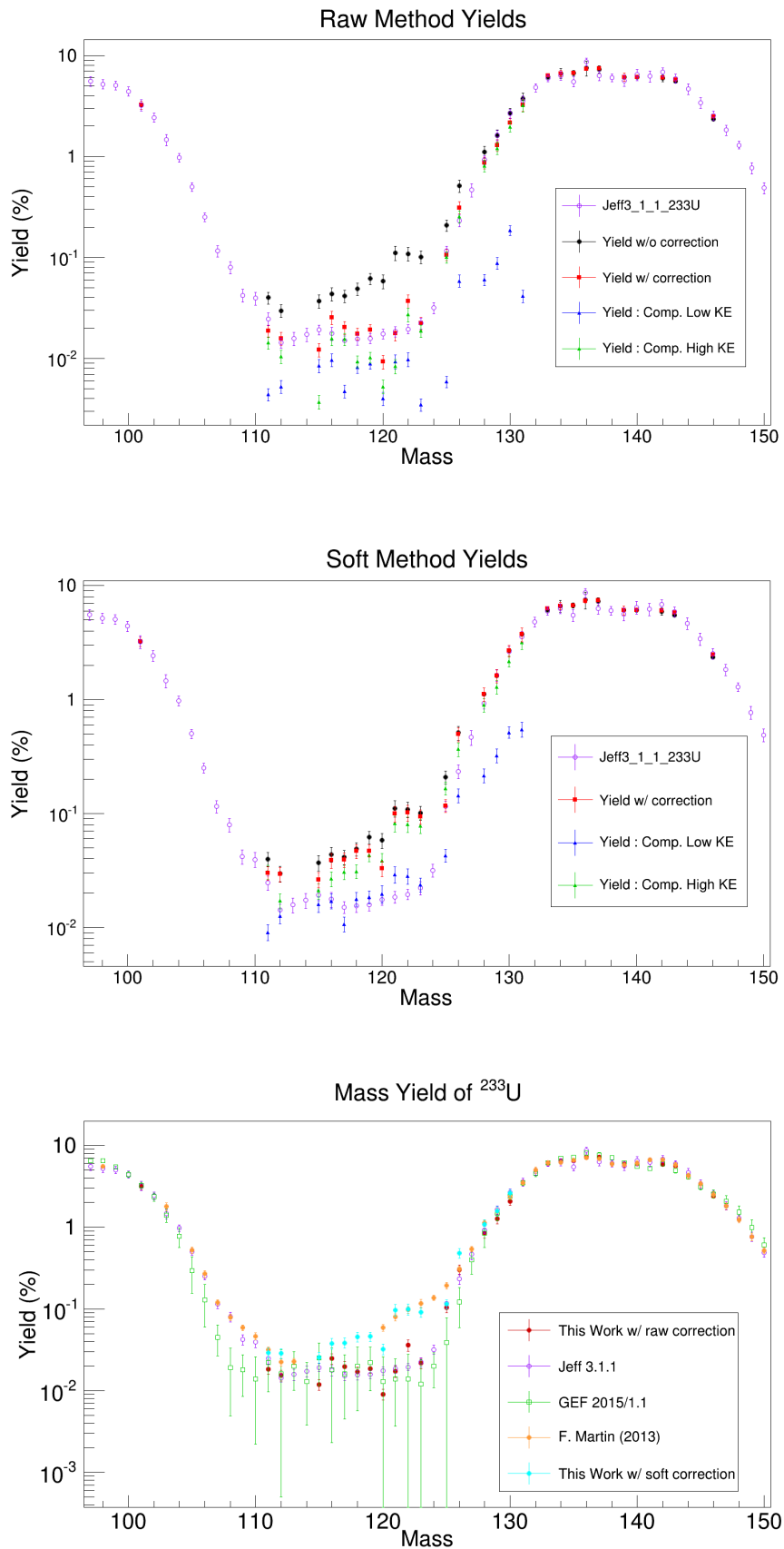


FIGURE 5.28 – Rendements comparés avec les évaluations ainsi que des calculs GEF. Pour chacune des méthodes, les rendements associés aux différentes composantes sont représentés.

### Discussion des résultats

L'existence de modes dans la fission nucléaire a déjà été observée par le passé, en particulier dans la région des actinides lourds (Fm, Md, ...) [Hulet *et al.*(1989)] ou dans le cas de la fission par neutron rapide [Pfeiffer(1970)]. Néanmoins à basse énergie (de neutron), l'existence de plusieurs modes n'est qu'une hypothèse de travail. On citera notamment le travail de Knitter *et al.* qui pour décrire à la fois les rendements de l' $^{235}\text{U}$  ainsi que les distributions en énergie cinétique totale, utilise les trois modes de Brosa [Knitter *et al.*(1987)]. Dans ce cadre, il est impératif de tenir compte d'un mode "superlong" pour interpréter les données issues de la région des fragments symétriques. La figure 5.29 synthétise ces observations.

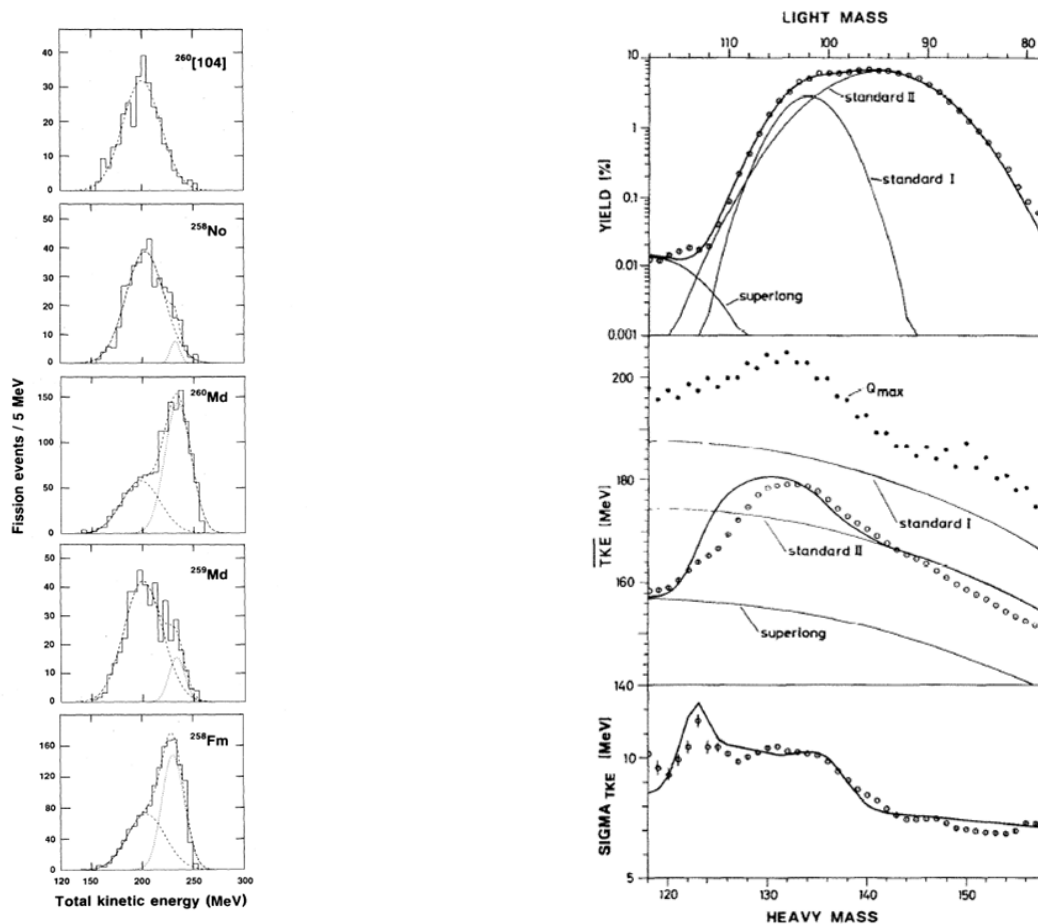


FIGURE 5.29 – À gauche : distribution en énergie cinétique totale pour la fission des actinides lourds. Les deux composantes ont été interprétées comme provenant de deux configurations différentes à la scission. Données issues de [Hulet *et al.*(1989)]. À droite : rendement, énergie cinétique totale moyenne et écart-type de la distribution en énergie cinétique totale en fonction de la masse pour la fission induite par neutron thermique de l' $^{235}\text{U}$ . Ces données ont été interprétées à l'aide du modèle de Brosa et mettent en évidence la nécessité de considérer trois modes pour décrire les résultats expérimentaux. Mesures issues de [Knitter *et al.*(1987)].

La signature de ces modes se faisant à travers les distributions en énergie cinétique, on va alors s'intéresser à l'énergie cinétique totale qui provient essentiellement de la répulsion coulombienne,

qui est reliée à la distance  $d$  entre les deux centres de charge à travers la relation :

$$TKE = E_k^L + E_k^H \cong E_k^L \left( 1 + \frac{m_L}{m_H} \right) = \frac{Z_L Z_H e^2}{4\pi\epsilon_0 d} \quad (5.22)$$

avec  $Z_i$  la charge nucléaire de chacun des fragments de fission (où  $L$  indique le fragment léger et  $H$  le fragment lourd),  $e$  la charge élémentaire et  $\epsilon_0$  la permittivité du vide. Par conservation de l'impulsion, on déduit l'énergie cinétique totale de notre mesure de l'énergie cinétique d'un seul fragment. Cette énergie cinétique a été corrigée de la perte d'énergie dans la cible ( $\sim 2$  MeV) ainsi que la perte d'énergie lors de la traversée du dépôt de tantale ( $\sim 10$  MeV) à l'aide du logiciel SRIM [Ziegler(1980)]. Pour parvenir à ces valeurs, on a comparé nos données avec celles de F. Martin pour lesquelles aucune couverture n'était présente sur la cible fine ( $30\mu\text{g.cm}^2$ ) [Martin(2013)] (voir figure 5.26).

La charge nucléaire moyenne pour chaque masse a été déterminée à l'aide du modèle de l'hypothèse de conservation de la densité de charge avant et après scission :

$$\frac{Z_{CN}}{A_{CN}} = \frac{Z_L}{A_L} = \frac{Z_H}{A_H} \quad (5.23)$$

où  $CN$  correspond au noyau fissionnant.

### Interprétation des résultats issus de la méthode "raw"

Dans le cas des énergies cinétiques déterminées à l'aide de la méthode "raw" et si l'on suppose qu'il n'y a pas d'émission neutron, on obtient pour chacun des modes une distance :

- $E_{k_1} \simeq 50$  MeV  $\Rightarrow d_1 = 32$  fm
- $E_{k_2} \simeq 82$  MeV  $\Rightarrow d_2 = 19$  fm

Il semble alors que le premier mode, extrait de la méthode "raw" ne soit pas compatible avec les prédictions des différents modèles qui prévoient une distance autour de 20 fm. L'accord avec le second mode est tout à fait satisfaisant. On rappelle que l'estimation de l'énergie cinétique moyenne de ce mode provient d'une hypothèse forte : la distribution en énergie cinétique décontaminée doit être positive. Seul un cas limite est recherché avec cette méthode. Cette dernière méthode illustre l'impossibilité de considérer la structure à basse énergie provenant uniquement des contaminants ou d'un effet de perte d'énergie dans la cible.

### Interprétation des résultats issus de la méthode "soft"

Si l'on extrait les modes de la méthode "soft", à l'aide de deux distributions gaussiennes alors on obtient les résultats présents sur la figure 5.27. Les distances obtenues correspondent alors à :

- $E_{k_1} \simeq 65$  MeV  $\Rightarrow d_1 = 24$  fm
- $E_{k_2} \simeq 82$  MeV  $\Rightarrow d_2 = 19$  fm

Cette fois-ci les distances obtenues sont en relativement bon accord avec les prédictions des modèles (voir chapitre 1). Dans son modèle Brosa prévoit une distance pour le mode super long (symétrique) de  $d = 20.7$  fm et pour le mode standard II, la distance est de  $d = 18$  fm. Les calculs TDHF prévoient que la distance entre les deux centres des noyaux naissants soient de l'ordre de 16 fm pour le mode "fission asymétrique" et autour de 20 fm pour la fission "symétrique". Notons que l'interprétation des distributions en énergie cinétique se doit d'être faite au regard de l'évaluation des rendements qui fournit un critère supplémentaire afin de valider la présence de modes.



Pour aller plus loin, on a estimé (grossièrement) le nombre de neutrons émis à partir des énergies cinétiques des deux modes extraits de la méthode “soft”. Le nombre total de neutrons s’écrit :

$$\overline{\nu}_{tot} = \frac{\overline{TXE} - \overline{E}_\gamma}{S_n + \overline{E}_\nu} \quad (5.24)$$

avec  $\overline{TXE} = Q - \overline{TKE}$  l’énergie totale d’excitation,  $S_n$  l’énergie de liaison du neutron,  $\overline{E}_\gamma$  l’énergie moyenne des  $\gamma$  prompt et  $\overline{E}_\nu$  l’énergie cinétique moyenne des neutrons. Pour l’application numérique, on a supposé que les fragments primaires étaient  $^{117}\text{Ag}$ , que l’énergie moyenne libérée par la désexcitation  $\gamma$  était de 8 MeV et que l’énergie cinétique moyenne du neutron de 1.5 MeV. On obtient alors :

- Le mode à haute énergie :  $E_k \simeq 82 \text{ MeV} \Rightarrow \overline{\nu}_{tot} = 3.6$
- Le mode à basse énergie :  $E_k \simeq 65 \text{ MeV} \Rightarrow \overline{\nu}_{tot} = 7.0$

Or, dans les travaux de Nishio *et al.* il a bien été mesuré une telle multiplicité de neutrons pour la réaction  $^{233}\text{U}(n,f)$  (on peut le voir sur la figure 5.30) [Nishio *et al.*(1998)]. Notons que la distribution de neutrons émis par un fragment de fission suit une loi de Poisson de moyenne  $\overline{\nu}$ . Dès lors la probabilité d’observer cinq ou six neutrons n’est pas négligeable. Cette cohérence tend à démontrer que cette double composante dans la distribution en énergie cinétique n’est pas un artefact et correspond bien à une observable physique.

