

Etude de la méthode de substitution à partir de la mesure simultanée des probabilités de fission et d'émission gamma des actinides 236U, 238U, 237Np et 238Np

Quentin Ducasse

▶ **To cite this version:**

Quentin Ducasse. Etude de la méthode de substitution à partir de la mesure simultanée des probabilités de fission et d'émission gamma des actinides 236U, 238U, 237Np et 238Np. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université de Bordeaux, 2015. Français. NNT : 2015BORD0109 . tel-01265539

HAL Id: tel-01265539

https://theses.hal.science/tel-01265539

Submitted on 1 Feb 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE PRESENTEE

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR DE

L'UNIVERSITE DE BORDEAUX

ECOLE DOCTORALE des SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGENIEUR

SPECIALITE : ASTROPHYSIQUE, PLASMAS, NUCLEAIRE

Par ***Quentin DUCASSE***

"Etude de la méthode de substitution à partir de la mesure simultanée des probabilités de fission et d'émission gamma des actinides ^{236}U, ^{238}U, ^{237}Np et ^{238}Np"

Sous la direction de : Beatriz Jurado

co-directeur : Olivier Sérot

Membres du jury :

M. GREVY Stéphane	Directeur de Recherche	CENBG Gradignan	Président
Mme FARGET Fanny	Chargée de Recherche 1	GANIL Caen	Rapportrice
M.DESSAGNE Philippe	Directeur de Recherche	IPHC Strasbourg	Rapporteur
M. GORGEN Andreas	Professeur des Universités	Université d'Oslo	Examinateur

Etude de la méthode de substitution à partir de la mesure simultanée des probabilités de fission et d'émission gamma des actinides ^{236}U, ^{238}U, ^{237}Np et ^{238}Np.

Résumé : Les sections efficaces induites par neutrons des noyaux de courte durée de vie jouent un rôle important dans des domaines variés parmi la physique fondamentale, l'astrophysique ou l'énergie nucléaire. Malheureusement de nombreuses contraintes liées à la radiotoxicité des cibles rendent la mesure de ces sections efficaces souvent très difficiles. La méthode de substitution est une technique de mesure indirecte de sections efficaces neutroniques de noyaux radioactifs qui à l'avantage de s'affranchir de ces contraintes. Pour la première fois dans ce type d'expérience, les probabilités de fission et d'émission gamma sont mesurées simultanément, pour les actinides ^{236}U, ^{238}U, ^{237}Np et ^{238}Np dans le but d'étudier la validité de la méthode. Une des difficultés provient de la soustraction des gammas des fragments de fission et cette mesure constitue en cela un véritable défi. Cette expérience de mesure simultanée a été effectuée au cyclotron d'Oslo.

A une énergie d'excitation fixée du noyau formé, les résultats montrent que les probabilités de fission de substitution sont en bon accord avec celles induites par neutron alors que les probabilités d'émission gamma mesurées sont plusieurs fois plus élevées. Ces écarts sont liés à la différence distribution spin peuplée par le noyau entre les deux méthodes. Des calculs de modèles statistiques avec des paramètres standards n'ont pas permis de reproduire cette insensibilité de la probabilité de fission vis à vis du spin du noyau. La reproduction des observations expérimentales devient possible en considérant un moment d'inertie du noyau fissionnant qui augmente plus rapidement avec la déformation du noyau que ne le préconisent les paramètres standards. De nouveaux efforts théoriques sont à fournir pour améliorer la compréhension de nos résultats.

Mots clés : méthode de substitution, réaction de transfert, probabilité de fission, probabilité d'émission gamma, section efficace, actinides, modèle statistique, distribution de spin, covariance.

Study of the surrogate method through the simultaneous measurement of the gamma-decay and fission-decay probabilities for the actinides ^{236}U, ^{238}U, ^{237}Np and ^{238}Np.

Abstract : Neutron-induced cross sections of short-lived nuclei are important in various fields such as fundamental physics, astrophysics or nuclear energy. However, these cross sections are often extremely difficult to measure due to high radioactivity of the targets involved. The surrogate-reaction method is an indirect way to determine neutron-induced cross sections of short-lived nuclei. In order to study the validity of the method, we have measured for the very first time in a surrogate-reaction experiment simultaneously fission and gamma-decay probabilities for the actinides ^{236}U, ^{238}U, ^{237}Np and ^{238}Np. This is challenging because one has to remove the gamma rays emitted by the fission fragments. The measurement was performed at the Oslo cyclotron.

Our results show that for a given excitation energy, our gamma-decay probabilities are several times higher than neutron-induced probabilities, which can be attributed to differences in spin distribution between the two types of reactions. On the other hand, our fission probabilities are in good agreement with neutron-induced data. Statistical-model calculations applied with standard parameters cannot reproduce the weak spin sensibility to variations of the angular momentum observed for the fission probabilities. However, it is possible to reproduce the experimental observations by considering a stronger increase of the moment of inertia of the fissionning nucleus with deformation. Further theoretical efforts are needed to improve the understanding of our results.

Keywords : surrogate-reaction method, transfer reactions, fission probability, gamma-decay probability, cross section, actinides, statistical-model, spin distribution, covariance.

Remerciements

Rédiger la page des remerciements est souvent la dernière tâche qu'il nous est menée à faire, c'est pourtant la première à laquelle nous devrions penser. C'est la partie la plus libre qui soit mais non la plus aisée. La thèse est un projet de recherche difficile de 3 années au cours duquel s'enchaînent les idées, les avancés mais aussi les difficultés, ainsi que toutes sortes d'émotions telles que la joie, la surprise, la déception en passant par la bonne vieille routine. Au termes de ces 3 ans, je peux énoncer ma fierté d'avoir participer à un tel projet et d'avoir pu en présenter les résultats qui n'auraient jamais pu être ce qu'ils sont sans l'implication de nombreuses personnes que je tiens à citer, au risque de ne pas parvenir à remercier tous ceux qui le méritent.

Dans l'idéal, et pour être le plus honnête et sincère possible, il faudrait remercier à peu près toutes les personnes que j'ai rencontrées au cours de mes 3 années, puisque chaque personne avec qui j'ai échangé ont pu, d'une manière ou d'une autre, d'une façon proche ou plus ou moins lointaine, participer à la réalisation et à la réussite de ce travail. Je remercie donc tout ceux qui ont eu des échanges avec moi. J'accorderai maintenant des remerciements plus particuliers à ceux qui auront apporté une aide ou un soutien indispensable tout au long de mon parcours. Je pense évidemment tout d'abord à Beatriz, ma directrice de thèse, pour m'avoir tant aidé tout au long de ces 3 années, pour m'avoir accordé ta confiance, pour n'avoir jamais douté de mon travail, et aussi pour avoir eu la patience de répéter inlassablement certains concepts que je n'arrivais pas à intégrer (oui certaines choses ne rentrent pas décidemment...). La qualité de ce travail n'aurait jamais été la même sans ta rigueur et ta passion qui, je l'espère pour le monde de la recherche, ne te quitteront pas. Un grand merci aussi à mon co-directeur de thèse Olivier Sérot, pour m'avoir permis d'intégrer le CEA Cadarache pendant 9 mois, période au cours de laquelle j'ai pris un réel plaisir à apprendre beaucoup de choses de tes discussions énoncées avec un calme et une sénérité qui te caractérisent si bien.

Aussi j'ajouterai un cocktail de remerciements brefs mais sincères en direction d'Olivier Litaize, pour son aide quasi-quotidienne, pour sa bonne humeur et son humour (particulier mais indémodable); à Olivier Bouland pour sa sympathie, nos nombreuses discussions et pour son intérêt général sur ce sujet de thèse; à Gilles Noguere pour avoir passé quelques jours à m'aider à réaliser des calculs de modèle optique; aux deux secrétaires du LEPh qui se reconnaîtront pour leur insatiables bonne humeur (parfois trop) et leur fous rires (souvent incompréhensibles); à Ludovic Mathieu pour toute son aide précieuse qu'il dépensa sans compter, mais également pour m'avoir fait prendre conscience que malheureusement pour ce monde dans lequel nous vivons, il existe bel et bien des gens gravement atteints par le geekage; à Gérard pour ses réguliers regards avisés et expérimentés; à Serge CzMachin pour le respect qu'il me porte depuis que je suis docteur; à Igor Tsekhanovic pour m'avoir informé de l'existence de cette thèse durant mon master recherche; à Mourad Aiche pour les longues heures à débattre du pouvoir des banques centrales et des délires des "éconoclastes" et à Paola Marini pour sa fraicheur et sa joie de vivre qui font beaucoup de bien. Merci à vous tous, je ne vous oublierai pas.

“La théorie, c’est quand on sait tout et que rien ne fonctionne. La pratique, c’est quand tout fonctionne et que personne ne sait pourquoi. Ici, nous avons réuni théorie et pratique : rien ne fonctionne... et personne ne sait pourquoi ! ”

Albert Einstein

Contents

A. Principe de la méthode de substitution : aspects théoriques **12**
A.1. Principe et validité de la méthode 12
A.1.1. Les différents mécanismes de réaction 12
A.1.2. Hypothèse du noyau composé 12
A.1.3. Modèle statistique des réactions à noyaux composé 13
A.1.4. Limite Weisskopf-Ewing 15
A.1.5. Réactions de substitution 16
A.1.5.1. Intérêt de la méthode de substitution 16
A.1.5.2. Principe de la méthode 16
A.1.5.3. Validité de la méthode 18
A.1.5.4. Distribution de spin des réactions de transfert 19
A.2. Formation et désexcitation du noyau composé 20
A.2.1. Ingrédients nécessaires au calcul de la formation du noyau composé 20
A.2.1.1. Principe du modèle optique 20
A.2.1.2. Procédure de calcul 22
A.2.1.3. Calculs de la section efficace de formation de noyau composé 25
A.2.2. Ingrédients nécessaires au calcul de la désexcitation du noyau composé 26
A.2.2.1. Probabilités de désexcitation 26
A.2.2.2. Densité de niveaux 28
A.2.2.3. Densité de niveaux totale 29
A.2.2.4. Distribution en spin-parité de la densité de niveaux . . . 32
A.2.2.5. Emission gamma et modèle de fonction force gamma . . . 32
A.2.2.6. Emission neutron et calcul des coefficients de transmission 36
A.2.2.7. Fission et choix des paramètres de barrière 37
A.2.3. Calculs de rapports d'embranchement 38
A.2.3.1. Fission 38
A.2.3.2. Emission gamma 39
A.2.4. Exemple de sensibilité des ingrédients avec le code FIFRELIN . . . 42
A.2.5. Résumé 43

B. Etat de l'art des expériences de substitution **45**
B.1. Difficultés liées à la mesure de probabilités de désexcitation 45
B.2. Commentaires sur la méthode ratio 46
B.3. Liste des principales mesures 47
B.4. Sélection de résultats marquants 48

B.4.1. Réaction $^{232}Th(^{3}He, pf)^{234}Pa \leftrightarrow {}^{233}Pa(n, f)$ . . . 48
B.4.1.1. Motivation . . . 48
B.4.1.2. Résultats et interprétation . . . 48
B.4.2. Réaction $^{232}Th(^{3}He, p\gamma)^{234}Pa \leftrightarrow {}^{233}Pa(n, \gamma)$ . . . 50
B.4.2.1. Motivation . . . 50
B.4.2.2. Résultats et interprétation . . . 50
B.4.3. Réaction $^{243}Am(^{3}He,^{4} Hef)^{242}Am \leftrightarrow {}^{241}Am(n, f)$ . . . 51
B.4.3.1. Motivation . . . 51
B.4.3.2. Résultats et interprétation . . . 52
B.4.4. Réaction $^{156}Gd(p, p'\gamma)^{156}Gd \leftrightarrow {}^{155}Gd(n, \gamma)$ . . . 53
B.4.4.1. Motivation . . . 53
B.4.4.2. Résultats et interprétation . . . 53
B.4.5. Réaction $^{174}Yb(^{3}He, p\gamma)^{176}Lu \leftrightarrow {}^{175}Lu(n, \gamma)$ . . . 56
B.4.5.1. Motivation . . . 56
B.4.5.2. Résultats et interprétation . . . 56
B.4.5.3. Réaction $^{232}Th(d, p\gamma)^{233}Th \leftrightarrow {}^{232}Th(n, \gamma)$ . . . 58
B.4.5.4. Motivation . . . 58
B.4.5.5. Résultats et interprétation . . . 58
B.5. Contexte et objectif de la thèse . . . 60

C. Mesure expérimentale d'Oslo **63**
C.1. Intérêt et objectif de la mesure . . . 63
C.2. Dispositif expérimental . . . 63
C.2.1. Vue d'ensemble . . . 63
C.2.2. Les faisceaux . . . 65
C.2.3. Détection des particules chargées . . . 66
C.2.3.1. L'interaction particules chargées-matière . . . 66
C.2.3.2. Détection des particules légères par les télescopes SiRi . . . 66
C.2.3.3. Détection des fragments de fission . . . 71
C.2.4. Détection des rayons gammas . . . 73
C.2.4.1. L'interaction photon-matière . . . 73
C.2.4.2. Scintillateurs inorganiques NaI . . . 74
C.2.5. Electronique . . . 77
C.3. Résumé des principales conditions expérimentales . . . 80

D. Analyse des données **82**
D.1. Analyse de la réaction $^{238}U(d, p)$ . . . 82
D.1.1. Calibration des télescopes SiRi . . . 82
D.1.1.1. Energie d'excitation du noyau composé . . . 82
D.1.1.2. Sélection des voies de réaction . . . 84
D.1.1.3. Calibration avec une cible de plomb . . . 85
D.1.1.4. Contaminants comme points de calibration . . . 89
D.1.2. Obtention du spectre singles . . . 91
D.1.2.1. Spectre des éjectiles . . . 91

D.1.2.2. Suppression des évènements issus de réactions sur le support et les contaminants de la cible . . . 94
D.1.3. Obtention du spectre des coïncidences . . . 96
D.1.3.1. Fission . . . 96
D.1.3.2. Emission gamma . . . 98
D.2. Analyse des réactions ($^3He, d$), ($^3He, t$) et (^3He,^4He) . . . 113
D.2.1. Sélection des voies de réaction . . . 113
D.2.2. La question de la calibration des SiRi . . . 114
D.2.2.1. Méthode . . . 114
D.2.2.2. Le problème de "l'effet levier" . . . 115
D.2.3. Corrections . . . 118
D.2.3.1. Suppression des réactions sur le support et les contaminants de la cible . . . 118
D.2.3.2. Suppression des gammas parasites . . . 118
D.2.4. Obtention des spectres singles et de coïncidences . . . 119
D.3. Calcul des efficacités . . . 119
D.3.1. Efficacité de fission . . . 119
D.3.1.1. Définition . . . 119
D.3.1.2. Efficacité géométrique . . . 121
D.3.1.3. Anisotropie des fragments de fission . . . 124
D.3.1.4. Incertitudes sur l'efficacité de fission . . . 127
D.3.2. Efficacité de détection d'une cascade gamma . . . 127
D.3.2.1. La méthode des fonctions de poids . . . 127
D.3.2.2. La méthode EXEM . . . 133
D.3.3. Comparaison méthode des fonctions de poids-EXEM . . . 137
D.4. Analyse des incertitudes . . . 139
D.4.1. Expressions formelles . . . 139
D.4.2. Incertitude du terme de coïncidences gamma . . . 141
D.4.3. Détermination des termes de covariances . . . 141
D.4.3.1. Définition mathématique . . . 141
D.4.3.2. Principe de détermination expérimentale . . . 142
D.4.3.3. Liste des différents termes de covariances . . . 142
D.4.3.4. Résultats expérimentaux des autres termes de covariances 144
D.4.4. Matrice de corrélation . . . 146
D.5. Probabilités de désexcitation . . . 147
D.5.1. Influence de la fenêtre en temps sur la probabilité d'émission gamma 147
D.5.2. Probabilités d'émission gamma et de fission . . . 148
D.5.2.1. $^{239}U^*$ . . . 148
D.5.2.2. $^{239}Np^*$ . . . 148
D.5.2.3. $^{238}Np^*$ . . . 149
D.5.2.4. $^{237}U^*$ . . . 149

E. Interprétation des résultats **159**
E.1. Probabilités neutroniques de référence . . . 159
E.2. Réaction $^{238}U(d,p)$ . . . 161
E.2.1. Comparaison entre les probabilités obtenues par réaction de transfert et induite par neutron . . . 161
E.2.1.1. Réactions de fusion-évaporation . . . 163
E.2.1.2. Phénomène du break-up du deuton . . . 165
E.2.1.3. Calculs de break-up du deuton . . . 167
E.2.1.4. Probabilités de fission et d'émission gamma corrigées de la contribution du break-up du deuton . . . 168
E.2.2. Calculs basés sur le modèle statistique . . . 172
E.2.2.1. Calculs de désexcitation avec EVITA . . . 172
E.2.2.2. Extraction de la distribution de spin . . . 174
E.3. Réactions $(^3He,x)$ . . . 180
E.3.1. Réaction $^{238}U(^3He,\alpha)$ . . . 181
E.3.1.1. Comparaison entre les probabilités obtenues par réaction de transfert et induite par neutron . . . 181
E.3.2. Calculs basés sur le modèle statistique . . . 182
E.3.2.1. Calculs de désexcitation avec EVITA . . . 182
E.3.2.2. Extraction de la distribution de spin . . . 183
E.3.2.3. Influence du moment d'inertie . . . 188
E.3.2.4. Pourquoi la probabilité de fission est peu sensible à la distribution de spin contrairement à l'émission gamma ? Eléments de réponse . . . 192
E.3.3. Réaction $^{238}U(^3He,t)$ . . . 195
E.3.4. Réaction $^{238}U(^3He,d)$ . . . 197
E.4. Conclusion : . . . 200

ANNEXES **205**

A-Tableau des réactions **206**

B-Paramètres utilisés pour les calculs de modèle optique **208**

C-Principe de l'émission isotrope de particules dans l'espace **210**

D-Cinématique du break-up du deuton **213**

Introduction

La connaissance des sections efficaces induites par neutron des noyaux de courte durée de vie est essentielle dans plusieurs domaines tels la physique nucléaire de manière générale (fondamentale ou appliquée) et l'astrophysique. Ces sections efficaces servent de données d'entrée aussi bien pour la modélisation de la nucléosynthèse des éléments stellaires via les processus r et s [Rei14], que pour les simulations de réacteurs nucléaires. Les produits de fission et les actinides mineurs sont les deux catégories de noyaux générés par les réacteurs qui produisent la majeure partie de la radiotoxicité de l'installation. En effet, bien que ces déchets représentent un volume total de matière nucléaire présente dans un réacteur inférieur à 1%, ils sont responsables de plus de 95% de la radiotoxicité totale [Cea14]. L'utilisation de différentes techniques sont envisagées afin de limiter la génération de déchêts très radiotoxiques dans les futures installations nucléaires. Il y a tout d'abord la transmutation des déchets dont le principe est de transformer un noyau radioactif à vie longue en un noyau stable ou à vie courte afin d'en réduire la radiotoxicité sur le long terme. Concernant les produits de fission à vie longue, le processus de transmutation se réalise par capture neutronique. Par contre la transmutation n'est pas adaptée pour les actinides mineurs (principalement Np,Cm et Am) puisque les noyaux formés par capture neutronique deviennent encore plus radiotoxiques. Une solution proposée serait d'induire la fission par neutrons de ces noyaux : c'est ce qu'on appelle l'incinération des actinides mineurs. Les processus de transmutation et d'incinération sont particulièrement bien adaptés à la filière nucléaire de 4ème génération (réacteurs à neutrons rapides). Le devenir des déchêts nucléaires dépend donc des réacteurs nucléaires de 4ème génération dont le fonctionnement repose en partie sur des calculs neutroniques complexes qui nécessitent la connaissance précise de sections efficaces d'une grande variété d'isotopes radioactifs pour des énergies de neutron incident allant du domaine thermique jusqu'à plusieurs MeV. Si la connaissance de certaines sections efficaces neutroniques des noyaux de courte durée de vie est essentielle, leur mesure par voie induite par neutron s'avère très délicate pour des contraintes évidentes de sécurité ou de fabrication de cibles. En raison de ces difficultés, les données de sections efficaces neutroniques de nombreux noyaux radioactifs présentent aujourd'hui des écarts importants, ou sont pour certaines totalement inconnues.

Le travail général de cette thèse relève de l'étude d'une méthode de mesure alternative appelée "méthode de substitution" (surrogate reaction method). La méthode de substitution est une technique de détermination indirecte de sections efficaces neutroniques à travers la mesure de probabilités de désexcitation pour des réactions impliquant la formation d'un noyau composé, c'est à dire un noyau à l'équilibre statistique. Le principe de cette méthode est de former, au moyen d'une réaction alternative, le même noyau composé d'intérêt que celui d'une réaction induite par neutron. L'intérêt majeur de la méthode de substitution est de permettre l'étude de noyaux potentiellement très

radioactifs qu'il aurait été très difficile, voire impossible de former et donc d'en mesurer les sections efficaces par méthode directe.

Les études précédentes semblent montrer que les sections efficaces de fission mesurées pour des noyaux avec la méthode de substitution sont en bon accord avec celles mesurées en voie induite par neutron, contrairement aux sections efficaces de capture. Ces observations laissaient suggérer que le processus de fission du noyau composé est moins sensible à la voie d'entrée que l'émission gamma. Seulement, ces résultats provenaient tous de mesures indépendantes et pour différents noyaux. Ainsi pour vérifier cette hypothèse, il est nécessaire de mesurer les probabilités de fission et d'émission gamma simultanément, au cours de la même expérience. C'est pourquoi l'objectif de la thèse est de poursuivre l'étude de la méthode de substitution en mesurant simultanément les probabilités de fission et d'émission gamma de quatre actinides.

Le premier chapitre présentera le principe et les aspects théoriques de la méthode de substitution. Les ingrédients nécessaires au calcul théorique de la formation et de la désexcitation du noyau composé seront également présentés car ils sont indispensables pour avoir accès aux sections efficaces neutronique correspondantes ou pour mieux comprendre le fonctionnement de la méthode.

Le deuxième chapitre décrit quelques unes des expériences de substitution passées et rassemble les principaux résultats fondateurs et les conclusions qui auront permis non seulement d'améliorer la compréhension de la méthode, mais aussi de définir de nouveaux axes d'étude d'utilisation de la méthode lors de futures mesures de sections efficaces neutroniques.

Le troisième chapitre est dédié à la description du dispositif expérimental utilisé au cours d'une expérience réalisé au cyclotron d'Oslo pour mesurer les probabilités d'émission gamma et de fission de plusieurs actinides.

Le quatrième chapitre concerne l'analyse des données de l'expérience d'Oslo. Cette partie détaille les différentes étapes de l'analyse menant à la détermination des probabilités d'émission gamma et de fission des actinides étudiés, ainsi que leurs incertitudes associées.

Le cinquième chapitre est consacré à l'interprétation des résultats des probabilités expérimentales qui sont confrontées à des probabilités théoriques de désexcitation de noyaux obtenues à l'aide de codes de calcul basés sur le modèle statistique.

Enfin le sixième chapitre donne un bref aperçu des possibilités futures d'exploitation de la méthode de substitution pour la mesure de sections efficaces de noyaux radioactifs grâce notamment à l'apport technique des nouvelles installations de recherche.

A. Principe de la méthode de substitution : aspects théoriques

A.1. Principe et validité de la méthode

A.1.1. Les différents mécanismes de réaction

Les réactions nucléaires font intervenir différents mécanismes de réaction décrits par E. Weisskopf [Wei57] et dont une représentation est donnée à la figure A.1. A l'approche d'un noyau cible, un projectile a une certaine probabilité d'interagir avec le champ nucléaire moyen. On distingue trois mécanismes de réaction résultant de cette interaction :

- La réaction de diffusion élastique résonante "shape elastic", qui correspond à la déviation de la trajectoire du projectile par le potentiel nucléaire, sans perte d'énergie. Ici, il n'y a pas de partage d'énergie entre le projectile et les nucléons du noyau cible.
- Les réactions directes qui sont très rapides (de l'ordre du temps mis par le projectile pour traverser le noyau, soit environ 10^{-22}s), et n'impliquent que peu d'interactions entre le projectile et les nucléons à la périphérie du noyau.
- Les réactions pouvant mener à la formation d'un noyau composé noté CN (pour "compound nucleus"). Il s'agit d'une situation plus complexe où la particule incidente est capturée par la cible à cause de l'interaction forte, et partage son énergie avec l'ensemble des nucléons du noyau cible. Le temps caractéristique de ce mécanisme de réaction est de l'ordre de 10^{-17}s. Pour des énergies du neutron incident de l'ordre de plusieurs dizaines de MeV, le noyau peut passer par un état intermédiaire appelé pré-équilibre, pour lequel l'émission de particules peut avoir lieu avant la thermalisation complète du système et donc la formation d'un noyau composé.

Ces mécanismes peuvent générer plusieurs types de réactions nucléaires : diffusion élastique, inélastique, réactions de capture, de fission et bien d'autres.

A.1.2. Hypothèse du noyau composé

Le processus de formation du noyau composé est très largement dominant pour des neutrons incidents d'énergies inférieurs à quelques MeV, par rapport aux processus de pré-équilibre et de réactions directes. Dans le cadre de la formation d'un noyau composé, lorsque le temps de vie du noyau est suffisamment long pour parvenir à l'équilibre statistique, toutes les configurations quantiques des états d'énergies et de moment angulaire (E^*, J^π) sont équiprobables. On dit alors que le noyau a "oublié" comment il

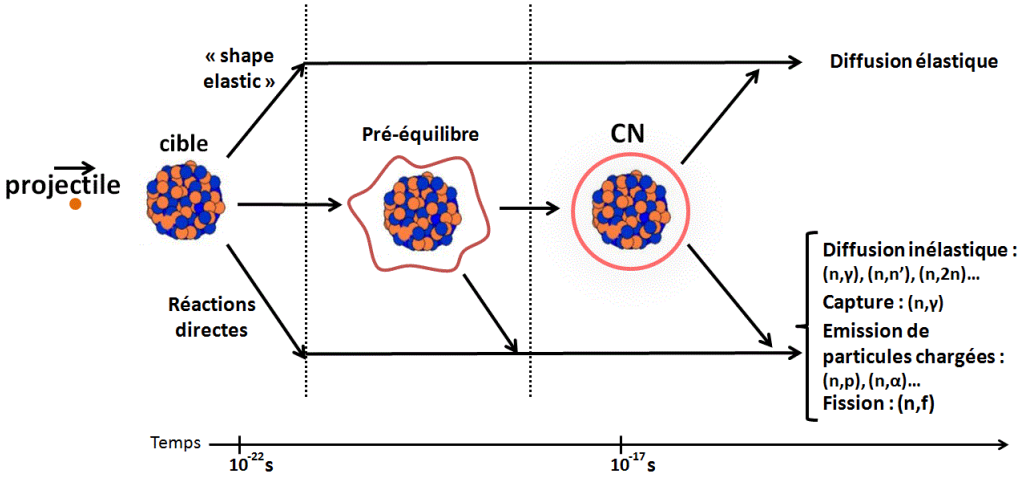


Figure A.1.: Illustration schématique des différents mécanismes de réaction nucléaire. Figure issue de [Bou11].

a été formé, en conséquence de quoi les processus de formation et de désexcitation du noyau composé peuvent alors être considérés comme indépendants : c'est l'hypothèse de Bohr [Boh36]. Cette hypothèse suggère également que la désexcitation du noyau composé dépend uniquement des propriétés de ses états quantiques (E^*, J^π). Ces propriétés sont définies par les lois de conservation d'énergie et de moment angulaire totaux.

L'hypothèse de Bohr peut être appliquée pour le calcul de sections efficaces de réactions impliquant la formation d'un noyau composé. En effet, la section efficace d'intérêt peut être exprimée comme le produit de la section efficace de formation du noyau composé σ_α^{CN}de la voie d'entrée α, par la probabilité P_χ qu'a le noyau composé de se désexciter selon la voie de sortie χ :

$$\sigma_{\alpha\chi} = \sigma_\alpha^{CN} . P_\chi \tag{A.1}$$

A.1.3. Modèle statistique des réactions à noyaux composé

L'étude de la désexcitation du noyau composé est décrite par le formalisme d'Hauser-Feshbach [Hau52]. Ce modèle suppose que l'équilibre statistique du sytème est atteint, chaque configuration possible conduisant à un noyau d'énergie d'excitation E^* et de spin J^π devient donc équiprobable. D'après ce formalisme, la section efficace moyenne par unité d'énergie dans la voie de sortie χ est décrite par :

$$\frac{d\sigma_{\alpha\chi}(E_a)}{dE_\chi} = \frac{\pi}{k_\alpha^2} \sum_{J\pi} \omega_\alpha^J \sum_{lsl's'I'} \frac{T_{\alpha ls} T_{\chi l's'} \rho_{I'}(E^*) W_{\alpha\chi}(J)}{\sum_{\chi''l''s''} T^J_{\chi''l''s''} + \sum_{\chi''l''s''I''} \int T_{\chi''l''s''}(E_{\chi''}) \rho_{I''}(E^{*\prime}) dE_{\chi''}} \tag{A.2}$$

Où E_a est l'énergie cinétique du projectile et k_α est le nombre d'onde associé à la voie d'entrée. Le spin de la particule incidente (émise) est i (i'), le spin de la cible (noyau

résiduel) est I (I'), le spin de la voie d'entrée (de sortie) est $\overrightarrow{s} = \overrightarrow{i} + \overrightarrow{I}$ ($\overrightarrow{s'} = \overrightarrow{i'} + \overrightarrow{I'}$) et l (l') est le moment orbital angulaire dans la voie d'entrée (de sortie). Le spin et le moment orbital angulaire se combinent pour donner le moment angulaire total J. π est la parité du noyau composé. Le facteur de poids statistique $\omega_\alpha^J = \frac{(2J+1)}{[(2i+1).(2I+1)]}$ donne la probabilité que les différents spins et moment orbitaux angulaires se combinent pour obtenir un certain J. Les coefficients de transmission des voies d'entrée et de sortie sont notés $T_{\alpha ls}^J$ et $T_{\chi l's'}^J$ respectivement et $\rho_{I'}(E^*)$ symbolise la densité de niveaux pour un spin I' et une énergie d'excitation E^* du noyau résiduel. Toutes les voies de désexcitation énergétiquement accessibles en tant que voies de sortie χ'' ont été prises en compte, ainsi le dénominateur inclut toutes les contributions de désexcitation vers les niveaux discrets du noyau (données par la somme discrète), mais aussi les contributions venant de la désexcitation vers des régions énergétiques du noyau décrites par un modèle de densité de niveaux (données par l'intégrale du dénominateur). Enfin $W_{\alpha\chi}$ correspond à un facteur de correction dit de "fluctuations de largeurs de voies".

Pour obtenir la quantité d'intérêt, il faut intégrer l'équation A.2 sur toutes les énergies E_χ de tous les états finaux de la voie de sortie, ce qui correspond pour la fission aux états de transition construits au sommet de la barrière de fission et pour l'émission neutron, aux énergies des états du noyau résiduel formé après émission du neutron. La section efficace de capture radiative est obtenue quant à elle en intégrant sur le spectre en énergie les gammas primaires émis par le noyau composé.

Le facteur de correction de fluctuations $W_{\alpha\chi}$ a été introduit dans les années 70 par Vager [Vag71]. Il prend en compte les corrélations entre les ondes incidente et diffusée de la voie élastique en raison d'interférences quantiques et ce facteur a pour effet d'augmenter la section efficace de diffusion élastique et, par conservation de la section efficace de réaction totale, fait diminuer les sections efficaces de réactions non-élastiques au maximum de 10-20%. Lorsque le nombre de voies de désexcitation du noyau composé augmente avec l'énergie d'excitation, l'effet causé par ce facteur devient rapidement négligeable pour les réactions non-élastiques [Hod87].

Si on néglige la contribution du terme $W_{\alpha\chi}$ dans l'équation (A.2) pour chaque spin et parité, l'équation peut être exprimée comme le produit de deux termes :

$$\frac{d\sigma_{\alpha\chi}(E_a)}{dE_\chi} = \frac{\pi}{k_\alpha^2} \sum_{J\pi} \omega_\alpha^J \sum_{lsl's'I'} T_{\alpha ls} \left(\frac{T_{\chi l's'} \rho_{I'}(E^*)}{\sum_{\chi''l''s''} T_{\chi''l''s''}^J + \sum_{\chi''l''s''I''} \int T_{\chi''l''s''}(E_{\chi''}) \rho_{I''}(E^{*'}) dE_{\chi''}} \right) \tag{A.3}$$

Le premier est le coefficient de transmission pour la voie d'entrée alors que le second représente la probabilité de désexcitation dans la voie de sortie, définie comme le rapport du coefficient de transmission de la voie de sortie considérée sur toutes les voies de désexcitations énergétiquement accessibles. De cette manière, nous retrouvons l'hypothèse de Bohr où la section efficace considérée est exprimée comme le produit de la section efficace de formation et de la probabilité de désexcitation du noyau composé. Cette hypothèse ne peut être formulée que si on néglige ce terme de fluctuations $W_{\alpha\chi}$.

A.1.4. Limite Weisskopf-Ewing

Pour une réaction induite par neutron, si on intègre l'équation A.3 sur tous les états finaux en énergie, celle-ci devient :

$$\sigma_{n\chi}(E_n) = \sum_{J\pi} \sigma_n^{CN}(E^*, J^\pi).G_\chi(E^*, J^\pi) \tag{A.4}$$

Où $\sum_{J\pi} \sigma_n^{CN}(E_n, J^\pi) = \sigma_n^{CN,tot}(E_n)$ est la section efficace totale de formation du noyau composé après absorption d'un neutron d'énergie E_n, qui est directement lié au coefficient de transmission de la voie d'entrée T^J_{als}. G_χ est le rapport d'embranchement ou la probabilité pour le noyau composé dans l'état (E^*, J^π) de se désexciter selon la voie de sortie χ. Cette expression peut être factorisée selon :

$$\sigma_{n\chi}(E_n) = \sigma_n^{CN,tot}(E_n) \sum_{J\pi} F_n^{CN}(E_n, J^\pi).G_\chi(E^*, J^\pi) \tag{A.5}$$

Où $F_n^{CN}(E_n, J^\pi) = \frac{\sigma_n^{CN}(E_n, J^\pi)}{\sigma_n^{CN,tot}(E_n)}$ est la probabilité de peupler un état du noyau composé de spin-parité J^π. Ce terme représente donc la distribution de spin-parité peuplée par voie neutron, pour un neutron incident d'énergie E_n. L'énergie d'excitation E^* du noyau composé est reliée à l'énergie du neutron selon l'expression :

$$E^* = \frac{A}{A+1} E_n + S_n \tag{A.6}$$

Où A est la masse du noyau cible et S_n est l'énergie de séparation du neutron du noyau composé $A+1$. On définit ensuite la probabilité qu'a un noyau composé d'énergie E^* formé après absorption d'un neutron de se désexciter selon la voie χ:

$$P_{n,\chi}(E^*) = \sum_{J\pi} F_n^{CN}(E^*, J^\pi).G_\chi(E^*, J^\pi) \tag{A.7}$$

L'équation A.5 peut alors se réecrire :

$$\sigma_{n\chi}(E_n) = \sigma_n^{CN,tot}(E_n).P_{n,\chi}(E^*) \tag{A.8}$$

Les termes $\sigma_n^{CN,tot}(E_n)$ et F_n^{CN}peuvent être calculés par modèle optique avec une incertitude inférieure à 10% [Esc12]. Le rapport d'embranchement $G_\chi(E^*, J^\pi)$ doit être calculé par modèle statistique Hauser-Feschbach pour toutes les voies de désexcitation en compétition. Ces calculs font intervenir différentes quantités (qui seront détaillées par la suite) comme les paramètres des densités de niveaux et les fonctions de force gamma des différents noyaux, dont la connaissance est souvent très incomplète et doivent alors répondre à des modélisations. Pour cette raison, l'incertitude sur le calcul de la section efficace dépend majoritairement de la connaissance du rapport d'embranchement.

On appelle la limite de Weisskopf-Ewing lorsque le rapport d'embranchement $G_\chi(E^*, J^\pi)$ est indépendant du spin, donc que $G_\chi(E^*, J^\pi) \simeq G_\chi(E^*)$. Comme par définition $\sum_{J\pi} F_n^{CN}(E^*, J^\pi) = 1$, l'équation A.7 se simplifie selon $P_{n,\chi}(E^*) = G_\chi(E^*)$ et l'équation A.8 devient :

$$\sigma_{n\chi}(E_n) = \sigma_n^{CN,tot}(E_n).G_\chi(E^*) \tag{A.9}$$

La section efficace induite par neutron mesurée devient indépendante du spin du noyau composé dans la limite de Weisskopf-Ewing. Deux noyaux de même nature, de même énergie et de même section efficace totale de formation de noyau composé, mais qui peuplent deux distributions de spins $F_n^{CN}(E^*, J^\pi)$ distinctes ont donc la même section efficace induite par neutron à cette énergie dans le cadre de cette limite. Cette dernière n'est valide que pour des énergies d'excitation suffisamment élevées où le noyau composé se désexcite vers des états du continuum du noyau résiduel. A basse énergie d'excitation, la limite de Weisskopf-Ewing n'est pas valide puisque que le noyau se désexcite selon des niveaux individuels et bien définis.

A.1.5. Réactions de substitution

A.1.5.1. Intérêt de la méthode de substitution

De manière générale, il est extrêmement contraignant de fabriquer des cibles émettrices de noyaux α dont le temps de demi-vie est de l'ordre de l'année (voire quelques centaines d'années). Cela rend les mesures de sections efficaces neutroniques par voie directe très difficiles, voire impossibles pour certains noyaux. De plus, la manipulation de cibles très radioactives entraîne de fortes contraintes de radioprotection. Enfin la forte activité de la cible peut sévèrement endommager les détecteurs, compliquant incontestablement la prise (et l'analyse) de données. La méthode de substitution est une technique de mesure indirecte dont l'intérêt majeur est de s'affranchir de ces contraintes.

Historiquement, cette méthode a été développée dans les années 70 au laboratoire national de Los Alamos par Britt et Cramer [Cra70]. Il existe deux types de méthodes de substitution : la méthode dite "standard" et la méthode dite du "ratio" (surrogate ratio method). Le principe, les avantages et les inconvénients de chacune des deux méthodes seront mis en avant même si l'accent sera naturellement davantage porté sur la méthode standard sur laquelle repose le cadre de ce travail de thèse.

A.1.5.2. Principe de la méthode

L'objectif de la méthode de substitution est de mesurer expérimentalement la probabilité de désexcitation $P_\chi^{surro}(E^*)$ d'un noyau composé dans la voie de sortie χ, au moyen d'une réaction de substitution menant à la formation du même noyau composé que lors de la réaction d'intérêt induite par neutron. Le principe de la méthode est illustrée à la figure A.2. La partie gauche de la figure A.2 illustre la formation d'un noyau composé $(A+1)^*$ à partir de la réaction induite par neutron sur le noyau cible A. Aux énergies accessibles pour notre étude, le noyau $(A+1)^*$ formé peut ensuite se désexciter en émettant une cascade gamma, un neutron ou par fission. Sur la partie droite, le même noyau composé est formé par réaction de transfert de nucléons entre un projectile y (noyau léger) et une cible X. Le noyau w résultant de cet échange de nucléons est appelé éjectile. La mesure de sa masse, de sa charge, de son angle d'émission et de son énergie cinétique permet

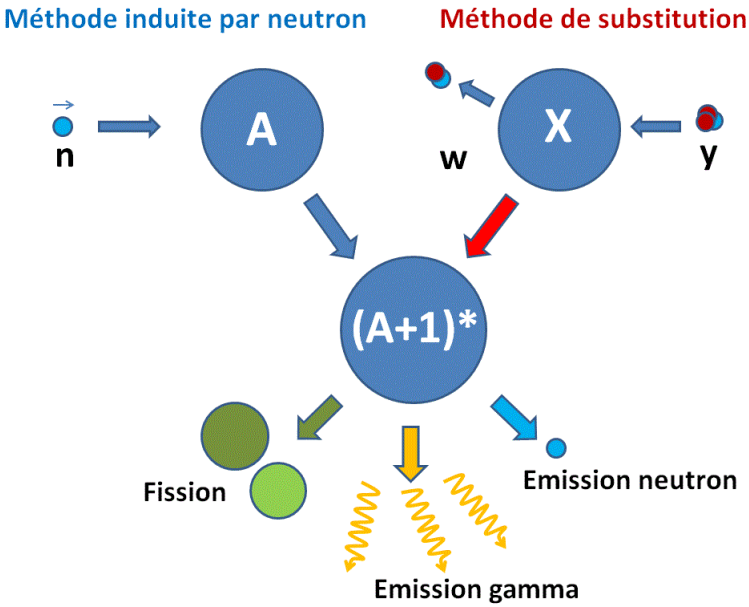


Figure A.2.: Principe de la méthode de substitution.

d'identifier la nature et l'énergie d'excitation du noyau composé $(A+1)^*$ formé. La voie de sortie χ est identifiée par la mesure des particules émises en coïncidence avec l'éjectile w. Dans notre cas, $\chi = f$ pour la détection de fragments de fission et $\chi = \gamma$ pour l'étude de l'émission gamma.

La probabilité de désexcitation $P_\chi^{surro}(E^*)$ est définie comme le rapport entre le nombre d'éjectiles détectés en coïncidence avec la voie de sortie considérée $N_{c_\chi}(E^*)$ et le nombre total d'éjectiles $N_s(E^*)$ aussi appelé "spectre singles" ou "spectre des éjectiles". Ce rapport est ensuite corrigé par l'efficacité de détection de la voie de sortie considérée $\varepsilon_\chi(E^*)$. Au final, la probabilité de désexcitation en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé produit par la méthode de substitution se formule de la manière suivante :

$$P_\chi^{surro}(E^*) = \frac{N_{c_\chi}(E^*)}{N_s(E^*).\varepsilon_\chi(E^*)} \tag{A.10}$$

La section efficace d'intérêt induite par neutron s'exprime en fonction de la probabilité de désexcitation expérimentale mesurée P_χ^{surro} selon :

$$\sigma_{n\chi}(E_n) = \sigma_n^{CN,tot}(E_n).P_\chi^{surro}(E^*) \tag{A.11}$$

Où $\sigma_n^{CN,tot}(E_n)$ est obtenu par calcul de modèle optique. La méthode de substitution possède plusieurs avantages. Tout d'abord comme il a déjà été mentionné, il est parfois possible (selon les noyaux étudiés) d'utiliser une cible X qui est moins radioactive que la cible A. Ensuite, comme la méthode de substitution implique une réaction à deux corps pour les voies d'entrée et de sortie, l'énergie se répartie entre l'éjectile w et le noyau

composé $(A+1)^*$. Ce dernier possède de cette façon une large distribution en énergie d'excitation s'étendant de 0 jusqu'à plusieurs MeV. Cela donne ainsi accès à $P_\chi^{surro}(E*)$ sur une large gamme d'énergie d'excitation. Enfin, différents transferts de particules entre le projectile et la cible ont lieu, permettant l'accès à plusieurs voies de réaction dans la même expérience et donc, à plusieurs noyaux composés. Ainsi, il est possible d'obtenir plusieurs sections efficaces en fonction de l'énergie du neutron incident avec une seule combinaison cible-projectile et pour une unique énergie du faisceau incident.

A.1.5.3. Validité de la méthode

La méthode de substitution est qualifiée de "valide" si les sections efficaces extraites par cette méthode sont comparables à celles obtenues par réaction induite par neutron (pour des noyaux pour lesquels il existe des données). Autrement dit, la méthode est valide lorsqu'il est possible d'extraire des sections efficaces neutroniques à partir de réactions de transfert.

La méthode de substitution est valide si et seulement si deux conditions sont vérifiées. La première est que les réactions de transfert et induite par neutron correspondante doivent toutes les deux mener à la formation d'un noyau composé. Cette condition est nécessaire afin de factoriser la section efficace en produit de la section efficace de formation du noyau composé par la probabilité de désexcitation de celui-ci (équation A.11). Toutefois, et comme nous l'avons dit, l'identification du noyau $(A+1)^*$ qui se désexcite se déduit de la mesure de la masse et de la charge de l'éjectile w provenant de la réaction de transfert. Or les réactions directes et de pré-équilibre sont associées à des éjectiles dont la distribution en énergie peut coïncider avec celle provenant d'une réaction menant à la formation d'un noyau composé. C'est pourquoi d'un point de vue expérimental il n'est pas possible de distinguer les différents mécanismes de réaction même si on s'attend à ce que les éjectiles émis par les mécanismes de réactions directes et de pré-équilibre soient plus énergétiques et focalisés vers l'avant. Malheureusement les sections efficaces des réactions directes et de pré-équilibre sont aujourd'hui difficiles à évaluer par le calcul. Toutefois, pour les énergies d'excitation de l'ordre de quelques MeV pour les noyaux étudiés, la contribution de ces réactions peuvent être négligées car elles sont très minoritaires par rapport aux réactions de transfert qui mènent à la formation d'un noyau composé.

En plus de cela, certaines réactions de transfert font intervenir d'autres mécanismes qui ne permettent pas, dans certains cas, de former un noyau composé. C'est par exemple le cas si on étudie la réaction de transfert (d,p) sur une cible quelconque où le neutron transféré a une probabilité non nulle d'être réémis avant que le noyau composé soit formé. La contribution de ce phénomène est difficilement évaluable par calcul. Cet aspect sera étudié plus en détail dans ce mémoire. Au final, la détermination précise de la proportion des réactions de transfert menant à la formation d'un noyau composé est, dans certains cas, loin d'être triviale.

La probabilité de désexcitation en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé $P_\chi^{surro}(E^*)$ est donnée par :

$$P_{\chi}^{surro}(E^*) = \sum_{J\pi} F_{surro}^{CN}(E^*, J^\pi).G_{\chi}(E^*, J^\pi) \tag{A.12}$$

Notons que le rapport d'embranchement $G_\chi(E^*, J^\pi)$ est le même que pour l'équation A.7, exprimant ainsi que la probabilité de désexcitation du noyau composé est indépendante de la façon dont il a été formé.

En comparant les équations A.7 et A.12, il est possible de formuler la deuxième condition de la validité de la méthode impliquant $P_{n,\chi}(E^*) = P_{\chi}^{surro}(E^*)$ si l'une des deux conditions suivantes est satisfaite :

- La distribution de spin J^πpeuplée dans les deux réactions est la même, c'est à dire $F_n^{CN}(E^*, J^\pi) = F_{surro}^{CN}(E^*, J^\pi)$
- la limite de Weisskopf-Ewing est atteinte, et dans ce cas $G_\chi(E^*, J^\pi) = G_\chi(E^*)$ et $P_{\chi}^{surro}(E^*) = G_\chi(E^*) = P_{n,\chi}(E^*)$

Il n'y a, à priori, aucune raison de penser que la distribution de spin J^π peuplée dans les réactions de substitution et les réactions induites par neutron soit la même. De plus, la limite de Weisskopf-Ewing n'est valide qu'à partir d'une certaine énergie d'excitation. En réalité, le rapport d'embranchement G_χ dépend fortement de la distribution de spin J^π à basse énergie d'excitation lorsque la limite de Weisskopf-Ewing n'est pas encore atteinte. C'est pourquoi il est important de souligner qu'une distribution différente de spin dans les deux réactions peut mener à des écarts significatifs entre les sections efficaces obtenues par ces deux méthodes.

A.1.5.4. Distribution de spin des réactions de transfert

Pour les réactions induites par neutron, le spin et la parité du noyau composé dépendent du spin de la cible et de l'énergie du neutron incident. La distribution de spin $F_n^{CN}(E^*, J^\pi)$ peut être déterminée par calcul de modèle optique. Un exemple de distribution de spin peuplée par le noyau composé $^{237}U^*$ en fonction de l'énergie du neutron incident a été calculé par le groupe ACEN et est représenté sur la figure A.3. Les résultats de ces calculs montrent que la distribution de spin peuplée est d'autant plus large et centrée vers les moments angulaires élevés que l'énergie du neutron incident est élevée. Alors qu'il est possible de calculer une distribution de spin $F_n^{CN}(E^*, J^\pi)$ pour une réaction induite par neutron par modèle optique, ce n'est actuellement pas le cas pour les réactions de transfert [Esc12]. Celles-ci peuvent peupler des états "single particle" tel que des états de neutron pour les réactions (d, p), des états de protons pour les réactions $(^3He, d)$ ou encore des états de trous pour les réactions $(^3He,^4 He)$. Les états "single particle" se répartissent dans les nombreux états du continuum avant d'atteindre l'équilibre statistique et la formation d'un noyau composé. Ce processus très complexe de formation du noyau composé à des énergies du continuum rend la prédiction de la population de spin extrêmement difficile.

Des travaux tentant de prédire la distribution de spin peuplée au cours d'une réaction de transfert par calculs DWBA (Distorded Wave Born Approximation) ont été entrepris

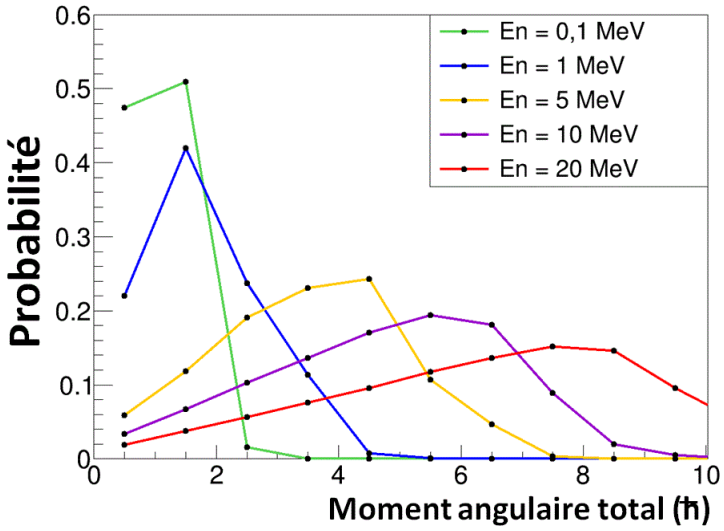


Figure A.3.: Distribution du moment angulaire total J pour l'$^{237}U^*$ produit lors d'une réaction induite par neutron à différentes énergies. Calculs réalisés par le groupe ACEN.

par Andersen et al. [And70] et par Back et al. [Bac74]. Puisque pour la plupart des réactions de transfert il n'est à ce jour pas possible de prédire la distribution de spin-parité, la validité de la méthode doit être vérifiée a postériori en comparant les résultats de mesures à ceux biens connus des réactions induites par neutron.

A.2. Formation et désexcitation du noyau composé

A.2.1. Ingrédients nécessaires au calcul de la formation du noyau composé

D'après l'équation A.5, la détermination d'une section efficace de fission ou de capture nécessite au préalable la connaissance de la section efficace de formation de noyau composé après absorption d'un neutron $\sigma_n^{CN,tot}(E_n)$. Ce terme est obtenu par calcul de modèle optique.

A.2.1.1. Principe du modèle optique

Le modèle optique développé notamment par Feshbach, Porter et Weisskopf [Fes54] est un outil théorique indispensable de calculs de données servant de base à l'analyse et à l'évaluation de données de réactions nucléaires. L'idée conceptuelle du modèle optique est de décrire l'interaction entre une particule incidente (nous considèrerons un neutron) et un noyau cible séparés par une distance r, sous la forme d'un potentiel moyen $U(r)$ dont la valeur influe directement sur le résultat de l'interaction. La particule incidente peut être diffusée élastiquement ou bien former un noyau composé après absorption par le

noyau cible, avant de générer une large variété de réactions nucléaires. Ce potentiel $U(r)$ est composé d'une partie réelle $V(r)$ qui caractérise la réflexion de la particule incidente, et d'une partie imaginaire $W(r)$ qui représente l'absorption de cette particule si W < 0 ou sa transmission si W > 0.

Historiquement, le potentiel optique a tout d'abord été construit en postulant des formes fonctionnelles du potentiel et en ajustant les paramètres pour reproduite au mieux les données expérimentales. Cette approche dite phénoménologique est toujours utilisée, mais reste très dépendante de la disponibilité de données expérimentales sur lesquelles les paramètres du modèle optique sont ajustés.

Il existe des approches qui, au contraire de l'approche phénoménologique, permettent de calculer le potentiel optique sans connaissance préalable de données expérimentales : c'est le potentiel optique microscopique. Cette approche a l'avantage de pouvoir prédire des observables même pour des noyaux pour lesquels peu de données ont été mesurées. Comme les données expérimentales utiles à la modélisation du potentiel optique sont suffisamment connues pour les noyaux étudiés dans le cadre de ce travail, nous considérerons par la suite l'approche phénoménologique du potentiel optique.

Pour un noyau d'étude donné, l'objectif des calculs est d'ajuster les paramètres du potentiel $U(r)$ du modèle optique afin de reproduire le plus fidèlement possible des valeurs expérimentales de référence comme les sections efficaces totale σ_{tot}, élastique σ_e et inélastiques σ_{ine} pour une gamme d'énergie de la particule incidente généralement comprise entre 1 keV et 200 MeV. Pour cela, des potentiels optiques caractérisés de « globaux » sont couramment utilisés. Des études systématiques de la dépendance des paramètres du potentiel optique ont été réalisées en fonction de la charge Z, de la masse A et de l'énergie du projectile [Kon03], ce qui permet de produire des prédictions de bonne qualité en l'absence de données pour des noyaux loins de la vallée de stabilité.

Des potentiels optiques globaux incluent également des relations de dispersion reliant les parties réelles et imaginaires du potentiel nucléaire réduisant ainsi le nombre de paramètres utilisés. Ce type de modèle optique porte le nom de potentiel optique dispersif (noté DOM pour "dispersive optical model") [Lip66, Lip67]. Dans le cadre du DOM, de très bons résultats de calculs ont été obtenus pour la diffusion de nucléon sur des noyaux sphériques ou proches de la fermeture de couche allant du Mg naturel jusqu'au ^{209}Bi [Mor04]. Cependant, ce modèle s'avère insuffisant pour décrire l'interaction de la particule incidente avec des noyaux dont la déformation doit être prise en compte, comme c'est le cas pour les actinides. Ces derniers possèdent des états collectifs de basse énergie de la bande de rotation construite sur l'état fondamental. Ces états collectifs sont fortement couplés au fondamental de sorte que celui-ci ne peut plus être traité seul. Les noyaux déformés peuvent être considérés comme des rotateurs rigides dont les cinq premiers niveaux (en général) de la bande rotationnelle de l'état fondamental sont couplés. La déformation β du noyau est directement prise en compte dans la forme du rayon nucléaire via la formule suivante :

$$R_i(\theta,\phi) = R_i^0 \left[1 + \sum_{\lambda=2,4,6} \beta_{\lambda 0} Y_{\lambda 0}(\theta,\phi) \right] \; avec\, R_i^0 = r_i.A^{1/3}\, et\, i = v,s,so,c \qquad \text{(A.13)}$$

Où $Y_{\lambda 0}$ représente les harmoniques sphériques dans le système de coordonnées angulaires (θ, ϕ), et r_i est le rayon nucléaire. L'indice λ représente la type de déformation ($\lambda = 2$ pour la déformation quadrupolaire...) et les indices v, s, so et c représentent respectivement les termes de volume, surface, spin-orbite et Coulomb présents dans les calculs du modèle optique.

Le potentiel utilisé pour les calculs dans la région des actinides est le DCCOMP pour "dispersive coupled-channel optical model" [Cap08]. Il est définit par :

$$U(r,R,a,E) = [V_v(E) + iW_v(E)].f(r,R_v,a_v) + [V_s(E) + iW_s(E)].g(r,R_s,a_s) + [V_{so}(E) + iW_{so}(E)].\left(\frac{h}{m\pi c}\right)^2.\frac{1}{r}.g(r,R_{so},a_{so})l.\sigma \quad \text{(A.14)}$$

Où $V_{v,s,so}(E)$ et $W_{v,s,so}(E)$ représentent respectivement les parties réelles et imaginaires des potentiels de volume (v), de surface (s) et de spin-orbite (so). Le facteur $l.\sigma$ témoigne quant à lui de l'interaction spin-orbite. Enfin, $f(r,R,a)$ est le facteur de forme volumique de type Woods-Saxon alors que $g(r,R,a)$ représente le facteur de forme surfacique qui est proportionnel à la dérivée de $f(r,R,a)$:

$$f(r,R,a) = \frac{1}{1+e^{\frac{r-R}{a}}} \; et \; g(r,R,a) = -4a.\frac{d}{dr}f(r,R,a) \quad \text{(A.15)}$$

Où a est la diffusivité du potentiel de Woods-Saxon.

En tant que modèle phénoménologique, chacun des paramètres de l'équation A.14 doit être ajusté en fonction du noyau cible.

A.2.1.2. Procédure de calcul

La détermination des paramètres optimaux du modèle optique est réalisée par une procédure de minimisation du χ^2 entre les sections efficaces (totale et de distribution angulaire élastique) expérimentales et calculées. A chaque itération correspond une nouvelle forme du potentiel optique $U(r)$ due à un nouveau jeu de paramètres. Puis, le code procède à une résolution numérique de l'équation de Schrödinger indépendante du temps selon :

$$-\frac{\hbar^2}{2\mu}.\frac{\partial^2\psi(r)}{\partial r^2} + (U(r) - E)\psi(r) = 0 \quad \text{(A.16)}$$

Où $\mu = \frac{m_1.m_2}{m_1+m_2}$ est la masse réduite du système. La fonction d'onde asymptotique ψ, solution générale de l'équation de Schrödinger, peut être exprimée comme le produit de polynômes de Legendre angulaires $P_l cos(\theta)$ selon :

$$\psi = -\sum_l \frac{(2l+1)}{2ikr} P_l cos(\theta)(S_l e^{ikr} - e^{-ikr})) \quad \text{(A.17)}$$

Où l'indice $l = 0, 1, 2, \ldots$ est le moment angulaire orbital et S_l l'élément de la matrice de collision défini selon :

$$S_l = e^{2i\delta_l} \tag{A.18}$$

Où δ_l représente le déphasage entre les fonctions d'ondes asymptotiques incidente et diffusée. Ce déphasage est la signature de l'interaction particule-cible et comporte de ce fait toute l'information physique sur le potentiel $U(r)$. La section efficace totale de réaction (ou d'absorption) σ_r se calcule comme suit :

$$\sigma_r = -\int_0^{2\pi}\int_0^{\pi} \frac{i\hbar}{2\mu v}\left(\psi^*\frac{\partial\psi}{\partial r} - \psi\frac{\partial\psi^*}{\partial r}\right) r^2 sin\theta d\theta d\varphi = \frac{\pi}{k^2}\sum_{l=0}^{\infty}(2l+1)(1-|S_l|^2) \tag{A.19}$$

De manière analogue, la section efficace "shape elastic" σ_{se} se calcule de la façon suivante :

$$\sigma_{se} = \int_0^{2\pi}\int_0^{\pi} |\sum_l \frac{(2l+1)}{2ikr}(e^{2i\delta_l}-1)P_l cos(\theta)|^2 sin\theta d\theta d\varphi = \frac{\pi}{k^2}\sum_{l=0}^{\infty}(2l+1)|1-S_l|^2 \tag{A.20}$$

La section efficace totale σ_{tot} du modèle optique se déduit :

$$\sigma_{tot} = \sigma_{se} + \sigma_r = \frac{2\pi}{k^2}\sum_{l=0}^{\infty}(2l+1)(1-Re(S_l)) \tag{A.21}$$

Pour un noyau donné, la section efficace totale expérimentale est comparée à celle calculée par le modèle optique. Le jeu de paramètres du potentiel $U(r)$ qui sera retenu sera celui pour lequel le χ^2 est minimal entre ces deux sections efficaces pour des énergies de la particule incidente comprise entre 1 keV et 200 MeV. La procédure de calcul est illustrée à la figure A.4.

Au final, le modèle optique fournit un ensemble de sections efficaces dont σ_{CN} peut être déduite selon :

$$\sigma_{CN} = \sigma_r - \sigma_{dir} - \sigma_{pe} \tag{A.22}$$

Où σ_{dir} et σ_{pe} correspondent respectivement aux sections efficaces de réaction directes et de pré-équilibre qui sont supposées négligeables compte tenu des énergies d'excitation étudiées dans le cadre de cette thèse. Ainsi la section efficace de formation du noyau composé se calcule selon :

$$\sigma_{CN} \sim \sigma_r = \sigma_{tot} - \sigma_{se} \tag{A.23}$$

Pour faire le lien parmi toutes les sections efficaces évoquées dans cette section, la figure A.5 représente schématiquement les différentes composantes de la section efficace totale de l'interaction entre un projectile et un noyau cible. Dans ce travail, nous nous concentrons sur les réactions menant à la formation d'un noyau composé et plus spécifiquement sur l'étude des sections efficaces de capture σ_γ et de fission σ_f.

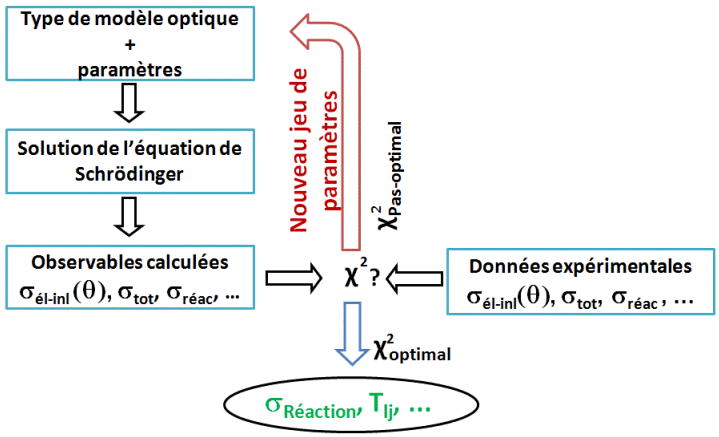


Figure A.4.: Procédure de calculs du modèle optique.

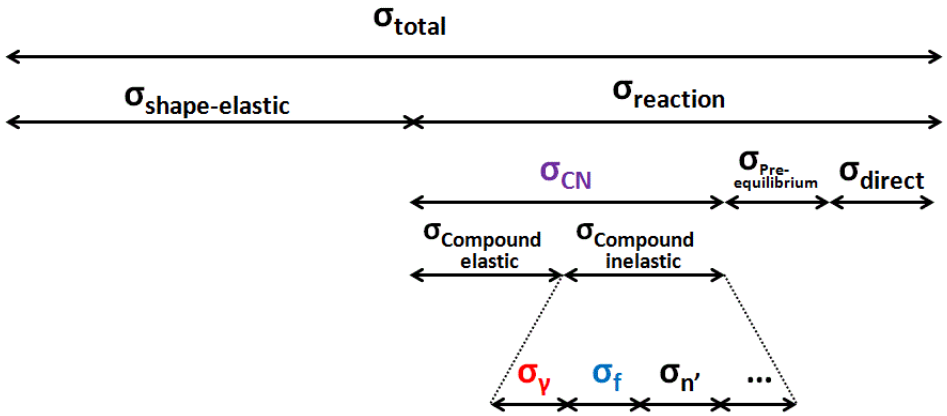


Figure A.5.: Composantes de la section efficace totale d'interaction entre un projectile et un noyau cible.

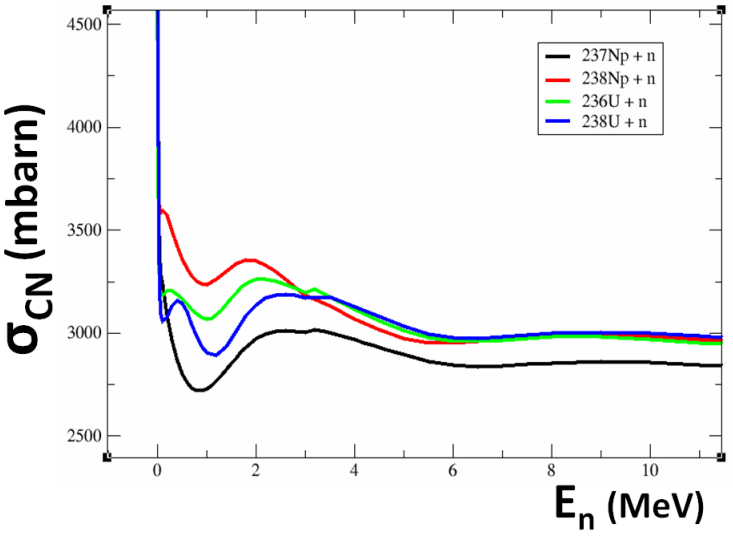


Figure A.6.: Sections efficaces de formation du noyau composé après absorption d'un neutron calculées avec les paramètres de la librairie JENDL 4.0 avec le code ECIS pour les quatre actinides étudiés.

A.2.1.3. Calculs de la section efficace de formation de noyau composé

La section efficace de formation de noyau composé après absorption d'un neutron $\sigma_{CN}(E_n)$ a été calculée à l'aide du modèle optique à l'aide de la procédure décrite à la section précédente avec ECIS [Ray94] et ce, pour les quatre noyaux étudiés dans le cadre de cette thèse. Les valeurs des paramètres utilisés proviennent de la librairie d'évaluation japonaise de données nucléaires JENDL 4.0, qui est, à notre connaissance, la seule base d'évaluation de données de renommée internationale à donner accès à ces paramètres directement sur le web, pour tous les noyaux. Les valeurs des paramètres pour les quatre noyaux étudiés sont indiquées en ANNEXE B. La figure A.6 représente les résultats de ces calculs pour les quatre actinides étudiés. Ces calculs montrent que, pour les quatre noyaux étudiés, les valeurs de σ_{CN} sont proches de 3 barns pour des énergies de neutron supérieures à 3 MeV. Des différences plus importantes sont présentes pour des énergies de neutron incident proches de 1 MeV. La figure A.7 compare le calcul de la section efficace de formation de noyau composé après absorption d'un neutron pour l'^{236}U obtenu avec un jeu de paramètres provenant de la base d'évaluation JENDL 4.0 avec celui de Capote et al. [Cap08]. Ces résultats sont révélateurs de l'incertitude de ce type de calcul qui est généralement comprise entre 5 et 10% pour des énergies de neutron inférieures à 10 MeV pour des noyaux pas très éloignés de la vallée de stabilité [Esc12].

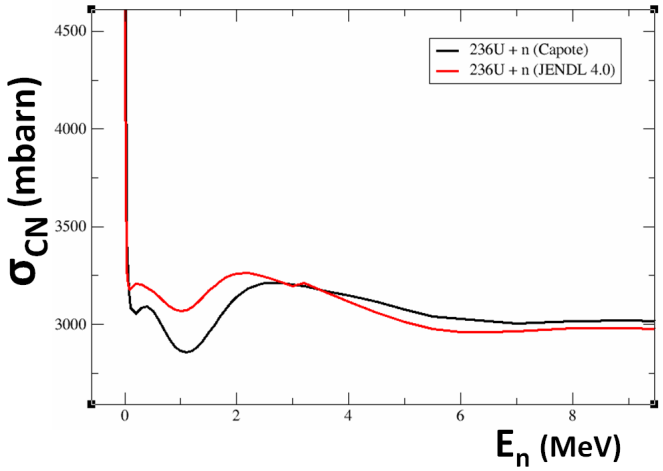


Figure A.7.: Calcul de la section efficace de formation de noyau composé après absorption d'un neutron pour l'^{236}U avec les paramètres de JENDL 4.0 et ceux de Capote et al. [Cap08].

A.2.2. Ingrédients nécessaires au calcul de la désexcitation du noyau composé

Alors que la connaissance de la section efficace de formation du noyau composé est nécessaire pour déduire une section efficace neutronique à partir de la mesure d'une probabilité de désexcitation d'un noyau, la mise en place du modèle statistique Hauser-Feshbach est quant à lui nécessaire pour améliorer la compréhension de la méthode de substitution à travers le calcul de probabilités de désexcitation du noyau composé. Ces calculs requièrent différents ingrédients associés à de nombreux paramètres. L'objectif de cette section est de décrire une liste non exhaustive des ingrédients couramment utilisés dans le cadre du modèle statistique Hauser-Feshbach, et de justifier leur utilisation dans certains cas.

A.2.2.1. Probabilités de désexcitation

Dans la région énergétique d'étude d'intérêt pour ce travail qui est de l'ordre de quelques MeV d'énergie d'excitation du noyau composé, trois voies de désexcitation entrent en compétition : l'émission gamma γ, l'émission neutron n et la fission f comme le schématise la figure A.8. D'après l'équation A.3, le calcul d'une probabilité de désexcitation passe par la connaissance du rapport d'embranchement $G_\chi(E^*, J^\pi)$. Selon le modèle statistique, chacun des noyaux composés formés a une probabilité de désexcitation qui est fonction de ses états quantiques E^*, J, π et qui dépend du "nombre moyen de voies ouvertes" $< N_\chi >$ défini par :

$$< N_\chi(E^*, J^\pi) >= 2\pi\varrho(E^*, J^\pi).\Gamma_\chi(E^*, J^\pi) \tag{A.24}$$

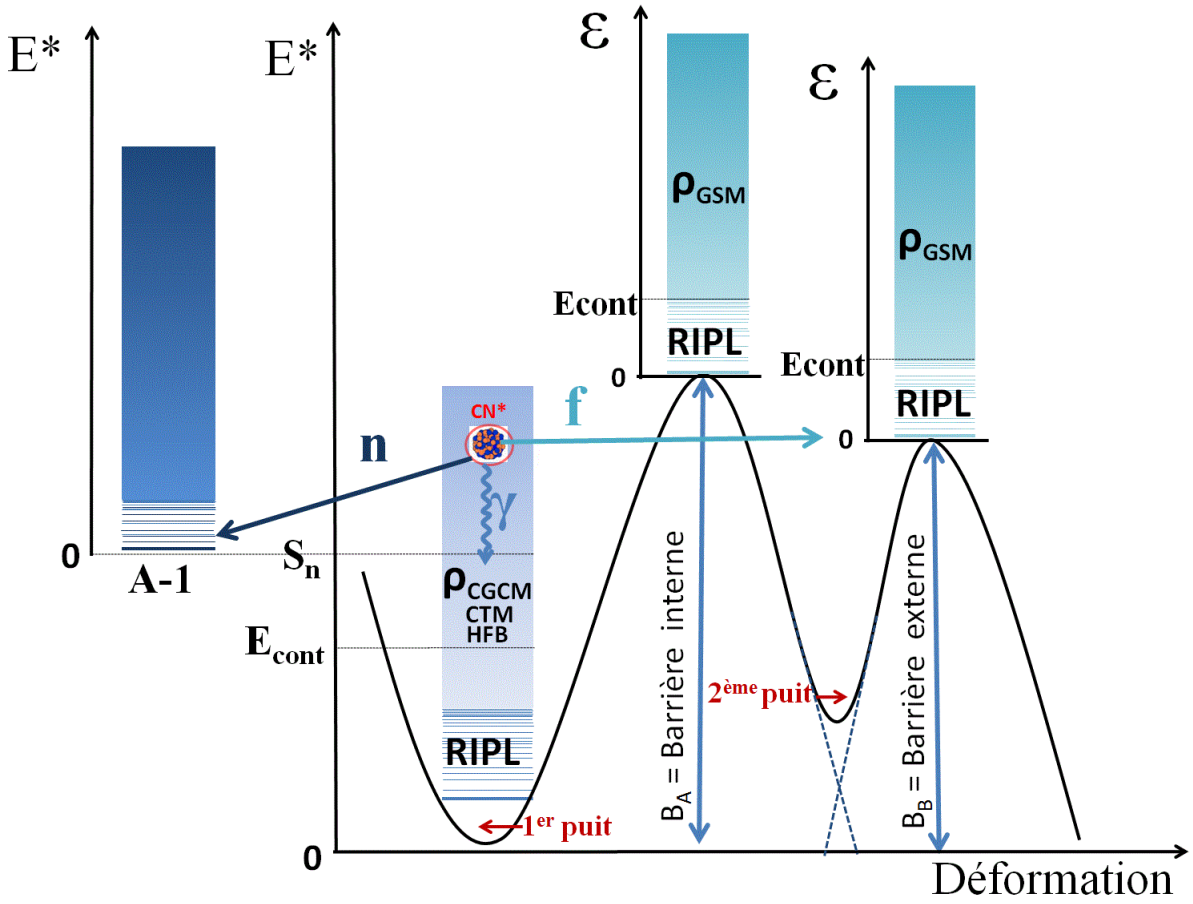


Figure A.8.: Illustration des voies de désexcitation accessibles pour un noyau composé non fissile. Le noyau composé CN se désexcite par émission gamma γ, émission neutron n ou par fission f. La fission est représentée par une barrière à deux bosses. A faible énergie d'excitation, la densité de niveaux ρ est définie selon les niveaux discrets de RIPL [RIPL]. A partir d'une certaine énergie, et selon l'état de déformation du noyau, ρ peut être modélisée de différentes manières (la signification des indices est indiquée dans le texte).

Où ϱ représente la densité de niveaux du noyau à l'énergie E^* et Γ est la largeur de décroissance considérée. Le rapport d'embranchement par la voie i est définit selon :

$$G_\chi(E^*, J^\pi) = \frac{< N_\chi(E^*, J^\pi) >}{\sum_j < N_j(E^*, J^\pi) >} \; avec \; \chi = \gamma, n, f \tag{A.25}$$

Le nombre moyen de voies ouvertes $< N_\chi >$ représente ainsi le poids donné à la contribution de la désexcitation considérée. Les équations de calculs de probabilités nécessitent la connaissance d'ingrédients qui sont décrits par des modèles, comme pour le cas des densités de niveaux et des fonctions force gamma. Les sections suivantes traitent de ces différents modèles.

A.2.2.2. Densité de niveaux

D'un point de vue mathématique, la densité de niveaux $\rho(E^*, J^\pi)$ d'un noyau représente le nombre total de niveaux caractérisé par un spin J et une parité π à une énergie d'excitation E^* donnée. D'un point de vue physique, la densité de niveaux représente le nombre de configurations ou le nombre de micro-états accessibles à une énergie d'excitation donnée.