Dans le rapport de Wahl [Wahl(1988)], présentant l’évaluation des rendements de plusieurs actinides, on constate que les rendements post-émission neutron de  $^{235}\text{U}$  sont quasi symétriques alors que ceux de  $^{233}\text{U}$  sont très asymétriques dans la vallée autour de la masse 117. La fission symétrique de  $^{233}\text{U}$  est moins probable que celle de  $^{235}\text{U}$ , i.e. que le rapport pic sur vallée est plus important lorsqu’on descend vers les actinides plus légers. Dès lors, on peut penser que l’effet de l’émission neutron est primordial dans la déformation de la vallée symétrique dans le cas des actinides légers.

De plus, même si la méthode “soft” n’est pas exempte de biais (changement de charge dépendant de l’énergie cinétique, de la conversion interne, ...) cette méthode laisse apparaître des structures en énergie cinétique cohérentes avec les modèles (en terme de distance à la scission) et les mesures d’émission neutrons. En ce sens, ces résultats prouveraient la présence d’un mécanisme où seules quelques configurations (ou vallées) seraient accessibles à la scission.

On constate par ailleurs que la conservation d’une des composantes de la méthode “soft” donne un résultat en accord avec les évaluations. On peut alors se demander si par le passé des corrections importantes sur les contaminants, ou des mesures partielles de la distribution en énergie cinétique, ont conduit à la sélection d’un seul mode.

Enfin, les calculs GEF [Schmidt *et al.*(2014)] indiquent que le mode superlong (qui correspond au mode symétrique) est négligeable pour  $^{233}\text{U}(n, f)$ . Ainsi pour certaines masses, les calculs sont compatibles avec 0. On peut donc en conclure que les paramètres du code GEF (identiques pour l’ensemble des actinides) sont insatisfaisants. Néanmoins la démarche s’appuyant sur l’approche de Brosa reste légitime selon nos résultats. L’ensemble de ces observations requiert alors de mettre en place une nouvelle mesure dans cette région en modifiant le dispositif expérimental afin d’éliminer complètement les contaminants. Le développement d’une ligne de temps de vol couplée au spectromètre de masse LOHENGRIN permettra d’identifier sans aucune ambiguïté la masse d’intérêt.

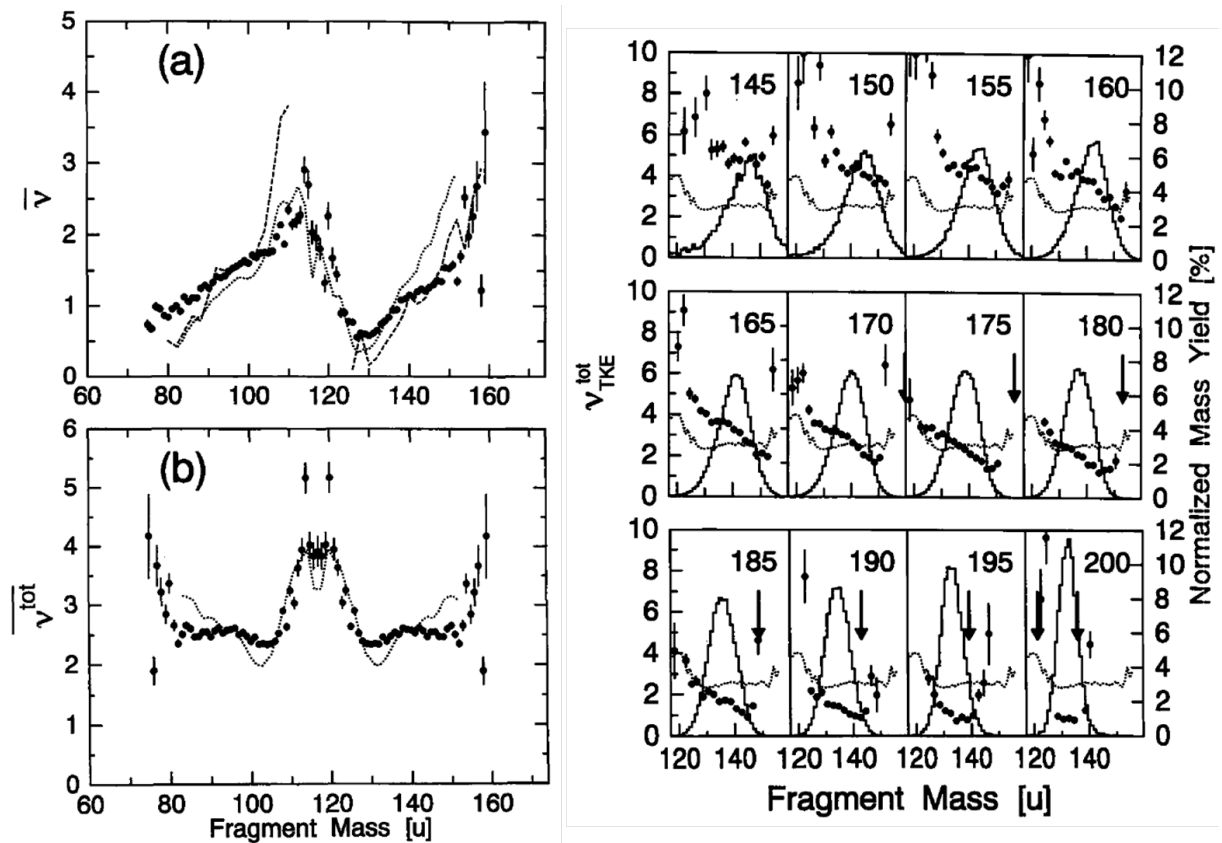


FIGURE 5.30 – Multiplicité de l'émission neutron  $\bar{\nu}$  en fonction de la masse du fragment de fission (a). La figure (b) correspond à la multiplicité totale  $\bar{\nu}_{tot}$ . La figure de droite représente  $\bar{\nu}_{TKE}$  en fonction de l'énergie cinétique totale TKE. Les points correspondent aux données de l'auteur, et les traits en pointillés à ceux d'autres mesures. Les figures sont tirées de [Nishio et al.(1998)].

## 5.6 Perspectives pour l'étude de la région symétrique sur le spectromètre LOHENGRIN

Les résultats précédents permettent de mettre en lumière l'ambiguïté apportée sur les évaluations des rendements par la présence de contaminants lors de la mesure de faibles rendements en masse. Néanmoins, les différentes corrections apportées semblent indiquer la modalité de la fission nucléaire induite par neutron thermique. Pour s'en assurer une nouvelle expérience doit être effectuée sur le spectromètre LOHENGRIN. On a vu que la détection de la masse symétrique, à l'aide d'une chambre d'ionisation, est contaminée par des fragments de même énergie cinétique mais de masse beaucoup plus élevée. Ainsi pour les éliminer, l'idée est de combiner une mesure d'énergie cinétique avec une mesure de temps de vol. L'ensemble permettra de décorrélérer les deux masses et ainsi d'extraire sans ambiguïté la masse symétrique. Par le passé, l'utilisation d'une telle technique a déjà été effectuée sur le spectromètre LOHENGRIN [Brissot *et al.*(1980)]. Cependant les auteurs ne discutent pas de la présence d'une seconde composante dans la distribution en énergie cinétique. Aujourd'hui, il est désormais possible d'effectuer des coupures en temps et/ou en énergie cinétique ce qui permettra de mieux contrôler les biais introduits par les contaminants.

Concrètement, une coïncidence avec la tâche de la masse symétrique (et du contaminant) de la chambre d'ionisation avec la mesure de temps de vol séparera la contribution des deux masses. La figure 5.31 présente le spectre en coïncidence du temps de vol avec la tâche de la chambre d'ionisation. La contribution de chacune des masses est alors bien déterminée et permettra une mesure précise du rendement, mais aussi de la distribution en énergie cinétique de la masse symétrique. Par conséquent, à la suite de cette expérience, on pourra clairement établir si la fission induite par neutron thermique est bi-modale ainsi que conclure sur l'asymétrie de la région symétrique.

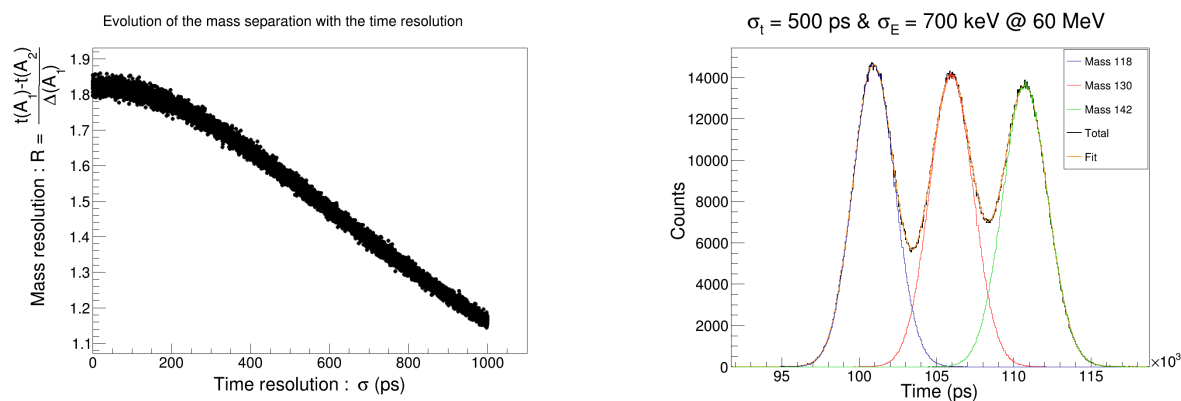


FIGURE 5.31 – À gauche : évolution de la séparation en masse en fonction de la résolution en temps du dispositif. À droite : spectre en temps de la masse symétrique et du contaminant en coïncidence avec la chambre d'ionisation. Ces spectres ne sont qu'une ébauche de simulation afin de démontrer la faisabilité d'une telle mesure.

## Conclusion

Au cours de ce travail, on a pu mettre en évidence la présence de contaminants lors de la mesure d'une masse symétrique et ainsi apporter une interprétation claire sur les spectres  $\Delta E - E$  dans la région symétrique qui étaient jusqu'alors irrésolus. La correction de ces contaminants à travers deux méthodes semble conduire à des interprétations diverses.

La méthode "raw" permet de mettre en lumière que les structures observées dans les distributions en énergie cinétique ne proviennent pas uniquement des contaminants.

À l'aide de la méthode "soft", une interprétation des composantes présentes dans la distribution en énergie cinétique est effectuée et permet d'obtenir des indications fortes sur la présence de modes de fission. Ceci est soutenu par les données sur la multiplicité neutrons de Nishio *et al.*. Néanmoins les rendements mesurés sont en désaccord avec les évaluations actuelles. Il est intéressant d'observer que lorsqu'on ne considère qu'une seule composante de la méthode "soft", cela permet alors d'obtenir une valeur de rendement compatible avec les évaluations. On peut alors se demander si les évaluations reposent sur des données pour lesquelles une approche simpliste, i.e. qui considère que la distribution en énergie cinétique suit une loi gaussienne, a été utilisée par le passé. Afin d'affirmer avec certitude la bi-modalité de la fission, il est nécessaire de développer un nouveau dispositif expérimental. Si les modes de fission étaient confirmées, cela permettra de valider l'approche des modèles prédisant un tel mécanisme dans la fission nucléaire. L'enjeu de ce travail est d'apporter des réponses aux questions fondamentales pour les inclure dans le processus d'évaluation utiles pour les applications.

Le couplage d'une ligne de temps de vol (avec une chambre d'ionisation) avec le spectromètre de masse LOHENGRIN devrait permettre d'éliminer complètement la contribution des contaminants et ainsi de mesurer avec une grande précision le rendement ainsi que la distribution en énergie cinétique des fragments symétriques et indiquer avec certitude la présence de modes de fission. Le recours à plusieurs observables et l'utilisation de tests statistiques fiables et performants sont la clé afin de valider les modèles s'appuyant sur cette approche. Cela permettra dans le futur d'utiliser des modèles physiques (comme tente de le faire le code GEF) pour l'évaluation des données nucléaires et ainsi pérenniser et de rendre les évaluations moins dépendantes des données expérimentales.

# Conclusion générale

À travers les décennies, de nombreux modèles ont été développés afin de mieux comprendre la fission nucléaire. Malgré tout, à ce jour, aucune théorie n'est capable de reproduire fidèlement l'ensemble des observables de fission. L'objectif de ce travail de thèse a été de développer des méthodes expérimentales et d'analyse afin de fournir des observables à même de tester la robustesse des hypothèses sous-jacentes de ces théories. Il était alors nécessaire de s'appuyer sur des outils statistiques pour d'une part maîtriser les biais expérimentaux, mais aussi amener la problématique de l'adéquation d'un modèle avec des données expérimentales à la notion d'acceptation et de rejection d'hypothèses.