Pour un noyau fixé, il n'est malheureusement pas possible d'assigner les valeurs de (E^*, J^π) que pour un nombre très limité de niveaux et seulement à basse énergie. En effet, à partir d'une certaine énergie d'excitation, le nombre de niveaux est si élevée qu'on parle plutôt de densité de niveaux dont il existe différentes modélisations. Ces dernières possèdent toutes leurs hypothèses et leur domaine d'application et respectent également les contraintes apportées par les observations des densités de niveaux expérimentales. Tous les modèles de densité de niveaux utilisés peuvent se construire comme le produit de trois facteurs :

$$\rho(E^*, J^\pi) = \rho(E^*).p_J(J, E^*).p_\pi(\pi) \tag{A.26}$$

Avec :

- $\rho(E^*, J^\pi)$ est la densité de niveaux à une énergie E^* et un spin J^π donnés.
- $\rho(E^*)$ est la densité totale de niveaux tout J^π existant confondu à une énergie E^*donnée.
- $p_J(J, E^*)$ est la proportion de niveaux de spin J autour de l'énergie E^*considérée en sachant que $\sum_J p_J(J, E^*) = 1$.
- $p_\pi(\pi)$ est la proportion de niveaux d'une parité π donnée en sachant que $\sum_\pi p_\pi(\pi) = 1$.

La section suivante présente les différents modèles qui décrivent la densité totale $\rho(E^*)$. Les proportions de niveaux $p_J(J, E^*)$ et $p_\pi(\pi)$ seront développées plus tard.

A.2.2.3. Densité de niveaux totale

Modèles phénoménologiques Ces modèles reposent sur l'observation expérimentale montrant que le nombre de niveaux augmente exponentiellement avec l'énergie d'excitation, et aussi sur l'hypothèse que cette tendance se poursuit à plus haute énergie lorsque la détection des niveaux par spectroscopie n'est que partielle. Ainsi la loi mathématique exponentielle décrivant ces modèles ne sera appliquée qu'à partir des énergies d'excitation où le nombre de niveaux détectés expérimentalement ne suit plus une évolution exponentielle. Pour les noyaux moins connus pour lesquels trop peu de niveaux ont été mesurés expérimentalement, cette loi s'applique pour toutes les énergies d'excitation.

Chacun des modèles phénoménologiques décrivent la densité de niveaux à l'aide de paramètres qui sont ajustés afin de reproduire le plus précisément possible la valeur de l'espacement moyen D_0 des résonances neutrons mesurée par spectrométrie. La densité de niveaux est reliée à D_0 selon l'équation :

$$\frac{1}{D_0} = \begin{cases} \rho(S_n, \frac{1}{2}, \pi_{cible}) \; pour \; les \; noyaux \; Z \; pair \; N \; impair \\ \rho(S_n, I_{cible} + \frac{1}{2}, \pi_{cible}) + \rho(S_n, I_{cible} - \frac{1}{2}, \pi_{cible}) \; sinon \end{cases} \tag{A.27}$$

D_0 représente une mesure expérimentale de la connaissance de la densité de niveaux au S_n, pour un spin-parité qui dépend du noyau cible. Il est possible de déduire la valeur de la densité de niveaux totale au S_n à l'aide de la distribution en spin-parité définie par l'équation A.26. Au final, les modèles de densité de niveaux sont ajustés à basse énergie sur les données spectroscopiques des niveaux discrets du noyau, et sur les mesures de D_0 à plus haute énergie (au S_n).

Modèle de Gaz de Fermi (FGM) Dans ce modèle, le noyau est considéré comme un gaz de fermions qui n'interagissent pas entre eux. L'utilisation d'un tel modèle n'a de sens que pour des énergies d'excitation suffisamment élevées où il n'y a plus d'influence de l'appariement des nucléons sur le nombre de micro-états accessibles du noyau. La densité de niveaux totale s'exprime alors de la façon suivante :

$$\rho_{FGM}(E) = \frac{1}{12\sqrt{2}\sigma} . \frac{exp(2\sqrt{aU})}{a^{\frac{1}{4}} U^{\frac{5}{4}}} \tag{A.28}$$

U correspond à l'énergie d'excitation effective afin de tenir compte de l'appariement des nucléons :

$$U = E - n\Delta \;\; avec \; n = \begin{cases} -1 \; (Z \, pair, N \, pair) \\ 0 \; (Z \, pair, N \, impair \; ou \; Z \, impair, N \, pair) \\ 1 \; (Z \, impair, N \, impair) \end{cases} \tag{A.29}$$

Δ est un facteur de correction déterminé empiriquement sur un grand nombre de noyaux pour prendre en compte les différences observées pour les densités de niveaux des noyaux pairs-impairs causé par l'appariement des nucléons. a est le paramètre densité

de niveaux qui, décrit par le modèle d'Ignatyuk [Igna75] prend en compte les effets de couche du noyau considéré :

$$a = \tilde{a}\left\{1 + \frac{\delta W}{U}\left[1 - exp(-\gamma U)\right]\right\} \tag{A.30}$$

δW est la correction de couche du noyau considéré. Les valeurs des paramètres $\tilde{a}$ et γ sont données par des systématiques effectuées sur un grand nombre de noyaux que l'on trouve dans la base RIPL-3 [RIPL]. Enfin σ est le paramètre de spin cut-off. Il représente la distribution du moment angulaire de la densité de niveaux et est directement présent dans la formulation de $\rho_J(J, E^*)$ comme nous le verrons plus tard.

Modèle de Temperature Constante (CTM) Dans ce modèle, la densité de niveaux totale suit la loi exponentielle suivante :

$$\rho_{CTM}(E) = \frac{1}{T}.exp\left(\frac{E - E_0}{T}\right) \tag{A.31}$$

Où T et E_0 sont deux paramètres tabulés dans la base RIPL-3 qui ont été ajustés pour chaque noyau afin de reproduire les niveaux discrets observés expérimentalement, ainsi que l'espacement moyen D_0 des résonances neutrons. En échelle logarithmique, la densité de niveaux totale suit une droite dont la pente est donnée par l'inverse de la température T qui est alors qualifiée de constante car elle ne dépend pas de l'énergie d'excitation du noyau. En effet, l'augmentation de l'énergie d'excitation a pour effet de briser des paires de nucléons augmentant ainsi le nombre de degrés de liberté tout en conservant la température du système constante. Ce comportement est similaire à un système qui subit une transition de phase comme par exemple la fusion de la glace. Des études de mesures de densités de niveaux expérimentales réalisées au cyclotron d'Oslo ont montré que le modèle à température constante est très bien adapté pour décrire les densités de niveaux à basse énergie d'excitation pour quelques actinides [Gut13] mais aussi pour de nombreux autres noyaux dont la liste exhaustive est donnée dans la référence [Lev].

Composite Gilbert Cameron Model (CGCM) Dans ce modèle décrit par Gilbert et Cameron [Gil65], on définit une énergie E_m (pour E_{match}) en deça de laquelle la densité de niveaux totale est décrite par le modèle CTM et au-delà de laquelle la densité de niveaux totale est décrite par le modèle FGM. On parle alors de modèle composite :

$$\rho_{CGCM}(E) = \begin{cases} \rho_{CTM}(E)\ si\ E < E_m \\ \rho_{FGM}(E)\ si\ E \geq E_m \end{cases} \tag{A.32}$$

Les paramètres des modèles composants le CGCM ainsi que l'énergie de raccordement E_m sont ajustés afin de respecter la continuité et la dérivabilité de la densité de niveaux totale à E_m.

L'utilisation de ce modèle est justifiée dans la mesure où la température du sytème ne peut plus être considérée comme constante avec l'énergie d'excitation une fois la transition de phase effectuée, où les effets d'appariement des nucléons disparaissent : la

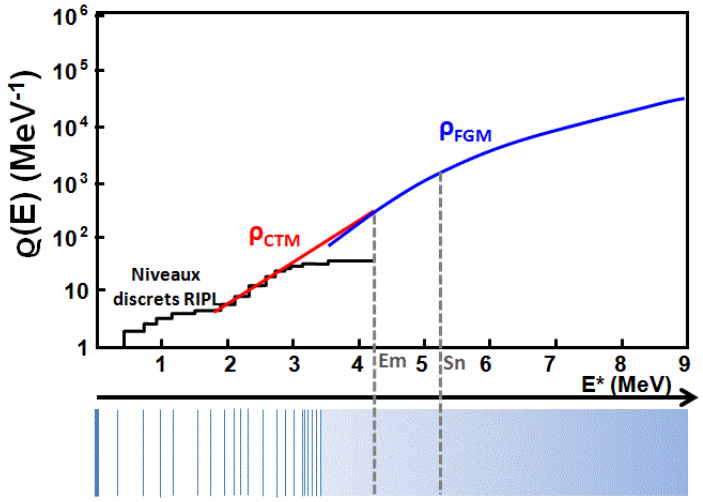


Figure A.9.: Illustration schématique de la construction du modèle de densité de niveaux CGCM. En haut : représentation de la densité de niveaux totale en fonction de l'énergie d'excitation. En bas : schéma de la densité de niveaux en fonction de l'énergie d'excitation.

densité de niveaux est alors décrite par le modèle de gaz de Fermi. La figure A.9 illustre la construction de ce modèle de densité de niveaux pour un noyau donné.

Generalized Superfluid Model (GSM) : Le GSM est, à l'instar du CGCM, un modèle composite. A basse énergie d'excitation, le noyau est considéré comme un superfluide où l'énergie d'appariement des nucléons influence fortement la densité de niveaux. On définit une énergie d'excitation critique du noyau, au-delà de laquelle le noyau subit une transition de phase et est alors décrit par le FGM. Le GSM peut être exprimé comme le produit d'une densité de niveaux intrinsèque d'excitation de particules seules par des facteurs d'accroissement K_{vib} et K_{rot} dûs aux excitations collectives vibrationnelles et rotationelles respectivement :

$$\rho_{GSM}(E) = \rho_{int}(E).K_{vib}(E).K_{rot}(E) \tag{A.33}$$

Ces facteurs d'accroissement peuvent augmenter la densité de niveaux intrinsèque de plusieurs dizaines de fois et sont représentatifs de l'état de déformation du noyau. Ce modèle se révèle spécialement utile pour décrire la désexcitation du noyau composé par fission où le noyau se trouve dans un état de forte déformation. Une description détaillée du modèle est accessible dans la base de données RIPL-3 [RIPL].

Modèles microscopiques

Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) Des calculs microscopiques [Hil06] permettent d'estimer la densité de niveaux totale d'un noyau en déterminant par des méthodes combinatoires toutes les possibilités de permutation des particules dans le modèle en couches des particules indépendantes. La proportion d'états à parité positive et à parité négative n'est pas égale à $\frac{1}{2}$ ce qui semble plus réaliste puisqu'une une proportion différente des parités à basse énergies est observé pour la plupart des noyaux. Les résultats des calculs de densité de niveaux par modèle microscopique HFB allant jusqu'à 200 MeV d'énergie d'excitation du noyau composé sont tabulés dans la base RIPL-3 [RIPL].

A.2.2.4. Distribution en spin-parité de la densité de niveaux

Comme le souligne l'équation (A.26), la densité de niveaux totale est exprimée en fonction de $p_J(J, E^*)$ et de $p_\pi(\pi)$ pour avoir la proportion des niveaux à une énergie, un spin J et une parité π donnés. Au-delà de l'énergie d'excitation à partir de laquelle sont appliqués les modèles de densités totales de niveaux décrits précédemment, très peu d'informations nous renseignent sur les états spin-parité des niveaux. N'ayant aucun moyen de connaître la proportion des parités des niveaux, on fait la supposition raisonnable que pour les noyaux lourds, la proportion en parité positive et négative des niveaux est équitablement répartie c'est-à-dire :

$$p_\pi(\pi) = \frac{1}{2} \tag{A.34}$$

On considère également que la proportion en spin suit une loi de la forme [Gil65] :

$$p_J(J, E^*) = \frac{(2J+1)}{2\sigma^2(E^*)}.exp\left(-\frac{(J+\frac{1}{2})^2}{2\sigma^2(E^*)}\right) \tag{A.35}$$

Où σ est le paramètre de spin cut-off qui représente la dispersion des spins autour de J. Pour des actinides dont l'énergie d'excitation est proche de S_n, les valeurs de spin cut-off sont typiquement de l'ordre de 7-8 $\hbar$. Différents modèles décrivent ce paramètre dont les valeurs sont généralement associées à une incertitude élevée ce qui impacte directement la construction de la densité de niveaux. L'étude de ce paramètre est, pour cette raison, un sujet de recherche très important pour une détermination plus précise des densités de niveaux.

A.2.2.5. Emission gamma et modèle de fonction force gamma

Au cours de la désexcitation statistique par émission gamma, le noyau composé, dans un état initialement excité, émet une cascade de x gammas jusqu'à atteindre l'état fondamental selon :

$$(A+1)^* \rightarrow (A+1) + x\gamma \tag{A.36}$$

Toute loi de désexcitation est construite sur des règles de sélection et de conservation. Pour la désexcitation par émission gamma, le rayonnement emporte un moment angulaire

qui sera ici noté L, dont les valeurs dépendent des états de spin des niveaux initiaux et finaux :

$$|J_i - J_f| \leq L \leq J_i + J_f \tag{A.37}$$

L'équation du nombre moyen de voies ouvertes pour l'émission gamma du noyau composé est donnée par :

$$\begin{aligned} < N_\gamma(E^*, J^\pi) >= 2\pi C[& \sum_{\text{états discrets}} \sum_{J_f \pi_f} \sum_{XL} f_{XL}(\varepsilon_{\gamma i}).\varepsilon_{\gamma_i}^{2L+1} \delta_i \\ & + \int_{E_{cont}}^{E^*} \sum_{J_f \pi_f} \sum_{XL} f_{XL}(\varepsilon_\gamma).\varepsilon_\gamma^{2L+1} \rho(E^* - \varepsilon_\gamma, J_f, \pi_f) d\varepsilon_\gamma] \end{aligned} \tag{A.38}$$

La première somme $\sum_{XL}$ s'effectue sur toutes les transitions de multipolarités XL accessibles. Le type de transition d'un niveau vers un autre est de nature électrique si $X = E$ ou de nature magnétique si $X = M$. L = 1,2,3... correspond à la multipolarité de la transition. La seconde somme $\sum_{J_f \pi_f}$ s'effectue sur tous les niveaux finaux de moment angulaire J_f,π_f qui peuvent être déduits des règles de sélections suivantes:

$$\pi_f = \pi_i(-1)^{L+1} \textit{ pour les transitions électriques } E_L \tag{A.39}$$

$$\pi_f = \pi_i(-1)^{L} \textit{ pour les transitions magnétiques } M_L \tag{A.40}$$

Le troisième terme somme porte sur l'énergie des gammas émis entre le niveau de départ d'énergie E^* et le niveau d'arrivée d'énergie inférieure. Une distinction est faite entre la partie discrète δ_i et continue $\rho_\gamma(E^* - \varepsilon_\gamma, J_f, \pi_f)$ de la description de la densité de niveaux du noyau composé. f_{XL} est appelée fonction force gamma (gamma strength function) et dépend directement de l'énergie ε_γ de transition entre le niveau initial et final. La description de la densité de niveaux et de la fonction force est donnée par différents modèles qui seront développés ultérieurement. Enfin C est une constante utilisée afin de normaliser $< N_\gamma >$ à une mesure expérimentale de largeur de décroissance radiative Γ_γ obtenue dans la région des résonances. Cette normalisation est indispensable afin d'éviter un biais important des valeurs de $< N_\gamma >$.

Comme l'indique l'équation A.38, le processus de désexcitation du noyau composé par émission gamma peut être décrit au moyen des fonctions force gamma $f_{XL}(\varepsilon_\gamma)$. En général, seules sont considérées les transitions dipolaires électriques ($X = E$ et $L = 1$) car elles sont très majoritaires par rapport aux autres transitions. Les ordres de grandeur entre la probabilité d'occurrence P d'une transition électromagnétique en fonction d'une autre selon l'indice de multipolarité L et le type de transition X sont définies par les estimations de Weisskopf [Bla52]:

$$\begin{aligned} P(E_1) &\approx 10^2 P(M_1) \\ P(XL) &\approx 10^{-3} P(X(L-1)) \end{aligned} \tag{A.41}$$

Ainsi, d'après les estimations de Weisskopf, une transition électrique dipolaire E_1 est environ 100 fois plus probable qu'une transition magnétique dipolaire M_1. De la même manière, une transition électrique octupolaire E_2 est environ 1000 fois moins probable qu'une transition E_1.

Les phénomènes d'émission et d'absorption gamma peuvent tous les deux être décrits au travers des fonctions force gamma [Lon86, Bar73]. Il y a deux types de fonctions force gamma : une est reliée à la largeur radiative d'émission gamma Γ_γ. Pour les transitions E_1, celle-ci s'exprime selon :

$$f_{E_1}(\varepsilon_\gamma) = \frac{<\Gamma_\gamma(\varepsilon_\gamma)>.\rho(E^*, J^\pi)}{\varepsilon_\gamma^3} \tag{A.42}$$

L'autre type de fonction de force dépend de la section efficace d'absorption d'un gamma :

$$f_{E_1}(\varepsilon_\gamma) = \frac{1}{3(\pi\hbar c)^2}.\frac{\sigma_{abs_{E_1}}(\varepsilon_\gamma)}{\varepsilon_\gamma} \tag{A.43}$$

Où $\sigma_{abs_{E_1}}(\varepsilon_\gamma)$ est la section efficace de photo-absorption d'un photon E_1 à partir de l'état fondamental du noyau considéré. L'absorption et l'émission de gammas d'énergie allant jusqu'à environ 20 MeV est principalement gouverné par l'excitation ou la désexcitation de la résonance géante dipolaire (GDR). Les deux types de fonction force sont supposées égales et de forme lorentzienne. De manière générale, la fonction force gamma mesurée, dont les données couvrent des énergies gammas inférieures au S_n, est extrapolée à des données connues pour des énergies gammas supérieures au S_n provenant de la fonction force déduite des réactions photonucléaires (γ, x).

Trois modèles différents de fonctions force développés pour les transitions E_1 sont couramment utilisés pour les calculs de modèles statistiques : le Standard LOrentzian Model (SLO), le Enhanced Generalized LOrentzian Model (EGLO) et le modèle Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB).

Standard LOrentzian Model (SLO) On suppose dans ce modèle que la forme de la section efficace de photo-absorption d'un photon E_1 est indépendante du niveau excité atteint par le noyau suite à l'absorption du photon : c'est l'hypothèse de Brink [Axe62] qui permet de réécrire la fonction force selon :

$$f_{E_1}(\varepsilon_\gamma) = \frac{1}{3.10.(\pi\hbar c)^2}.\sigma_r\Gamma_r.\frac{\varepsilon_\gamma\Gamma_r}{(\varepsilon_\gamma^2 - E_r^2)^2 + \varepsilon_\gamma^2\Gamma_\gamma^2} \tag{A.44}$$

Avec $\sigma_r \approx 100\,mb$, $E_r \approx 15\,MeV$ et $\Gamma_r \approx 5\,MeV$. Les paramètres utilisés correspondent à l'amplitude de la section efficace à son maximum σ_r, à l'énergie de la résonance E_r, et à sa largeur Γ_r. Globalement, les résultats de fonction force gamma pour des gammas d'énergie supérieure à 5 MeV présentent un meilleur accord pour ce modèle que pour ceux décrits par la suite [RIPL].

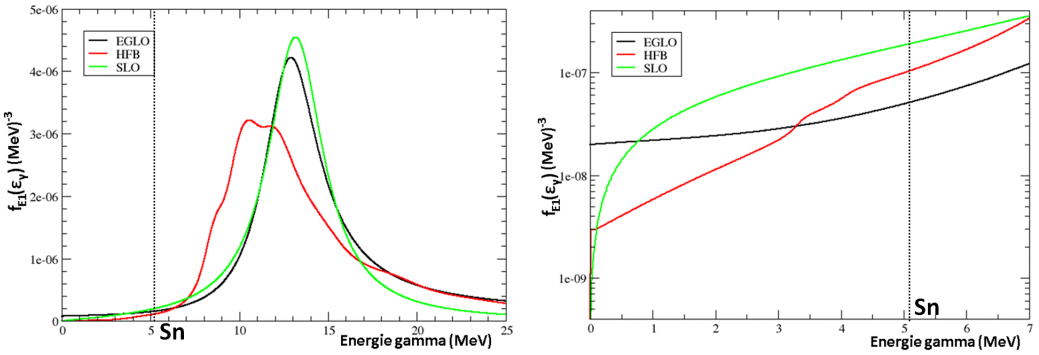


Figure A.10.: Fonction de force gamma de l'^{237}U pour les modèles SLO, EGLO et HFB (à gauche). Echelle logarithmique et zoom sur une plage réduite d'énergie des gammas émis (à droite).

Enhanced Generalized LOrentzian Model (EGLO) Ce modèle empirique est proposé par Kopecky et Uhl [Kop90]. Un terme supplémentaire intervient par rapport au modèle précédent en plus d'une dépendance en température du noyau et en énergie de la largeur Γ_r, mettant ainsi fin à l'hypothèse de Brink :

$$f_{E_1}(\varepsilon_\gamma, E_i) = \frac{1}{3.10.(\pi\hbar c)^2}.\sigma_r\Gamma_r.\left(\frac{\varepsilon_\gamma\Gamma_K(\varepsilon_\gamma, T_f)}{(\varepsilon_\gamma^2 - E_r^2)^2 + \varepsilon_\gamma^2\Gamma_K^2(\varepsilon_\gamma, T_f)} + \frac{0,7\Gamma_K(\varepsilon_\gamma = 0, T_i)}{E_{r^2}}\right) \tag{A.45}$$

Où $\Gamma_K(\varepsilon_\gamma, T_f)$ est un terme défini précisément dans RIPL [RIPL]. T_i et T_f correspondent aux températures du noyau dans l'état initial et final respectivement. De manière générale, ce modèle de fonction force gamma est en bon accord avec les données expérimentales pour des gammas d'énergie inférieure à 3 MeV [RIPL].

Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) Une approche microscopique permet également de déterminer des fonctions force gamma comme celles calculées par Goriely et Khan au moyen d'une approche QRPA (Quasi-particle Random Phase Approximation) [Gor02]. Les valeurs de fonctions force gamma sont présentes dans la base de données RIPL-3.

Comparaison des fonctions force gamma pour l'^{237}U A titre d'illustration, la fonction force gamma $f_{E_1}(\varepsilon_\gamma)$ de l'^{237}U est représentée pour les trois modèles sur la figure A.10 :

On constate de manière générale des écarts très larges de valeurs entre ces trois modèles. Rappelons que lors de sa désexcitation, l'énergie des gammas émis par le noyau composé est au plus égale à l'énergie d'excitation de celui-ci. Comme la région d'intérêt d'étude de la détermination de la probabilité d'émission gamma se situe aux environs de [Sn-Sn+1] en énergie d'excitation du noyau composé, les valeurs de fonction force d'intérêt se situent donc pour des gammas d'énergie comprise entre [0-Sn+1], plage illustrée sur la figure A.10 (à droite). On constate également de très fortes disparités entre les trois

modèles à ces énergies, ce qui entraîne un impact direct sur les résultats de calculs. Tout comme les densités de niveaux, les modèles de fonctions force gamma souffrent actuellement d'incertitudes importantes et représentent un sujet de recherche essentiel pour la modélisation de la désexcitation gamma d'un noyau.

A.2.2.6. Emission neutron et calcul des coefficients de transmission

La désexcitation statistique par émission d'un neutron du noyau composé peut être illustrée par le mécanisme suivant :

$$(A+1)^* \rightarrow A + n \tag{A.46}$$

Le noyau résiduel A peut être dans son état fondamental si le neutron émis emporte toute l'énergie d'excitation du noyau composé moins l'énergie de séparation du neutron. Si le noyau résiduel est dans un état excité d'énergie inférieure au S_n, il se désexcitera par émission gamma (pour un noyau non fissile). Le neutron émis possède une énergie cinétique E_n , un moment angulaire total j_n et un moment angulaire orbital l_n qui se déduisent des lois de conservation :

$$\overrightarrow{J_{(A+1)^*}} = \overrightarrow{I_A} + \overrightarrow{j_n} \; avec \; \overrightarrow{j_n} = \overrightarrow{l_n} + \overrightarrow{s_n} \; et \; s_n = \frac{1}{2} \tag{A.47}$$

$$\pi_{(A+1)^*} = \pi_A.(-1)^{l_n} \tag{A.48}$$

$$E^*_{(A+1)} = E^*_A + S_n + \frac{A}{A+1}E_n \tag{A.49}$$

L'équation du nombre de voies ouvertes pour l'émission neutron entre les différents niveaux du noyau résiduel est donnée par :

$$\begin{aligned} < N_n(E^*, J^\pi) >= \quad & \sum_{états\, discrets} \sum_{j=|j_i-I|}^{j_i+I} \sum_{l=|j-\frac{1}{2}|}^{|j+\frac{1}{2}|} T_{lj}(E^* - S_n - \varepsilon_i)\delta_{\pi_i,\pi(-1)^l} \\ & + \int_{E_{cont}}^{E^*-Sn} \sum_{J'} \sum_{j=|J'-J|}^{J'+J} \sum_{l=|j-\frac{1}{2}|}^{|j+\frac{1}{2}|} T_{lj}(E^* - S_n - \varepsilon)\rho(\varepsilon, J', \pi(-1)^l)d\varepsilon \end{aligned}$$

Où ε est l'énergie du noyau résiduel après émission d'un neutron. Le calcul de $< N_n >$ s'effectue sur tous les niveaux discrets $(\varepsilon_i, J_i, \pi_i)$ et continus (ε, J', π) accessibles grâce aux règles de sélection et de conservation dont l'énergie est inférieure à $E^* - Sn$. La densité de niveaux dans le continuum du noyau résiduel générée après émission de neutron est décrite par ρ_n. Les T_{lj} représentent les coefficients de transmission et sont très dépendants du modèle optique choisi et des paramètres associés.

A.2.2.7. Fission et choix des paramètres de barrière

Enfin la désexcitation statistique par fission du noyau composé peut être illustrée suivant:

$$(A+1)^* \rightarrow fragment\,1 + fragment\,2 \tag{A.50}$$

Le processus de fission peut être modélisé par une double barrière de potentielle (cf figure A.8). Les états du second puit de potentiel (qualifiés de classe II) ont une forte influence sur la pénétrabilité des barrières, et sont caractérisés par une augmentation très importante du coefficient de transmission de fission à l'énergie de l'état en question (qui est par construction, inférieure à l'énergie des barrières). Les états de classes II sont la plupart du temps méconnus car très difficiles à mesurer. L'équation du nombre moyen de voies ouvertes de fission $< N_f >$ d'un noyau composé à travers une barrière est donnée par l'expression standard de Hill-Wheeler :

$$< N_f(E^*, J^\pi) >= \sum_{etats\,discrets\,i} \frac{\delta_{J,j_i}\delta_{\pi,\pi_i}}{1+exp(2\pi\frac{\varepsilon_i+E_b-E^*}{\hbar w_b})} + \int_{E_{cont}}^{E^*-Sn} \frac{\rho_b(\varepsilon, J^\pi)}{1+exp(2\pi\frac{\varepsilon+E_b-E^*}{\hbar w_b})} d\varepsilon \tag{A.51}$$

Où ε est l'énergie au dessus de la barrière considérée (cf figure A.8). $\hbar w_b$ et E_b représentent respectivement la courbure et la hauteur de la barrière de fission. Notons que l'équation A.52 suggère que les noyaux impair-impair ne possèdent pas d'états discrets de barrières, ce qui peut ne pas être le cas selon les modèles. Le continuum débute ici à l'énergie d'appariement E_{cont} des nucléons, qui représente l'énergie nécessaire pour briser une paire de nucléons :

$$E_{cont} = n\frac{14}{\sqrt{A}} \;\; avec\, n = \begin{cases} 0\ (Z\,impair, N\,impair) \\ 1\ (Z\,pair, N\,impair\ ou\ Z\,impair, N\,pair) \\ 2\ (Z\,pair, N\,pair) \end{cases} \tag{A.52}$$

Pour des énergies d'excitations supérieures à E_{cont}, la brisure de la paire de nucléons induit davantage de configurations microscopiques accessibles pour le noyau et par conséquent entraîne une augmentation forte de la densité de niveaux ρ_b à la barrière. Pour des énergies d'excitations inférieures à E_{cont}, les niveaux au dessus des barrières se construisent à partir d'états discrets référencés dans RIPL-3 selon la parité du nombre atomique et du nombre de masse du noyau [RIPL]. Les niveaux qui composent la partie discrète du schéma de niveaux à ces déformations sont différents de ceux du premier puit de potentiel. Des niveaux de type rotationnel d'énergie E_i se construisent sur des niveaux de type vibrationnel d'énergie ε_i (appelés têtes de bande) selon l'expression :

$$E_i(KJ^\pi) = E_b + \varepsilon_i(K^\pi) + \frac{\hbar^2}{2I}\left[J(J+1) - K(K+1)\right]\ pour\ J \geq K\ et\ E_i(KJ^\pi) \leq E_{cont} \tag{A.53}$$

Où K est la projection du moment angulaire J sur l'axe de symétrie du noyau. Le dernier terme de la somme représente l'énergie de rotation du noyau qui est proportionnelle au moment d'inertie I. La valeur du terme $\frac{\hbar}{2I}$ est supposée constante et dépend de la parité de N et de Z du noyau considéré [Bac74b]. L'état de spin-parité J^π des niveaux rotationnels dépendent directement de celui des têtes de bandes K^π sur lesquelles elles sont construites :

$$J^\pi(niveaux\ rotationnels) = \begin{cases} K^\pi, (K+1)^\pi, (K+2)^\pi, ...pour\ K \neq 0 \\ 0^+, 2^+, 4^+ ...pour\ K = 0^+ \\ 1^-, 3^-, 5^- ...pour\ K = 0^- \end{cases} \tag{A.54}$$

Enfin, lorsque le couplage entre les coefficients de transmission à travers les deux barrières A et B est négligé et que des états de classes II ne sont pas considérés dans les calculs, le coefficient de transmission fission total $< N_f >$ en fonction de $< N_A >$ et $< N_B >$ des barrières A et B s'exprime ainsi :

$$< N_f(E^*, J^\pi) >= \frac{< N_A(E^*, J^\pi) > . < N_B(E^*, J^\pi) >}{< N_A(E^*, J^\pi) > + < N_B(E^*, J^\pi) >} \tag{A.55}$$

Comme le montre l'équation A.51, le calcul des probabilités de désexcitation par fission nécessite la connaissance des paramètres de barrières référencés la base de données RIPL-3 [RIPL]. De plus, l'équation A.53 montre que la construction des états discrets au dessus des barrières et donc $< N_f(E^*, J^\pi) >$ dépendent fortement du moment d'inertie qui est généralement mal connu pour des déformations élevées du noyau. Ce paramètre a donc une influence importante dans le calcul de $< N_f(E^*, J^\pi) >$.

A.2.3. Calculs de rapports d'embranchement

Dans la limite des incertitudes liées à la connaissance des ingrédients des modèles statistiques, il est possible de prédire théoriquement des rapports d'embranchement $G_\chi(E^*, J^\pi)$ en fonction de l'énergie, du spin et de la parité afin d'obtenir des informations sur les limites d'utilisation de l'approximation de Weisskopf-Ewing. De tels calculs peuvent être très utiles, puisqu'il n'est pas possible aujourd'hui d'extraire expérimentalement les rapports d'embranchement pour des J^π fixés et ainsi tester dans quelles conditions l'approximation de Weisskopf-Ewing est valable. Des calculs ont été réalisés pour déterminer des rapports d'embranchement de fission et d'émission gamma pour plusieurs types de noyaux.

A.2.3.1. Fission

Des calculs menés par Escher et Dietrich [Esc06] ont permis d'extraire le rapport d'embranchement de fission $G_f(E^*, J^\pi)$ à l'aide d'un modèle statistique Hauser Feschbach où les paramètres ont été ajustés pour reproduire les données (n, f) disponibles pour des énergies de neutrons allant de 0 à 20 MeV. La figure A.11 (à gauche) représente le rapport d'embranchement de fission $G_f(E^*, J^\pi)$ du noyau fissile $^{236}U^*$ pour les parités positives et pour différents moments angulaires totaux J en fonction de l'énergie du neutron incident. A droite

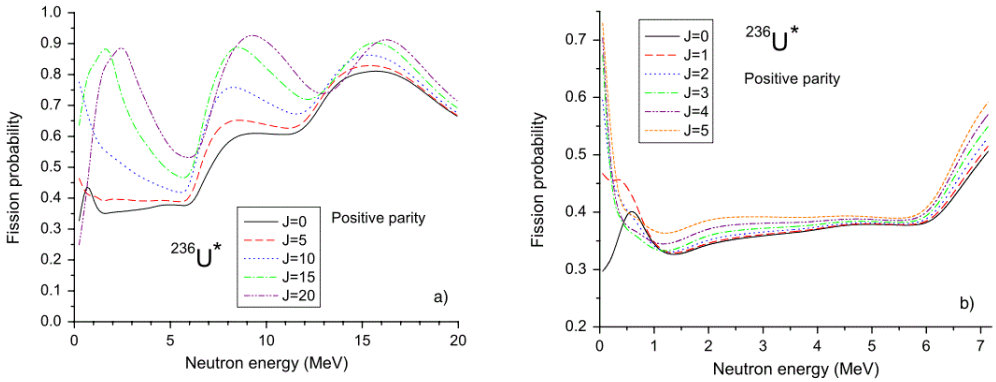


Figure A.11.: Rapports d'embranchements de fission $G_f(E^*, J^\pi)$ calculés pour l'$^{236}U^*$ en fonction de l'énergie du neutron incident pour des moments angulaires totaux $J = 0, 5, 10, 15\,et\,20$ (à gauche) et $J = 0, 1, 2, 3, 4\,et\,5$ (à droite). De Escher et Dietrich [Esc06].

de cette figure sont représentés les résultats de calculs pour le même noyau sur une plage réduite en énergie et en J. On observe que le rapport d'embranchement de fission $G_f(E^*, J^\pi)$ est très sensible au moment angulaire total, spécialement à basse énergie. L'influence du moment angulaire se réduit pour des énergies supérieures même si l'écart reste très prononcé pour des J très différents. Les mêmes observations sont constatées pour les rapports d'embranchement du noyau fissionant $^{234}U^*$ [Esc06].

Des calculs similaires ont été réalisés par Chiba et Iwamoto [Chib10] qui ont extrait les rapports d'embranchement du noyau fertile $^{239}U^*$ pour différents J , comme le représente la figure A.12. On observe de larges différences en fonction du spin autour de la barrière de fission même si elles tendent à s'atténuer à plus haute énergie. De manière générale, les rapports d'embranchement de fission sont très sensibles aux états de transition discrets au-dessus de la barrière à basse énergie du neutron.

D'après ces calculs, il est difficile d'affirmer que la limite de Weisskopf-Ewing est atteinte à partir d'une certaine énergie, bien que la dépendance des rapports d'embranchement vis à vis du moment angulaire total semble nettement diminuer avec l'énergie du neutron incident.

A.2.3.2. Emission gamma

De la même manière que pour la fission, des calculs Hauser-Feshbach [Chib10, Esc10, For07] pour plusieurs noyaux ont été ajustés pour reproduire les sections efficaces de capture neutronique afin d'extraire des informations sur les rapports d'embranchement d'émission gamma. La figure A.13 illustre que les rapports d'embranchement d'émission gamma du $^{92}Zr^*$ sont très sensibles au moment angulaire total du noyau composé. En bas de la figure est illustrée une réprésentation du schéma de niveaux du noyau ^{91}Zr accessible après émission d'un neutron du noyau composé $^{92}Zr^*$. Sur la plage énergétique considérée

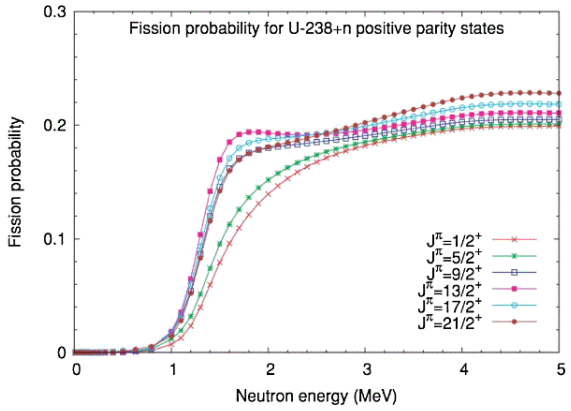


Figure A.12.: Rapports d'embranchement de fission $G_f(E^*, J^\pi)$ calculés pour l'$^{239}U^*$ en fonction de l'énergie du neutron incident pour des moments angulaires totaux $J = \frac{1}{2}+, \frac{5}{2}+, \frac{9}{2}+, \frac{13}{2}+, \frac{17}{2}+ et \frac{21}{2}+$. De Chiba et Iwamoto [Chib10].

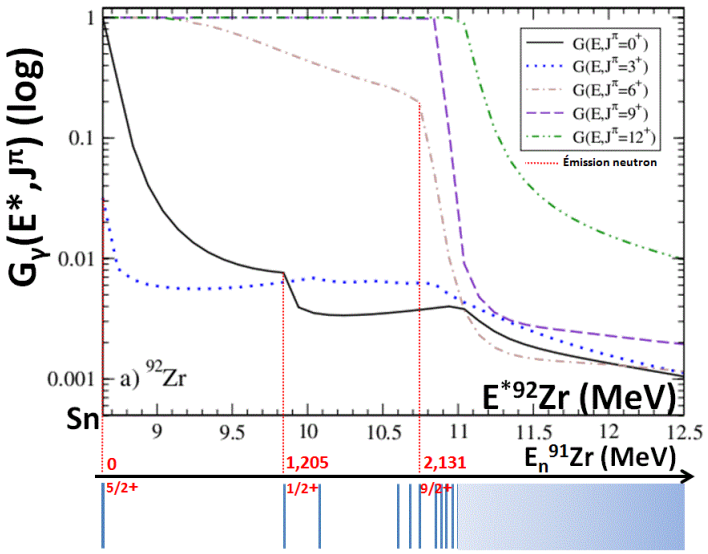


Figure A.13.: Rapports d'embranchement de capture $G_\gamma(E^*, J^\pi)$ calculés pour le $^{92}Zr^*$ en fonction de l'énergie d'excitation pour différents moments angulaires totaux. En bas figure une illustration du schéma de niveau du noyau ^{91}Zr (noyau fils après émission de neutron). Les nombres en rouge identifient l'énergie et l'état de spin-parité de quelques niveaux. Figure tirée de la référence [Esc12].

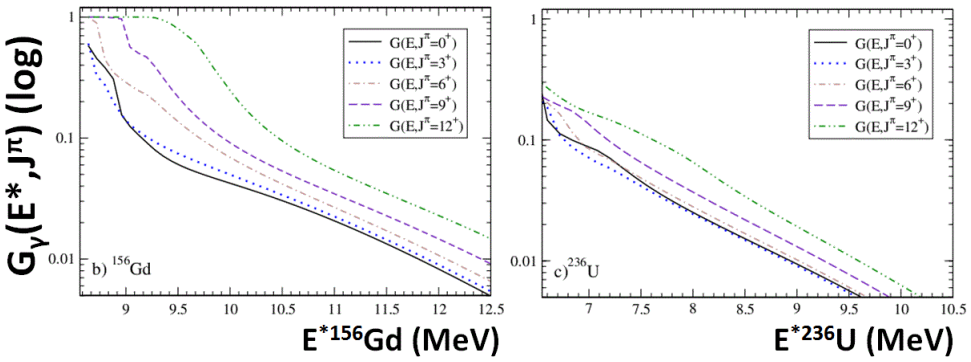


Figure A.14.: Rapports d'embranchement de capture $G_\gamma(E^*, J^\pi)$ calculés pour le $^{156}Gd^*$ et le $^{236}U^*$ en fonction de l'énergie d'excitation pour différents moments angulaires totaux. Figures tirées de la référence [Esc12].

par les calculs, le noyau $^{92}Zr^*$ peut se désexciter selon deux voies : par émission γ ou par émission neutron. Le processus d'émission neutron dépend de la structure nucléaire du noyau fils et du moment angulaire total du noyau composé. La faible densité de niveaux du ^{91}Zr limite les possibilités de désexcitation du $^{92}Zr^*$ par émission neutron. En effet, la désexcitation par émission d'un neutron vers un niveau excité E_x du noyau fils n'est possible que si l'énergie d'excitation E^* de $^{92}Zr^*$ respecte $E^* \geq S_n + E_x$. De plus, le neutron éventuellement émis possède un moment angulaire total $j_n = l_n + \frac{1}{2}$ dont le moment orbital l_n est dominé par les ondes $s\,(l_n = 0)$ et $p\,(l_n = 1)$ pour des E^* proches de S_n. D'après l'équation de conservation du moment angulaire total définit par l'équation A.47, l'émission d'un neutron est favorisée si les moments angulaires totaux du noyau composé J_{A+1} et du noyau fils I_A sont voisins (à j_n prêt). Si ces conditions ne sont pas respectées, l'émission neutron sera fortement limitée et le noyau composé ne pourra alors que se désexciter par émission gamma. Sur la figure A.13, l'ouverture de l'émission neutron vers un état du noyau fils est marquée par une chute soudaine du rapport d'embranchement gamma dont quelques unes ont été symbolées par une ligne rouge. A l'inverse, si l'émission de neutron est bloquée à cause des raisons évoquées plus haut, la seule voie de désexcitation du noyau composé est l'émission gamma dont le rapport d'embranchement est alors égal à 1. Au vu des résultats de ces calculs, il est clair que l'approximation de Weisskopf-Ewing n'est pas valable pour ce noyau dans la région énergétique considérée.

Les calculs des rapports d'embranchement pour le ^{156}Gd sont représentés sur la figure A.14 (à gauche). On remarque de manière générale que la dépendance en spin du noyau composé est significativement plus faible que celle observée avec le ^{92}Zr. Tout comme pour ce noyau, les effets de chute des rapports d'embranchement sont révélateurs de la structure discrète des niveaux du noyau fils. Ces effets s'amenuisent peu à peu pour laisser place à des courbes plus lisses dont l'origine est directement liée à l'augmentation de la densité de niveaux du noyau fils. Pour les noyaux composés à hauts spins d'énergie d'excitation proche de S_n, l'émission neutron est fortement limitée puisque le noyau fils

contient peu de niveaux à basse énergie de hauts spins vers lesquels la désexcitation peut se réaliser. Lorsque l'énergie d'excitation augmente, davantage d'états de plus hautes énergies d'excitation et de plus hauts spins du noyau fils deviennent accessibles : l'émission neutron devient très vite la voie de désexcitation majoritaire. Même si les $G_\gamma(E^*, J^\pi)$ convergent de plus en plus avec l'énergie d'excitation, les différences restent telles que la limite de Weisskopf-Ewing ne peut pas être considérée comme étant atteinte.

Enfin la figure A.14 (à droite) montre également les rapports d'embranchement $G_\gamma(E^*, J^\pi)$ pour le noyau ^{236}U. Comme l'^{235}U est fissile, la désexcitation par fission de l'$^{236}U^*$ entre en compétition avec l'émission gamma et neutron pour toutes les énergies du calcul. Pour des énergies d'excitation supérieures à 7,5 MeV, les rapports d'embranchement de capture $G_\gamma(E^*, J^\pi)$ sont très similaires pour des $J \in [0 - 6\hbar]$: l'approximation de Weisskopf-Ewing semble valable dans ce cas. En revanche pour des J supérieurs, il existe des écarts très importants entre les $G_\gamma(E^*, J^\pi)$, la limite de Weisskopf-Ewing ne s'applique donc plus. En effet, le peu de niveaux excités à haut spin accessibles à ces énergies limitent l'émission neutron et favorise par conséquent l'émission gamma, même si la compétition avec la fission rend ce constat moins évident.

En résumé, ces calculs montrent que le rapport d'embranchement d'émission gamma est d'autant moins sensible au moment angulaire que le noyau est lourd ce qui s'explique par le nombre plus important de niveaux excités accessibles du noyau fils après émission d'un neutron. De plus, la limite de Weisskopf-Ewing ne semble pouvoir s'appliquer que pour des noyaux lourds (actinides) dont la distribution en spin ne peuplent pas des états de spins trop élevés.

A.2.4. Exemple de sensibilité des ingrédients avec le code FIFRELIN

Le code Fifrelin (FIssion Fragment Evaporation Leading to an Investigation of Nuclear data) [Lit10] est un code Monte Carlo développé au CEA de Cadarache depuis 2010 dans lequel est implémenté le modèle statistique Hauser-Feshbach de désexcitation du noyau composé. Dans ce modèle, les probabilités de désexcitation dépendent directement des propriétés de la particule émise (énergie, multipolarité du γ, moment orbital du neutron..) mais aussi des propriétés de structure du noyau moyennées sur des petits intervalles en énergie.

Des exemples de calculs de sensibilité des ingrédients de la probabilité d'émission gamma ont été effectué afin d'en étudier l'influence. La figure A.15 (à gauche) représente la probabilité d'émission gamma de l'$^{237}U^*$ à un état $J^\pi = \frac{1}{2}-$ en fonction de l'énergie du neutron incident pour différents modèles de densité de niveaux à un modèle de fonction force gamma fixé. La figure A.15 (à droite) représente quant à elle l'influence de la fonction force gamma sur la probabilité d'émission gamma de l'$^{237}U^*$ pour un modèle de densité de niveau fixé. De manière générale, on constate que pour ce noyau, le modèle de densité de niveaux a plus d'influence sur la probabilité d'émission gamma que le modèle de fonction de force. Cette observation n'est pas systématique pour d'autres calculs réalisés sur d'autres noyaux, mais elle donne un aperçu de l'ordre de grandeur de l'incertitude des calculs liés aux paramètres des modèles.

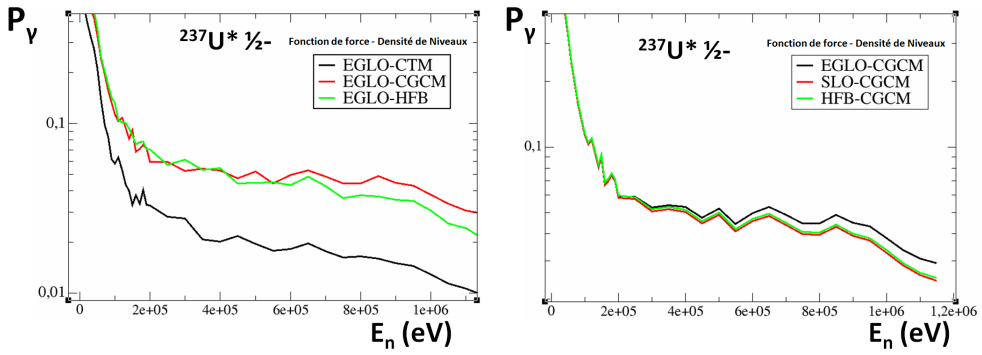


Figure A.15.: Probabilité d'émission gamma de l'$^{237}U^*$ pour un état de spin parité $J^\pi = \frac{1}{2}-$ en fonction de l'énergie du neutron incident pour différents modèles de densité de niveaux et un modèle de fonction de force gamma fixé (à gauche), et pour différents modèles de fonction de force et un modèle de densité de niveau fixé (à droite).

A.2.5. Résumé

Nous avons présenté le principe de la méthode de substitution dont la philosophie est de permettre, au moyen d'une réaction de transfert, l'étude de noyaux composés difficiles d'accès par absorption d'un neutron à cause, notamment, de la radiotoxicité de la cible. L'analyse des données expérimentales a pour objectif l'extraction des probabilités de désexcitation des noyaux composés.

L'hypothèse de Bohr stipule que le processus se déroule en deux étapes totalement indépendantes : l'étape de formation du noyau composé après l'échange de particules entre le projectile et la cible, et l'étape de désexcitation du noyau dont la probabilité de désexcitation est mesurée expérimentalement. Dans le cadre de cette hypothèse, la méthode de substitution se base sur l'hypothèse que la section efficace induite par neutron s'exprime comme le produit de la section efficace de formation du noyau composé après absorption d'un neutron (calculée par modèle optique) par la probabilité de désexcitation mesurée.

La formation d'un noyau composé est loin d'être évidente pour certaines réactions de transfert, puisque la détection d'un éjectile ne signe pas forcément la formation d'un noyau composé. La contribution de la formation d'un noyau composé pour ces réactions doit être estimée par calculs.

Les états de spin-parité des noyaux composés formés par réaction induite par neutron et par méthode de substitution ne sont à priori pas les mêmes. Or les probabilités de désexcitation sont dépendantes des états de spin-parité, du moins, sur une certaine plage en énergie. Par conséquent, des écarts entre les sections efficaces déterminées par les deux méthodes de mesures peuvent être observés [Bou11]. D'un point de vue théorique, il y a accord entre les probabilités des deux mesures si la distribution de spin est la même ou si les probabilités de désexcitation ne dépendent pas des états de spin-parité : c'est

la limite de Weisskopf-Ewing.

Comme il est actuellement impossible d'estimer la distribution en spin-parité peuplée des noyaux composés formés par réaction de transfert, la validité de la limite de Weisskopf-Ewing, et donc de la méthode de substitution, ne peut être vérifiée qu'à posteriori en comparant les résultats obtenus avec les données induites par neutron (si elles existent).

Le comportement des probabilités de désexcitation en fonction des états de spin-parité du noyau peut être déterminé par des calculs théoriques sur la base du modèle statistique Hauser Feshbach pour lequel le système est considéré à l'équilibre statistique. Ces calculs requièrent la mise en place de modèles de densités de niveaux et de fonctions force gamma ainsi qu'un nombre conséquent de données expérimentales comme les états des niveaux discrets ou les valeurs des paramètres de barrières de fission des noyaux étudiés. Les résultats montrent que les probabilités de désexcitation dépendent fortement des états de spin-parité du noyau. L'approximation de Weisskopf-Ewing semble néanmoins raisonnablement applicable pour des noyaux lourds, à des énergies d'excitation suffisamment élevées et pour une distribution en spin de basses valeurs. Les calculs permettent de conclure des conditions pour lesquelles la méthode de substitution semble valide. Enfin, les calculs théoriques peuvent aussi bénéficier d'un retour d'expérience de mesures avec la méthode de substitution permettant d'accéder à des informations utiles à la validation des ingrédients des modèles.

B. Etat de l'art des expériences de substitution

B.1. Difficultés liées à la mesure de probabilités de désexcitation

Avant de mentionner un certain nombre de mesures réalisées ces dernières années, nous allons évoquer brièvement les difficultés principales liées aux mesures des probabilités de désexcitation. La probabilité de désexcitation d'un noyau composé se mesure selon l'équation A.10. La mesure des éjectiles provenant de la réaction de substitution étudiée est indispensable à la détermination du terme $N_s(E^*)$. Cependant, d'autres réactions peuvent mener à la production d'éjectiles, contaminant ainsi le spectre singles $N_s(E^*)$. Le noyau cible utilisé possède généralement un support en carbone qui peut générer des éjectiles par réaction de transfert. Comme nous le verrons au chapitre D, une mesure indépendante de cette contribution permet de soustraire cette contamination au spectre $N_s(E^*)$.

En revanche, des réactions de transfert entre le faisceau et les noyaux contaminants du noyau cible peuvent mener à une contamination du spectre des éjectiles dont la soustraction est impossible. C'est pourquoi la cible utilisée doit être chimiquement la plus pure possible. Malheureusement il est extrêmement difficile d'éviter la présence de contaminants légers dans la cible comme l'oxygène, qui sont responsables de larges pics caractéristiques dans le spectre des éjectiles mais aussi dans le spectre des coïncidences $N_{c_\gamma}(E^*)$. Les solutions proposées pour limiter ou s'affranchir de la contribution de ces contaminations aux spectres des éjectiles et des coïncidences seront développées au chapitre D.

L'énergie de liaison des noyaux de deutons, tritons et d'^3He sont de 2,2 MeV, 6,2 MeV et 5,5 MeV respectivement. Les projectiles utilisés lors des expériences de substitution sont composés de ces noyaux, et peuvent donc se briser (on parle alors de break-up) et générer une source de contamination de protons et de deutons du spectre des éjectiles.

Enfin, des réactions de fusion-évaporation entre le faisceau et la cible sont également possibles. Dans ce cas, les particules évaporées possèdent une distribution large en énergie et contaminent ainsi le spectre des éjectiles sur une large gamme d'énergie d'excitation du noyau composé.

A ce jour, il n'est pas possible de différencier expérimentalement les éjectiles provenant d'une réaction de substitution de ceux provenant des phénomènes du break-up et de fusion-évaporation du faisceau avec la cible. Par conséquent, il n'est pas possible de soustraire directement ces contributions contaminantes au spectre des éjectiles. Les solutions que nous avons utilisées pour quantifier la contribution de ces formes de contamination

au spectre des éjectiles seront développées au chapitre E. Dans la section suivante, nous allons parlé d'une autre méthode de mesure par réactions de transfert qui permet de s'affranchir de toute forme de contamination du spectre singles $N_s(E^*)$.

B.2. Commentaires sur la méthode ratio

Nous allons introduire ici une variante de réaction de substitution avec laquelle de nombreuses mesures de sections efficaces neutroniques ont été effectuées : il s'agit de la méthode de substitution "ratio" (surrogate ratio method). Cette méthode a été développée par Plettner et al. [Ple05] et est régulièrement appliquée pour la mesure de sections efficaces neutroniques, notamment par le groupe de recherche basé à Livermore [Esc12]. Dans cette méthode, on considère le rapport $R(E^*)$ de deux sections efficaces induites par neutron de deux noyaux différents A et B :

$$R(E^*) = \frac{\sigma_{n\chi}^{A}}{\sigma_{n\chi}^{B}} = \frac{\sigma_n^{CN,A}(E^*).P_\chi^{surro,A}(E^*)}{\sigma_n^{CN,B}(E^*).P_\chi^{surro,B}(E^*)} \tag{B.1}$$

En combinant les équations A.10 et B.1 on obtient :

$$R(E^*) = \frac{\sigma_n^{CN,A}(E^*).N_{c_\chi}^{A}(E^*).N_s^{B}(E^*).\varepsilon_\chi^{B}(E^*)}{\sigma_n^{CN,B}(E^*).N_{c_\chi}^{B}(E^*).N_s^{A}(E^*).\varepsilon_\chi^{A}(E^*)} \tag{B.2}$$

Si les noyaux A et B ont des propriétés physiques similaires au point de considérer que $\sigma_n^{CN,A}(E^*) \simeq \sigma_n^{CN,B}(E^*)$ et que $\varepsilon_\chi^{A}(E^*) \simeq \varepsilon_\chi^{B}(E^*)$, et si les deux réactions sont associées au même couple projectile-éjectile et que les sections efficaces de la réaction de transfert sont similaires, alors le ratio se simplifie selon :

$$R(E^*) = F.\frac{N_{c_\chi}^{A}(E^*)}{N_{c_\chi}^{B}(E^*)} \tag{B.3}$$

Où F est une constante qui peut être déduite à partir du courant du faisceau, de l'épaisseur des cibles et de la durée de l'expérience. A partir de ces approximations, le rapport $R(E^*)$ se mesure expérimentalement. Si de plus, la section efficace $\sigma_{n\chi}^{B}(E^*)$ est connue, alors la section efficace d'intérêt $\sigma_{n\chi}^{A}(E^*)$ s'exprime selon :

$$\sigma_{n\chi}^{A}(E^*) = \sigma_{n\chi}^{B}(E^*).R(E^*) \tag{B.4}$$

Par rapport à la méthode de substitution standard, la méthode ratio ne nécessite pas la mesure du nombre d'éjectiles total $N_s(E^*)$ s'affranchissant ainsi d'une source d'erreurs systématiques. De plus, il a été montré [Esc06] que l'approche de la méthode ratio est moins sensible aux effets du moment angulaire total rendant l'approximation de Weisskopf-Ewing plus applicable. En effet, on rappelle qu'une distribution différente de spin pour une réaction de transfert et pour une réaction induite par neutron peut mener à des écarts significatifs entre les sections efficaces obtenues par ces deux méthodes. Or, des mesures avec la méthode de substitution ratio ont montré dans certains cas que l'effet

de spin-parité sur les sections efficaces induites par neutron obtenues par la méthode ratio est réduit dans une région énergétique où la limite de Weisskopf-Ewing ne s'applique pas (c'est à dire pour les basses énergies d'excitation), par rapport à une mesure effectuée avec la méthode de substitution standard [Esc12].

La méthode ratio possède aussi des inconvénients. Tout d'abord elle requiert l'utilisation de deux cibles de noyaux dont les propriétés physiques sont proches, ce qui limite l'étude de noyaux loins de la vallée de stabilité où la fabrication des cibles devient problématique à cause de la forte radiotoxicité. De plus, les approximations menant à l'équation B.3 introduisent une source d'erreurs supplémentaires difficilement quantifiable. Enfin des mesures avec deux noyaux A et B qui possèdent des valeurs de S_n trop éloignées ont montrées que les résultats s'éloignaient fortement des données neutroniques [Hug12].

Comme la méthode fait intervenir deux cibles, les incertitudes de mesures sont théoriquement doublées par rapport à une mesure réalisée avec la méthode de substitution standard. Or, l'application d'un rapport de grandeurs mesurées dans le cadre de la méthode ratio permet de supprimer certains biais dans certains cas, ou au contraire, engendre d'avantages d'erreurs. Ainsi les sections efficaces extraites par la méthode ratio peuvent être en bon accord, ou en désaccord avec les données neutroniques pour différentes raisons mais qui ne sont actuellement pas toujours précisément définies et comprises, compliquant nettement l'interprétation des résultats. C'est pourquoi les conditions pour lesquelles l'utilisation de la méthode ratio est appropriée ne sont pas toujours très claires bien que de nombreux efforts de compréhension du fonctionnement de la méthode sont fournis par la communauté de chercheurs. Même s'il est bénéfique de poursuivre les recherches avec cette méthode, nous nous concentrons dans ce travail à l'utilisation de la méthode de substitution standard pour laquelle l'interprétation des résultats est plus directe.

B.3. Liste des principales mesures

Une liste exhaustive des mesures ayant été publiées et effectuées par la méthode de substitution jusqu'à l'année 2011 sont présentées en détail (du dispositif expérimental jusqu'aux résultats) dans les références [Esc12, Bou11]. Par conséquent, il serait inutile de détailler dans ce travail de thèse tous les résultats de probabilités de fission et d'émission gamma extraits des expériences passées. Au lieu de cela, nous faisons le choix de développer seulement les expériences qui auront permis :

- De franchir de nouvelles étapes importantes pour la compréhension de la méthode et pour l'interprétation de la physique des résultats obtenus
- De définir le contexte et justifier l'intérêt de la mesure de ce travail de thèse

Parmi les réactions sélectionnées, la grande majorité proviennent de la collaboration du CENBG. Ce choix est motivé pour deux raisons. Tout d'abord, les résultats de ces réactions reflètent la tendance générale observée pour toutes les autres réactions. Ensuite, l'interprétation de chacun des résultats sélectionnés, lorsqu'elle est présentée de manière

chronologique, donne de la cohérence à l'ensemble des expériences effectuées et justifie pleinement la stratégie adoptée pour les mesures qui suivent ou celles qui sont planifiées.

Les premières mesures de probabilités de fission ont été réalisées dans les années 70-80 sur de nombreux isotopes d'actinides allant du Th jusqu'à l'Es [Bri70, Cra70, Cra70a, Bac74a, Bac74b, Gav76, Bri79, Bri80]. Ce type de mesure a ensuite été peu à peu délaissé et ce n'est qu'au début des années 2000 que survint un regain d'intérêt pour la mesure de probabilités de désexcitation utilisant la méthode de substitution. De nombreuses expériences ont permis non seulement de compléter des données de probabilités déjà collectées sur des actinides et de les rendre plus précises, mais aussi d'en apporter de nouvelles pour de nouveaux noyaux. Le tableau B.1 provient de la référence [Esc12] et a été mis à jour. Il rassemble les réactions de substitution étudiées depuis le début des années 2000, associées avec la réaction induite par neutron correspondante.

Seuls les résultats et l'interprétation des résultats de quelque-unes des réactions du tableau sont développés dans les sections qui suivent.

B.4. Sélection de résultats marquants

B.4.1. Réaction $^{232}Th(^{3}He, pf)^{234}Pa \leftrightarrow {}^{233}Pa(n, f)$

B.4.1.1. Motivation

Le succès des mesures des années 70-80 raviva l'intérêt de l'utilisation de cette méthode pour la mesure de sections efficaces de fission méconnues. C'est par exemple le cas du ^{233}Pa pour lequel il n'existait aucune donnée lors de la réalisation de l'expérience. Les détails et les résultats de l'expérience ont été publiés en 2004 [Pet04]. Le ^{233}Pa est un noyau de première importance pour les réacteurs du cycle du combustible $^{232}Th -^{233} U$. En effet la production d'^{233}U résulte de la décroissance β^- du ^{233}Pa ($T_{1/2} = 27$ jours) qui lui, provient de la décroissance β^-du $^{233}Th^*$(généré après capture d'un neutron par le ^{232}Th). La courte période du ^{233}Pa rend compte de sa forte radioactivité et donc des difficultés inhérentes à la mesure directe de sections efficaces pour ce noyau.

B.4.1.2. Résultats et interprétation

L'expérience a eu lieu au Tandem de l'IPN d'Orsay où un faisceau d'^{3}He de 24 MeV a été envoyé sur une cible de ^{232}Th de 100 $\mu g/cm^2$ déposée sur un support carbone de 50 $\mu g/cm^2$. Les éjectiles de la réaction sont détectés par deux télescopes en silicium $\Delta E - E$ (dont le principe est détaillé au chapitre C) à des angles de 90° et de 130° par rapport à l'axe du faisceau. Les fragments de fission sont détectés par un système composé de cellules photovoltaïques, offrant une efficacité géométrique de détection de 48,4%.

La figure B.1 représente les résultats de la section efficace de fission du ^{233}Pa comparés aux données neutroniques de Tovesson et al. [Tov04] et à deux évaluations.

Les résultats de la mesure directe réalisée plus tard en 2004 montrent un bon accord des sections efficaces au seuil de fission. A plus haute énergie du neutron incident, la section efficace par mesure directe est plus faible que celle provenant des données de réactions de transfert, même s'il est difficile d'être catégorique au vu des incertitudes

Réaction correspondante	Gamme E_n (MeV)	Réaction de substitution	Type	Référence
Probabilité de fission P_f				
$^{230}Th(n,f)$	0,5-10	$^{232}Th(^3He,^4He)^{231}Th$	Standard	[Pet04]
$^{230}Th(n,f)$	0,22-25	$^{232}Th(^3He,^4He)^{231}Th$	Ratio	[Gol09]
$^{231}Th(n,f)$	0,36-25	$^{232}Th(^3He,^3He')^{232}Th$	Ratio	[Gol09]
$^{231}Pa(n,f)$	0,5-10	$^{232}Th(^3He,t)^{232}Pa$	Standard	[Pet04]
$^{233}Pa(n,f)$	0,5-10	$^{232}Th(^3He,p)^{234}Pa$	Standard	[Pet04]
$^{233}Pa(n,f)$	11,5-16,5	$^{232}Th(^6Li,^4He)^{234}Pa$	Ratio	[Nay08]
$^{234}Pa(n,f)$	8-14	$^{232}Th(^7Li,^4He)^{235}Pa$	Ratio	[Des14]
$^{236}Np(n,f)$	9,9-22	$^{235}U(^6Li,^4He)^{237}Np$	Ratio	[Des15]
$^{239}Np(n,f)$	10,5-16	$^{238}U(^6Li,^4He)^{240}Np$	Ratio	[Des13]
$^{240}Np(n,f)$	8,5-16	$^{238}U(^7Li,^4He)^{241}Np$	Ratio	[Des13]
$^{233}U(n,f)$	0,4-18	$^{234}U(^4He,^4He)^{234}U$	Ratio	[Les09]
$^{236}U(n,f)$	0-20	$^{238}U(^3He,^4He)^{237}U$	Standard, Ratio	[Lyl07]
$^{237}U(n,f)$	0-13	$^{238}U(d,d)^{238}U$	Ratio	[Ple05]
$^{237}U(n,f)$	0-20	$^{238}U(^4He,^4He)^{238}U$	Ratio	[Bur06]
$^{239}U(n,f)$	0-20	$^{238}U(^{18}O,^{16}O)^{240}U$	Ratio	[Bur11]
$^{237}Np(n,f)$	10-20	$^{238}U(^3He,t)^{238}Np$	Standard, Ratio	[Bas09]
$^{238}Pu(n,f)$	0-20	$^{239}Pu(^4He,^4He)^{239}Pu$	Ratio	[Res11]
$^{241}Am(n,f)$	0-20	$^{243}Am(^3He,^4He)^{242}Am$	Standard	[Kes10]
$^{242}Cm(n,f)$	0-10	$^{243}Am(^3He,t)^{243}Cm$	Standard	[Kes10]
$^{243}Cm(n,f)$	0-3	$^{243}Am(^3He,d)^{244}Cm$	Standard	[Kes10]
Probabilité d'émission gamma P_γ				
$^{155}Gd(n,\gamma)$	0,05-3,0	$^{156}Gd(p,p)^{156}Gd$	Standard, Ratio	[Sci10]
$^{157}Gd(n,\gamma)$	0,05-3,0	$^{158}Gd(p,p)^{158}Gd$	Standard, Ratio	[Sci10]
$^{161}Dy(n,\gamma)$	0,13-0,56	$^{162}Dy(^3He,^3He)^{162}Dy$	Ratio	[Gol10]
$^{170}Yb(n,\gamma)$	0,165-0,405	$^{171}Yb(^3He,^3He)^{171}Yb$	Ratio	[Gol08]
$^{170}Yb(n,\gamma)$	0,225-0,465	$^{172}Yb(^3He,^4He)^{171}Yb$	Ratio	[Gol08]
$^{171}Yb(n,\gamma)$	0,12-0,24	$^{171}Yb(d,p)^{172}Yb$	Ratio	[Hat10]
$^{172}Yb(n,\gamma)$	0-1,0	$^{174}Yb(^3He,^4He)^{173}Yb$	Standard	[Bou12]
$^{175}Lu(n,\gamma)$	0-1,0	$^{174}Yb(^3He,p)^{176}Lu$	Standard	[Bou12]
$^{230}Th(n,\gamma)$	0-0,9	$^{232}Th(^3He,^4He)^{231}Th$	Standard	[Wil12]
$^{232}Th(n,\gamma)$	0-1,25	$^{232}Th(d,p)^{233}Th$	Standard	[Wil12]
$^{231}Pa(n,\gamma)$	0-0,65	$^{232}Th(^3He,t)^{232}Pa$	Standard	[Wil12]
$^{233}Pa(n,\gamma)$	0-1,0	$^{232}Th(^3He,p)^{234}Pa$	Standard	[Boy06]
$^{235}U(n,\gamma)$	0,9-3,3	$^{235}U(d,p)^{236}U$	Ratio	[All09]

Table B.1.: Liste des expériences de mesures des probabilités de désexcitation par fission et par émission gamma depuis le début du siècle. Ce tableau indique également la réaction induite par neutron correspondante, la gamme en énergie du neutron E_n couverte, le type de mesure (standard ou ratio) et la référence de celle-ci.

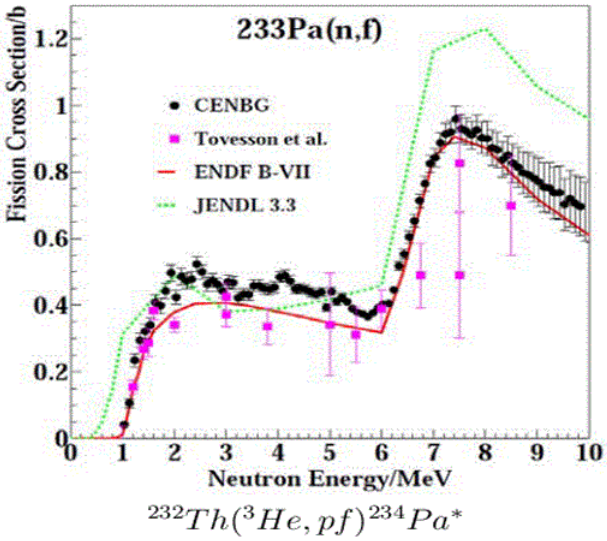


Figure B.1.: Mesure de la section efficace de fission du ^{233}Pa par méthode de substitution ([Pet04]), comparée aux données induites par neutron [Tov04] et aux évaluations ENDF B-VII et JENDL 3.3.

importantes de mesures. L'accord est en revanche excellent au niveau du seuil de fission de première chance. L'étude réalisée par Petit et al. [Pet04] aura finalement permis de mesurer pour la première fois la section efficace de fission pour le ^{233}Pa.

B.4.2. Réaction $^{232}Th(^{3}He, p\gamma)^{234}Pa \leftrightarrow {}^{233}Pa(n, \gamma)$

B.4.2.1. Motivation

Le bon accord général observé entre les sections efficaces de fission obtenues par les méthodes directes et indirectes laissait suggérer à l'époque qu'il n'y avait a priori aucune raison de penser que les sections efficaces de capture ne puissent pas être déterminées par la méthode de substitution. La confiance accordée au fonctionnement de cette méthode pour la mesure de sections efficaces de fission aura ainsi motivé la réalisation d'une mesure de section efficace de capture pour la première fois. Cette mesure a été réalisée pour le ^{233}Pa, dont l'importance a été évoquée à la section précédente. Les détails et les résultats de l'expérience ont été publiés en 2006 [Boy06].

B.4.2.2. Résultats et interprétation

Tout comme la mesure de la section efficace de fission, l'expérience a été effectuée à l'IPN d'Orsay, avec un faisceau d'^{3}He de 24 MeV et une cible de ^{232}Th de 150 $\mu g/cm^2$ déposée sur un support carbone de 40 $\mu g/cm^2$. Le dispositif est composé de quatre télescopes en silicium $\Delta E - E$ pour la détection des éjectiles et de quatre scintillateurs organiques C6D6 couplés à un discriminateur de forme du signal (pulse shape discriminator) qui assurent

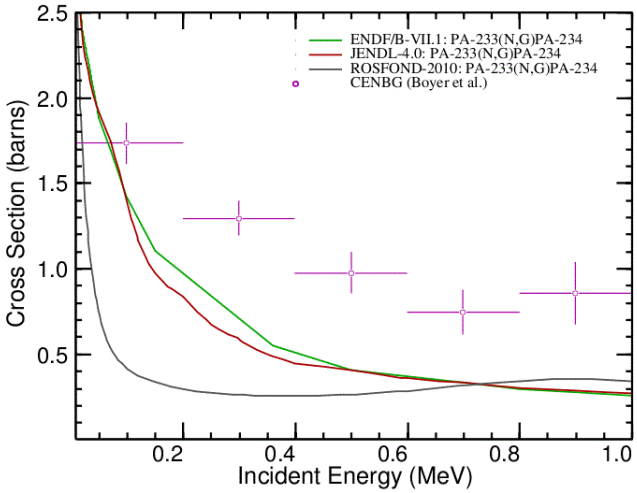


Figure B.2.: Section efficace de capture du ^{233}Pa mesurée par réaction de transfert [Boy06] et comparée aux évaluations ENDF/B-VII.1, JENDL-4.0 et ROSFOND-2010.

la détection des gammas en coïncidence avec les éjectiles tout en s'affranchissant de la contribution des neutrons. Les résultats de la section efficace de capture du ^{233}Pa pour $E_n \in [0 - 1\,MeV]$ sont comparés aux évaluations sur la figure B.2.

Parce qu'il n'existe pas de données neutroniques pour comparer les résultats, on ne peut donc pas affirmer que la méthode de substitution est valide pour la détermination de la section efficace de capture pour ce noyau. Cependant on observe un profond désaccord entre les données expérimentales et les évaluations. Dans cette expérience, la contribution des gammas provenant de la réaction inélastique $(^3He, pn\gamma)$ devant être soustraite aux gammas provenant du noyau composé ^{233}Pa, a été estimée par modélisation. La précision des résultats dépendent donc fortement de la qualité des modèles utilisés. Les écarts existant entre les évaluations suggèrent la nécessité d'obtenir de nouvelles données pour ce noyau.

B.4.3. Réaction $^{243}Am(^3He,^4 Hef)^{242}Am \leftrightarrow {}^{241}Am(n,f)$

B.4.3.1. Motivation

Comme déjà mentionné lors de l'introduction du mémoire, le devenir des déchets radioactifs de l'industrie nucléaire (essentiellement composés d'actinides mineurs) est un enjeux dont l'importance n'a cessé de croître depuis quelques années. Une des manières de répondre à cette problématique passe par l'incinération ou la transmutation des déchêts. Pour que ces techniques soient maitrisées, il est nécessaire d'approfondir notre connaissance sur les sections efficaces de ces noyaux radioactifs. C'est dans ce cadre que des mesures de sections efficaces de fission d'actinides mineurs de courte durée de vie ont été effectuées et publiées en 2010 [Kes10].

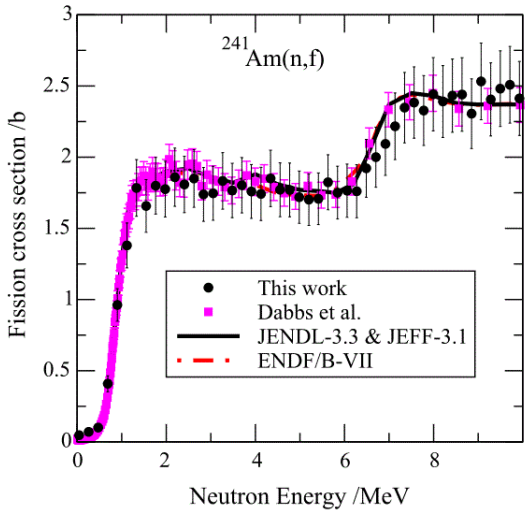


Figure B.3.: Section efficace de fission de l'^{241}Am mesurée par réaction de transfert [Kes10] et comparée à des données neutroniques [Dab83] et aux évaluations ENDF/B-VII.1, JENDL-3.3 et JEFF-3.1.