Les rendements et les distributions en énergie cinétique des fragments de fission symétrique sont des observables très sensibles au regard des modèles de fission nucléaire. Au cours des différentes expériences menées auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN, on a pu mettre en lumière la présence de contaminants lors de la détection et de l'identification des fragments de fission symétrique. Deux méthodes d'analyse ont permis d'éliminer les contaminants dans les distributions en charge ionique et en énergie cinétique. Les résultats obtenus semblent indiquer la présence de modes de fission. Les modes de fission sont prédits par de nombreux calculs théoriques et n'ont à ce jour pas été observés dans les actinides légers pour une fission induite par neutron thermique. Ces résultats constituent donc une première preuve de l'existence d'un tel mécanisme dans le processus de fission thermique et non provenant d'un effet purement statistique. Néanmoins les nombreuses approximations effectuées pour éliminer les contaminants nous suggèrent d'être prudents quant à l'interprétation définitive à donner. Une amélioration du dispositif expérimental permettra de lever les derniers doutes et de conclure quant à la présence de modes dans la fission nucléaire.

L'autre observable qui a été étudiée est le moment angulaire des fragments de fission. Il existe deux techniques expérimentales pour accéder à cette observable : le spectre de  $\gamma$  prompts ou la mesure de rapports isomériques. Pour étudier les propriétés des particules promptes, un nouveau spectromètre est en cours de développement à l'ILL : FIPPS. Cet instrument consiste en la combinaison d'une cible fissile entourée de détecteurs  $\gamma$  et neutrons et d'un filtre permettant de caractériser  $(A, Z)$  l'un des fragments de fission créés. L'idée est d'utiliser un spectromètre magnétique gazeux (GFM) en tant que "filtre fission". Une partie de ce travail de thèse a alors été consacrée à l'étude des propriétés des GFM afin d'évaluer la faisabilité d'un tel instrument dans le cadre du projet FIPPS. Les résultats expérimentaux obtenus en convertissant le dernier aimant de LOHENGRIN (RED) en GFM et le développement d'une simulation Monte Carlo afin de décrire les trajectoires d'un fragment de fission dans un tel environnement ont permis de conclure qu'il était possible d'utiliser un GFM en tant que filtre fission. La résolution en masse est régie par les propriétés intrinsèques du gaz et la géométrie de l'aimant. Un travail est en cours pour évaluer la faisabilité mécanique du futur GFM du projet FIPPS.

Enfin, la dernière partie de ce travail de thèse a concerné la mesure de rapports isomériques. Une nouvelle méthode d'analyse permet d'estimer plus correctement l'incertitude expérimentale à travers la construction d'une densité de probabilité et de matrices de variances-covariances. Ces quantités sont aujourd'hui incontournables pour exploiter les mesures mais aussi pour effectuer l'évaluation des données nucléaires afin de minimiser les biais sur l'incertitude des données évaluées. Dans ce travail, on a pu mettre en évidence un facteur limitant qu'est la connaissance des schémas de structure nucléaire. La mesure du rapport isomérique du  $^{132}\text{Sn}$  et l'extraction de

sa distribution de moment angulaire ont permis de discuter du mécanisme générant le moment angulaire des fragments de fission. L'étude de ce cas singulier a pour conséquence de mettre une limite sur la validité des modèles classiques (bending et wriggling). Une interprétation basée sur des hypothèses thermodynamiques semble prometteuse, même s'il subsiste encore des zones d'ombre.

Finalement, ce travail a pour volonté d'apporter aux théoriciens des données qui permettront d'améliorer les théories et conduire à la validation de modèles (phénoménologiques tel que le code GEF) ou microscopiques d'intérêt pour le domaine de l'évaluation des données nucléaires. On a tendance à opposer les études "fondamentales" à celles pour les "applications", mais les deux sont nécessaires et complémentaires pour conduire à une meilleure compréhension ou évaluation du processus de fission nucléaire. J'aimerais citer à nouveau le statisticien George E.P. Box qui affirme que *All models are wrong, but some are useful*. Ces mots sont à mes yeux, synonymes d'humilité d'autant plus en physique nucléaire où le système étudié est d'une telle complexité, qu'il serait illusoire d'affirmer que tout est compris.

# Détails de l'analyse du Burn-Up

Dans cette annexe, le détail de l'évaluation du BU est présenté. L'évolution de la cible, appelé aussi BU (Burn-Up) est une quantité importante afin de déterminer un rendement en masse absolu et de comparer les taux de productions des différentes masses. Concrètement cette quantité est déterminée à l'aide d'un scan en énergie cinétique et d'un scan en charge ionique de la masse 136. L'idée est d'effectuer les mêmes mesures au cours de l'expérience. L'évolution relative des taux de comptage issus de ces scans permettent d'estimer le BU. La figure A.1 montre l'évolution de la charge ionique moyenne, de l'énergie cinétique moyenne ainsi que de leur écart type au cours du temps (en jours).

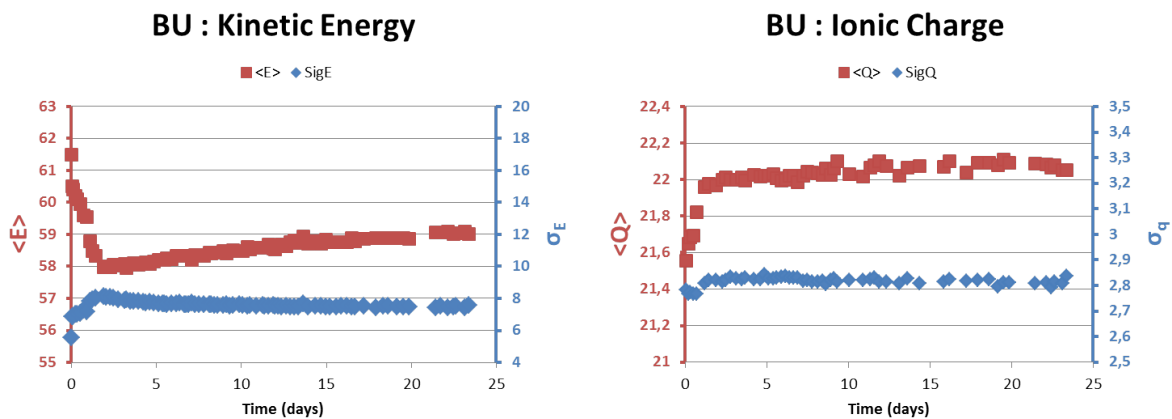


FIGURE A.1 – Évaluation de la stabilité de la cible à l'aide de la distribution de la charge ionique et de l'énergie cinétique. Après un peu plus d'une journée, la cible évolue très lentement au cours du temps.

Lors des premiers jours, la cible évolue très rapidement à cause de la perte de matière par sputtering ainsi que de la température très élevée. Au bout d'environ deux jours, la cible atteint un équilibre thermochimique. L'évolution est alors plus conforme aux attentes : la cible perdant de la matière, l'énergie moyenne augmente à l'inverse de la largeur de la distribution cinétique qui indique que la cible s'affine. La cible a une évolution très lente et est donc d'une très grande stabilité. Les fluctuations locales signe la non perfection du spectromètre LOHENGRIN. Ces fluctuations sont plus visible sur la courbe du BU (voir figure A.4). Si l'on refait une analogie avec l'optique géométrique et qu'on considère LOHENGRIN comme un télescope terrestre, alors l'image d'une galaxie peut être déformée à cause des turbulences atmosphériques. Suivant la pression, et la température de l'atmosphère, des réflexions parasites peuvent survenir. Ici l'idée est la même, un changement de condition expérimentale (la cible évolue, la pression à l'intérieur

de LOHENGRIN aussi ...) implique un décalage de la position focale du spectromètre. Ceci permet de mettre en évidence la limite de reproductibilité de l'instrument. On verra par la suite que le grand intérêt de la procédure de mesure et d'analyse est de réduire l'impact de ce phénomène sur le rendement. Finalement on estime l'incertitude systématique de l'ensemble instrument  $\oplus$  cible à travers le BU. En effet lorsqu'on essaye de faire passer un fit, le résultat n'est pas compatible si l'on prend en compte uniquement l'erreur statistique de la mesure. La figure A.2 présente l'évolution de la P-value (voir chapitre 3) en fonction de l'erreur systématique. Finalement on choisit une erreur systématique (constante) :

$$\Delta_{syst} = 0.008 \Rightarrow 1 \% \leq \Delta_{syst} \leq 3 \% \quad (\text{A.1})$$

Evaluation of the systematic uncertainty of the LOHENGRIN spectrometer

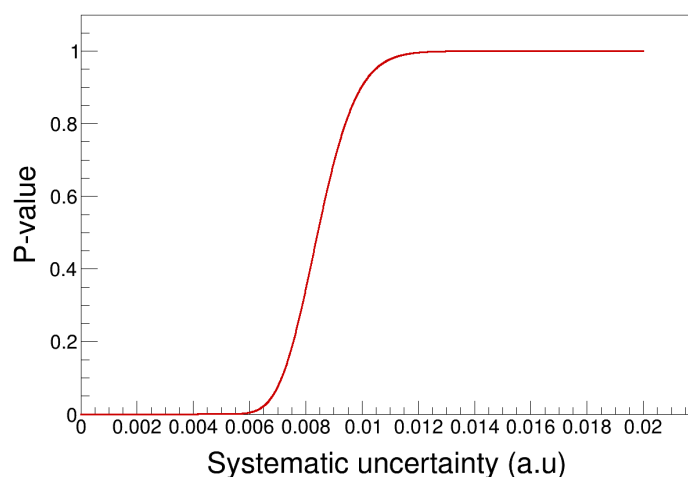


FIGURE A.2 – Évaluation de l'erreur systématique liée à la stabilité du spectromètre LOHENGRIN.

L'évolution du BU est modélisée par la fonction suivante :

$$BU(t) = e^{p_0 t - p_1} + p_2 + p_3 t \quad (\text{A.2})$$

Les paramètres  $p_{i=0,\dots,3}$  déterminés par la méthode des moindres carrés via ROOT, ne sont pas indépendants. Dès lors, pour corriger les mesures au sein d'une même masse et ne pas surévaluer les incertitudes associées au BU, il est nécessaire de prendre en compte la corrélation entre ces paramètres. De plus, pour les hauts rendements en masse, le BU est l'unique facteur commun. La corrélation entre l'estimation des rendements en masse dépend alors fortement des paramètres du BU et de leurs incertitudes.

Pour estimer l'impact du BU sur les mesures, une méthode "Total Monte Carlo" a été utilisée. Pour ce faire, les paramètres du BU doivent être indépendants. La décorrélation des différents coefficients repose sur l'utilisation de la matrice de covariance (des paramètres) fournit par le fit et sur quelques opérations matricielles :

$$Cov = RDR^{-1} \quad (\text{A.3})$$



où  $Cov$  est la matrice de covariance des paramètres  $p_i$ .  $R$  est la matrice de passage et  $D$  une matrice diagonale.  $Cov$  est diagonalisable car symétrique (par définition). Si on appelle  $P$  le vecteur des paramètres  $p_i$  et  $Z$  celui des paramètres  $z_i$  qu'on souhaite indépendant alors on a :

$$Z = Cov^{-1/2}P = RD^{-1/2}R^{-1}P \quad (\text{A.4})$$

Cette relation est vraie si  $Cov$  est définie positive ie :

$$W^t Cov W \geq 0 \quad (\text{A.5})$$

avec  $W$  un vecteur à  $n$  dimensions. Dans le cas à deux dimensions, on obtient :

$$\begin{pmatrix} a & b \end{pmatrix} \begin{pmatrix} Var(X) & Cov(X, Y) \\ Cov(X, Y) & Var(Y) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} = a^2 Var(X) + b^2 Var(Y) + 2ab Cov(X, Y) = Var(aX + bY) \quad (\text{A.6})$$

Par définition de la variance, la matrice de covariance est définie semi-positive. Cela implique que ses valeurs propres sont positives. Dans notre cas, les valeurs propres sont strictement positives. On peut donc effectuer l'opération A.4. Reste à vérifier si la matrice de covariance des  $z_i$  est bien diagonale. Soit  $M$  la représentation matricielle d'une application linéaire  $f$  :

$$y = f(x) \Leftrightarrow Y = MX \quad (\text{A.7})$$

La covariance de  $Y$ , s'écrit alors :

$$Cov(Y) = MCov(X)M^t \quad (\text{A.8})$$

Dans notre cas,  $M = Cov^{-1/2}(X)$  par conséquent :

$$Cov(Y) = Cov^{-1/2}(X)Cov(X)Cov^{1/2} = I_n \quad (\text{A.9})$$

Finalement, on a construit des paramètres indépendants de variance unité. Vérifions que si l'on tire simultanément sur les paramètres  $z_i$  on retrouve bien la valeur du BU pour un temps  $t$  donné et son incertitude. En effet à partir de l'équation A.2, et connaissant les paramètres  $p_i$  ainsi que la matrice de covariance les liant, on peut calculer analytiquement l'incertitude associée au BU à un temps  $t$  :

$$\sigma_{BU}^2 = \sum_i \sum_j \frac{\partial BU}{\partial p_i} \frac{\partial BU}{\partial p_j} Cov(p_i, p_j) \quad (\text{A.10})$$

Pour un temps  $t = 20$  jours, on a  $BU(t = 20) = 0.31084 \pm 0.00213$ . La figure A.3 qui est le résultat du tirage simultané sur les paramètres  $z_i$  permet de confirmer que la procédure mise en place est correcte. Les  $z_i$  sont bien indépendants. On pourra ainsi effectuer des tirages aléatoire sur ces variables afin de déterminer la sensibilité des rendements en masse à l'évaluation du BU. Notons que cette procédure de décorrélation n'est valable que si la corrélation des coefficients est linéaire ou que les paramètres suivent des lois gaussiennes. Dans le cas d'un fit, l'hypothèse gaussienne est remplie.