B.4.3.2. Résultats et interprétation

L'expérience a été effectuée à l'IPN d'Orsay, avec un faisceau d'^{3}He de 24 MeV et une cible d'^{243}Am ($T_{1/2}$ = 7370 ans) de 100 $\mu g/cm^2$ déposée sur un support carbone de 75 $\mu g/cm^2$. Le dispositif expérimental est le même que celui de l'expérience qui a permis la mesure de la section efficace de fission du ^{233}Pa. La figure B.3 représente les résultats de la mesure de la section efficace fission qui est comparée à une mesure directe réalisée par Dabbs et al. [Dab83] et à quelques évaluations.

L'accord entre les données de transfert, les données neutroniques et les évaluations est pratiquement parfait sur toute la gamme en énergie suggérant ainsi que la distribution de spin-parité peuplée par les méthodes directe et indirecte est similaire ou bien que la limite de Weisskopf-Ewing est très rapidement atteinte. Cette étude aura permis de démontrer une nouvelle fois la force de la méthode de substitution dans l'extraction des sections efficaces neutroniques de fission avec une incertitude avoisinant les 10%, ce qui est tout à fait satisfaisant surtout pour des noyaux pour lesquels aucune donnée n'existe du fait de leur forte radioactivité. Des résultats similaires qui aboutissent aux mêmes conclusions ont également été obtenus au cours de cette experience pour le noyau composé $^{243}Cm^*$, alors que les conclusions sont moins évidentes pour le $^{244}Cm^*$ où les mesures induites par neutron existantes, tout comme les données évaluées ne sont pas en accord entre elles.

B.4.4. Réaction $^{156}Gd(p,p'\gamma)^{156}Gd \leftrightarrow {}^{155}Gd(n,\gamma)$

B.4.4.1. Motivation

Le ^{155}Gd n'est pas un noyau d'intérêt pour les réacteurs mais contrairement au ^{233}Pa, il est stable et possède des données neutroniques de capture radiative fiables qui pourront être comparées avec celles issues de la réaction de substitution. Les résultats ont été publiés en 2010 [Sci10].

B.4.4.2. Résultats et interprétation

La mesure a été réalisée au cyclotron au Lawrence Berkeley National Laboratory. La cible de ^{156}Gd, dont l'épaisseur est d'environ 900 $\mu g/cm^2$, est bombardée par des protons de 22 MeV. Les protons de la réaction inélastique sont détectés par un ensemble de télescopes en silicium (STARS) [Les10, Sci08] alors que les gammas de coïncidences sont détectés par le dispositif LiBerACE composé de cinq détecteurs Ge de haute pureté [Duc99]. La détection de certaines transitions gamma E_2 caractéristiques de la bande de rotation du niveau fondamental permet de déduire la probabilité d'émission gamma P_γ qui s'exprime selon :

$$P_\gamma(E^*) = \frac{(1+\alpha_{IC})}{\varepsilon_\gamma . f(E^*)} . \frac{N_{c\gamma}(E^*)}{N_s(E^*)} \tag{B.5}$$

Où N_s et $N_{c\gamma}$ sont le nombre de protons détectés, et le nombre de coïncidences proton-gamma respectivement, f est la fraction de cascades gamma alimentant la transition d'intérêt, et ε_γ et α_{IC} symbolisent les efficacités de détection gamma et le coefficient de conversion interne pour la transition en question. Ce dernier est calculé via le logiciel BRICC V. 2.0B [Kib08]. Le facteur f est, quant à lui, fixé de telle sorte que la condition $P_\gamma(E^* < Sn) = 1$ soit respectée. La figure B.4 représente la section efficace du $^{155}Gd(n,\gamma)$ obtenue en appliquant la méthode de substitution. Les sections efficaces déduites de l'étude des transitions $2^+ \rightarrow 0^+$et $4^+ \rightarrow 2^+$sont similaires mais restent toutefois en profond désaccord avec celle mesurée en voie induite par neutron pour des énergies de neutron incident allant jusqu'à 1 MeV. Cet écart est attribué à la différence de spin entre les noyaux formés par les deux voies de réaction : dans une réaction de transfert où le noyau formé possède un moment angulaire moyen plus élevé que celui induit par absorption d'un neutron, l'émission neutron est fortement limitée parce que le noyau résiduel ^{155}Gd possède peu d'états de haut spin vers lesquels la désexcitation peut s'effectuer. A plus haute énergie d'excitation du noyau composé, l'ouverture des ondes p et d favorise l'émission neutron, induisant une diminution forte de la probabilité d'émission gamma par conservation totale de la probabilité. D'après l'approximation de Weisskopf-Ewing, l'effet de la sensibilité au spin sur la désexcitation du noyau composé devrait diminuer avec l'augmentation de l'énergie d'excitation, entrainant ainsi une convergence des sections efficaces mesurées par réaction de substitution et par voie induite par neutron. La faible statistique des données de transfert au-delà de 1 MeV pour cette réaction empêche de formuler des conclusions claires sur ce point.

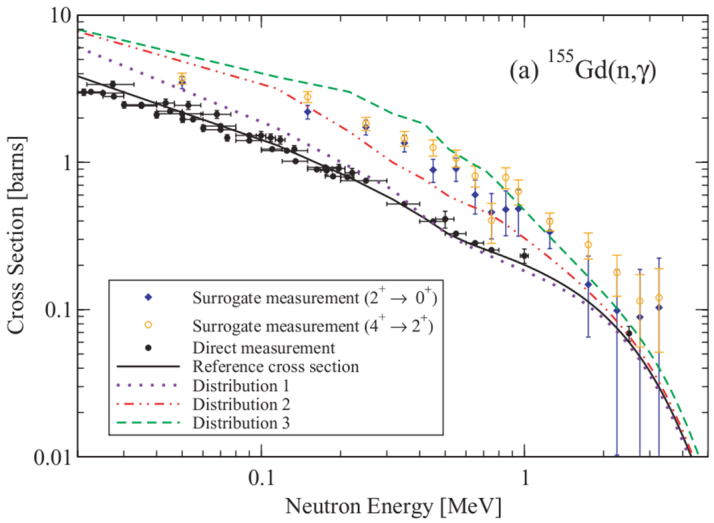


Figure B.4.: Sections efficaces du $^{155}Gd(n,\gamma)$ obtenues par l'analyse des transitions $4^+ \rightarrow 2^+$ et $2^+ \rightarrow 0^+$ par méthode de substitution [Sci10] qui sont comparées aux mesures induites par neutron [Bee88], s'étendant jusqu'à 2,5 MeV [Voi92]. La section efficace de capture de référence est représentée par la ligne noire. Des calculs de sections efficaces obtenus pour trois distributions en spin du noyau composé sont également représentés (explication donnée dans le texte).

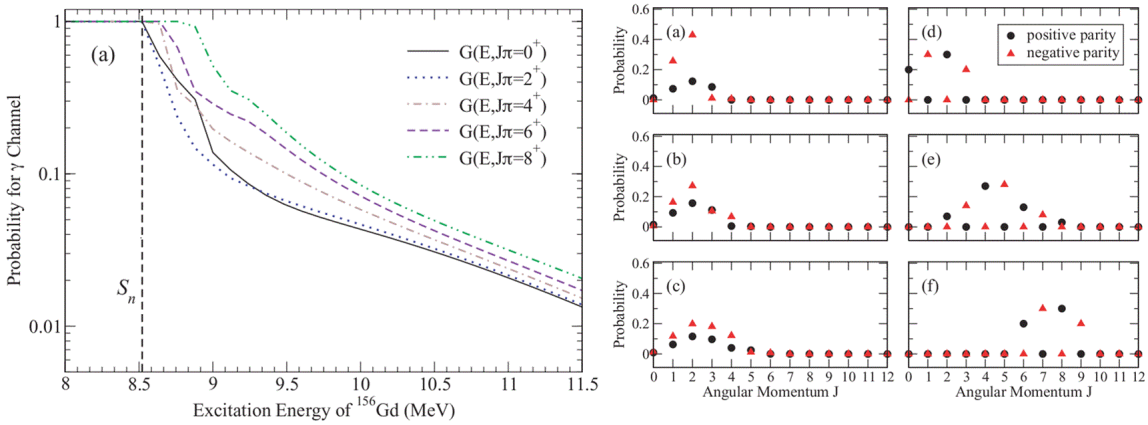


Figure B.5.: A gauche : Probabilités d'émission gamma $G_\gamma^{CN}(E_n, J^\pi)$ calculées pour le $^{156}Gd^*$ pour des parités positives. A droite : Distribution en spin-parité du $^{156}Gd^*$ calculées pour la voie induite par neutron (a) $E_n = 0,1$ MeV, (b) $E_n = 0,5$ MeV et (c) $E_n = 1,5$ MeV. Distribution de spin-parité schématique en voie de transfert (d) Distribution 1, (e) Distribution 2 et (f) Distribution 3 ([Sci10]).

Sur la figure B.4 sont également représentés des calculs Hauser-Feshbach de sections efficaces de capture pour différentes distributions de moment angulaire du noyau composé afin de simuler l'influence de ces dernières sur le comportement de la section efficace de capture. Les formes de ces distributions ainsi que les calculs de probabilité d'émission gamma pour quelques spins sont illustrés sur la figure B.5. En se référant aux calculs Hauser-Feshbach de sections efficaces représentés sur la figure B.4, on observe que seule la distribution 1 composée de bas spins, (correspondant à la distribution d) de la figure B.5), et comparable à celles calculées en voie induite par neutron (distributions a), b) et c) de la figure B.5), permet de reproduire la section efficace de capture induite par neutron à partir de quelques centaines de keV. Notons d'ailleurs que les distributions calculées pour la voie induite par neutron ne dépendent que faiblement de l'énergie du neutron incident.

On constate aussi d'après les figures B.4 et B.5 que les distributions de spin 2 et 3 (correspondant aux distributions (e) et (f) respectivement de la figure B.5) permettent de reproduire raisonnablement la section efficace obtenue par la méthode de substitution. Cette étude permet de conclure qu'il n'est pas possible d'extraire une section efficace neutronique par voie de transfert pour le ^{155}Gd au moins jusqu'à des énergies de neutrons incidents proches de 1 MeV.

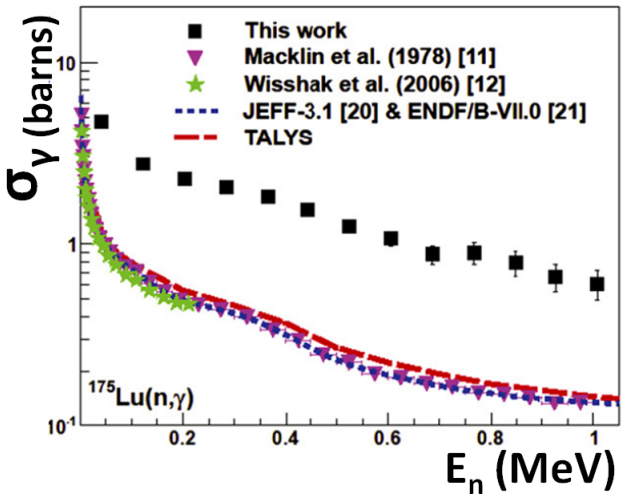


Figure B.6.: Section efficace de capture du ^{175}Lu en fonction de l'énergie du neutron incident. Les symboles noirs représentent les données obtenues avec la méthode de substitution [Bou12] qui sont comparées aux données expérimentales induites par neutron [Mac78, Wis06] et aux évaluations.

B.4.5. Réaction $^{174}Yb(^3He, p\gamma)^{176}Lu \leftrightarrow {}^{175}Lu(n,\gamma)$

B.4.5.1. Motivation

Cette expérience a pour but de mesurer la section efficace de capture par méthode de substitution sur un isotope stable du luthécium pour lequel il existe des données neutroniques fiables nécessaires pour comparer les résultats. La mesure a eu lieu en 2010 avant la publication des résultats des sections efficaces neutronique de capture pour le ^{155}Gd [Sci10]. Les résultats de l'expérience sur le ^{175}Lu ont été publiés en 2012 [Bou12].

B.4.5.2. Résultats et interprétation

La mesure s'est déroulée auprès de l'accélérateur Tandem d'Orsay. Un faisceau d'^3He d'énergie de 24 MeV bombarde une cible de ^{174}Yb de 250 $\mu g/cm^2$ déposée sur un support carbone de 40 $\mu g/cm^2$. Les éjectiles de la réaction de transfert sont détectés à des angles de 108° à 152° par rapport à l'axe du faisceau par deux télescopes en silicium $\Delta E-E$ composés de 32 pistes chacun. La détection des gammas en coïncidence avec les éjectiles est assurée par quatre scintillateurs liquides C6D6. La figure B.6 représente la section efficace de capture du ^{175}Lu en fonction de l'énergie du neutron incident. L'écart important observé entre les sections efficaces obtenues par la méthode de substitution et par réaction induite par neutron est attribué aux mêmes raisons que celles expliquant les résultats de la réaction $^{156}Gd(p,p'\gamma)^{156}Gd$. Des calculs de rapports d'embranchement gamma $G_\gamma^{TALYS}(E^*, J^\pi)$ du $^{176}Lu^*$ avec le code TALYS [Kon] ont été réalisés afin d'extraire, à partir de ceux-ci, des informations directes sur la distribution de spin J^π du noyau com-

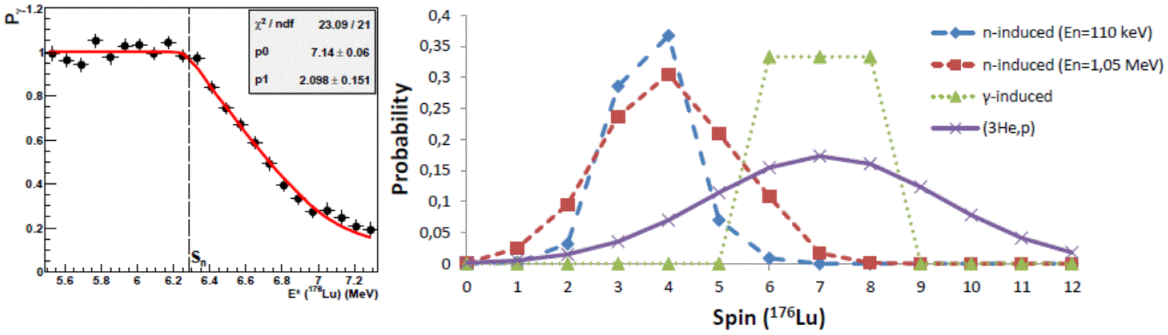


Figure B.7.: Ajustement de la probabilité d'émission gamma du $^{176}Lu^*$ (à gauche) [Bou12]. Distribution de spin peuplée pour la réaction $^{174}Yb(^3He, p\gamma)^{176}Lu$ (en violet) comparée à celles de la voie induite par neutron correspondantes calculées avec TALYS pour deux énergies de neutron différentes (à droite).

posé formé en réaction de transfert. Cette méthode repose sur un ajustement de la probabilité d'émission gamma expérimentale en considérant qu'elle puisse s'exprimer comme une combinaison linéaire des $G_\gamma^{TALYS}(E^*, J^\pi)$ calculés. En effet, d'après l'équation A.12, la probabilité d'émission gamma expérimentale $P_\gamma(E^*)$ peut s'écrire comme :

$$P_\gamma^{surro}(E^*) = \sum_{J^\pi} \left[\frac{1}{2\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(J-\bar{J})^2}{2\sigma^2}} \right] . G_\gamma^{TALYS}(E^*, J^\pi) \tag{B.6}$$

Où la distribution de spin inconnue $F_{surro}^{CN}(E^*, J^\pi)$ est approximée par une gaussienne indépendante de l'énergie d'excitation. Les états de parités positives et négatives du noyau sont supposés équiprobables. Les paramètres ajustables $\bar{J}$ et σ correspondent au spin moyen et à l'écart type de la distribution, respectivement. Les résultats de la procédure d'ajustement sont représentés sur la figure B.7 et la distribution de spin extraite est comparée avec celles calculées par TALYS pour les données induites par neutrons. La probabilité d'émission gamma du $^{176}Lu^*$ est parfaitement reproduite pour une distribution de spin centrée en $\bar{J} = 7,1\,\hbar$ et d'écart type $\sigma = 2,1\,\hbar$. La valeur moyenne de la distribution en spin de la voie induite par neutron est plus petite ($\approx 4\,\hbar$) et ne semble dépendre que faiblement de l'énergie du neutron incident entre 0,1 MeV et 1 MeV environ.

Au final, cette étude aura permis de confirmer l'écart observé entre les sections efficaces de capture mesurées par voie directe et indirecte dans la région des terres rares. De plus, l'exploitation des données mesurées ont permis d'obtenir des informations sur la distribution de spin peuplée par la réaction de transfert.

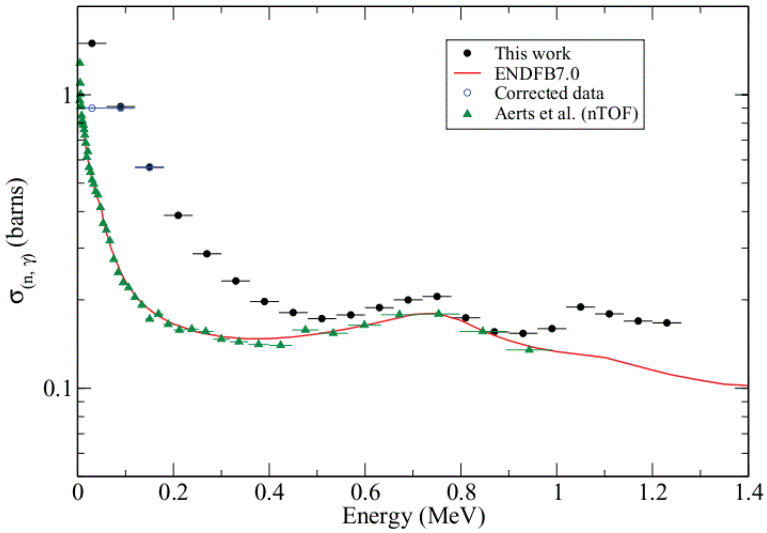


Figure B.8.: Section efficace de capture du ^{232}Th mesurée par réaction de transfert [Wil12] et comparée à des données neutroniques [Aer06] et à l'évaluation ENDF/B-VII.0.

B.4.5.3. Réaction $^{232}Th(d,p\gamma)^{233}Th \leftrightarrow {}^{232}Th(n,\gamma)$

B.4.5.4. Motivation

Cette expérience a pour but de mesurer la section efficace de capture par méthode de substitution sur l'unique isotope stable du thorium pour lequel il existe des données neutroniques fiables nécessaires pour comparer les résultats. C'est la première mesure de section efficace de capture réalisée avec cette méthode sur un actinide pour lequel il existe des données neutroniques fiables. Les résultats ont été publiés en 2012 [Wil12].

B.4.5.5. Résultats et interprétation

L'expérience s'est déroulée au cyclotron d'Oslo. Un faisceau de deuton de 12 MeV bombarde une cible auto-supportée de ^{232}Th de 968 $\mu g/cm^2$. La détection des éjectiles est réalisée par un système en forme d'anneau appelé SiRi (pour Silicon Ring [Gut11]) qui est composé de huit télescopes silicium de huit pistes. Les rayons gamma sont détectés en coïncidence avec les éjectiles par le système CACTUS qui forme un ensemble de détection de 27 scintillateurs inorganiques NaI. Ces éléments du dispositif expérimental présentés ici sont également présents pour la mesure de ce travail de thèse, et seront décrits plus précisément au chapitre C. La figure B.8 représente les résultats de la mesure de la section efficace de capture qui est comparée à une mesure directe réalisée par Aerts et al. [Aer06] et à l'évaluation ENDF-BVII.

L'écart entre les données de Wilson et les données neutroniques est très important à basse énergie puis se stabilise autour d'environ 15% entre 0,5 MeV et 1 MeV d'énergie du neutron incident. Au-delà, l'écart grandissant est principalement causé par la détection

des gammas provenant de la fission du thorium. En effet, le dispositif expérimental utilisé lors de cette expérience ne permet pas de séparer les gammas provenant de la fission des gammas provenant du noyau composé étudié. L'accord entre les données de cette étude à partir d'environ 0,5 MeV est interprété comme la conséquence de l'augmentation de la densité de niveaux du $^{232}Th^*$ avec l'énergie d'excitation. La probabilité de désexcitation par émission neutron est alors moins sensible à la différence de distribution de spin puisque davantage de niveaux du noyau résiduel sont disponibles pour l'émission neutron (limite de Weisskopf-Ewing atteinte). La conclusion de l'étude porte sur la possibilité d'extraire des sections efficaces de capture neutronique par la méthode de substitution pour des actinides, mais seulement à partir d'une certaine énergie, et seulement si le dispositif permet de soustraire correctement la contribution des gammas provenant de la fission du noyau.

Ce travail a le mérite d'exprimer clairement les résultats de la probabilité d'émission gamma sur un actinide connu, cependant d'après notre compréhension de la méthode, il y aurait quelques erreurs d'analyse (que nous allons développer) qui impactent sur la conclusion de l'étude. Il est fondamental lors de l'analyse de discriminer les différentes sources de rayons gammas détectés de ceux qui proviennent du noyau composé étudié. Des neutrons provenant de la réaction $^{232}Th(d,pn\gamma)$ peuvent être capturés par des détecteurs NaI et contaminent de cette façon la mesure de la probabilité d'émission gamma qui est alors surestimée. Une fenêtre en temps de 22 ns est appliquée par Wilson et al. [Wil12] afin de discriminer par temps de vol ces neutrons des gammas de capture. De cette façon, une partie seulement des neutrons d'énergie inférieure à 700 keV sont alors supprimés avec un tel dispositif expérimental et non la totalité comme il est décrit dans l'étude. En effet, les détecteurs NaI ont une certaine résolution en temps, une proportion des neutrons d'énergie proche de 700 keV sont donc détectés (cf section D.1.3.2).

De plus, l'utilisation d'un faisceau de deuton implique l'apparition du phénomène du break-up du deuton, où celui-ci a une certaine probabilité de se casser en un proton et un neutron en approchant le champ coulombien et nucléaire du noyau cible (cf section E.2.1.2). Il en résulte que la détection d'un proton peut ne pas être associée à la formation d'un noyau composé, ce qui a pour conséquence de surestimer le terme $N_s(E^*)$ de l'équation A.10 et donc de sous-estimer la probabilité d'émission gamma. Dans cette étude, il est écrit que si le phénomène de break-up était présent, alors la détection de protons provenant du break-up entrainerait la diminution de la probabilité d'émission gamma, qui ne pourrait alors pas être égale à 1 sous S_n contredisant de cette façon les résultats de l'étude. Or, il est possible de montrer qu'il ne peut pas y avoir de break-up du deuton pour des énergies d'excitation inférieures au S_n, en d'autres termes, la cinématique de réaction montre E.4 qu'aucun proton détecté correspondant à des énergies d'excitation du noyau composé inférieures à S_n ne peut provenir du break-up du deuton. L'argument cité dans ce travail concernant le break-up du deuton ne peut donc pas être utilisé pour prouver l'absence de ce phénomène pour des énergies d'excitation supérieures au S_n.

Enfin, l'émission d'un neutron n'est physiquement possible que pour des énergies d'excitation du noyau composé supérieures au S_n, entrainant une chute de la probabilité d'émission gamma à partir de cette énergie qui était jusqu'alors, la seule voie de

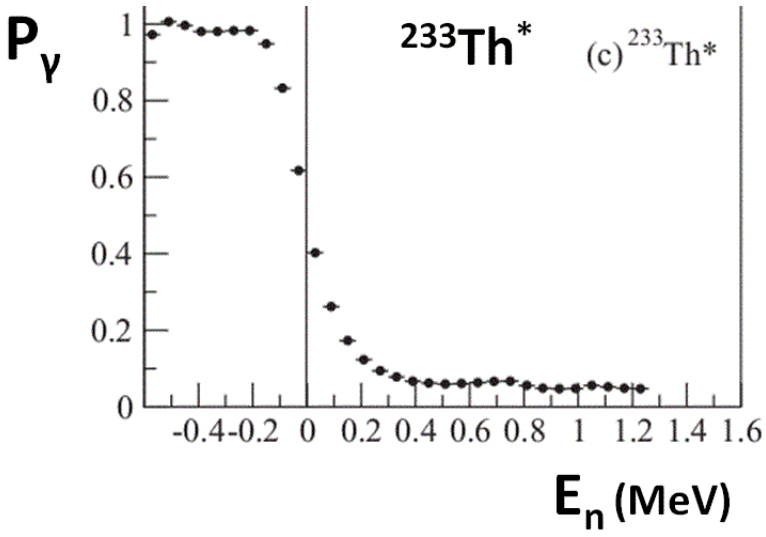


Figure B.9.: Probabilité d'émission gamma du noyau ^{233}Th mesurée par la réaction de transfert $^{232}Th(d,p)$.([Wil12])

désexcitation possible. Au regard de la figure B.9 qui représente la probabilité d'émission gamma du noyau composé ^{233}Th en fonction de l'énergie du neutron incident, la chute caractéristique de l'ouverture de la voie d'émission neutron a lieu environ 200 keV avant S_n, ce qui est physiquement impossible.

Ce problème est probablement dû à une mauvaise calibration de la réaction en énergie et a un impact important sur la section efficace de capture finale. Notons que les différents éléments d'analyse traités dans cette section seront repris et approfondis lors de l'analyse des données de ce travail thèse et pourront ainsi être clarifiés.

B.5. Contexte et objectif de la thèse

La figure B.10 résume de manière très synthétique les éléments qu'ont apportées les différentes mesures de transfert citées dans ce chapitre pour la compréhension de la méthode de substitution. De manière générale, les expériences passées ont montré la possibilité d'extraire une section efficace de fission neutronique grâce à la méthode de substitution. Des mesures effectuées pour des terres rares montrent que les sections efficaces de capture par réaction de substitution ont des valeurs beaucoup plus élevées que celles des réactions induites par neutron. Ces résultats suggèrent que l'émission gamma est plus sensible à la distribution de spin du noyau composé que ne l'est la fission. Or l'expérience de Wilson sur le ^{232}Th montre qu'il est aussi possible (a priori) de déduire une section efficace de capture à partir d'une certaine énergie des neutrons incidents dans la région des actinides. Cependant, quelques erreurs d'analyse indiscutables sèment le doute, et il est nécessaire de procéder à des mesures supplémentaires afin de conclure

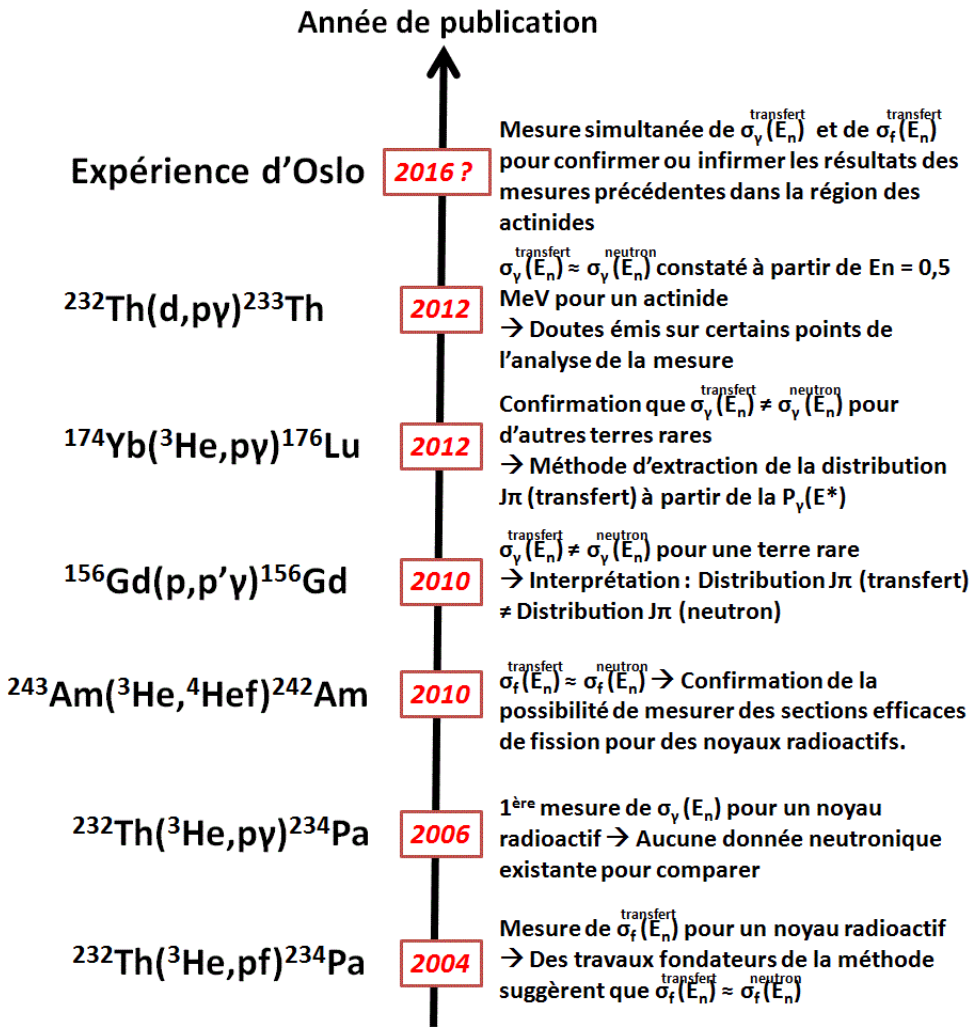


Figure B.10.: Chronologie des principaux résultats provenant de quelques réactions de transfert fondatrices dans la compréhension de la méthode de substitution.

véritablement sur la possibilité ou non d'extraire une section efficace de capture avec cette méthode.

C'est dans ce contexte que s'inscrit la mesure effectuée dans ce travail de thèse. Cette étude a pour ambition de pouvoir lever le doute existant sur la possibilité ou non d'extraire une section efficace de capture pour des actinides. Elle a aussi pour but de déterminer si la fission et l'émission gamma ont des sensibilités différentes vis à vis de la distribution de spin peuplée du noyau composé. Pour répondre à ces objectifs, il est nécessaire de mesurer simultanément les probabilités de fission et d'émission gamma dans un domaine d'énergie où elles sont en compétition, afin d'obtenir des informations à partir du comportement de chacune d'entre elles par rapport aux données induites par neutron servant de référence.

Cette mesure est rendue possible pour la première fois dans le cadre de ce travail de thèse, grâce à un dispositif expérimental adapté (cf chapitre C). L'étude porte sur plusieurs noyaux (dont les données neutroniques de capture et de fission sont bien connus pour la plupart) dans l'espoir de dégager des conclusions plus générales que si elles ne portaient que sur l'étude d'un unique noyau. Dans le travail qui suivra, nous considèrerons que la région énergétique d'étude pour l'émission gamma d'un noyau débute au S_n (un peu avant pour les noyaux fissiles) et s'étend jusqu'à 1-2 MeV au dessus de celui-ci, alors que la région énergétique d'étude pour la fission débute autour de la barrière de fission et s'étend sur une plus large gamme en énergie qui dépend de la cinématique de la réaction étudiée.

C. Mesure expérimentale d'Oslo

C.1. Intérêt et objectif de la mesure

Comme indiqué au chapitre précédent, seules des mesures indépendantes de probabilités de fission ou d'émission gamma ont été entreprises jusqu'à aujourd'hui avec la méthode de substitution.

L'expérience de ce travail de thèse s'est déroulée au cyclotron d'Oslo du 4 au 13 juin 2012. Son principal intérêt est que le dispositif expérimental a permis de mesurer simultanément les probabilités de fission et d'émission gamma de plusieurs actinides pour la première fois en utilisant la méthode de substitution. En effet, le seul moyen de véritablement conclure sur le comportement des probabilités d'émission gamma et de fission est de les mesurer simultanément afin de les comparer dans une plage d'énergie où elles sont en compétition, ce qui constitue l'objectif général de l'étude.

L'expérience s'effectue en deux temps où un faisceau de deuton puis d'^{3}He intéragit avec une cible d'^{238}U. Les réactions de transfert impliquées sont listées aux côtés des réactions induites par neutron correspondantes dans le tableau C.1. En tout, un total de huit réactions entrent en jeu, mais seule une partie d'entre elles pourra être étudiée. Les raisons à cela seront données au chapitre D. Notons que pour certaines de ces huit réactions, les sections efficaces neutroniques associées sont très bien connues.

C.2. Dispositif expérimental

C.2.1. Vue d'ensemble

Le dispositif expérimental est illustré sur la figure C.1. Chaque type de détecteur qui le compose a un rôle spécifique pour la détermination de la probabilité de désexcitation formulée par l'équation A.10. Dans le cadre de notre étude, une cible d'^{238}U a été fabriquée à GSI en Allemagne par évaporation, avec une épaisseur d'environ 260 $\mu g/cm^2$ et une pureté isotopique d'environ 99,5% (0,2% d'^{235}U et d'autres contributions). La cible contient également des traces d'impuretés comme du fer et du silicium. Comme il n'est pas possible de réaliser une cible auto-supportée d'^{238}U de cette épaisseur, un support en carbone naturel de 42 $\mu g/cm^2$ est ajouté afin d'être auto-supportée. Une cible supplémentaire de carbone naturel de 42 $\mu g/cm^2$ est utilisée pour une mesure supplémentaire afin de soustraire la contamination liée au support carbone de la cible d'^{238}U. Ce point sera détaillée lors de l'analyse des données au chapitre D. La cible d'^{238}U a été fabriquée une semaine avant l'expérience et transportée jusqu'au lieu de l'expérience sous vide afin de limiter au maximum son oxydation, même si des corrections seront appliquées pour s'affranchir de cette contamination.

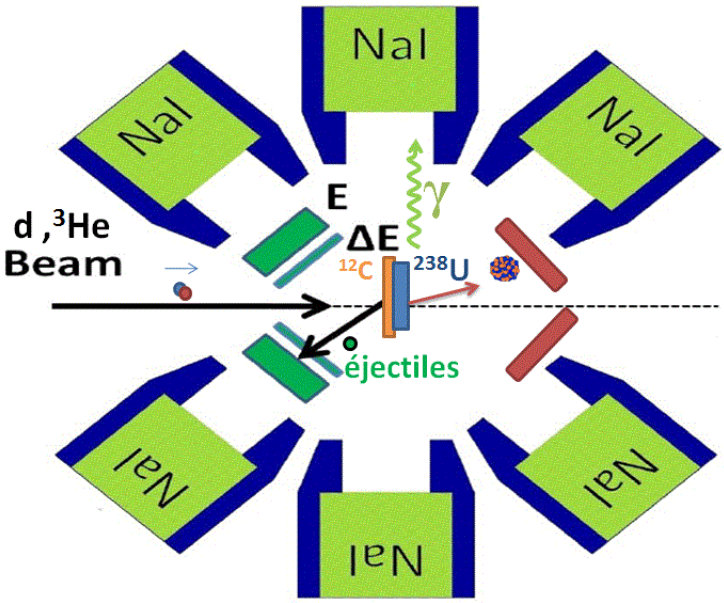




Figure C.1.: Schéma du dispositif expérimental (en haut). Photo de l'ensemble CACTUS [Gut89] (en bas).

Réaction de transfert	Noyau composé	Réaction induite par neutron	$T_{1/2}$
$^{238}U(d,p)$	$^{239}U^*$	$n+^{238}U$	4,5.10^{9}ans
$^{238}U(d,d)$	$^{238}U^*$	$n+^{237}U$	6,75 j
$^{238}U(d,t)$	$^{237}U^*$	$n+^{236}U$	23,4.10^{6}ans
$^{238}U(^3He,p)$	$^{240}Np^*$	$n+^{239}Np$	2,36 j
$^{238}U(^3He,d)$	$^{239}Np^*$	$n+^{238}Np$	2,12 j
$^{238}U(^3He,t)$	$^{238}Np^*$	$n+^{237}Np$	2,1.10^{6}ans
$^{238}U(^3He,^3He)$	$^{238}U^*$	$n+^{237}U$	6,75 j
$^{238}U(^3He,^4He)$	$^{237}U^*$	$n+^{236}U$	23,4.10^{6}ans

Table C.1.: Liste des réactions de transfert impliquées lors de l'expérience d'Oslo et des réactions induites par neutrons correspondantes. La période des noyaux cibles nécessaires aux mesures neutroniques est donnée dans la dernière colonne.

Un faisceau de deutons ou d'^3He est envoyé sur la cible et interagit avec les noyaux d'^{238}U. Les réactions d'intérêt sont celles où un transfert de particules entre le faisceau et la cible a lieu. Les éjectiles provenant de la réaction de transfert sont détectés par des télescopes en silicium aux angles arrière par rapport au faisceau, et permettent de déduire le spectre des singles $N_s(E^*)$. Les rayons gammas émis par le noyau composé étudié sont détectés en coïncidence avec les éjectiles par un ensemble de 27 scintillateurs NaI, alors que les fragments de fission sont quant à eux détectés aux angles avant par 4 PPACs (Parallel Plate Avalanche Counters). Le spectre des coïncidences $N_{c_\chi}(E^*)$ peut être extrait de ces mesures. Nous allons maintenant décrire plus en détail chacun de ces points.

C.2.2. Les faisceaux

Le cyclotron d'Oslo a fournit un faisceau de deuton de 4 nAe avec une fréquence de 23,65 MHz et un faisceau d'^3He d'une intensité de 0,8 nAe pulsé à 24,39 MHz. Les énergies des deux faisceaux doivent être fixées en considérant deux éléments. Tout d'abord pour qu'une réaction de transfert ait lieu, l'énergie du faisceau doit être de l'ordre de la barrière coulombienne entre les particules du faisceau et la cible. Pour la réaction entre le faisceau de deuton et la cible d'^{238}U, la barrière coulombienne est d'environ 13 MeV alors qu'avec la réaction impliquant le faisceau d'^3He, elle est d'environ 24 MeV. L'énergie du faisceau doit aussi être choisie pour favoriser la section efficace de transfert par rapport à la section efficace de fusion évaporation. Dans ce cas si l'énergie du faisceau est plus élevée que la barrière coulombienne, elle ne doit pas l'être trop par rapport à celle-ci.

Aussi, Gavron et al. [Gav76] ont montré que les probabilités de fission mesurées pour des mêmes noyaux, mais obtenus par deux voies de réactions différentes ($(^3He,d)$ et $(^3He,t)$) sont pratiquement égales, démontrant ainsi que la contamination due au break-up de l'^3He et du triton peut être négligée. Gavron et al. ont utilisé un faisceau d'^3He de 25 MeV et les détecteurs d'éjectiles étaient placés à 120° par rapport à l'axe du faisceau.

Il est raisonnable de penser que se placer dans des conditions expérimentales similaires permet d'éviter une contamination possible générée par le break-up des noyaux d'^3He et des tritons.

C'est pourquoi pour ces raisons, l'énergie du faisceau d'^3He a été fixée à 24 MeV et les détecteurs d'éjectiles à des angles compris entre 126° et 140° par rapport à l'axe du faisceau. L'énergie du faisceau de deuton a été fixée à 15 MeV ce qui représente la limite maximale que peut fournir le cyclotron d'Oslo pour ce faisceau. Le phénomène du break-up du deuton ne peut être contourné et aura des conséquences sur les résultats des mesures comme nous le verrons ultérieurement.

C.2.3. Détection des particules chargées

C.2.3.1. L'interaction particules chargées-matière

Les particules légères et les fragments de fission détectés par le télescope SiRi et par les PPACs, respectivement, interagissent par des processus électromagnétiques avec la matière du détecteur en question. Au cours de collisions inélastiques produites entre la particule incidente et les électrons des atomes du détecteur, l'énergie perdue par la particule est transférée à l'atome causant l'excitation ou l'ionisation de ce dernier. L'énergie transmise à l'atome lors d'une collision représente une proportion très faible de l'énergie initiale de la particule incidente mais la matière est suffisamment dense pour produire un grand nombre de collisions et une épaisseur de matière de quelques millimètres suffit souvent à arrêter des particules chargés de plusieurs MeV d'énergie.

C.2.3.2. Détection des particules légères par les télescopes SiRi

Principe de fonctionnement Les télescopes SiRi sont des semi-conducteurs cristallins de silicium dont les niveaux des couches atomiques externes sont structurées en configuration de bandes. La figure C.2 illustre cette structure composée d'une bande de valence, d'une bande "interdite" et d'une bande de conduction. Une particule chargée incidente peut exciter un électron de valence vers un état de la bande de conduction générant ainsi un trou à la place de l'électron. Un électron de valence voisin peut alors combler ce trou en générant un autre et ainsi de suite. Comme un trou peut être vu comme une charge positive, le déplacement de celui-ci et de l'électron à travers le réseau cristallin crée de cette façon un courant électrique.

Il existe des semi-conducteurs où le nombre de trous dans la bande de valence n'est pas égal au nombre d'électrons dans la bande de conduction. L'atome d'un semi-conducteur silicium est tétravalent. En introduisant une faible quantité d'atomes pentavalent dans le réseau cristallin, on obtient un semi-conducteur dit dopé de type n dont le niveau de l'électron supplémentaire se trouve dans la bande interdite. De la même manière, en introduisant un atome trivalent, on obtient un semi-conducteur de type p qui contient un excédent de trous.

Le fonctionnement des télescopes SiRi est basé sur la formation d'une jonction semi-conductrice entre un matériau dopé de type p et de type n comme l'illustre la figure C.3. La différence de concentration en électrons et en trous entre ces deux matériaux de la

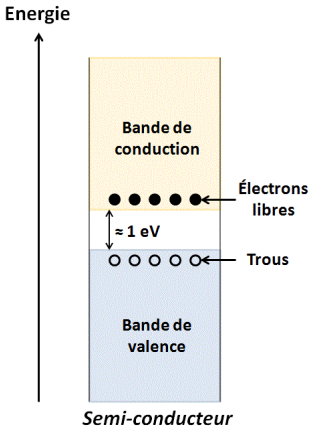


Figure C.2.: Structure en bandes d'énergie d'un semi-conducteur. La largeur de la bande interdite est de l'ordre de l'électron volt.

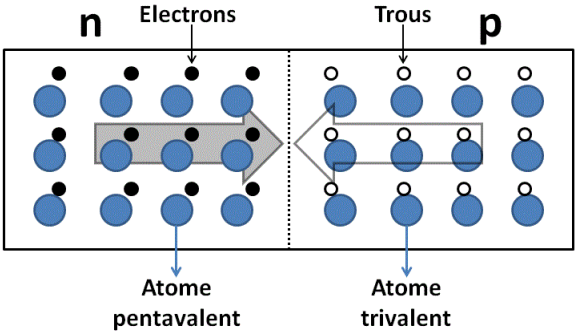


Figure C.3.: Schéma d'une jonction np.

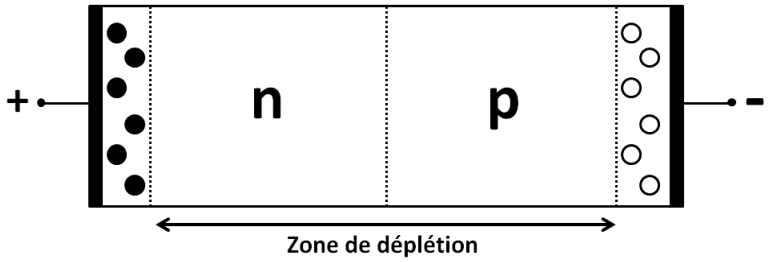


Figure C.4.: Zone de déplétion créée par l'application d'une tension aux bornes de la jonction $n-p$.

jonction entraîne la diffusion des trous vers le matériau n et la diffusion des électrons vers le matériau p. Ce dernier est alors chargé négativement alors que le matériau n est chargé positivement. Ce phénomène crée un champ électrique dont le déplacement des charges induit une zone de déplétion dans laquelle il n'y a pas de déplacement de charges. Une particule chargée qui ionise des atomes dans cette zone de déplétion va libérer des paires électron-trou qui seront ramenés aux contacts électriques (placés dans chacun des bords de la jonction) grâce au champ électrique. Un courant généré proportionnel aux nombre d'ionisations sera détecté.

Malheureusement, le champ électrique généré par la jonction est souvent trop faible pour collecter suffisamment de charges, et la zone de déplétion trop étroite pour arrêter la particule incidente. Cependant il est possible d'agrandir cette zone de déplétion en appliquant une tension négative au matériau p afin d'attirer les trous vers les contacts, et en appliquant une tension positive au matériau n afin d'y attirer les électrons. La figure C.4 illustre ce phénonème. La zone de déplétion doit être suffisamment grande pour arrêter les particules incidentes afin d'en mesurer l'énergie.

Identification de la voie de transfert La détection des éjectiles provenant des réactions de transfert est effectuée par un ensemble de détecteurs en silicium formant un anneau SiRi (Silicon Ring). On parle aussi de télescopes SiRi dont une représentation est donnée à la figure C.5. Ce dispositif est composé de huit télescopes constitués d'un détecteur $\triangle E$ de $130\,\mu m$ segmenté en huit pistes couvrant des angles de détection de 126° à 140° par pas de 2° par rapport à l'axe du faisceau, et d'un détecteur E de $1550\,\mu m$ comme l'illustre la figure C.6. En tout, le système SiRi est composé de huit pistes pour huit télescopes, soit 64 pistes. Le choix de placement des télescopes aux angles arrière par rapport au faisceau a été motivé pour trois raisons. La première est pour éviter la saturation des télescopes qui serait causée par la détection du faisceau diffusé élastiquement. Ensuite, et comme nous le verrons au chapitre D, la contribution des réactions contaminantes de noyaux légers présents dans la cible au spectre des éjectiles $N_s(E^*)$ se situera à des énergies d'excitation du noyau composé d'autant plus élevées que les angles de détection de l'éjectile sont élevés. La détection des éjectiles aux angles arrières permet ainsi de limiter l'impact de la contamination des spectres pour des basses énergies d'excitation du noyau composé. Enfin le placement des télescopes aux angles arrières limitent forte-

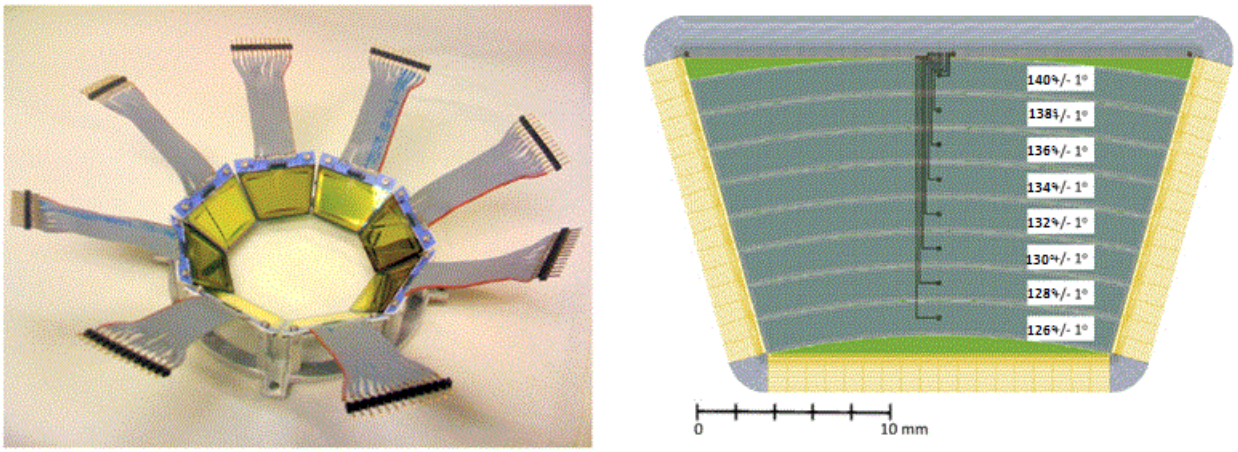


Figure C.5.: Détecteur SiRi avec connexions électroniques (à gauche). Vue schématique d'un télescope de SiRi avec les huit pistes situées à des angles de 126° à 140° par rapport à l'axe du faisceau (à droite).

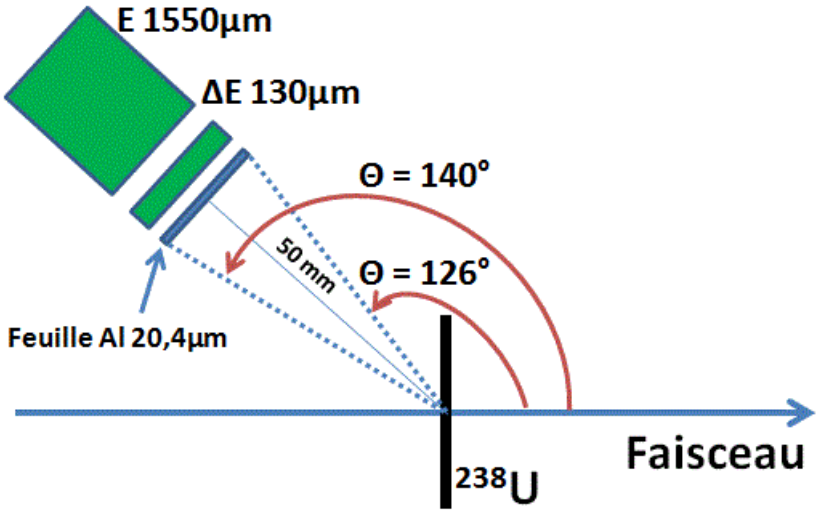


Figure C.6.: Illustration du positionnement d'un télescope $\Delta E - E$ par rapport à la cible et à l'axe du faisceau.

Type d'éjectile	ΔE (MeV)	$\Delta E + E$ (MeV)
p	3,7	16,5
d	4,9	22,3
t	5,7	26,5
^3He	13,4	58,3
^4He	15,0	65,9

Table C.2.: Energies déposées par les différents types d'éjectiles dans les télescopes. La deuxième et troisième colonne donnent respectivement l'énergie minimale et maximale de l'éjectile pouvant être mesurées. Ces valeurs sont valables pour un télescope ayant les épaisseurs $\Delta E = 130\,\mu m$ et $E = 1550\,\mu m$.

ment la détection des particules émises lors du break-up du faisceau qui sont davantage focalisées vers l'avant.

La mesure de l'énergie totale des éjectiles n'est possible que si leur énergie cinétique est suffisamment élevée pour traverser $\triangle E$ mais insuffisante pour traverser entièrement E. Le tableau C.2 recense, pour les différents types d'éjectiles, les valeurs des énergies cinétiques minimales nécessaires pour traverser ΔE, et les énergies maximales admissibles pour être détectés par le télescope. Devant chaque télescope est placée une feuille d'aluminium de $20,4\,\mu m$ d'épaisseur dont la fonction est d'arrêter les fragments de fission venant de la cible et d'éviter ainsi la détérioration des télescopes. Les éjectiles y déposent une énergie ΔE_{Al} qu'il faut aussi prendre en compte. De cette manière, les télescopes permettent de mesurer l'énergie totale de l'éjectile qui vaut alors :

$$E_{ej} = \Delta E_{Al} + \Delta E + E \tag{C.1}$$

L'utilité générale des télescopes est de pouvoir identifier la nature de l'éjectile détecté selon l'énergie déposée par celui-ci dans les parties $\Delta E - E$. Le principe d'identification est basé sur la formule de Bethe et Bloch [Leo87] où l'énergie déposée de l'éjectile dans ΔE est inversement proportionnelle à l'énergie de la particule, et donc à l'énergie résiduelle déposée dans E :

$$\Delta E \propto \frac{AZ^2}{E} \tag{C.2}$$

Où A et Z sont respectivement le nombre de masse et de charge de la particule détectée. La figure C.7 représente un exemple de graphique ΔE en fonction de E pour une piste à 126°, aussi appelé matrice d'identification. Comme le coefficient AZ^2 de l'équation C.2 représente une signature unique pour chaque type de particule, chaque hyperbole caractérise donc un type de particule détectée. Au final les télescopes jouent le rôle d'identification de l'éjectile et mesurent son énergie cinétique ainsi que son angle d'émission. De plus amples détails concernant l'ensemble du système SiRi sont donnés dans la référence [Gut11].

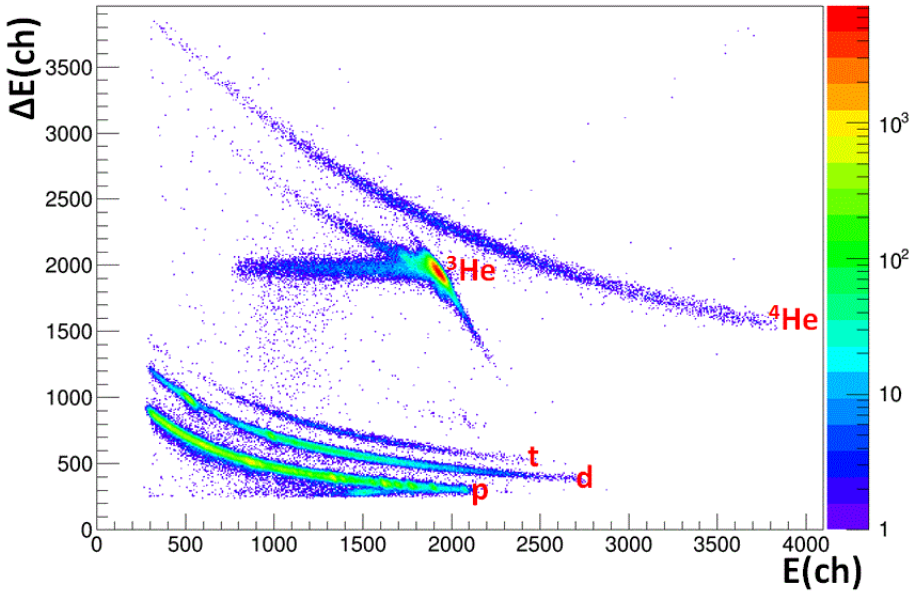


Figure C.7.: Matrice d'identification $\Delta E - E$ pour une piste à 126° mesurée pour la réaction $^{3}He + ^{238}U$ avec un faisceau de 24 MeV. Les différentes hyperboles caractérisent les différents types de particule détectée $(p, d, t, ^{3}He, ^{4}He)$

C.2.3.3. Détection des fragments de fission

Principe de fonctionnement Le dispositif PPAC (Parallel Plate Avalanche Counters) est un détecteur à gaz de type compteur proportionnel. Les paires électron-ion créées par l'interaction d'un fragment de fission induisent aux électrodes un signal électrique proportionnel au nombre de paires créées initialement. Durant leur parcours jusqu'aux électrodes, de nombreuses collisions entre ces paires et des molécules de gaz peuvent se produire. En appliquant un champ électrique suffisamment élevé, les électrons libres sont accélérés et peuvent ioniser les molécules de gaz pour produire de nouvelles paires électron-ion. Les électrons libérés par cette ionisation secondaire sont accélérés par le champ électrique et peuvent à leur tour ioniser les molécules de gaz durant leur parcours jusqu'aux électrodes. Ce phénomène est appelé avalanche de Townsend : il génère une cascade de paires électron-ion dans laquelle chaque électron libre peut potentiellement en générer de nouveau au cours du processus. Si le champ électrique appliqué est constant comme c'est le cas pour les PPACs, alors le nombre d'électrons croit exponentiellement avec la distance jusqu'aux électrodes durant le phénomène d'avalanche :

$$n(x) = n_0 e^{\alpha x} \tag{C.3}$$

Où :

- n_0 est nombre d'électrons primaires
- x est la distance entre électrons primaires-électrodes

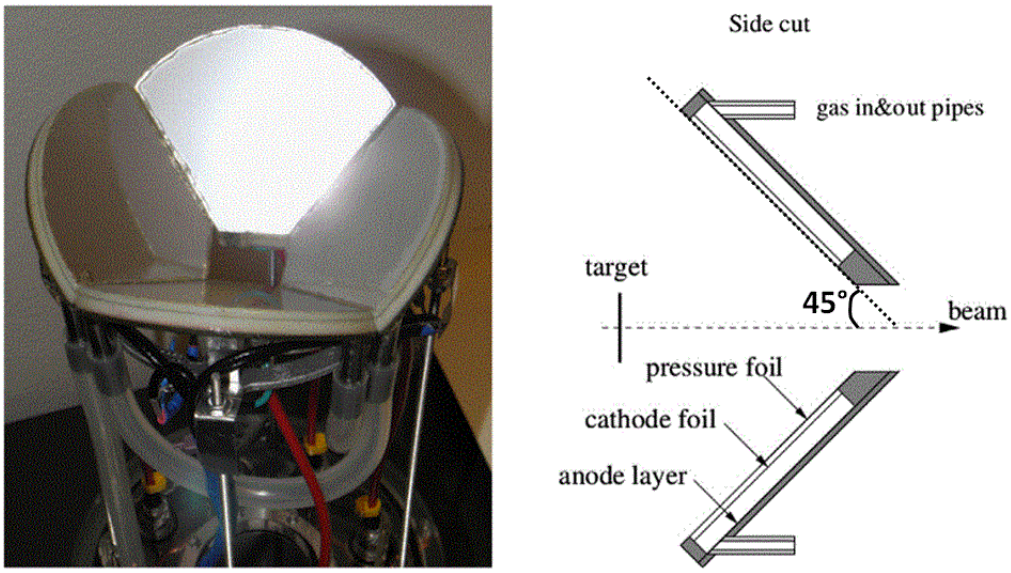


Figure C.8.: Photo du dispositif de détection des fragments de fission PPAC et position par rapport à l'axe du faisceau [Tor14].

- α est le coefficient de Townsend

Le dispositif chargé de la détection des fragments de fission est constitué de 4 PPACs dont une photo et une illustration de ces composants est donnée en figure C.8.

Principales caractéristiques Chaque PPAC est rempli d'isobutane (C_4H_{10}) d'une grande pureté ($>$ 99,95 %) à une basse pression de 5 mbar. Comme une différence de pression, même minime, entre l'interieur d'un PPAC et la chambre de réaction engendrerait un gonflement de la cathode affectant l'efficacité du dispositif, du gaz à la pression de 5 mbar est ajouté entre une feuille de mylar aluminisée située au dessus de la cathode et cette dernière afin d'éviter ce désagrément. Un fragment de fission ionise les molécules du gaz, et les électrons crées sont accélérés durant toute leur traversée jusqu'à l'anode. Une tension de 400 V est appliquée afin de générer une avalanche d'électrons secondaires issus de l'ionisation d'autres molécules du gaz par les électrons primaires. Ce phénomène d'avalanche entraîne la polymérisation de l'isobutane ce qui affecte l'efficacité de détection intrinsèque des PPACs. Un système de contrôle de gaz est mis en place pour remplacer le gaz tout au long de l'expérience afin de maintenir une efficacité constante avec le temps.

Le design du dispositif a été étudié pour couvrir un angle solide le plus large possible afin de capter un maximum de fragments de fission. Les télescopes SiRi étant placés aux angles arrières par rapport au faisceau, les PPACs ne peuvent être placés qu'aux angles avant pour des raisons de contraintes stériques. Puisque le but du détecteur est de déterminer si un évènement de fission a eu lieu, la détection d'un des deux fragments

suffit à remplir cet objectif. De cette façon, l'efficacité géométrique de détection du dispositif s'élève à environ 40% de 2π.

La résolution en temps des PPACs est de l'ordre de la nanoseconde, ce qui est assez rapide pour permettre la mesure de coïncidences entre les éjectiles et les fragments de fission.

La résolution en énergie des PPACs est d'environ 20% [Kno89]. Le logiciel LISE++ [LISE] permet de calculer la perte d'énergie dans les PPACs de fragments de fission (émis par un actinide comme par exemple l'$^{239}U^*$) dont les énergies cinétiques sont calculées à l'aide du code GEF [GEF]. Ces calculs révèlent qu'au maximum, la différence de perte d'énergie entre un fragment lourd et léger ne dépassent pas 7%, ce qui est bien inférieur à la résolution en énergie d'un PPAC. Ainsi, les PPACs n'apportent malheureusement pas d'information sur l'énergie déposée par les fragments, ce qui n'est cependant pas handicapant dans une expérience de mesure comme celle-ci, où l'objectif se limite juste au comptage de fragments de fission. Par contre, les PPACs de notre dispositif ne sont pas sensibles à la position de l'impact du fragment, rendant impossible la mesure de distribution angulaire des fragments et introduisant donc une erreur systématique importante dans la détermination de l'efficacité de détection. Ce point sera détaillé au chapitre D.

Enfin, le véritable avantage de ce dispositif qui justifie son utilisation est son insensibilité à la détection des autres particules de la réaction telles que les éjectiles, les projectiles diffusés, les électrons et les gammas. De plus, et au contraire des détecteurs solides, il n'y a pas de risque d'altération des performances des PPACs durant l'expérience puisque les fragments ne les dégradent pas, grâce au système de circulation du gaz. Davantage de détails concernant l'ensemble de détection des fragments de fission sont donnés en référence [Tor14].

C.2.4. Détection des rayons gammas

C.2.4.1. L'interaction photon-matière

Les photons détectés par les NaI du dispositif expérimental interagissent selon trois modes principaux : l'effet photoélectrique, la diffusion compton et la création de paire. La figure C.9 illustre le principe de ces trois processus d'interaction.

L'effet photoélectrique Ce phénomène implique l'absorption d'un photon par un électron initialement lié à un atome, qui se retrouve alors éjecté de ce dernier. L'énergie de l'électron éjecté E_{e^-} est donnée par :

$$E_{e-} = h\upsilon - E^{e^-}_{liaison} \tag{C.4}$$

Où $h\nu$ est l'énergie du photon incident et $E^{e^-}_{liaison}$ est l'énergie de liaison de l'électron. Dans ce processus, l'énergie incidente est totalement transmise à l'électron.

La diffusion compton Lorsque l'énergie du gamma incident est supérieure à quelques centaines de keV, il arrive fréquemment que l'énergie du photon soit seulement partielle-

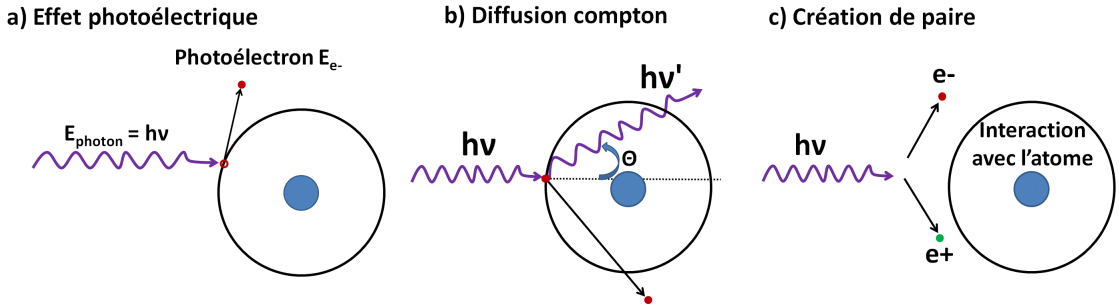


Figure C.9.: Processus principaux de l'interaction photon-matière. a) L'effet photoélectrique, b) la diffusion compton, c) la création de paire.

ment transmise à l'électron : c'est la diffusion compton. L'énergie $h\upsilon'$ s'exprime en fonction de l'énergie $h\nu$ du photon incident et de l'angle de diffusion θ selon :

$$h\upsilon' = \frac{h\upsilon}{1 + \frac{h\upsilon}{m_e c^2}(1 - cos\theta)} \tag{C.5}$$

Où m_e est la masse de l'électron. Le photon diffusé, dont l'énergie ne représente plus qu'une fraction du photon incident, peut alors à nouveau intéragir avec d'autres électrons dans toutes les directions possibles. Comme l'angle de diffusion varie, l'énergie détectée représente un large spectre de valeurs, contrairement à l'effet photoélectrique.

La créaction de paire Un photon, lorsqu'il se trouve au voisinage d'un noyau, peut intéragir avec le champ électrique de celui-ci pour se transformer en un couple électron-positron ayant chacun une énergie de masse $E_{e^+_-} = m_{e^+_-}c^2 = 511$ keV. Le processus de créaction de paire ne peut se produire que pour des énergies des gammas supérieures à 1022 keV, et est d'autant plus probable que l'énergie du gamma est élevée. Toute l'énergie au dessus de 1022 keV est transmise à l'électron et au positron sous forme d'énergie cinétique. Une fois le positron ralenti, dans la matière du détecteur, il s'annihile avec un électron pour produire deux photons secondaires de 511 keV émis à 180° l'un de l'autre. Une partie de l'énergie totale du photon incident sera perdue si ces photons secondaires produits sortent du volume du détecteur : on dit alors qu'ils "s'échappent".

C.2.4.2. Scintillateurs inorganiques NaI

Principe de fonctionnement Le dispositif de détection des gammas utilisé est composé d'un scintillateur NaI couplé à un photomultiplicateur, comme l'illustre la figure C.10. Par l'intermédiaire d'un des trois processus décrits précédemment, un gamma incident génère des électrons libres par interaction avec le scintillateur. Les électrons éjectés peuvent à leur tour exciter les molécules du scintillateur. La lumière émise lors de la désexcitation des molécules est de longueur d'onde beaucoup plus grande que celle du gamma incident, elle peut alors intéragir avec la photocathode où elle est convertie en un

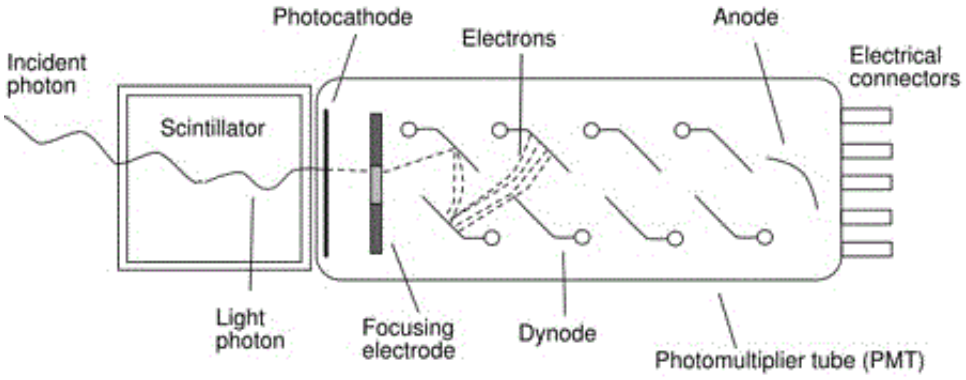


Figure C.10.: Illustration des composants d'un détecteur à scintillation.

faible courant de photoélectrons (par effet photélectrique) qui est ensuite amplifié par un système de multiplication d'électron composé de dynodes. Le signal amplifié est collecté à l'anode puis est transmis au circuit électronique. L'amplitude du signal électronique obtenu est alors proportionnelle à l'énergie déposée par le gamma incident.

Fonction de réponse Le dispositif de détection des photons gamma nommé CACTUS [Gut89] est constitué de 27 scintillateurs inorganiques NaI dopés au thallium. Les scintillateurs ont des dimensions de 13 cm x 13 cm, ils sont placés à 22 cm de distance de la cible et possèdent un collimateur conique en plomb de 10 cm qui limite la détection de gammas diffusés.

Pour la calibration des détecteurs NaI ou pour la détermination de leur efficacité de détection, il est important de considérer les fonctions de réponse des détecteurs qui correspondent à la réponse de l'appareil suite à la détection d'un gamma monoénergétique. Les fonctions de réponse que l'on note $R(E_d, E_i)$ représentent la probabilité qu'a un gamma d'énergie incidente E_i de déposer une énergie E_d dans le détecteur. Un exemple de fonction de réponse pour les NaI utilisés et pour des gammas d'énergie incidente de 4 MeV est donné en figure C.11. On distingue sur ce spectre la contribution des différents processus d'interaction du photon avec le détecteur. Le pic d'annihilation correspondant à la détection de photons de 511 keV est causé par l'échappement d'un photon créé par l'annihilation d'un positron en divers endroit de la géométrie (par exemple dans le collimateur de plomb). La diffusion compton génère un fond correspondant à des transferts partiels de l'énergie du gamma incident. Enfin, l'absorption de l'énergie totale du gamma incident est reconnaissable au pic d'absorption totale situé à l'énergie du gamma incident. Notons qu'une paire de photons de 511 keV issues de l'annihilation d'un positron avec un électron peuvent ne pas interagir avec le détecteur, ce qui se matérialise par les pics de simple et double échappement (situés respectivement à 511 keV et 1022 keV en dessous du pic d'absorption totale).

La résolution d'un NaI à une énergie définie se mesure en déterminant la largeur à mi-hauteur du pic d'absorption totale. Elle est typiquement de l'ordre de 8-9% d'après

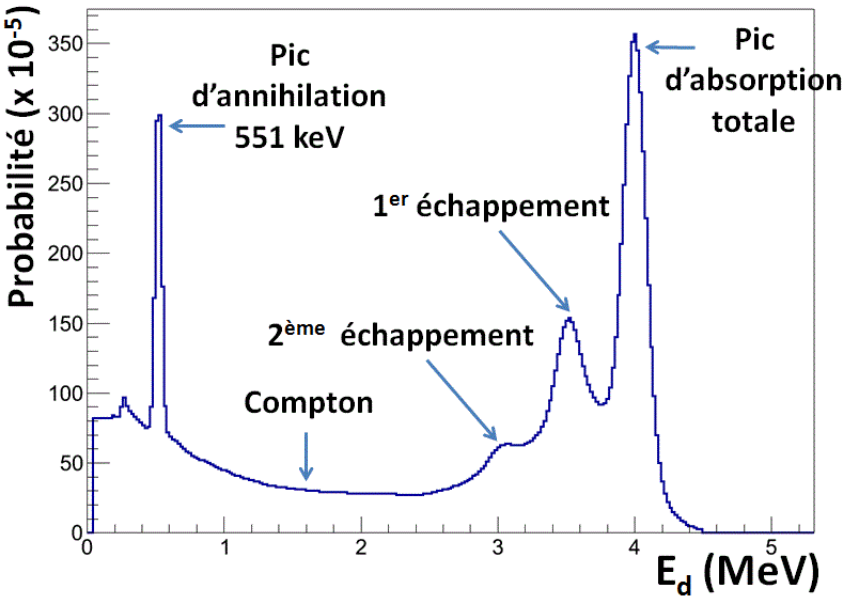


Figure C.11.: Fonction de réponse de l'ensemble des détecteurs de CACTUS pour des gammas d'énergie indicente de 4 MeV.

[Leo87] et sera déterminée plus précisément au chapitre D. Cette résolution n'est pas suffisamment bonne pour permettre de réaliser des études de spectrocopie nucléaire, mais reste amplement suffisante dans le cadre de détermination de probabilités de désexcitation.

Efficacité intrinsèque de détection La figure C.12 représente les coefficients d'atténuation μ des trois processus d'interaction photon-NaI en fonction de l'énergie du gamma incident. Pour des gammas d'énergies inférieures à quelques centaines de keV, l'effet photoélectrique est prédominant. La diffusion compton quant à elle, est l'interaction majoritaire pour des énergies de l'ordre du MeV. Enfin le processus de création de paire devient prépondérant à partir d'énergies gammas proches de 10 MeV. Le coefficient d'atténuation totale de réaction entre un photon et le détecteur est égale à la somme des coefficients d'atténuation de ces trois phénomènes d'interaction et représente l'allure de l'efficacité intrinsèque totale de détection des NaI.

Les coefficients d'atténuation des processus d'interaction photoélectrique, de diffusion compton et de création de paires possèdent une dépendance respective en Z^5, Z et Z^2 selon le numéro atomique des éléments qui composent le détecteur. Par conséquent un scintillateur inorganique de type NaI possède une efficacité de détection intrinsèque beaucoup plus élévée que les scintillateurs organiques. De plus, l'utilisation de détecteurs de taille assez importante limite l'échappement des gammas et favorise la détection de

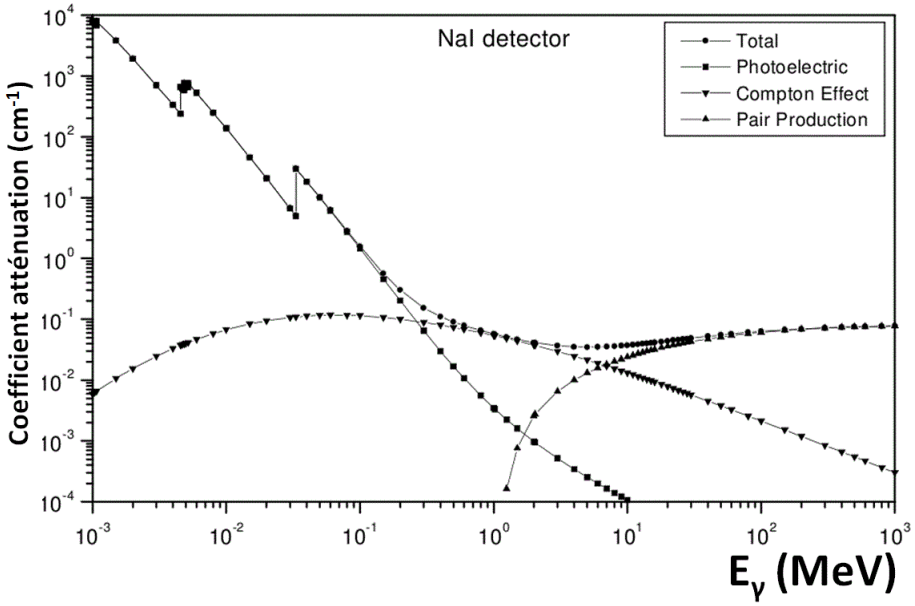


Figure C.12.: Coefficient d'atténuation μ pour les trois processus majoritaires d'interaction d'un photon avec les NaI en fonction de l'énergie du photon incident.

l'énergie totale du photon. C'est pourquoi le choix de l'utilisation des détecteurs NaI semblent particulièrement adapté à notre étude où la précision des mesures de probabilités d'émission gamma nécessite une efficacité de détection intrinsèque élevée.