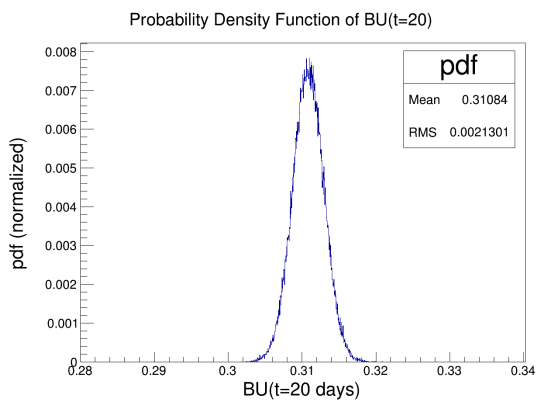


FIGURE A.3 – Résultat de la décorrélation des paramètres du fit sur l'évaluation du BU et de son incertitude.

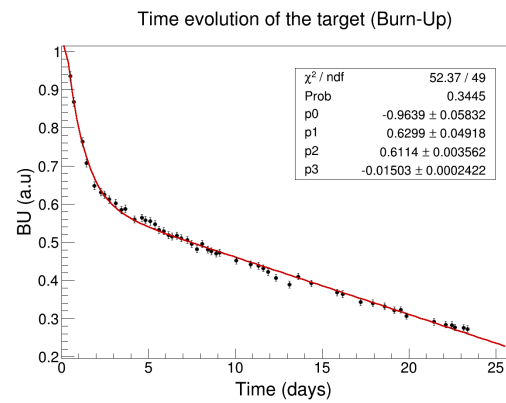
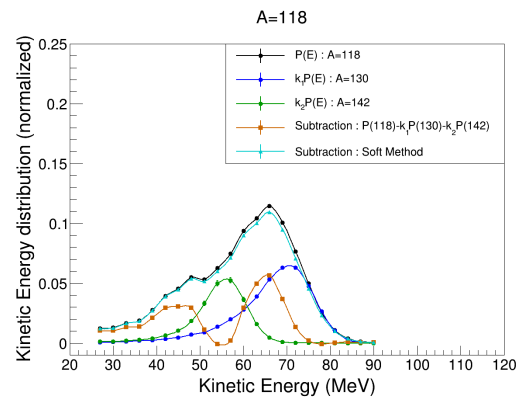
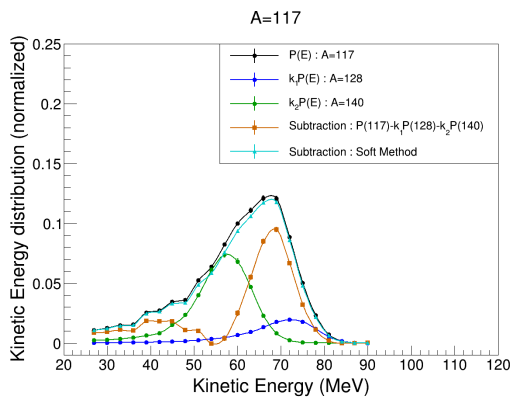
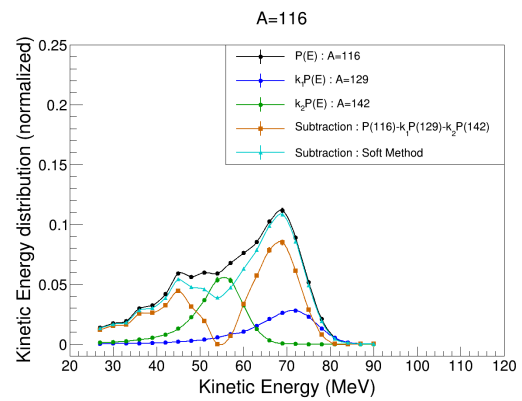
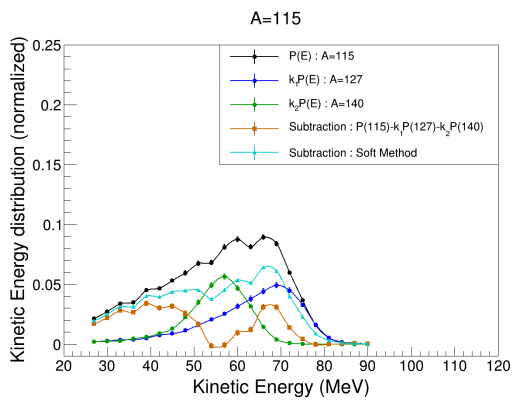
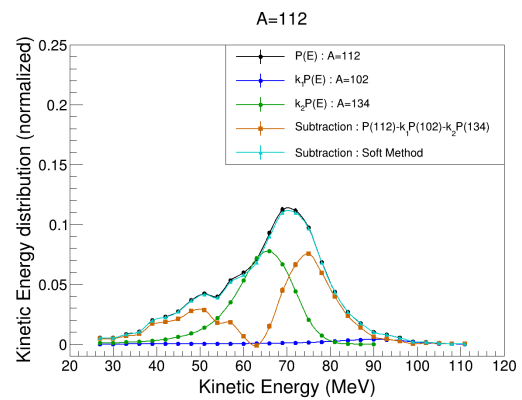
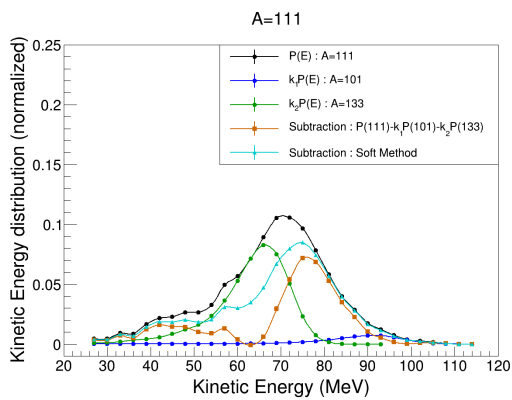
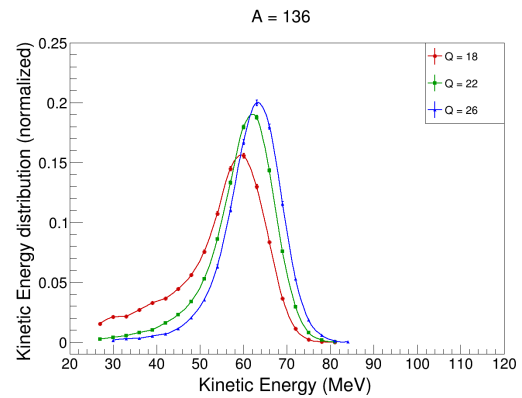
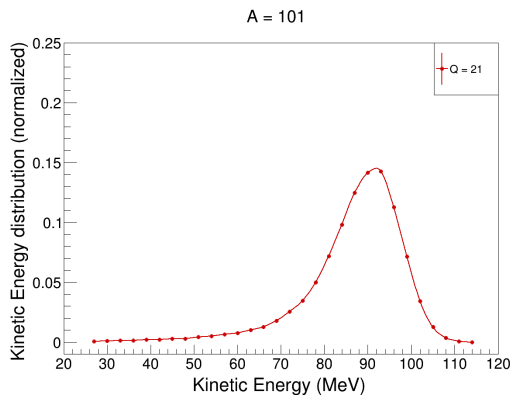


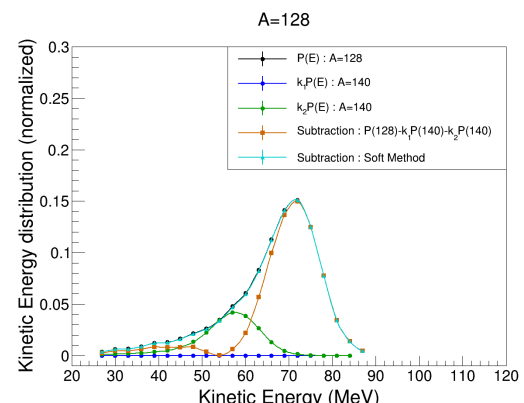
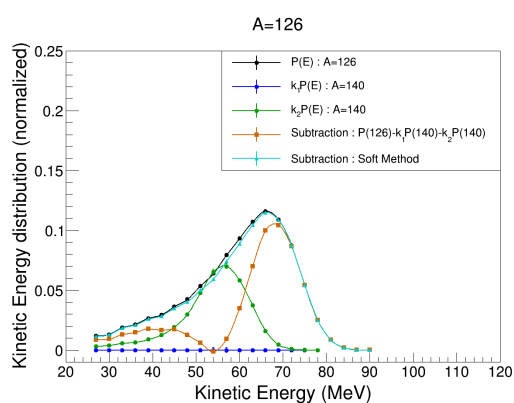
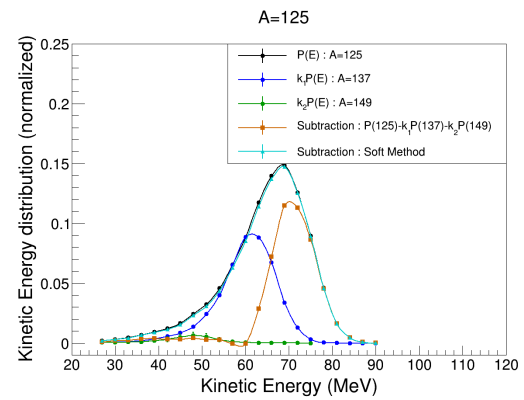
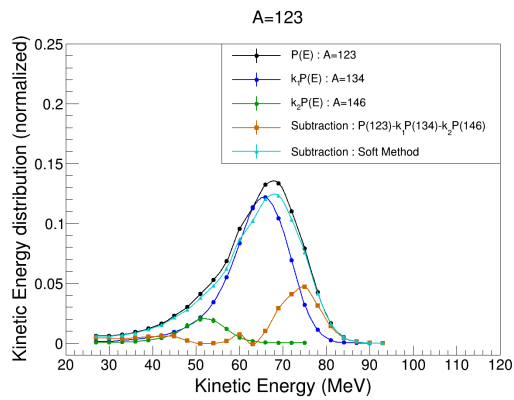
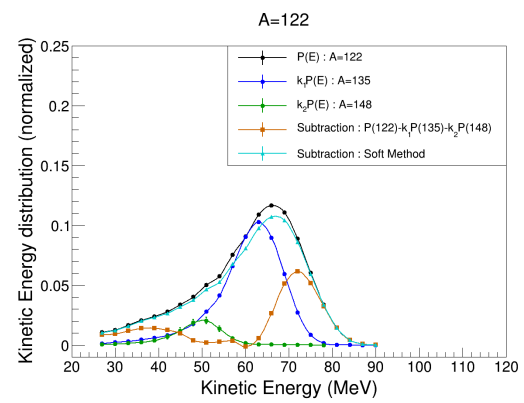
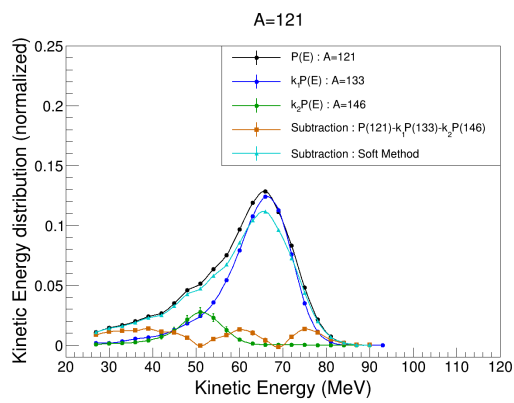
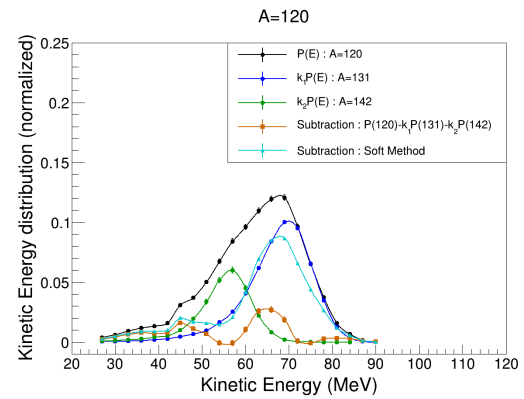
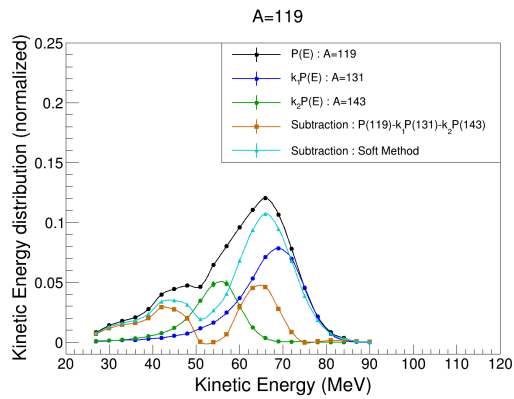
FIGURE A.4 – Évolution de l'état de la cible (ou burn-up) en fonction du temps. Une allure exponentielle suivie d'une dépendance linéaire est modélisée.

ANNEXE B

# Bilan des résultats de la mesure des masses symétriques

---





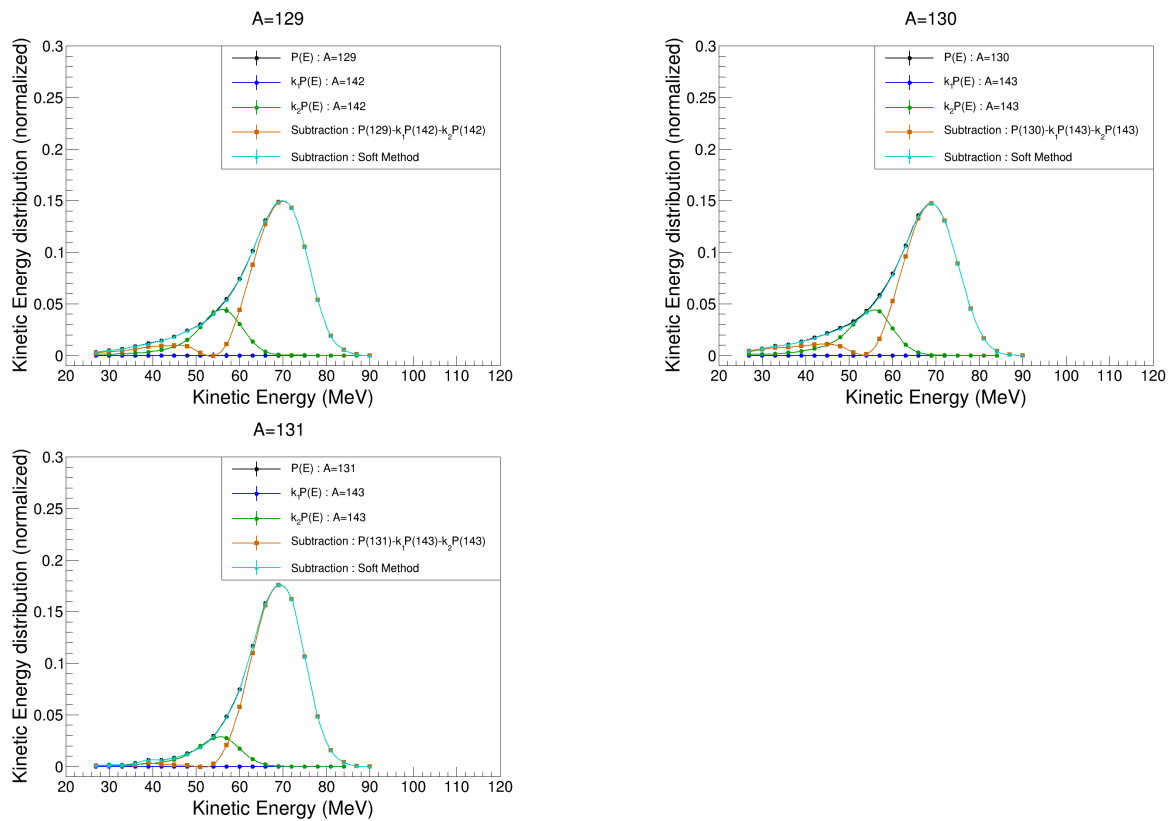
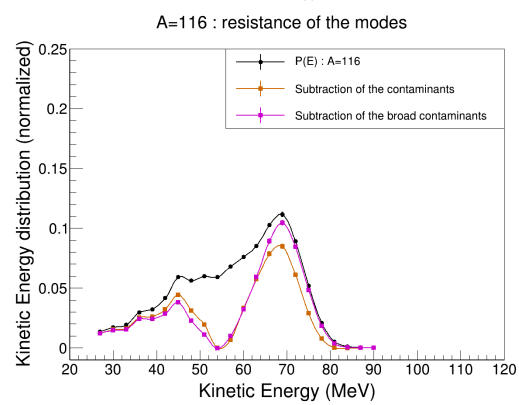
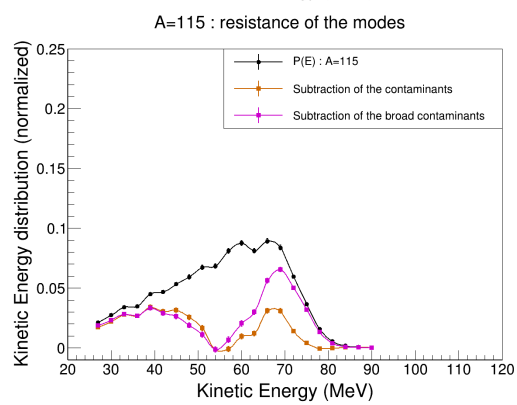
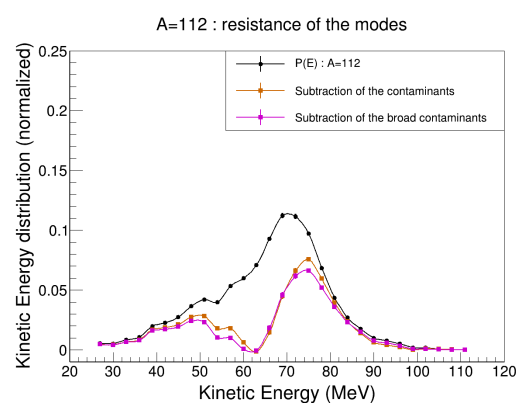
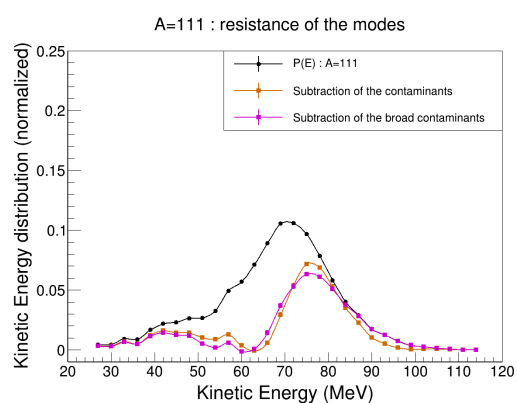
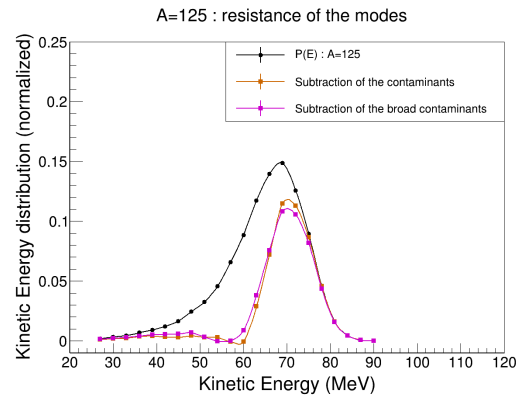
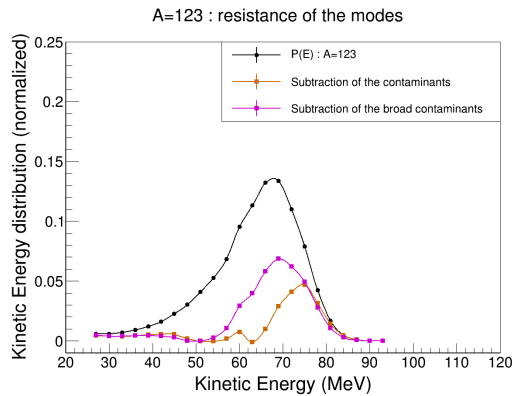
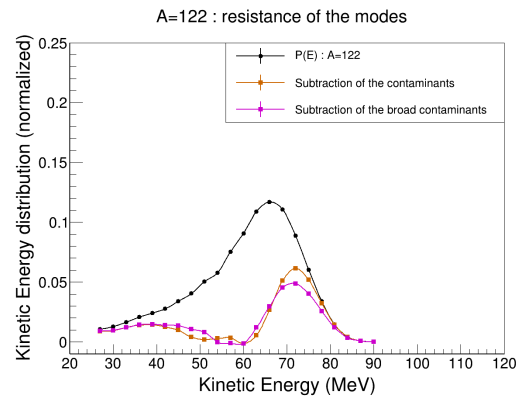
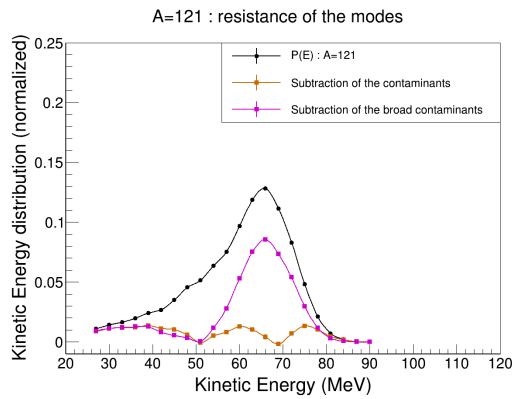
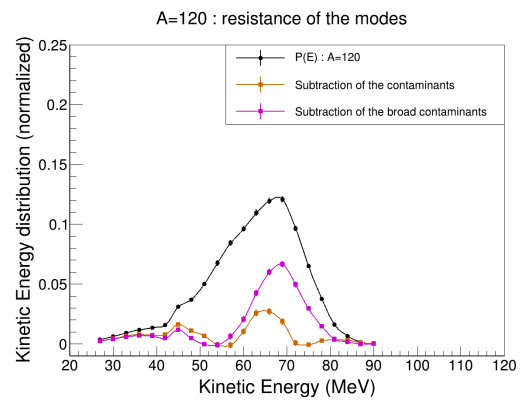
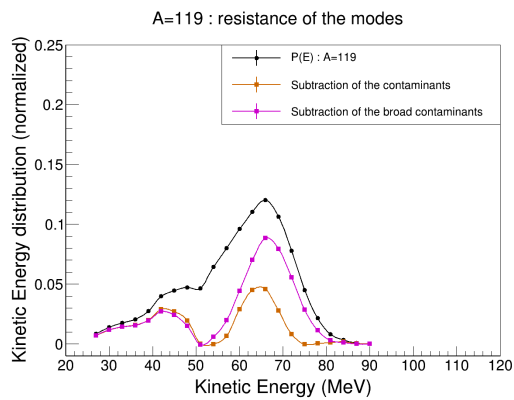
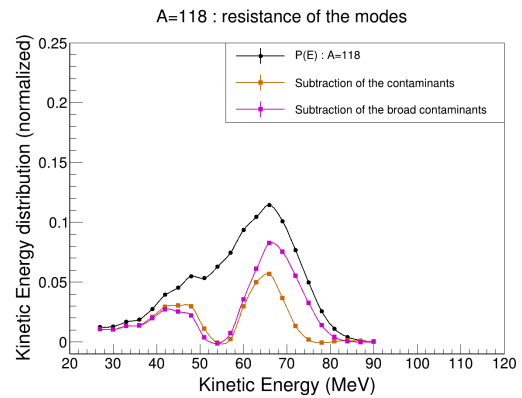
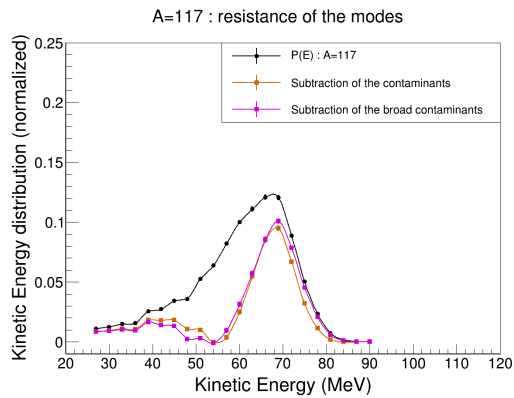


FIGURE B.1 – *Distribution en énergie cinétique des masses symétriques. Lorsqu'on applique la méthode "raw" de décontamination, deux modes sont présents. Notons qu'en l'absence de contaminant, les distributions présentes une queue de distribution.*







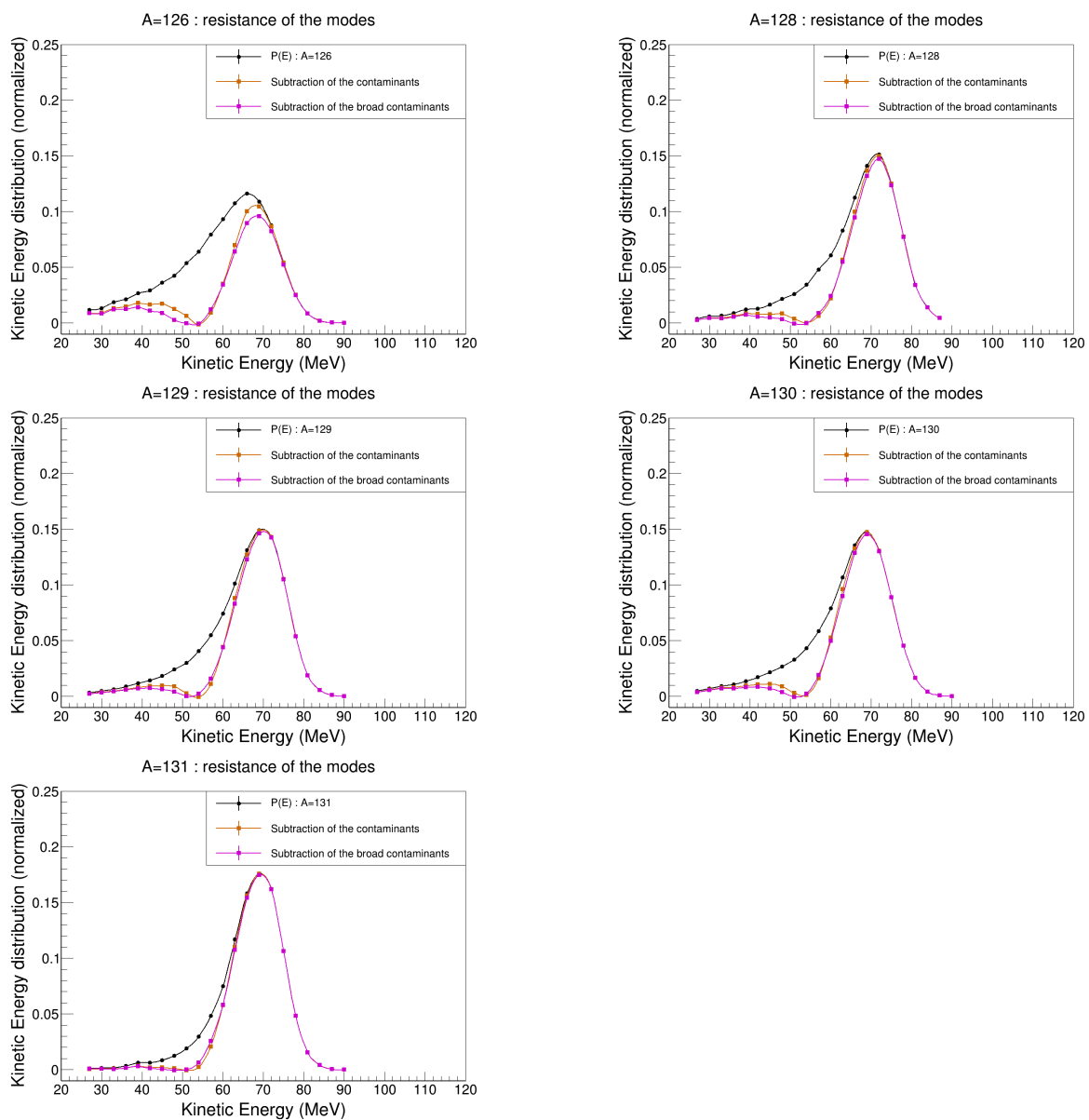


FIGURE B.2 – Test de résistance des modes présent dans les distributions en énergie cinétique. Un élargissement de 10 % des distributions des contaminants a été effectué. Les modes sont toujours présents.