Notons que pour notre type de mesure, les détecteurs NaI possèdent un inconvénient qu'il est important de mentionner. En effet, les noyaux de sodium et d'iode qui composent le détecteur peuvent capturer des neutrons environnants, générant alors des gammas indésirables qui ne sont pas directement discernables de ceux provenant du noyau excité produit lors de la réaction. Néanmoins, comme nous le verrons au chapitre D, différentes méthodes seront utilisées lors de l'analyse des données pour discriminer les gammas souhaités des gammas de capture des NaI.

C.2.5. Electronique

Les figures C.13 et C.14 représentent schématiquement le système électronique des télescopes, des NaI et des PPACs.

A l'extérieur de la chambre de réaction, les détecteurs ΔE et E sont connectés à des préamplificateurs de type Mesytec MPR-16 dont la sensibilité des signaux à été adaptée en fonction des énergies déposées attendues par les particules légères. Le signal est transmis au module Mesytec STM-16 qui transforme et amplifie le signal. Le discriminateur de type "leading edge" génère un signal logique en temps dès lors que l'impulsion du signal dépasse un certain seuil en énergie. La conversion numérique de l'amplitude maximale des évènements (proportionnelle à l'énergie de la particule) est réalisée par des modules

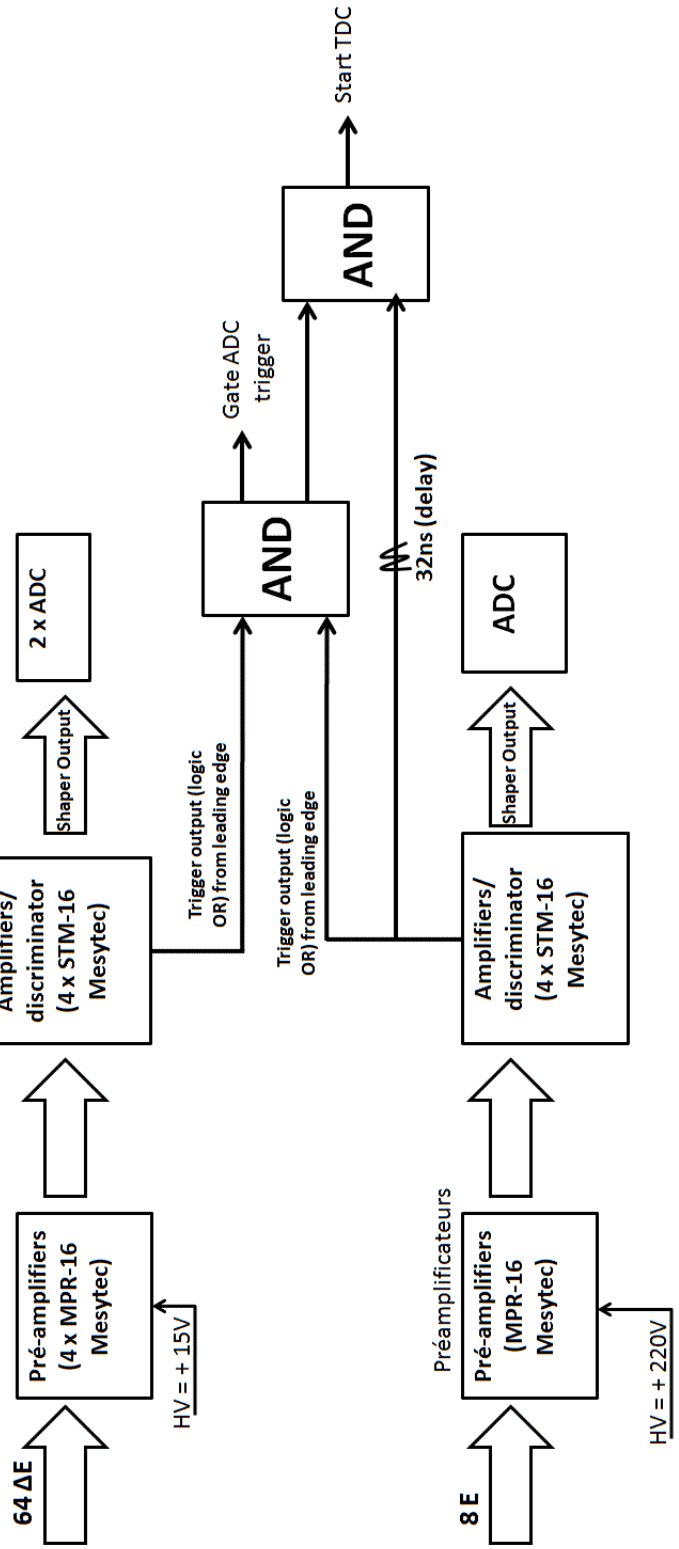


Figure C.13.: Schéma de l'électronique utilisé pour les télescopes $\Delta E - E$ et logique de déclenchement.

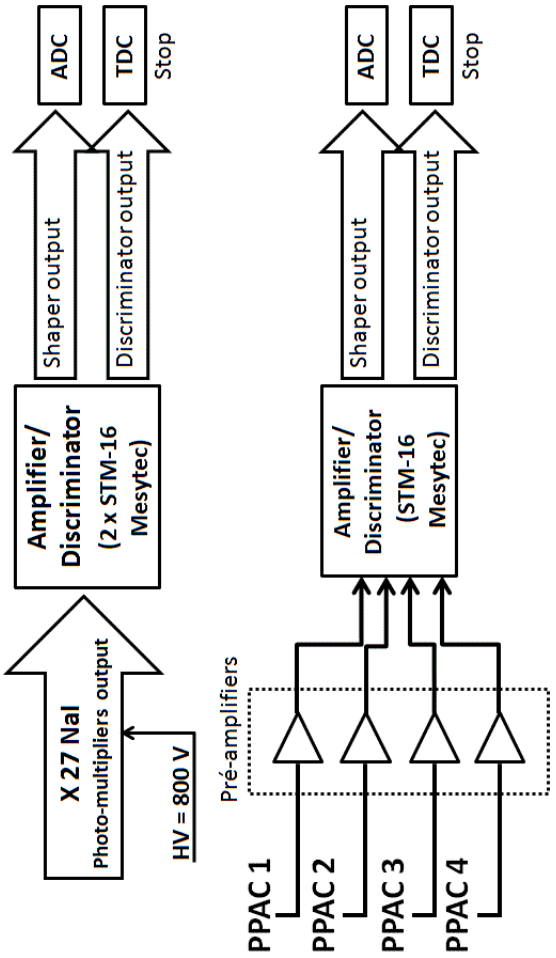


Figure C.14.: Schéma de l'électronique utilisé pour les NaI (en haut) et pour les PPACs (en bas).

ADC de CAEN. Une unité de coïncidence de type "AND" entre les détecteurs ΔE et E permet de ne considérer que les particules qui traversent ΔE et qui sont arrêtées dans E. Enfin le module TDC mesure la différence de temps entre le signal START commun à toutes les voies des télescopes et le signal STOP individuel de chacune des voies de coïncidences généré par la détection d'un gamma ou d'un fragment de fission. Un délai de 32 ns des signaux logiques du discriminateur des télescopes E permet de s'assurer que le START est toujours déclenché par un télescope E.

La sélection des évènements gamma par les NaI et des fragments de fission par les PPACs répond au même principe que celui appliqué à la sélection des éjectiles. Notons toutefois que concernant les PPACs, le seuil de déclenchement en amplitude des fragments de fission est fixé par un discriminateur à fraction constante Ortec CF8000. Ce module permet de s'affranchir de l'effet "walk" (cf chapitre D) responsable de variations génantes de différences de temps mesurées entre deux signaux d'amplitudes différentes.

C.3. Résumé des principales conditions expérimentales

Le tableau C.3 résume les principales conditions expérimentales et caractéristiques des détecteurs utilisés durant l'expérience d'Oslo.

Faisceau	d / ^3He
Energie	15 MeV / 24 MeV
Intensité	4 nAe / 0,8 nAe

Cible	Densité	Support Carbone	Temps de mesure
^{238}U	$260\mu g/cm^2$	$42\mu g/cm^2$	$\backsim 14\,H$ (faisceau deuton) - $\backsim 90\,H$ (faisceau ^3He)
^{12}C	$42\mu g/cm^2$	x	$\backsim 3\,H$ (faisceau deuton)

8 Télescopes $\Delta E - E$ de 8 pistes	
Epaisseur feuille aluminium	$20{,}4\mu m$
EpaisseurΔE	$130\mu m$
Epaisseur E	$1550\mu m$
Distance moyenne cible-ΔE	50 mm
Angles θ couverts	126°→140° (par pas de 2°)
Angles ϕ couverts	0-360°
Efficacité géométrique totale du dispositif	$\cong 8$ % (de 4π)

27 Scintillateurs inorganiques NaI	
Dimensions	13 cm x 13 cm
Distance cible-NaI [Wil12]	22 cm
efficacité totale ($E_\gamma = 1,33$ MeV)	15,2 %

4 PPAC	
Type de gaz	Isobutane C_4H_{10}
Distance anode-cathode	3,5 mm
Pression du gaz	5 mbar
Tension aux bornes	400 V
Angles θ couverts	12°→63°
Angles ϕ couverts	0-360°
Efficacité géométrique totale du dispositif	$\cong 40$ % (de 2π)

Table C.3.: Résumé des principales conditions expérimentales et caractéristiques des détecteurs.

D. Analyse des données

Le chapitre précédent a permis d'évoquer le dispositif expérimental utilisé lors de l'expérience d'Oslo. Ce chapitre est consacré à l'analyse des données expérimentales, dont la finalité est l'extraction des probabilités de fission et d'émission gamma en fonction de l'énergie d'excitation des noyaux étudiés qui, nous le rappelons, s'expriment selon :

$$P_\chi(E^*) = \frac{N_{c_\chi}(E^*)}{N_s(E^*).\varepsilon_\chi(E^*)} \tag{D.1}$$

Où $\chi = f, \gamma$ représente la voie de sortie. Ce chapitre se concentre tout d'abord sur l'analyse complète des données collectées avec le faisceau de deuton. Suivra alors l'analyse des données issues de l'expérience utilisant le faisceau d'^3He pour étudier d'autres noyaux. Dans les deux cas, les étapes menant à la caractérisation des quatres termes de l'équation D.1 ($E^*, N_{c_\chi}, N_s \, et \, \varepsilon_\chi$) seront détaillés. Le chapitre se clôturera par la détermination des probabilités de désexcitation des noyaux étudiés, accompagnée d'une étude approfondie sur les incertitudes de mesure.

D.1. Analyse de la réaction $^{238}U(d,p)$

D.1.1. Calibration des télescopes SiRi

D.1.1.1. Energie d'excitation du noyau composé

La mesure de l'énergie totale de l'éjectile E_{ej} est essentielle pour remonter à l'énergie d'excitation E^* du noyau composé formé au cours de la réaction de transfert, dont les probabilités de désexcitation dépendent. La cinématique des réactions de transfert est régie par deux lois de conservation fondamentales. Tout d'abord la loi de conservation de l'énergie totale du système s'écrit :

$$E_{faisceau} + Q = E_{ej} + E_{rec} + E^* \tag{D.2}$$

Avec :

- $Q = (m_{faisceau} + m_{cible} - m_{ej} - m_{rec}).c^2$ représente la chaleur de la réaction. $m_{faisceau}$, m_{cible}, m_{ej}, m_{rec} et c sont respectivement les masses des particules du faisceau, du noyau cible, de l'éjectile, du noyau de recul (noyau composé formé) et la vitesse de la lumière.

- $E_{faisceau}$ et E_{rec} sont respectivement les énergies cinétiques du faisceau et du noyau de recul.

Ces équations sont basées sur l'hypothèse que l'éjectile émis au cours de la réaction de substitution ne possède pas d'énergie d'excitation. C'est le cas des protons, deutons, tritons et ^3He qui n'ont pas d'états excités. En revanche, le noyau d'^4He possède des états liés dont le premier se situe à 20,21 MeV. Or l'énergie totale d'excitation disponible des réactions de substitution mises en jeu au cours de l'expérience ne dépasse pas l'énergie du premier état excité de l'^4He. C'est pourquoi tous les éjectiles détectés sont dans leur état fondamental.

L'équation de conservation de l'impulsion vectorielle totale du système impose la relation suivante :

$$\overrightarrow{P_{faisceau}} = \overrightarrow{P_{rec}} + \overrightarrow{P_{ej}} \tag{D.3}$$

Où $\overrightarrow{P_{faisceau}}$, $\overrightarrow{P_{recul}}$ et $\overrightarrow{P_{ej}}$ sont respectivement les vecteurs impulsion du faisceau, du noyau de recul et de l'éjectile. D'après l'équation D.3, on réexprime l'impulsion du noyau de recul selon :

$$||\overrightarrow{P_{rec}}||^2 = P_{faisceau}^2 + P_{ej}^2 - 2.P_{faisceau}.P_{ej}.cos(\theta_{ej}) \tag{D.4}$$

Où θ_{ej} est l'angle d'émission de l'éjectile. Il correspond à l'angle formé entre le faisceau incident et la piste du télescope où l'éjectile est détecté. En combinant les équations D.2 et D.4, on peut exprimer l'énergie d'excitation du noyau composé formé lors de la réaction de transfert selon la formule :

$$E^* = E_{faisceau}+Q-E_{ej}-\frac{1}{m_{rec}}\left(m_{faisceau}E_{faisceau} + m_{ej}E_{ej} - 2\sqrt{m_{faisceau}E_{faisceau}m_{ej}E_{ej}}.cos(\theta_{ej})\right) \tag{D.5}$$

L'équation D.5 montre bien que la mesure de l'énergie et de l'angle de l'éjectile est essentielle pour fixer l'énergie d'excitation du noyau étudié. De la même façon, on peut exprimer l'énergie de l'éjectile E_{ej} en fonction des autres variables de la cinématique :

$$E_{ej} = \frac{1}{m_{tot}^2}\left[\alpha^{1/2}.cos(\theta_{ej}) + \sqrt{\alpha.cos^2(\theta_{ej}) + m_{tot}.(E_{faisceau}(m_{rec} - m_{fasiceau}) + m_{rec}(Q - E^*))}\right]^2 \tag{D.6}$$

Avec :

- $\alpha = m_{faisceau}.E_{faisceau}.m_{ej}$
- $m_{tot} = m_{faisceau} + m_{cible} = m_{ej} + m_{rec}$

L'équation D.6 trouve son utilité pour déterminer les énergies cinétiques des éjectiles issus des réactions de transfert sur des contaminants (comme nous le verrons à la section D.1.1.4), dont les énergies d'excitation des premiers états excités sont connues. Les termes E_{ej} sont ensuite introduits dans l'équation D.5 pour calculer à quelles énergies d'excitation du noyau de recul le spectre singles $N_s(E^*)$ subit une contamination.

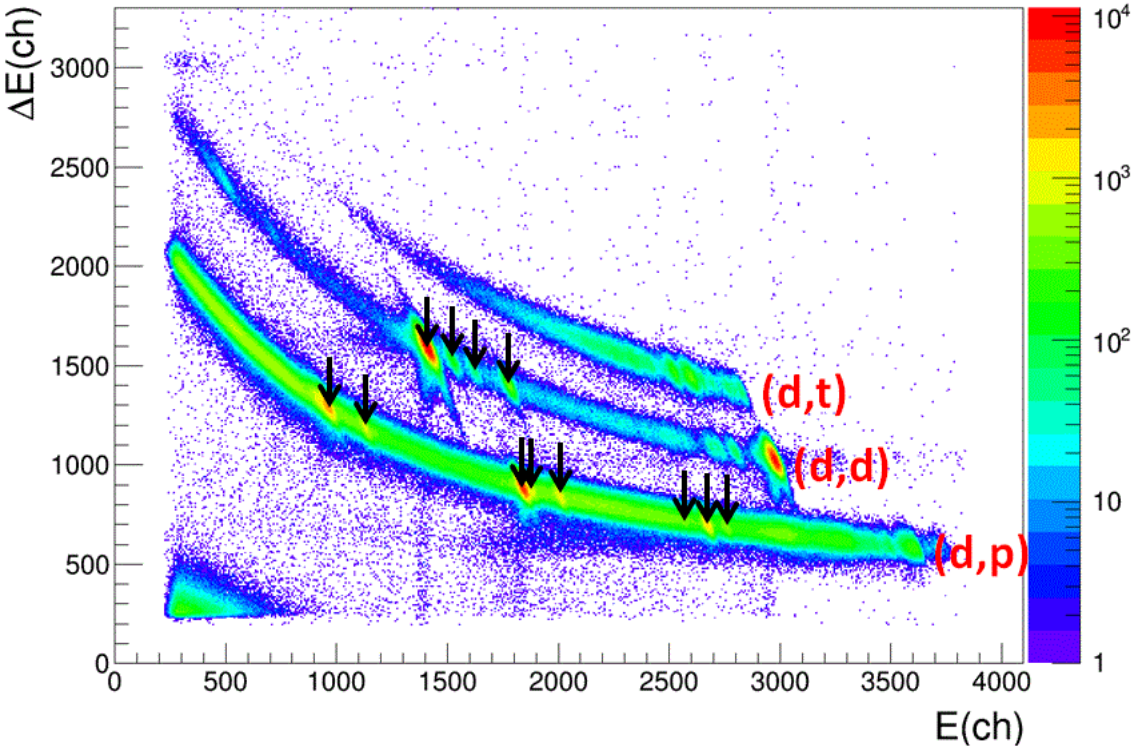


Figure D.1.: Perte d'énergie des éjectiles dans les deux parties du télescope pour une piste ΔE-E (à 126°). Les flèches noires signalent la présence d'une contamination au carbone ou à l'oxygène.

D.1.1.2. Sélection des voies de réaction

Les différents éjectiles issus des réactions de transfert entre le faisceau de deuton et la cible d'^{238}U sont détectés par l'ensemble de télescopes en silicium. La figure D.1 représente la perte d'énergie ΔE de l'éjectile traversant une piste d'un télescope en fonction de l'énergie résiduelle E. Comme décrit dans la section C.2.3.2, cette figure représente une matrice d'identification de l'éjectile. Chaque éjectile détecté témoigne de la formation d'un noyau composé, dont la nature est fixée par celle de l'éjectile d'après la conservation de la masse et de la charge totale du système. Sur la figure D.1, chacune des trois formes hyperboliques caractérise une réaction de transfert qui, de bas en haut, correspondent respectivement aux protons détectés de la réaction $^{238}U(d,p)$, aux deutons détectés de la réaction $^{238}U(d,d')$, et aux tritons détectés de la réaction $^{238}U(d,t)$. Certains points très localisés et marqués par une flèche noire sur la figure D.1 correspondent à des éjectiles provenant de la réaction entre le faisceau et le support en carbone ou avec l'oxygène présent dans la cible. Ainsi, ces éjectiles d'énergie bien définie et à la statistique très élevée correspondent à la formation de noyaux légers dans les premiers états excités, et contaminent la mesure puisqu'il faut pouvoir discriminer ces éjectiles de ceux de même énergie qui proviennent de la réaction avec l'^{238}U.

On rappelle que, comme définit à la section B.5, la région énergétique d'intérêt couvre des énergies d'excitation du noyau composé supérieures au S_n pour l'étude de la probabilité d'émission gamma, et supérieures à la barrière de fission pour l'étude de la probabilité de fission. Or pour la voie (d,t), l'énergie du faisceau utilisée n'est pas assez haute pour permettre de former des noyaux d'$^{237}U^*$ à des énergies suffisamment élevées (à partir de S_n) pour l'étude des probabilités de désexcitation. Sinha et al. [Sin92] ont eu par exemple besoin d'une énergie du faisceau de deuton bien plus élevée que celle utilisée lors de l'expérience d'Oslo (24,85 MeV contre 15 MeV) pour étudier la probabilité de fission de l'$^{237}U^*$ avec la même réaction de transfert. Pour cette raison, cette voie de réaction n'est pas sélectionnée.

Concernant la voie (d,d'), on détecte la présence de deutons qui témoignent de la formation de contaminants. De plus, tout comme la réaction $^{238}U(d,t)$, la réaction $^{238}U(d,d')$ ne permet pas de former des noyaux d'$^{238}U^*$ à des énergies suffisamment élevées pour l'étude des probabilités de désexcitation et par conséquent, l'étude de cette voie est également écartée.

Finalement, seule la réaction $^{238}U(d,p)$ reste exploitable. En effet, le spectre en énergie des éjectiles (et donc des noyaux d'$^{239}U^*$) couvre la région énergétique d'intérêt.

D.1.1.3. Calibration avec une cible de plomb

Maintenant que nous avons sélectionné la voie de réaction, il est indispensable de calibrer les télescopes SiRi afin de déduire l'énergie d'excitation du noyau composé d'après l'équation de la conservation de l'énergie et de l'impulsion. Pour cela, une mesure des éjectiles provenant de la réaction entre une cible de ^{208}Pb et un faisceau de deuton a été effectuée. L'utilisation d'une cible de ^{208}Pb a été motivée par plusieurs raisons. D'abord il s'agit d'un noyau doublement magique, donc très stable et facile d'accès. De plus, ces premiers états sont suffisament éloignés pour être discernables dans une représentation ΔE-E donnée par un télescope. Enfin les énergies d'excitation de ces états sont parfaitement connues et l'énergie de l'éjectile détecté se déduit aisément à partir de l'équation D.6. La figure D.2 représente la perte d'énergie des éjectiles dans les deux parties du télescope pour une piste à 126° choisie arbitrairement, suite à la réaction $d+^{208}\,Pb$.

Pour des raisons pratiques, la notation A_x sera utilisée pour évoquer le "xième" état excité d'un noyau cible A. Ainsi on distingue sur cette figure l'état fondamental ($x=0$), et les quatre premiers états excités du ^{209}Pb. Les deuxième et troisième états excités du ^{209}Pb ne sont pas distinguables et ne peuvent donc malheureusement pas être pris en compte lors de la procédure de calibration des télescopes.

La connaissance des énergies d'excitation des états sélectionnés du ^{209}Pb permet de remonter à l'énergie totale des éjectiles E_{ej} d'après l'équation D.6. Or, on rappelle que l'énergie totale de l'éjectile E_{ej} se distribue selon l'équation :

$$E_{ej} = E_{Al} + \Delta E + E \tag{D.7}$$

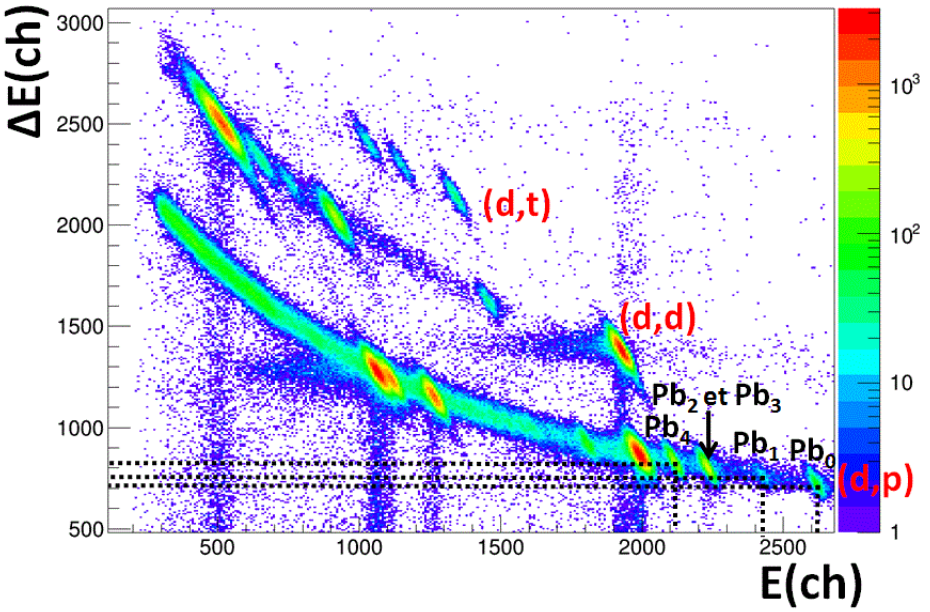


Figure D.2.: Perte d'énergie des éjectiles dans les deux parties du télescope pour une piste ΔE-E (à 126°). Les états d'excitation du ^{209}Pb utilisés pour la calibration des SiRi sont signalés en noir. Les lignes en pointillés symbolisent la position de la valeur moyenne (en canaux) de la perte d'énergie des protons provenant des états Pb_0, Pb_1 et Pb_4 dans les parties E et ΔE de la piste du télescope.

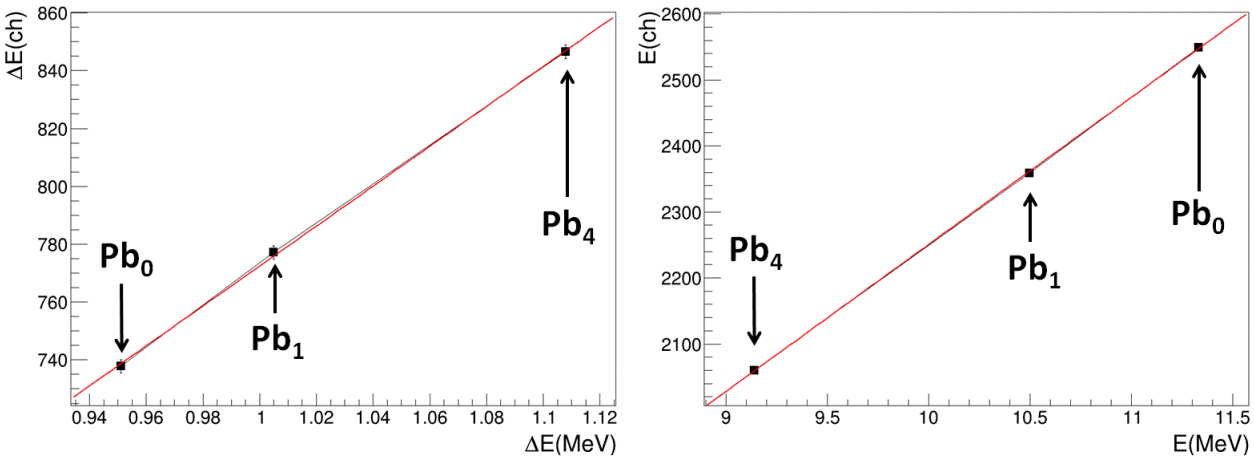


Figure D.3.: Droites de calibration de la perte d'énergie des protons dans les parties ΔE (à gauche) et E (à droite) pour une piste $\Delta E - E$ (à 132°) pour la réaction $^{208}Pb(d,p)$. La courbe rouge correspond à un ajustement linéaire des points de calibration représentés en noir.

LISE++ [LISE] est un logiciel qui peut notamment réaliser des calculs de perte d'énergie de particules qui traversent des matériaux. Il fournit la répartition de l'énergie totale de l'éjectile entre les trois termes du membre de droite de l'équation D.7. Les pertes d'énergie des protons dans ΔE et E étant désormais connues, une courbe de calibration peut être obtenue en représentant la perte d'énergie des protons en MeV dans les deux parties du télescope avec les valeurs obtenues expérimentalement (en ch), résultant de la projection de l'énergie sur l'axe correspondant (figures D.2 et D.3). On peut de cette façon déterminer l'énergie en MeV que dépose chaque proton dans les deux parties du télescope.

Notons que l'énergie du faisceau de 11 MeV a été choisie de sorte que l'énergie des éjectiles de la réaction $^{208}Pb(d,p)$ correspondent (d'après l'équation D.5) à des énergies d'excitation du $^{239}U^*$ autour de S_n. Cette manière de procéder permet de calibrer précisément la réaction $^{238}U(d,p)$ dans la région d'énergie d'intérêt. Une analyse des données de l'expérience a d'abord été réalisée en utilisant les paramètres de calibration extraits de cette méthode.

La figure D.4 représente une partie du spectre singles $N_s(E^*)$ du ^{209}Pb pour une piste à 126° en fonction de l'énergie d'excitation de ce noyau. La valeur de l'énergie d'excitation des premiers états excités est représentée en noir et est comparée à la valeur théorique. Pour le pic le plus intense, les valeurs de Pb_2 et Pb_3 sont données car la résolution σ du dispositif ne permet pas de distinguer ces niveaux. Cette dernière est estimée à l'aide d'un ajustement gaussien du dernier pic et s'élève à environ 40 keV à 2 MeV d'énergie d'excitation. Ces résultats montrent que la réaction $^{208}Pb(d,p)$ a été correctement calibrée pour un faisceau de deutons incident de 11 MeV.

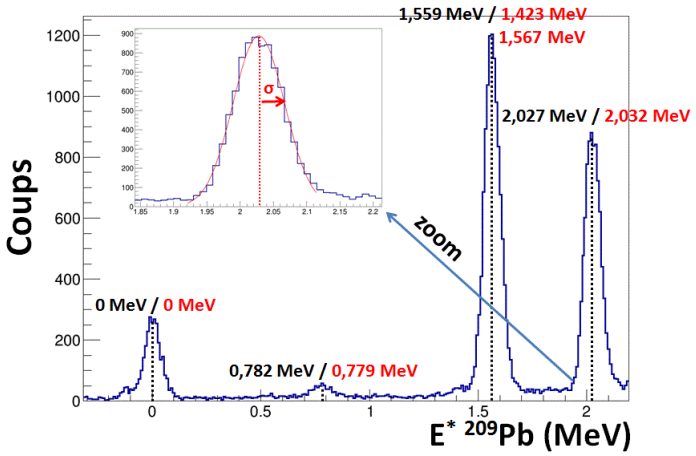


Figure D.4.: Spectre singles $N_s(E^*)$ du ^{209}Pb pour une piste à 126° en fonction de l'énergie d'excitation. La valeur de l'énergie d'excitation des pics expérimentaux (en noir) est comparée à la valeur théorique (en rouge). Un zoom du dernier pic est aussi représenté pour estimer la résolution σ du dispositif à cette énergie à l'aide d'un ajustement gaussien du pic (en rouge).

La figure D.5 représente quant à elle le spectre des coïncidences gammas $N_{c_\gamma}(E^*)$ pour trois pistes (126°, 132° et 140°) en fonction de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$. Le détail de la procédure appliquée pour l'obtention des spectres de coïncidences se situe à la section D.1.3, il s'agit ici simplement de montrer qu'en usant d'arguments physiques, les spectres représentés en figure D.5 ne peuvent pas avoir été calibrés correctement avec la méthode décrite précédemment.

En effet, comme décrit au chapitre A, l'émission gamma est l'unique voie de désexcitation de l'$^{239}U^*$ pour des énergies d'excitation inférieures au S_n, alors que l'émission neutron intervient au-delà de cette énergie. C'est pourquoi une chute forte du nombre de gammas émis par l'$^{239}U^*$ n'est attendue qu'à partir de l'ouverture de la voie de désexcitation par émission neutron, c'est à dire à partir de S_n. Or, la chute forte des spectres de coïncidences gammas de la figure D.5 intervient environ 100 keV avant S_n, donc avant le seuil minimal d'émission neutron et ce, pour les trois angles de détection de l'éjectile. Que l'émission neutron soit fortement limitée sur une certaine plage d'énergie au dessus de S_n est physiquement envisageable (si la distribution en spin de la réaction de transfert est centrée sur des valeurs très élevées), mais que l'émission neutron intervienne avant S_n est physiquement impossible. Ce résultat fournit la preuve que la méthode de calibration avec une cible de ^{208}Pb n'a pas fonctionné pour cette réaction, ce qui est surprenant car ce problème n'a jamais été rencontré par le groupe de recherche au cours des précédentes mesures de transfert utilisant cette méthode. Soulignons que différents tests de calibration ont été effectués en utilisant d'autres points identifiables sur la figure D.2 comme l'état fondamental et les deux premiers états excités du ^{207}Pb de la voie de réaction (d,t). Malheureusement, toutes les calibrations ont menées au même résultat. L'analyse des

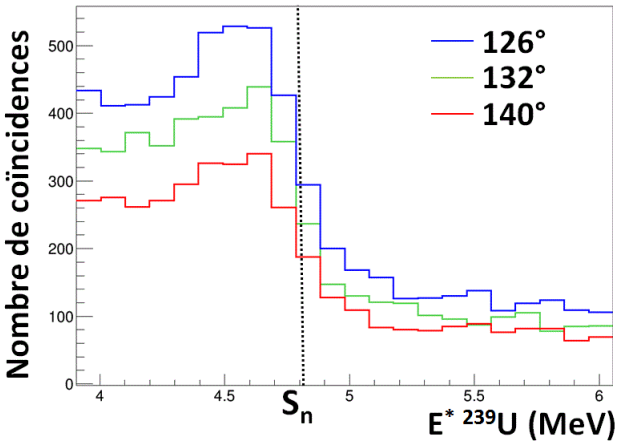


Figure D.5.: Spectres des coïncidences gamma-proton pour trois pistes à différents angles (126°, 132° et 140°) en fonction de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$. Ces spectres ont été obtenus en calibrant la réaction grâce à une cible de ^{208}Pb.

autres pistes de SiRi pour tous les angles nous fait parvenir à la même conclusion : il existe un problème de calibration systématique dont l'impact ne peut pas être accepté tant l'interprétation des résultats dépend d'une calibration en énergie de qualité.

L'origine de ce problème ne peut pas provenir de l'incertitude angulaire $\Delta\theta = \pm 1°$ de détection de l'éjectile puisqu'elle entraînerait alors une erreur de moins de 10 keV sur l'énergie d'excitation du noyau composé, ce qui est très inférieur à l'erreur constatée d'environ 100 keV. En revanche, ce problème peut être expliqué si la définition de l'énergie du faisceau de deuton que fournit le cyclotron est légèrement différente de 15 MeV. Il n'y a malheureusement aucun moyen d'affirmer avec certitude qu'il s'agisse bien de l'explication du problème de calibration rencontré.

D.1.1.4. Contaminants comme points de calibration

Une autre méthode de calibration est d'utiliser directement les contaminants présents dans la cible d'^{238}U grâce aux éjectiles qu'ils génèrent. La figure D.6 reprend la figure D.1 en indiquant les contaminants considérés pour la calibration, ainsi que leur projection. Beaucoup de protons détectés proviennent de la réaction $d+^{12}C \rightarrow^{13} C^*+p$ sur le support en carbone de la cible et signant la formation de noyaux de ^{13}C à l'état fondamental et aux premiers états excités. De même, des protons proviennent de la réaction entre le faisceau et l'oxygène de la cible. Ces éjectiles à l'énergie bien définie jouent le rôle de points de calibration comme pour le cas des premiers états excités du ^{209}Pb. La procédure de calibration expliquée à la section D.1.1.3 est reproduite ici en considérant les cinq états suivants : O_0, C_0, C_1, C_4, C_5. Notons que les états C_2 et C_3 ne sont pas résolus et n'ont pas été pris en compte pour cette raison. Les droites de calibration obtenues pour les deux parties du télescope sont représentées sur la figure D.7.

Contrairement à la calibration avec la cible de ^{208}Pb, la chute forte du spectre des

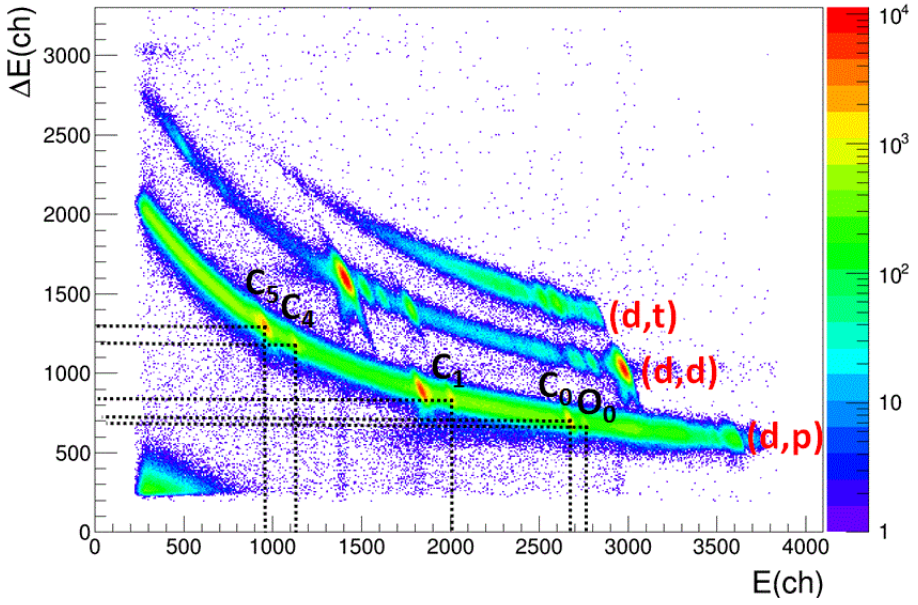


Figure D.6.: Sélection des points contaminants utilisés (en noir) pour la calibration de la voie $^{238}U(d,p)$. Les pointillés indiquent la valeur de la projection sur l'axe correspondant.