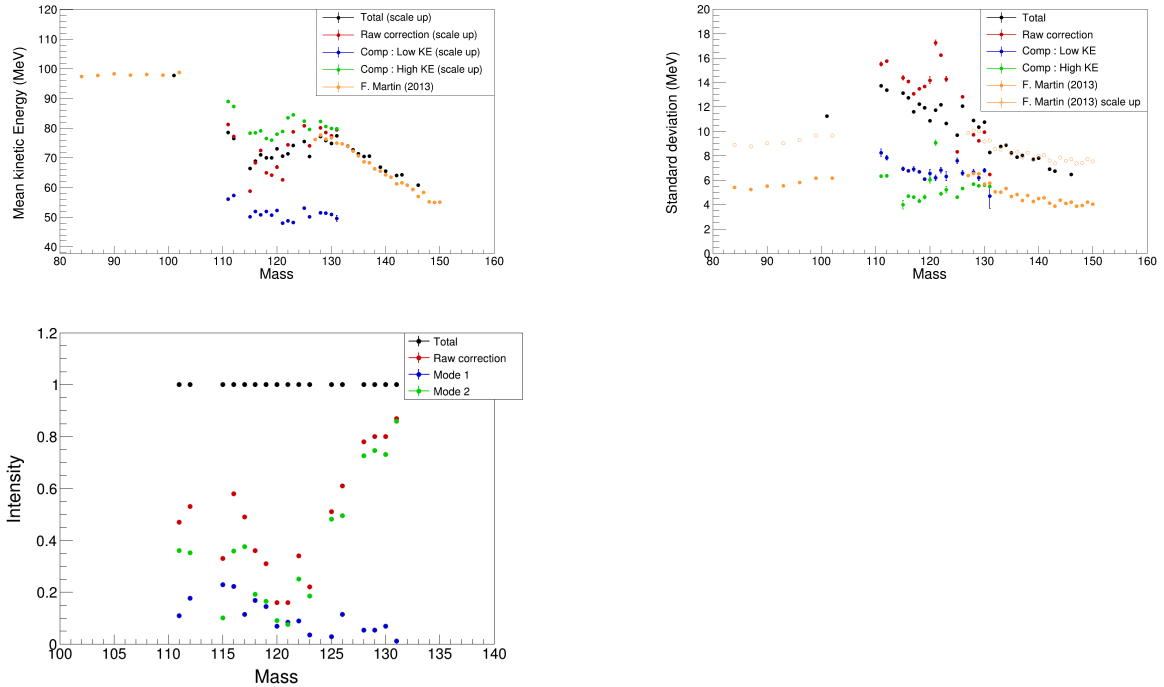


FIGURE B.3 – *Caractéristique des deux modes. L'énergie cinétique moyenne, l'écart-type ainsi que l'intensité des modes sont représentée en fonction de la masse symétrique.*

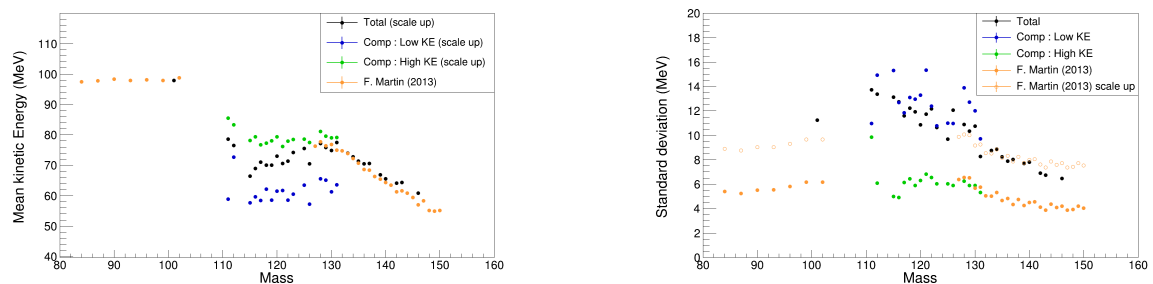


FIGURE B.4 – *Caractéristique des deux composantes issus d'une déconvolution de la distribution en énergie cinétique extraite à l'aide de la méthode "soft". L'énergie cinétique moyenne et l'écart-type sont représentés en fonction de la masse symétrique.*

# Bibliographie

- [Amouroux(2014)] C. Amouroux (2014), *Mesure des rendements de fission de l'Am-242 auprès du spectromètre Lohengrin (réacteur ILL) & Amélioration et validation du code semi empirique GEF*, Ph.D. thesis (Université Paris Sud), 2014PA112237.
- [Andreyev et al.(2010)] A. N. Andreyev, J. Elseviers, et al., *New type of asymmetric fission in proton-rich nuclei*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 252502 (2010).
- [Armbruster et al.(1976)] P. Armbruster, M. Asghar, et al., *The recoil separator lohengrin : Performance and special features for experiments*, *Nuclear Instruments and Methods* **139** (0), 213 (1976).
- [Armbruster et al.(1996)] P. Armbruster, M. Bernas, et al., *Low-energy fission investigated in reactions of 750 amev<sup>238</sup>u-ions with pb and be targets*, *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei* **355** (1), 191 (1996).
- [Armbruster et al.(1971)] P. Armbruster, J. Eidens, et al., *Are gas-filled magnetic separators a useful tool to investigate heavy fast recoils from nuclear reactions ?*, *Nuclear Instruments and Methods* **91** (3), 499 (1971).
- [Arnold et al.(2014)] C. Arnold, F. Tovesson, et al., *Development of position-sensitive time-of-flight spectrometer for fission fragment research*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **764** (0), 53 (2014).
- [Axel(1962)] P. Axel, *Electric dipole ground-state transition width strength function and 7-mev photon interactions*, *Phys. Rev.* **126**, 671 (1962).
- [Bail(2009)] A. Bail (2009), *Mesures de rendements isobariques et isotopiques des produits de fission lourds sur le spectromètre de masse Lohengrin*, Ph.D. thesis (Université de Bordeaux 1).
- [Beiner et al.(1975)] M. Beiner, H. Flocard, et al., *Nuclear ground-state properties and self-consistent calculations with the skyrme interaction : (i). spherical description*, *Nuclear Physics A* **238** (1), 29 (1975).
- [Benoit(2012)] J.-c. Benoit (2012), *Développement d'un code de propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle dans les réacteurs à neutrons rapides*, Ph.D. thesis (Université Paris 11), 2012PA112254.
- [Bertulani et Baur(1988)] C. A. Bertulani et G. Baur, *Electromagnetic processes in relativistic heavy ion collisions*, *Physics Reports* **163** (5–6), 299 (1988).
- [Bethe(1953)] H. A. Bethe, *Molière's theory of multiple scattering*, *Phys. Rev.* **89**, 1256 (1953).
- [Betz(1972)] H. D. Betz, *Charge states and charge-changing cross sections of fast heavy ions penetrating through gaseous and solid media*, *Rev. Mod. Phys.* **44**, 465 (1972).
- [Bocquet et al.(1988)] J. Bocquet, R. Brissot, et H. Faust, *A large ionization chamber for fission fragment nuclear charge identification at the LOHENGRIN spectrometer*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **267** (2), 466 (1988).
- [Bocquet et al.(1980)] J. Bocquet, F. Schussler, et al. (1980), in *Physics and Chemistry of Fission 1979*, edited by I. A. E. Agency, pp. 179–191.

- [Bohr(1936)] N. Bohr, *Neutron capture and nuclear constitution*, *Nature* **137** (3461), 344 (1936).
- [Bohr et Wheeler(1939)] N. Bohr et J. A. Wheeler, *The mechanism of nuclear fission*, *Phys. Rev.* **56**, 426 (1939).
- [Bonneau et al.(2007)] L. Bonneau, P. Quentin, et I. N. Mikhailov, *Scission configurations and their implication in fission-fragment angular momenta*, *Phys. Rev. C* **75**, 064313 (2007).
- [Booth et Grant(1965)] W. Booth et I. Grant, *The energy loss of oxygen and chlorine ions in solids*, *Nuclear Physics* **63** (3), 481 (1965).
- [Börner et Gönnerwein(2012)] H. G. Börner et F. Gönnerwein (2012), *THE NEUTRON. A Tool and an Object in Nuclear and Particle Physics* (World Scientific).
- [Boucheneb et al.(1991)] N. Boucheneb, M. Asghar, et al., *A high-resolution multi-parametric study of  $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$  with the Cosi-Fan-Tutte spectrometer*, *Nuclear Physics A* **535** (1), 77 (1991).
- [Boutoux et al.(2013)] G. Boutoux, G. Bélier, et al., *The SOFIA experiment*, *Physics Procedia* **47** (0), 166 (2013), scientific Workshop on Nuclear Fission Dynamics and the Emission of Prompt Neutrons and Gamma Rays, Biarritz, France, 28-30 November 2012.
- [Brissot(1977)] R. Brissot (1977), *Fission thermique de l'uranium et du plutonium : distributions isotopiques des gaz rares et étude de l'effet "pair-impair"*, Ph.D. thesis (Université scientifique et médicale de Grenoble).
- [Brissot et al.(1980)] R. Brissot, J. Bocquet, et al. (1980), in *Physics and Chemistry of Fission 1979*, edited by I. A. E. Agency, pp. 99–110.
- [Brissot et al.(1975)] R. Brissot, J. Crançon, et al., *Distributions isotopiques des gaz rares dans la fission par neutrons thermiques de  $^{235}\text{U}$  et  $^{233}\text{U}$* , *Nuclear Physics A* **255** (2), 461 (1975).
- [Brosa et al.(1990)] U. Brosa, S. Grossmann, et A. Müller, *Nuclear scission*, *Phys. Reports* **197** (4), 167 (1990).
- [Brown et Moak(1972)] M. D. Brown et C. D. Moak, *Stopping powers of some solids for 30-90-meV  $^{238}\text{U}$  ions*, *Phys. Rev. B* **6**, 90 (1972).
- [Brun et Rademakers(1997)] R. Brun et F. Rademakers, *{ROOT} — an object oriented data analysis framework*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **389** (1–2), 81 (1997), new Computing Techniques in Physics Research V.
- [Brunton et Hanna(1949)] D. C. Brunton et G. C. Hanna, *Fission Fragment Energies in  $^{235}\text{U}$  and  $^{233}\text{U}$* , *Phys. Rev.* **75**, 990 (1949).
- [Budtz-Jørgensen et Knitter(1988)] C. Budtz-Jørgensen et H.-H. Knitter, *Simultaneous investigation of fission fragments and neutrons in  $^{252}\text{Cf}$  (sf)*, *Nuclear Physics A* **490** (2), 307 (1988).
- [Buessler et al.(1990)] K. Buessler, S. Casso, et al., *Determination of fission-products and actinides in the black sea following the chernobyl accident*, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **138** (1), 33 (1990).
- [Capote et al.(2009)] R. Capote, M. Herman, et al., *RIPL – reference input parameter library for calculation of nuclear reactions and nuclear data evaluations*, *Nucl. Data Sheets* **110** (12), 3107 (2009).

- [Cohen et Fulmer(1958)] B. L. Cohen et C. B. Fulmer, *Fission-fragment mass separator and the nuclear charge distribution of fission fragments of a single mass*, *Nuclear Physics* **6** (0), 547 (1958).
- [Coryell et Sugarman(1951)] C. D. Coryell et N. Sugarman (1951), *Radiochemical Studies : The Fission Products* (New-York : McGraw-Hill).
- [Datz et al.(1970)] S. Datz, H. O. Lutz, et al., *Electron capture and loss cross sections of fast bromine ions in gases*, *Phys. Rev. A* **2**, 430 (1970).
- [Dechargé et Gogny(1980)] J. Dechargé et D. Gogny, *Hartree-fock-bogolyubov calculations with the d1 effective interaction on spherical nuclei*, *Phys. Rev. C* **21**, 1568 (1980).
- [Denkmayr et al.(2014)] T. Denkmayr, H. Geppert, et al., *Observation of a quantum Cheshire Cat in a matter-wave interferometer experiment*, *Nat Commun* **5** (2014), 10.1038/ncomms5492.
- [Denschlag et al.(1980)] H. Denschlag, H. Braun, et W. Faubel (1980), in *Physics and Chemistry of Fission 1979*, edited by I. A. E. Agency, pp. 153–177.
- [Doré et al.(2014)] D. Doré, F. Farget, et al., *Falstaff : A new tool for fission fragment characterization*, *Nuclear Data Sheets* **119** (0), 346 (2014).
- [Ericson(1960)] T. Ericson, *The statistical model and nuclear level densities*, *Adv. Phys.* **9** (36), 425 (1960).
- [Falenty et al.(2014)] A. Falenty, T. C. Hansen, et W. F. Kuhs, *Formation and properties of ice XVI obtained by emptying a type sII clathrate hydrate*, *Nature* **516**, 231 (2014).
- [FAST ComTec GmbH(1998)] FAST ComTec GmbH (1998), *MPA-3 Multiparameter data Acquisition System User Manual*.
- [Faust(2012)] H. Faust, *Population and decay of entry states in fission products*, *Physics Procedia* **31** (0), 118 (2012), GAMMA-1 Emission of Prompt Gamma-Rays in Fission and Related Topics.
- [Faust et al.(1981)] H. Faust, P. Geltenbort, et al. (1981), *Calibration and adjustment procedures for LOHENGRIN*, Tech. Rep. 81FA45S (Institut Laue-Langevin).
- [Faust et Bao(2004)] H. R. Faust et Z. Bao, *Higher moments in the kinetic energy distribution of fission products*, *Nucl. Phys. A* **736** (1–2), 55 (2004).
- [Fermi(1927)] E. Fermi, *Un metodo statistico per la determinazione di alcune priorieta dell'atome*, *Rend. Accad. Naz. Lincei* **6** (602-607), 32 (1927).
- [Fioni et al.(1993)] G. Fioni, H. Faust, et al., *Reduction of energy dispersion on a parabola mass spectrometer*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **332** (1–2), 175 (1993).
- [Fiorito et al.(2014)] L. Fiorito, C. Diez, et al., *Fission yield covariance generation and uncertainty propagation through fission pulse decay heat calculation*, *Annals of Nuclear Energy* **69** (0), 331 (2014).
- [Fong(1956)] P. Fong, *Statistical theory of nuclear fission : Asymmetric fission*, *Phys. Rev.* **102**, 434 (1956).
- [Fong(1974)] P. Fong, *Asymmetric fission*, *Phys. Rev. C* **10**, 1122 (1974).
- [Fulbright(1979)] H. Fulbright, *Ionization chambers*, *Nuclear Instruments and Methods* **162** (1), 21 (1979).

- [Gamow(1930)] G. Gamow, *Mass defect curve and nuclear constitution*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character **126** (803), pp. 632 (1930).
- [Genevey *et al.*(1999)] J. Genevey, F. Ibrahim, et al., *Identification of  $\mu$ s isomers in the fission products of  $^{241}\text{Pu}(n_{\text{th}}, f)$* , Phys. Rev. C **59**, 82 (1999).
- [Genevey *et al.*(2003)] J. Genevey, J. A. Pinston, et al., *High-spin microsecond isomers in  $^{129}\text{In}$  and  $^{129}\text{Sb}$* , Phys. Rev. C **67**, 054312 (2003).
- [Genevey *et al.*(2001)] J. Genevey, J. A. Pinston, et al., *Conversion electron measurements of isomeric transitions in  $^{130,132}\text{Te}$  and  $^{134}\text{Xe}$* , Phys. Rev. C **63**, 054315 (2001).
- [Ghiorso *et al.*(1988)] A. Ghiorso, S. Yashita, et al., *Sassy, a gas-filled magnetic separator for the study of fusion reaction products*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment **269** (1), 192 (1988).
- [Gilbert et Cameron(1965)] A. Gilbert et A. Cameron, *A composite nuclear-level density formula with shell corrections*, Can. J. Phys. **43** (8), 1446 (1965).
- [Gönnenwein *et al.*(2007)] F. Gönnenwein, I. Tsekhanovich, et V. Rubchenya, *Angular momenta of near-spherical fission fragments*, International Journal of Modern Physics E **16** (2), 410 (2007).
- [Goriely *et al.*(2004)] S. Goriely, E. Khan, et M. Samyn, *Microscopic HFB + QRPA predictions of dipole strength for astrophysics applications*, Nucl. Phys. A **739** (3–4), 331 (2004).
- [Goutte *et al.*(2005)] H. Goutte, J. F. Berger, et al., *Microscopic approach of fission dynamics applied to fragment kinetic energy and mass distributions in  $^{238}\text{U}$* , Phys. Rev. C **71**, 024316 (2005).
- [Gregorich(2013)] K. Gregorich, *Simulation of recoil trajectories in gas-filled magnetic separators*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment **711** (0), 47 (2013).
- [Gregory(2005)] P. Gregory (2005), *Bayesian Logical Data Analysis for the Physical Sciences* (Cambridge University press).
- [Hahn et Strassmann(1939)] O. Hahn et F. Strassmann, *Über den nachweis und das verhalten der bei der bestrahlung des urans mittels neutronen entstehenden erdalkalimetalle*, Naturwissenschaften **27** (1), 11 (1939).
- [Haxel *et al.*(1949)] O. Haxel, J. H. D. Jensen, et H. E. Suess, *On the "magic numbers" in nuclear structure*, Phys. Rev. **75**, 1766 (1949).
- [Hulet *et al.*(1989)] E. K. Hulet, J. F. Wild, et al., *Spontaneous fission properties of  $^{258}\text{Fm}$ ,  $^{259}\text{Md}$ ,  $^{260}\text{Md}$ ,  $^{258}\text{No}$ , and  $^{260}\text{Po}$  : Bimodal fission*, Phys. Rev. C **40**, 770 (1989).
- [Ichikawa *et al.*(2012)] T. Ichikawa, A. Iwamoto, et al., *Contrasting fission potential-energy structure of actinides and mercury isotopes*, Phys. Rev. C **86**, 024610 (2012).
- [Institut Laue-Langevin(2010)] Institut Laue-Langevin (2010), *Présentation ILL*, commissions locales d'information.
- [Institut Laue-Langevin(2015)] Institut Laue-Langevin (2015), *Site internet de l'ILL*, En ligne.
- [Jentschke et Prankl(1942)] W. Jentschke et F. Prankl, *Energien und massen der urankernbruchstücke bei bestrahlung mit vorwiegend thermischen neutronen*, Zeitschrift für Physik **119** (11-12), 696 (1942).

- [Jordanov et Knoll(1994)] V. T. Jordanov et G. F. Knoll, *Digital synthesis of pulse shapes in real time for high resolution radiation spectroscopy*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment **345** (2), 337 (1994).
- [Kessedjian et al.(2010)] G. Kessedjian, O. Méplan, et al.,  *${}^7\text{Li}$  neutron-induced elastic scattering cross section measurement using a slowing-down spectrometer*, EPJ Web of Conferences **8**, 07005 (2010).
- [Khazov et al.(2005)] Y. Khazov, A. Rodionov, et al., *Nuclear data sheets for  $a = 132$* , Nuclear Data Sheets **104** (3), 497 (2005).
- [Kiker(1964)] W. Kiker (1964), *Correlated energy and time-of-flight measurements of fission fragments*, Ph.D. thesis (Oak Ridge National Laboratory).
- [Knitter et al.(1987)] H.-H. Knitter, F.-J. Hambsch, et al., *Three exit channels in the fission of  ${}^{235}\text{U}$  ( $n, f$ )*, Zeitschrift für Naturforschung A **42** (8), 786 (1987).
- [Knoll(2000)] G. F. Knoll (2000), *Radiation Detection and Measurement*, 3rd ed. (John Wiley & Sons, Inc.).
- [Koch et al.(1980)] H. Koch, H. Börner, et al., *The curved crystal gamma ray spectrometers GAMS 1, GAMS 2, GAMS 3 for high resolution ( $n, \gamma$ ) measurements at the high flux reactor in grenoble*, Nuclear Instruments and Methods **175** (2–3), 401 (1980).
- [Koning et al.(2006)] A. Koning, R. Forrest, et al. (2006), *The JEFF-3.1 nuclear data library* (OECD).
- [Kopecky et Uhl(1990)] J. Kopecky et M. Uhl, *Test of gamma-ray strength functions in nuclear reaction model calculations*, Phys. Rev. C **41**, 1941 (1990).
- [Köster et al.(2010)] U. Köster, H. Faust, et al., *Experience with in-pile fission targets at {LO-HENGRIN}*, Nucl. Instrum. Meth. A **613** (3), 363 (2010).
- [Kreuz et al.(2009)] M. Kreuz, V. Nesvizhevsky, et al., *A method to measure the resonance transitions between the gravitationally bound quantum states of neutrons in the GRANIT spectrometer*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment **611** (2–3), 326 (2009), particle Physics with Slow Neutrons.
- [Kutta(1901)] W. Kutta, *Beitrag zur näherungsweise Integration totaler Differentialgleichungen*, Zeitschrift für Mathematik und Physik **46** (435-453) (1901).
- [Laborie et al.(2000)] J.-M. Laborie, G. L. Petit, et al., *Monte carlo calculation of the efficiency calibration curve and coincidence-summing corrections in low-level gamma-ray spectrometry using well-type HPGe detectors*, Applied Radiation and Isotopes **53** (1–2), 57 (2000).
- [Lammer(1988)] M. Lammer (1988), *Fission yield evaluation*, Tech. Rep. (International Atomic Energy Agency, Vienna (Austria). International Nuclear Data Committee).
- [Lawin et al.(1976)] H. Lawin, J. Eidens, et al., *The jülich on-line separator for fission products "Josef"*, Nuclear Instruments and Methods **137** (1), 103 (1976).
- [Lee et al.(2012)] B. Q. Lee, T. Kibédi, et al., *Atomic radiations in the decay of medical radioisotopes : A physics perspective*, Computational and mathematical methods in medicine **2012** (2012).
- [Lee, Boon Q. et al.(2015)] Lee, Boon Q., Kibédi, Tibor, et Stuchbery, Andrew E., *Auger yield calculations for medical radioisotopes*, EPJ Web of Conferences **91**, 00007 (2015).

- [Leino(2003)] M. Leino, *Gas-filled separators – an overview*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms **204** (0), 129 (2003), 14th International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to their Applications.
- [Leino et al.(1995)] M. Leino, J. Äystö, et al., *Gas-filled recoil separator for studies of heavy elements*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms **99** (1–4), 653 (1995), application of Accelerators in Research and Industry '94.
- [Litaize et Serot(2010)] O. Litaize et O. Serot, *Investigation of phenomenological models for the monte carlo simulation of the prompt fission neutron and  $\gamma$  emission*, Phys. Rev. C **82**, 054616 (2010).
- [Lépy et al.(2010)] M.-C. Lépy, T. Altitzoglou, et al., *Intercomparison of methods for coincidence summing corrections in gamma-ray spectrometry*, Applied Radiation and Isotopes **68** (7–8), 1407 (2010), proceedings of the 17th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications (ICRM 2009).
- [Madland et England(1977)] D. G. Madland et T. R. England, *The influence of isomeric states on independent fission product yields*, Nuclear Science and Engineering **64** (4), 859 (1977).
- [Martin(2013)] F. Martin (2013), *Étude des distributions en masse, charge nucléaire et énergie cinétique des produits de fission de  $^{233}\text{U}(n_{th},f)$  et du  $^{241}\text{Pu}(n_{th},f)$  mesurées auprès du spectromètre de masse LOHENGRIN (ILL)*, Ph.D. thesis (Université de Grenoble).
- [Mayer(1949)] M. G. Mayer, *On closed shells in nuclei. ii*, Phys. Rev. **75**, 1969 (1949).
- [McCutchan et Sonzogni(2014)] E. McCutchan et A. Sonzogni, *Nuclear data sheets for  $a = 88$* , Nuclear Data Sheets **115** (0), 135 (2014).
- [Meitner et Frisch(1939)] L. Meitner et O. R. Frisch, *Disintegration of uranium by neutrons : a new type of nuclear reaction*, Nature **143** (3615), 239 (1939).
- [Möller et al.(2012)] P. Möller, J. Randrup, et A. J. Sierk, *Calculated fission yields of neutron-deficient mercury isotopes*, Phys. Rev. C **85**, 024306 (2012).
- [Möller et al.(2004)] P. Möller, A. J. Sierk, et A. Iwamoto, *Five-dimensional fission-barrier calculations from  $^{70}\text{Se}$  to  $^{252}\text{Cf}$* , Phys. Rev. Lett. **92**, 072501 (2004).
- [Mutti et Ruiz-Martinez(2011)] P. Mutti et E. Ruiz-Martinez (2011), *DPP User's Guide*, En ligne.
- [Naik et al.(2005)] H. Naik, S. P. Dange, et R. J. Singh, *Angular momentum of fission fragments in low energy fission of actinides*, Phys. Rev. C **71**, 014304 (2005).
- [Neiler et al.(1966)] J. N. Neiler, F. J. Walter, et H. W. Schmitt, *Fission-fragment energy-correlation measurements for the thermal-neutron fission of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$* , Phys. Rev. **149**, 894 (1966).
- [Neyman et Pearson(1933)] J. Neyman et E. S. Pearson, *On the problem of the most efficient tests of statistical hypotheses*, Phil. Trans. R. Soc. A **231** (694-706), 289 (1933).
- [Nilsson(1955)] S. G. Nilsson, *Binding states of individual nucleons in strongly deformed nuclei*, Dan. Mat. Fys. Medd. **29** (CERN-55-30), 1 (1955).
- [Nishio et al.(1998)] K. Nishio, M. Nakashima, et al., *Multi-parametric measurement of prompt neutrons and fission fragments for  $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$* , Journal of Nuclear Science and Technology **35** (9), 631 (1998).



- [Nix et Swiatecki(1965)] J. R. Nix et W. J. Swiatecki, *Studies in the liquid-drop theory of nuclear fission*, Nucl. Phys. **71** (1), 1 (1965).
- [Oberstedt *et al.*(2010)] S. Oberstedt, T. Belgya, et al. (2010), in *EPJ Web of Conferences*, Vol. 8 (EDP Sciences) p. 03005.
- [Oed *et al.*(1984)] A. Oed, P. Geltenbort, et al., *A mass spectrometer for fission fragments based on time-of-flight and energy measurements*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **219** (3), 569 (1984).
- [Oed *et al.*(1983)] A. Oed, P. Geltenbort, et al., *High resolution axial ionization chamber for fission products*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **205** (3), 455 (1983).
- [Olive *et al.*(2014)] K. Olive et al. (Particle Data Group), *Review of Particle Physics*, Chin.Phys. **C38**, 090001 (2014).
- [Panebianco *et al.*(2012)] S. Panebianco, J.-L. Sida, et al., *Role of deformed shell effects on the mass asymmetry in nuclear fission of mercury isotopes*, Phys. Rev. C **86**, 064601 (2012).
- [Paul *et al.*(1989)] M. Paul, B. G. Glagola, et al., *Heavy ion separation with a gas-filled magnetic spectrograph*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment **277** (2–3), 418 (1989).
- [Pfeiffer(1970)] E. Pfeiffer, *Thorium fission by 4.8 and 14 mev neutrons*, Zeitschrift für Physik **240** (5), 403 (1970).
- [Pichlmaier *et al.*(2010)] A. Pichlmaier, V. Varlamov, et al., *Neutron lifetime measurement with the UCN trap-in-trap MAMBO II*, Physics Letters B **693** (3), 221 (2010).
- [Pierce et Blann(1968)] T. E. Pierce et M. Blann, *Stopping powers and ranges of 5-90-mev s<sup>32</sup>, cl<sup>35</sup>, br<sup>79</sup>, and i<sup>127</sup> ions in h<sub>2</sub>, he, n<sub>2</sub>, ar, and kr : A semiempirical stopping power theory for heavy ions in gases and solids*, Phys. Rev. **173**, 390 (1968).
- [Polikanov *et al.*(1962)] S. Polikanov, V. Druin, et al., *Spontaneous fission with an anomalously short period. 1.*, SOVIET PHYSICS JETP-USSR **15** (6), 1016 (1962).
- [Randrup et Möller(2011)] J. Randrup et P. Möller, *Brownian shape motion on five-dimensional potential-energy surfaces :nuclear fission-fragment mass distributions*, Phys. Rev. Lett. **106**, 132503 (2011).
- [Randrup *et al.*(2011)] J. Randrup, P. Möller, et A. J. Sierk, *Fission-fragment mass distributions from strongly damped shape evolution*, Phys. Rev. C **84**, 034613 (2011).
- [Rasmussen *et al.*(1969)] J. Rasmussen, W. Nörenberg, et H. Mang, *A model for calculating the angular momentum distribution of fission fragments*, Nucl. Phys. A **136** (2), 465 (1969).
- [Regnier(2013)] D. Regnier (2013), *Contribution à l'étude des gammas prompts de fission*, Ph.D. thesis (Université de Grenoble).
- [Regnier *et al.*(2013)] D. Regnier, O. Litaize, et O. Serot, *Preliminary results of a full hauser-feshbach simulation of the prompt neutron and gamma emission from fission fragments*, Phys. Proc. **47** (0), 47 (2013).
- [Regnier *et al.*(2015)] D. Regnier, O. Litaize, et O. Serot, *Comm. Comput. Phys.* (2015), to be published.
- [Rimpault *et al.*(2012)] G. Rimpault, D. Bernard, et al., *Needs of accurate prompt and delayed  $\gamma$ -spectrum and multiplicity for nuclear reactor designs*, Physics Procedia **31** (0), 3 (2012), GAMMA-1 Emission of Prompt Gamma-Rays in Fission and Related Topics.

- [Ring et Schuck(2004)] P. Ring et P. Schuck (2004), *The nuclear many-body problem* (Springer Science & Business Media).
- [Rodríguez-Tajes *et al.*(2014)] C. Rodríguez-Tajes, F. Farget, et al., *Transfer reactions in inverse kinematics : An experimental approach for fission investigations*, *Phys. Rev. C* **89**, 024614 (2014).
- [Runge(1901)] C. Runge, *Über empirische funktionen und die Interpolation zwischen äquidistanten ordinaten*, *Zeitschrift für Mathematik und Physik* **46** (224-243), 20 (1901).
- [Rzāca-Urban *et al.*(2009)] T. Rzāca-Urban, J. Genevey, et al., *Near-yrast structure of  $^{142}\text{Cs}$  and  $^{144}\text{Cs}$* , *Phys. Rev. C* **80**, 064317 (2009).
- [Schlachter *et al.*(1983)] A. S. Schlachter, J. W. Stearns, et al., *Electron capture for fast highly charged ions in gas targets : An empirical scaling rule*, *Phys. Rev. A* **27**, 3372 (1983).
- [Schmidt *et al.*(2014)] K.-H. Schmidt, B. Jurado, et C. Amouroux (2014), *General description of fission observables - GEF model*, Tech. Rep. (NEA Data Bank).
- [Schmitt *et al.*(1965)] H. W. Schmitt, W. E. Kiker, et C. W. Williams, *Precision measurements of correlated energies and velocities of  $^{252}\text{Cf}$  fission fragments*, *Phys. Rev.* **137**, B837 (1965).
- [Schmitt et Leachman(1956)] H. W. Schmitt et R. B. Leachman, *Ionization vs Energy Relation for Fission Fragments*, *Phys. Rev.* **102**, 183 (1956).
- [Schmitt *et al.*(1966)] H. W. Schmitt, J. H. Neiler, et F. J. Walter, *Fragment energy correlation measurements for  $^{252}\text{Cf}$  spontaneous fission and  $^{235}\text{U}$  thermal-neutron fission*, *Phys. Rev.* **141**, 1146 (1966).
- [Shevelko *et al.*(2004)] V. P. Shevelko, O. Rosmej, et al., *The target-density effect in electron-capture processes*, *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics* **37** (1), 201 (2004).
- [Strutinsky(1967)] V. Strutinsky, *Shell effects in nuclear masses and deformation energies*, *Nuclear Physics A* **95** (2), 420 (1967).
- [Sudár(2002)] S. Sudár (2002), *"Truecoinc", a software utility for calculation of the true coincidence correction*, Tech. Rep. IAEA Tecdoc 1275 (International Atomic Energy Agency).
- [Theuerkauf *et al.*(2000)] J. Theuerkauf, S. Esser, et al. (2000), *Tv analysis code*, university of Cologne.
- [Thomas(1927)] L. H. Thomas, *The calculation of atomic fields*, *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* **23**, 542 (1927).
- [Thompson(1989)] D. Thompson, *The search for the electric dipole moment of the neutron at the ILL*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **284** (1), 40 (1989).
- [Turkevich et Niday(1951)] A. Turkevich et J. B. Niday, *Radiochemical studies on the fission of  $\text{th}^{232}$  with pile neutrons*, *Phys. Rev.* **84**, 52 (1951).
- [Vandenbosch et Huizenga(1973)] R. Vandenbosch et J. Huizenga (1973), *Nuclear Fission* (Academic Press, New York and London).
- [Wagemans(1991)] C. Wagemans (1991), *The Nuclear Fission Process* (CRC press).
- [Wahl(1988)] A. C. Wahl, *Nuclear-charge distribution and delayed-neutron yields for thermal-neutron-induced fission of  $^{235}\text{u}$ ,  $^{233}\text{u}$ , and  $^{239}\text{pu}$  and for spontaneous fission of  $^{252}\text{cf}$* , *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **39** (1), 1 (1988).

- [Wilhelmy *et al.*(1972)] J. B. Wilhelmy, E. Cheifetz, et al., *Angular momentum of primary products formed in the spontaneous fission of  $^{252}\text{Cf}$* , *Phys. Rev. C* **5**, 2041 (1972).
- [Wilkins *et al.*(1976)] B. D. Wilkins, E. P. Steinberg, et R. R. Chasman, *Scission-point model of nuclear fission based on deformed-shell effects*, *Phys. Rev. C* **14**, 1832 (1976).
- [Wiza(1979)] J. L. Wiza, *Microchannel plate detectors*, *Nuclear Instruments and Methods* **162** (1–3), 587 (1979).
- [Ziegler(1980)] J. F. Ziegler (1980), *Handbook of Stopping Cross Sections for Energetic Ions in All Elements* (Pergamon Press, New York).
- [Ziegler *et al.*(2010)] J. F. Ziegler, M. Ziegler, et J. Biersack, *SRIM-The stopping and range of ions in matter (2010)*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* **268** (11), 1818 (2010).
- [Zielinska-Pfabé et Dietrich(1974)] M. Zielinska-Pfabé et K. Dietrich, *Angular momentum distribution of fission fragments as a result of bending modes at the scission point*, *Phys. Lett. B* **49** (2), 123 (1974).



**Résumé :** La fission nucléaire consiste en la brisure d'un noyau lourd, généralement un actinide, en deux noyaux plus légers (ou trois dans quelques rares cas). Ce phénomène a été découvert par Hahn et Strassman en 1938. Très rapidement Meitner et Frisch proposèrent une explication théorique pour ce processus à l'aide du modèle de la goutte liquide. Depuis les modèles n'ont cessé d'évoluer et de se complexifier à travers l'ajout de nouveaux mécanismes et l'observation de nouveaux phénomènes. L'amélioration des modèles est un enjeu important à la fois pour la compréhension fondamentale du processus de fission mais aussi pour les applications. En effet, le dimensionnement des réacteurs futurs s'appuie de plus en plus sur des simulations numériques. Il devient dès lors primordial de réduire les incertitudes associées aux données utilisées. Cela passe alors par la validation des hypothèses sous-jacentes des modèles de fission nucléaire.

Dans le cadre de cette thèse, on s'intéresse à deux aspects de la fission nucléaire qui permettront de tester la robustesse des théories. L'un des aspects concerne l'étude des fragments de fission issus de la région de la symétrie à travers la mesure des rendements et des distributions en énergie cinétique. L'autre aspect étudié est le moment angulaire des fragments de fission.

Afin d'accéder au moment angulaire des fragments de fission, l'une des possibilités est d'analyser les propriétés des particules promptes, qui est l'une des ambitions du projet FIPPS (FISSION Product Prompt gamma-ray Spectrometer). Une partie de ce travail a été de caractériser les propriétés des spectromètres magnétiques gazeux à travers des mesures expérimentales et le développement d'une simulation Monte Carlo.

La seconde partie de ce travail a consisté en la mesure de rapports isomériques et en l'extraction de la distribution du moment angulaire des fragments de fission à l'aide d'un code de désexcitation nucléaire. La mesure d'un noyau doublement magique ( $^{132}\text{Sn}$ ) permet de mettre en lumière les limites actuelles des modèles de fission.

Enfin la dernière partie de ce travail porte sur la mesure des rendements et des distributions en énergie cinétique des fragments de fission. Certains modèles prédisent l'existence de modes dans la fission nucléaire. La région des masses symétriques est dès lors un lieu de choix pour vérifier la validité de ces affirmations.

Il est à noter qu'en parallèle de ces études, un accent fort a été mis sur le développement de méthodes d'analyse s'appuyant sur des outils statistiques afin notamment d'améliorer l'évaluation des incertitudes expérimentales.

**Mots clés :** Fission nucléaire, spectromètre de masse LOHENGRIN, spectromètre magnétique gazeux, rapport isomérique, masses symétriques

---

## Nuclear fission studies : from LOHENGRIN to FIPPS

**Abstract :** Nuclear fission consists in splitting a nucleus, in general an actinide, into smaller nuclei. Despite nuclear fission was discovered in 1939 by Hahn and Strassman, fission models cannot predict the fission observables with an acceptable accuracy for nuclear fuel cycle studies for instance. Improvement of fission models is an important issue for the knowledge of the process itself and for the applications. To reduce uncertainties of the nuclear data used in a nuclear reactor simulation, a validation of the models hypothesis is mandatory.

In this work, two features of the nuclear fission were investigated in order to test the resistance of the theories. One aspect is the study of the symmetric fission fragments through the measurement of their yield and kinetic energy distribution. The other aspect is the study of the fission fragment angular momentum.

Two techniques are available to assess the angular momentum of a fission fragment. The first one is to look at the properties of the prompt  $\gamma$ . The new spectrometer FIPPS (FISSION Product Prompt gamma-ray Spectrometer), is currently under development at the ILL and will combine a fission filter with a large array of  $\gamma$  and neutron detectors in order to respond to these issues. The first part of this work is dedicated to the study of the properties of a Gas Filled Magnet (GFM) which is the type of fission filter considered for the FIPPS project.

The second part of this work deals with the measurement of isomeric yields and evaluations of the angular momentum distribution of fission fragments. The study of the spherical nucleus  $^{132}\text{Sn}$  shed the light on the current limits of fission models.

Finally, the last part of this work is about the measurement of the yields and kinetic energy distributions of symmetric fission fragments. Since models predict the existence of fission modes, the symmetry region is a suitable choice to investigate this kind of prediction.

In parallel with all these studies, an emphasis on the development of new methods derived from statistical tools is achieved in order to better control the uncertainties and estimate the biases.

**Keywords :** Nuclear fission, mass spectrometer LOHENGRIN, gas filled magnet, isomeric ratio, symmetric mass