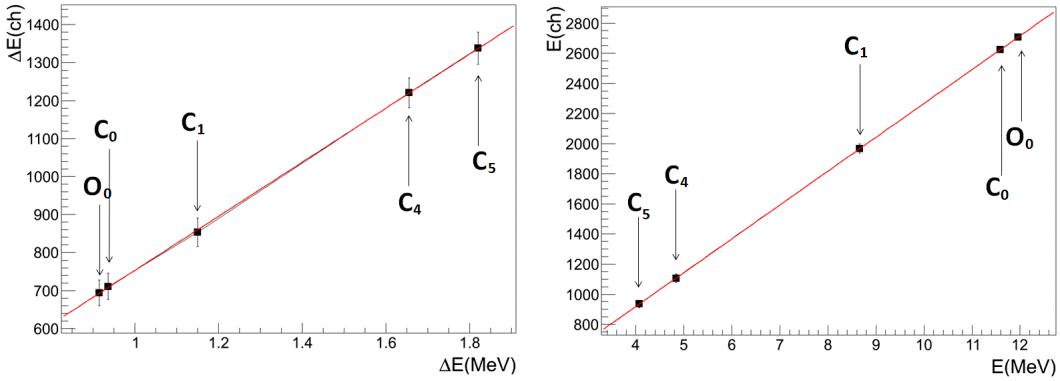


Figure D.7.: Droites de calibration de la perte d'énergie des protons dans les parties ΔE (à gauche) et E (à droite) pour une piste $\Delta E - E$ (à 126°). La courbe rouge correspond à un ajustement linéaire des points de calibration (en noir).

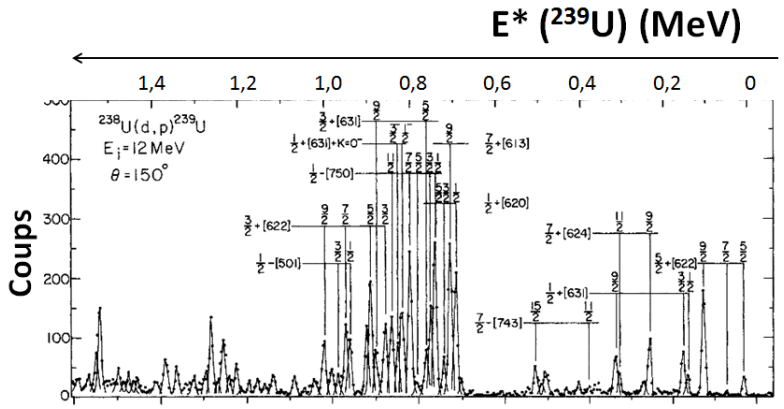


Figure D.8.: Spectre des éjectiles de la réaction $^{238}U(d,p)^{239}U$ mesuré par [Ers78] en fonction de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$ (l'échelle des énergies d'excitation va de droite à gauche).

coïncidences gammas $N_{c_\gamma}(E^*)$ intervient au S_n précisément, ce qui est physiquement acceptable.

Une autre indication de la qualité de cette calibration est donnée par la comparaison avec les données de Erskine [Ers78], qui a mesuré le spectre singles $N_s(E^*)$ de l'$^{239}U^*$ jusqu'à 1,6 MeV d'énergie d'excitation, en utilisant un faisceau de deuton de 12 MeV et en détectant les protons de la réaction de transfert à 150° par rapport à l'axe du faisceau. Grâce à une meilleure résolution du dispositif de mesure que celle de notre expérience, cette étude a permis d'observer de nombreux états dont certaines propriétés, comme l'énergie ou le spin ont été extraits. La figure D.8 représente le spectre $N_s(E^*)$ mesuré par [Ers78] en fonction de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$. L'intensité du signal est proportionnelle à la section efficace différentielle de réaction des états observés. On remarque une structure très marquée entre 0,7 MeV et 1 MeV, centrée à environ 0,8 MeV. Cette structure est également observée pour le spectre des éjectiles obtenu expérimentalement (comme détaillé ultérieurement à la section D.1.2). Les autres structures moins intenses présentes à plus basses et plus hautes énergies sont également observées comme le montre la figure D.9. Ainsi les énergies des états peuplés sont compatibles avec ceux des travaux d'Erskine même si notre résolution en énergie ne permet pas la distinction des états individuels. Cette comparaison rend compte de la bonne qualité de la calibration en énergie de la réaction.

D.1.2. Obtention du spectre singles

D.1.2.1. Spectre des éjectiles

Maintenant que l'étalonnage en énergie a été effectué, il est possible de déduire l'énergie d'excitation d'un noyau $^{239}U^*$ formé à partir de la mesure de l'énergie du proton détecté. La figure D.10 représente le nombre de protons détectés en fonction de l'énergie

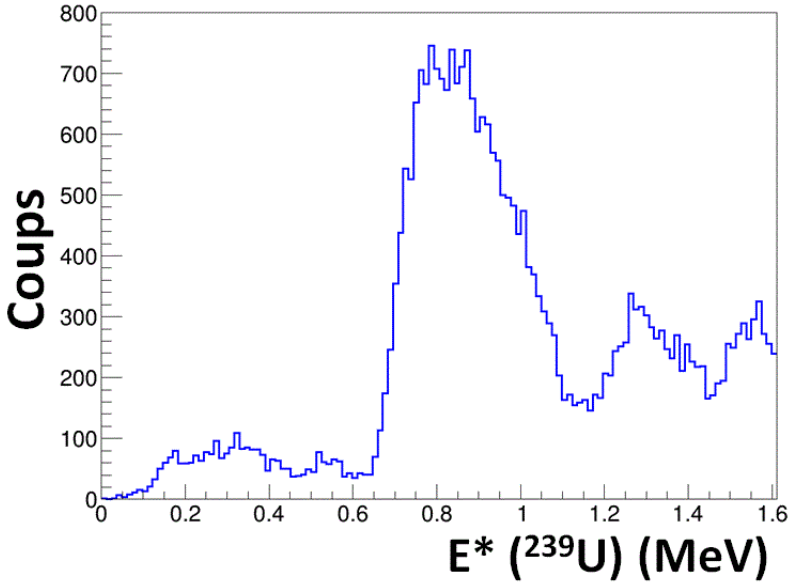


Figure D.9.: Spectre des éjectiles expérimental de la réaction $^{238}U(d,p)^{239}U$ pour une piste à 126° en fonction de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$. Ce spectre peut être comparé à celui obtenu par Erskine (figure D.8) avec une meilleure résolution.

d'excitation de l'$^{239}U^*$ pour une piste à 126°. Cette représentation est appelée "spectre des éjectiles" du noyau concerné et est noté $N_{ej}(E^*)$. Les pics caractéristiques de la détection d'éjectiles provenant de réactions contaminantes ont été assignés en noir sur la figure. Le tableau D.1 montre que l'écart entre les valeurs expérimentales et théoriques de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$ correspondant aux pics contaminants ne dépasse pas 0,6 % soit environ 50 keV en valeur absolue, ce qui est de l'ordre de la résolution du dispositif de mesure. Ces résultats montrent que les pics contaminants expérimentaux ont été ajustés correctement aux valeurs théoriques.

Cette méthode de calibration est appliquée pour les 64 pistes du télescope. D'après le dernier terme de l'équation D.2 de la cinématique, la valeur de l'énergie d'excitation du noyau formé variera d'autant plus fortement avec l'angle de détection de l'éjectile que la masse du noyau formé est faible. C'est pourquoi on observe un déplacement important des pics dus aux contaminants légers (de l'ordre de plusieurs centaines de keV) dans le spectre des éjectiles en fonction de l'angle de détection de l'éjectile. Au contraire, comme l'$^{239}U^*$ est un noyau beaucoup plus lourd que les contaminants de carbone ou d'oxygène, les éjectiles émis par ce noyau subissent un déplacement cinématique plus faible (de l'ordre de quelques dizaines de keV et donc inférieur à la résolution du dispositif de mesure) dans le spectre des éjectiles en fonction de l'angle de détection de l'éjectile. L'illustration de ces propos est donnée un peu plus loin par la figure D.11.

Avant de pouvoir sommer les spectres des éjectiles obtenus aux différents angles afin d'augmenter la statistique, il sera nécessaire de supprimer les pics dus aux réactions sur

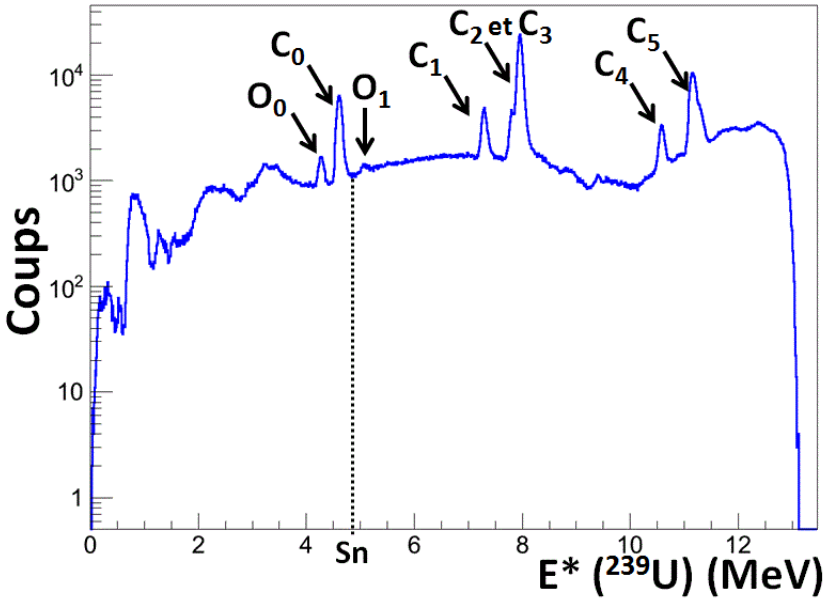


Figure D.10.: Spectre des protons $N_{ej}(E^*)$ en fonction de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$ pour une piste à 126°. L'origine des pics causés par les réactions contaminantes sur le support de carbone et sur l'oxygène de la cible est indiquée en noir. La ligne en pointillée est placée au S_n du noyau.

Contaminant	$E^{*239}U_{théorique}$(MeV)	$E^{*239}U_{expérimentale}$(MeV)	écart relatif théorie-expérience
O_0	4,281	4,271	0,2%
C_0	4,629	4,610	0,4%
O_1	5,071	5,076	0,1%
C_1	7,336	7,297	0,5%
C_2	7,856	7,808	0,6%
C_3	8,003	7,954	0,6%
C_4	10,612	10,580	0,3%
C_5	11,199	11,153	0,4%

Table D.1.: Comparaison de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$ théorique et expérimentale après calibration déduite de la mesure de l'énergie de l'éjectile des contaminants correspondants.

les contaminants. Pour l'instant, seuls les spectres des éjectiles obtenus pour un même angle de détection et calibrés peuvent être sommés. Nous obtenons de cette manière huit spectres des éjectiles à huit angles différents (de 126° à 140° par pas de 2°). Ce sont ces spectres qui seront considérés dans la section suivante.

D.1.2.2. Suppression des évènements issus de réactions sur le support et les contaminants de la cible

Il est capital de supprimer toute forme de contamination du spectre des éjectiles dans la région énergétique d'intérêt. Malheureusement, la fine couche en carbone naturel supportant la cible d'uranium est responsable, comme nous l'avons vu, d'une certaine contamination dans le spectre des éjectiles. Cependant une mesure de plusieurs heures a été effectuée sur une cible de carbone naturel de même épaisseur que le support de la cible d'uranium afin d'en extraire le spectre des éjectiles $N_{Carbone}(E^*)$ uniquement dû au carbone. Puisque la durée de la mesure expérimentale effectuée sur la cible de carbone naturel et sur la cible d'uranium au support carbone n'est pas la même, le spectre des éjectiles $N_{Carbone}(E^*)$ doit être normalisé par rapport au spectre des éjectiles obtenu avec la cible d'uranium afin d'en y soustraire la contribution. Cette normalisation a pour référence l'intégrale du pic du carbone C_0. Ce choix a été motivé par la région énergétique d'intérêt qui se situe aux environs de ce pic. Le spectre des éjectiles résultant de la soustraction de la contamination carbone est appelé "spectre des éjectiles-backing" et est noté $N_{e-b}(E^*)$ pour exprimer la soustraction du fond carbone au spectre initial des éjectiles. Comme la forme des pics entre les deux mesures expérimentales est légèrement différente, la soustraction est imparfaite puisque les pics de contamination, bien que fortement réduits, ne disparaissent pas complètement.

De plus une oxydation partielle de la cible d'uranium n'a pu être évitée malgré les précautions prises lors de la fabrication et du transport de la cible. La contamination à l'oxygène ne peut pas être soustraite de la même manière que le carbone car il n'existe pas de cible solide en oxygène. Le moyen de s'affranchir de cette contamination est

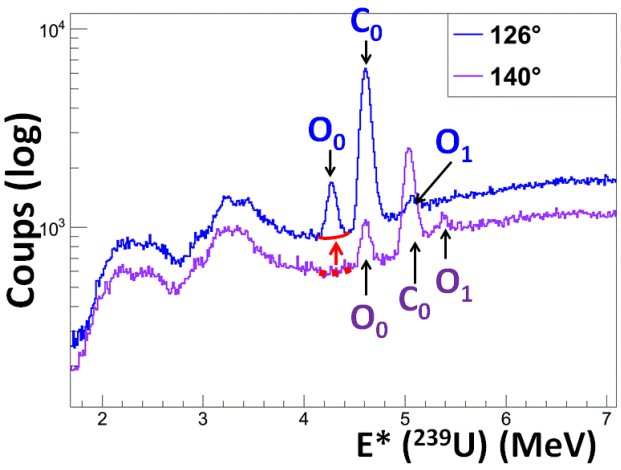


Figure D.11.: Spectre des éjectiles $N_{ej}(E^*)$ pour une piste ΔE-E mesuré à 126° et à 140° pour la réaction $^{238}U(d,p)$. Les pics provenant des réactions sur le support en carbone et sur l'oxygène de la cible sont indiqués. Les lignes rouges représentent le principe de soustraction de la contamination causée par l'état fondamental du noyau cible d'oxygène.

d'interpoler le spectre des éjectiles de l'$^{239}U^*$. Pour cela, une courbe polynomiale est tracé du début jusqu'à la fin du pic contaminant O_0 en raccordant le spectre provenant uniquement des éjectiles de l'$^{239}U^*$. On fait ainsi la supposition que cette courbe représente la forme du spectre si uniquement des éjectiles provenant de l'$^{239}U^*$ étaient détectés. Pour justifier cette supposition, on représente sur la figure D.11 le spectre des éjectiles mesuré pour les deux angles de détection extrêmes. On observe que, comme dit précédemment, les pics contaminants subissent un déplacement cinématique beaucoup plus important que les structures provenant des éjectiles issus des réactions sur l'uranium. Si on fixe un pic contaminant donné (O_0 sur la figure), on remarque qu'il ne couvre pas la même zone énergétique d'un angle à l'autre. Ainsi, la forme du spectre à 126° dans la zone énergétique autour de ce pic contaminant devrait être très proche de celle à 140° pour cette même zone énergétique. Sur ce principe, on peut raisonnablement supposer qu'un spectre des éjectiles de l'$^{239}U^*$ dont les contaminants ont été soustraits par interpolation (symbolisé par la ligne rouge sur la figure) ressemble fortement au spectre des éjectiles de l'$^{239}U^*$ pur.

Cette méthode de soustraction de la contamination par interpolation est également appliquée pour la contribution due à O_1, mais aussi pour parfaire la soustraction de la contamination du support carbone. Le spectre affranchi de toute contamination obtenu est appelé "spectre singles" et est noté $N_s(E^*)$. Avec ce spectre, tout se passe comme si tous les éjectiles détectés ne provenaient que du noyau $^{239}U^*$. D'un point de vue mathématique, ces opérations se résument selon l'équation D.8 :

$$N_s(E^*) = N_{ej}(E^*) - f_{norm}.N_{carbone}(E^*) - N_{cont}(E^*) = N_{e-b}(E^*) - N_{cont}(E^*) \quad \text{(D.8)}$$

Avec :

- $N_s(E^*)$ le spectre des éjectiles ne provenant que de l'interaction avec l'^{239}U.
- $N_{ej}(E^*)$ le spectre total des éjectiles détectés.
- $N_{carbone}(E^*)$ le spectre des éjectiles provenant de l'interaction avec la cible de carbone.
- f_{norm} le facteur de normalisation permettant l'estimation du spectre des éjectiles provenant des réactions sur le support en carbone de la cible d'uranium.
- $N_{e-b}(E^*)$ le spectre des éjectiles résultant de la soustraction des éjectiles provenant du carbone.
- $N_{cont}(E^*)$ le spectre des éjectiles soustraits par interpolation.

La figure D.12 représente les différentes étapes de soustraction du carbone et de la soustraction de l'oxygène pour la somme des pistes à 126°. La courbe noire représente le résultat final du spectre singles $N_s(E^*)$. Notons que la forme du spectre $N_{carbone}(E^*)$ est causée par deux types de réaction. Les réactions de transfert $^{12}C(d,p)$ sont responsables des pics contaminants localisés alors que les réactions de fusion-évaporation sur le carbone génèrent un fond continu de protons. Davantage de détails sur l'influence de ce type de réaction sur nos données seront exposés au chapitre E.

D.1.3. Obtention du spectre des coïncidences

D.1.3.1. Fission

Sélection des évènements en énergie et en temps Le terme $N_s(E^*)$ de l'équation D.1 est maintenant connu. Cette section a pour objectif la détermination du terme $N_{cf}(E^*)$ pour l'$^{239}U^*$. Pour ce faire, une mesure de détection en coïncidence est réalisée entre les protons détectés par les télescopes SiRi avec les fragments de fission détectés par les 4 PPACs. Parmi tous les fragments de fission détectés, une partie provient de coïncidences fortuites (non souhaitées) avec des protons du carbone et de l'oxygène. On procède à l'élimination de ces fragments en excluant tous ceux qui ne se situent pas dans la fenêtre en temps caractéristique de la coïncidence entre les "bons" protons et les fragments de fission. La figure D.13 représente la différence de temps en canaux (ch) entre les signaux logiques délivrés par le télescope pour les protons (start) et un des PPACs (stop). Le signal en forme de "vague" est causé par les pulses du cyclotron qui est régulé à une certaine fréquence. Les temps de référence de coïncidence ont été fixés entre les canaux 1360 et 1500 pour prendre en compte tous les fragments à l'intérieur du pic de coïncidence. Nous obtenons alors le spectre associé au pic de coïncidence proton-fission noté $N_{cf}^{pic}(E^*)$.

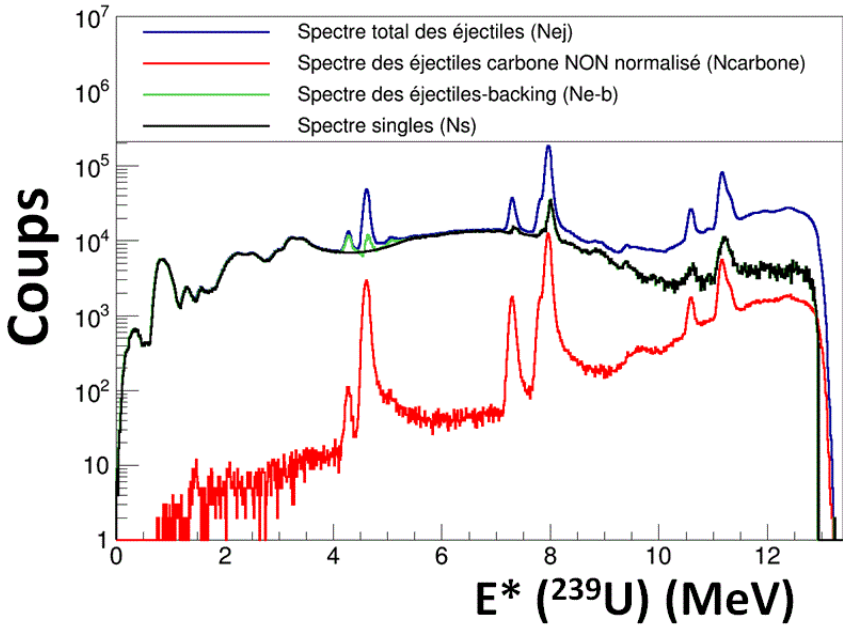


Figure D.12.: Spectre singles $N_s(E^*)$ obtenu pour la réaction $^{238}U(d,p)$ après soustraction de la contamination au carbone et à l'oxygène.

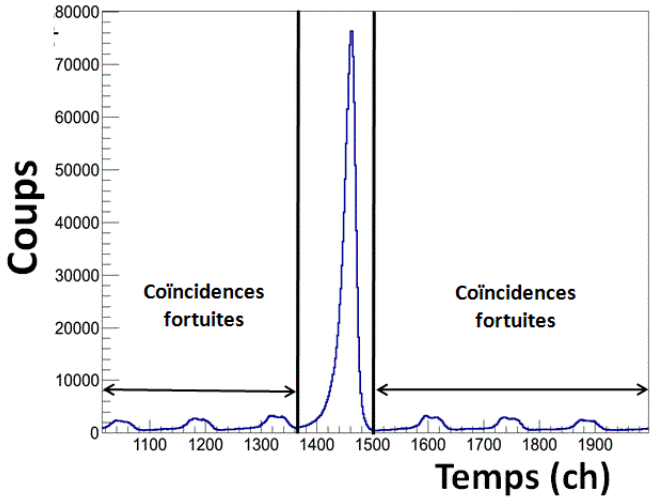


Figure D.13.: Nombre d'évènements en fonction de la différence de temps entre le télescope (start) et un fragment détecté par un des PPACs (stop) pour la réaction $^{238}U(d,p)$. Les lignes noires verticales délimitent la fenêtre en temps du pic de coïncidence.

Suppression des coïncidences fortuites La sélection en temps et en énergie des évènements de fission ne permet pas d'éliminer toutes les coïncidences fortuites. En effet, l'espacement régulier du signal imposé par la fréquence du cyclotron suggère qu'une "vague" d'évènements fortuits se fond dans le pic de coïncidence sélectionné. La très grande majorité des fragments de fission fortuits détectés proviennent de coïncidences avec des protons issus de la réaction $^{12}C(d,p)^{13}C^*$. Afin de parvenir à la soustraction de cette contribution, le spectre des coïncidences proton-fission fortuites $N_{cf}^{fortuit}(E^*)$ est réalisé en ne prenant en compte que les évènements se situant en dehors de la fenêtre temporelle de coïncidence. Ce spectre est ensuite normalisé à l'intégrale estimée de la "vague" qui se situe dans le pic de coïncidence. Cette intégrale est raisonnablement approximée en considérant la moyenne des intégrales des deux "vagues" voisines du pic de coïncidence. Le spectre des coïncidences proton-fission $N_{cf}(E^*)$ est déduit en soustrayant le spectre des coïncidences fortuites ainsi obtenu. D'un point de vue mathématique, les opérations réalisées s'expriment selon l'équation D.9:

$$N_{cf}(E^*) = N_{cf}^{pic}(E^*) - f_{norm}.N_{cf}^{fortuit}(E^*) \tag{D.9}$$

Avec :

- $N_{cf}(E^*)$ le spectre des coïncidences proton-fission ne provenant que de l'$^{239}U^*$.
- $N_{cf}^{pic}(E^*)$ le spectre total des coïncidences proton-fission détectées.
- f_{norm} le facteur de normalisation permettant l'estimation du nombre de coïncidences fortuites présentes dans le pic de coïncidence.
- $N_{cf}^{fortuit}(E^*)$ le spectre des coïncidences proton-fission pour les évènements en dehors de la fenêtre temporelle de coïncidences.

La figure D.14 représente le spectre de coïncidences proton-fission ne provenant que de l'$^{239}U^*$ issue de la soustraction de la contribution estimée de coïncidences fortuites. La légende reprend les notations de l'équation D.9. L'allure du spectre rouge et la comparaison avec la figure D.12 montre que la plupart des coïncidences fortuites proviennent d'une réaction avec le carbone (plus précisément avec les états C_1, C_2 et C_3). Le spectre corrigé (en noir) se distingue majoritairement du spectre initial (en bleu) par la suppression des pics venant de l'interaction du faisceau avec le support en carbone de la cible.

D.1.3.2. Emission gamma

Nous venons de déterminer le spectre des coïncidences pour la fission. Le dispositif expérimental, fort de ses 27 scintillateurs NaI, permet également de détecter les rayons gammas de la réaction, et donc de déduire le terme des coïncidences pour l'émission gamma $N_{c\gamma}(E^*)$.

Nous devons préciser ici que l'analyse des données est effectuée de façon à ce que seulement un gamma issue de la cascade de désexcitation d'un noyau soit traité. Ainsi le

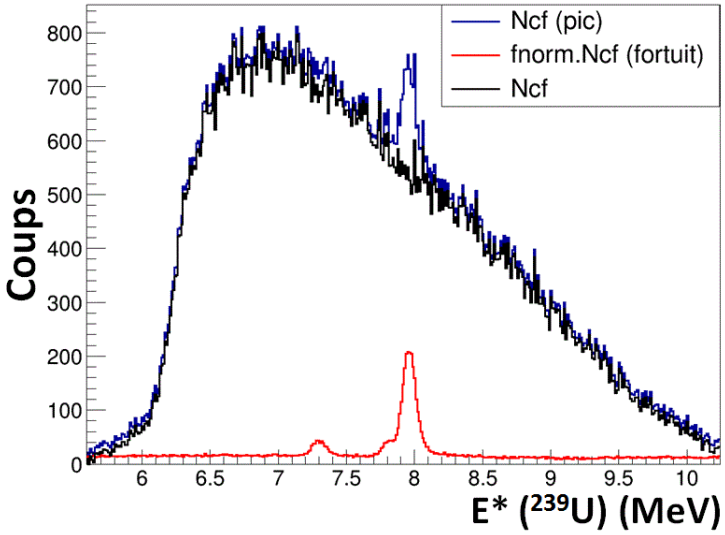


Figure D.14.: Spectre des coïcidences N_{cf} de la réaction $^{238}U(d,p)$ obtenu après soustraction des coïncidences fortuites pour la somme des pistes à 126°(à droite).

nombre de gammas détectés correspond en fait au nombre de cascades gamma détectées. Par conséquent à chaque évènement gamma traité correspondra une cascade gamma détectée. C'est pourquoi pour la détermination de la probabilité d'émission gamma d'un noyau, nous considèrerons l'efficacité de détection d'une cascade gamma et non l'efficacité de détection d'un gamma individuel. Ce point sera développé à la section D.3.2.

Contrairement à la fission où la mesure de coïncidences (fortuites ou non) certifie que le fragment détecté provient de l'$^{239}U^*$, les gammas détectés en coïncidence avec les protons peuvent provenir de trois sources différentes :

- Gammas émis par l'$^{239}U^*$ (réaction $(d,p\gamma)$ que nous souhaitons analyser)
- Gammas émis par l'$^{238}U^*$après émission d'un neutron de l'$^{239}U^*$ (réaction $(d,pn\gamma)$)
- Gammas des fragments de fission (réaction $(d,pf\gamma)$)

La figure D.15 illustre ces trois modes de provenance des gammas une fois le noyau composé formé. Ces différentes provenance peuvent être discriminées grâce à leur énergie et leur temps d'arrivée. Les sections suivantes sont donc dédiées à la calibration en énergie des scintillateurs NaI, et à la sélection en temps.

Calibration des scintillateurs NaI La méthode générale de calibration des détecteurs NaI est simple. Elle consiste à prendre en compte les énergies du pic d'énergie totale caractéristique des gammas provenant de la désexcitation d'un état connu du noyau composé, et à les utiliser comme point de calibration. Dans cette expérience, nous avons réalisé des mesures sur une cible de carbone naturel et une cible de ^{208}Pb déposée sur un support en carbone. Contrairement aux isotopes de l'uranium, ces noyaux ont une

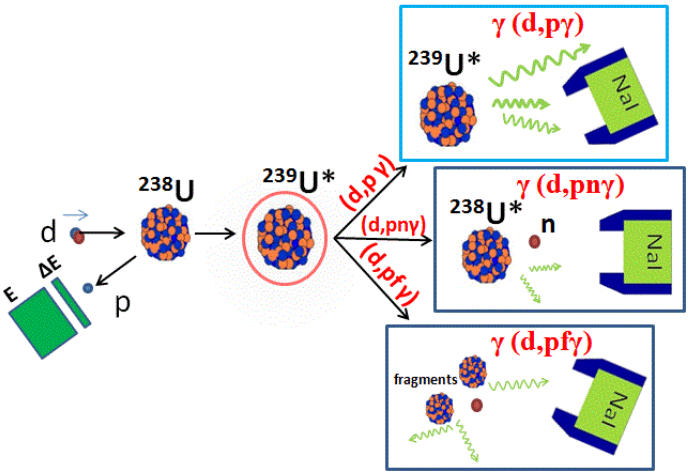


Figure D.15.: Illustration des différents modes de provenance des gammas détectés en coïncidence avec les éjectiles pour la réaction $^{238}U(d,p)$.

structure nucléaire dont les niveaux sont suffisamment espacés pour permettre l'isolation d'un gamma avec une énergie bien définie. Ils sont par conséquent de très bons candidats pour la calibration des NaI. La figure D.16 représente un spectre bidimensionnel $\Delta E - E$ pour ces deux mesures.

Les états excités sélectionnés sont représentés en rouge et répondent à plusieurs critères. Tout d'abord les énergies des gammas sélectionnés pour la calibration doivent être les plus étendues possible afin de calibrer les détecteurs sur une grande gamme d'énergie, dans la limite où le pic d'énergie total du signal est discernable. Ce n'est par exemple pas le cas des quatrième et cinquième états excités du carbone $^{13}C_4$ et $^{13}C_5$ (respectivement à 6,864 MeV et 7,492 MeV) où l'absence de pic d'absorption totale dans la réponse des NaI empêche d'utiliser ces points pour la calibration.

Ensuite, les états sélectionnés doivent posséder une statistique suffisante pour limiter l'erreur de la valeur moyenne de l'énergie du pic. Ce n'est pas le cas du premier état excité du plomb : le $^{209}Pb_1$ dont la statistique de réaction est trop faible.

Enfin, l'énergie des gammas choisis doit être suffisamment résolue pour ne pas ajouter un biais dans la calibration. Les états $^{209}Pb_2$ et $^{209}Pb_3$ ne répondent pas à ce critère tout comme les états $^{13}C_2$ et $^{13}C_3$. Cependant ces deux derniers états peuvent fournir un point de calibration supplémentaire essentiel à une énergie élevée. Comme le peuplement et l'intensité des gammas émis de ces états sont similaires, il est raisonnable de considérer la valeur moyenne de l'énergie gamma émise par ces deux niveaux (3769 keV) comme un point de calibration fiable. En plus de ce point, trois autres ont été choisis car ils répondent à toutes les conditions nécessaires à une bonne calibration.

Nous possédons ainsi quatre points de calibration à des énergies de 871 keV ($^{17}O_1$), 1567 keV (100% des états $^{209}Pb_4$ se désexcitent vers les états $^{209}Pb_3$ d'énergie 1567 keV qui eux, se désexcitent à 100% vers le fondamental), 3089 keV ($^{13}C_1$) et 3769 keV (moyenne des gammas $^{13}C_2$ et $^{13}C_3$). La courbe de calibration obtenue visible sur la figure D.17 (à

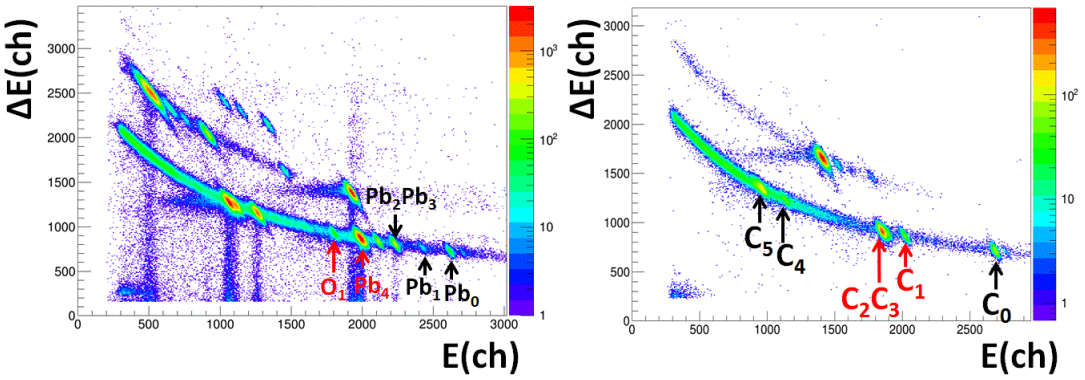


Figure D.16.: Perte d'énergie en fonction de l'énergie résiduelle pour une piste du télescope à 126°. Le spectre pour la réaction $d+^{208}Pb$ est représenté à gauche et celui pour la réaction $d+^{12}C$ est à droite. Une partie des états a été assignée. En rouge sont ceux qui ont été pris en compte lors de la procédure de calibration.

Max du pic photo-électrique	$E_\gamma^{theorique}$(MeV)	$E_\gamma^{expérimental}$(MeV)	écart relatif théorie-expérience
pic d'annihilation	0,511	0,518	1,4%
O_1	0,870	0,900	3,4%
Pb_4	1,567	1,541	1,7%
C_1	3,089	3,062	0,9%
C_{2-3}	3,769	3,701	1,8%

Table D.2.: Comparaison de l'énergie gamma théorique et expérimentale des états sélectionnés pour la calibration des NaI.

gauche) montre un comportement linéaire des énergies mesurées en fonction des énergies théoriques (en MeV). A droite sur cette même figure sont représentées les fonctions de réponse d'un NaI pour les gammas des états choisis. Comme nous l'avons vu au chapitre C, celles-ci correspondent à la réponse d'un détecteur suite à la détection d'un gamma monoénergétique. Nous pouvons ainsi vérifier la qualité de la calibration en énergie du NaI grâce à la position des pics.

On représente alors dans le tableau D.2 l'écart entre les valeurs théoriques et expérimentales après calibration. Celui-ci ne dépasse pas la résolution des détecteurs NaI qui est d'environ 70 keV pour 1 MeV d'énergie du gamma (soit 7%) et est donc parfaitement acceptable. La procédure de calibration décrite dans cette section est réalisée pour les 27 détecteurs NaI.

Sélection des évènements en temps

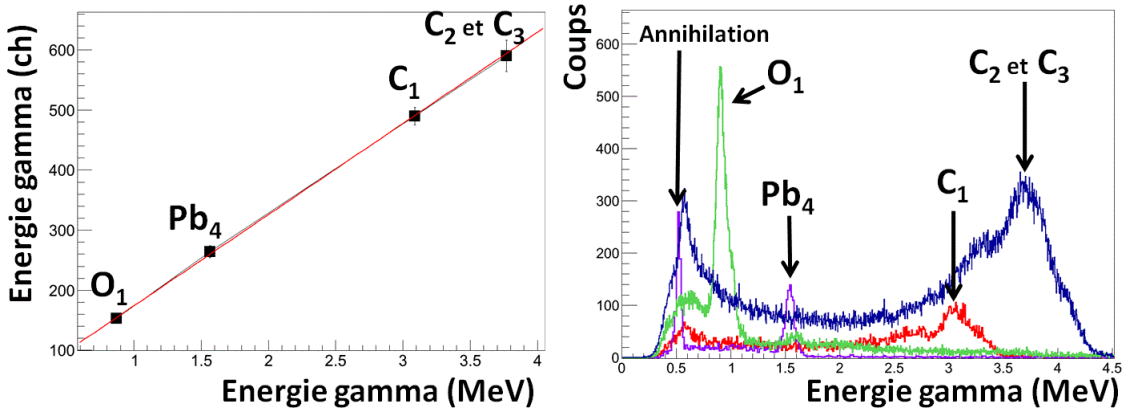


Figure D.17.: Etalonnage en énergie d'un détecteur NaI (à gauche) correspondant à un ajustement linéaire des points de calibration. Fonctions de réponse d'un détecteur NaI pour les quatre points de calibration sélectionnés (à droite).

Effet Walk Tout comme l'étude de la fission réalisée précédemment, une sélection en temps minutieuse des évènements de coïncidence proton-gamma émis par le noyau composé est capitale pour limiter l'influence des coïncidences fortuites. La différence en temps de la coïncidence d'un couple proton-gamma dépend de l'énergie détectée de la particule : c'est l'effet "walk". Ces différences de temps générées introduisent des difficultés dans la sélection temporelle adéquate des évènements, c'est pourquoi il est important de corriger cet effet. La figure D.18 illustre le principe de l'effet walk. Le signal du télescope déclenche la mesure du temps par le TDC (start) alors que le signal d'un gamma par un NaI y met fin (stop). Considérons deux gammas d'énergies $E_{\gamma 1}$ et $E_{\gamma 2}$ (avec $E_{\gamma 1} > E_{\gamma 2}$) issus de deux évènements distincts (figure D.18a) à droite). Comme l'amplitude générée par γ_1 est supérieure à celle de γ_2 , il arrêtera la mesure du temps avant en supposant que l'éjectile qui déclenche possède la même amplitude dans les deux cas. Par conséquent, plus l'énergie du gamma détecté est élevée, et plus courte sera la différence de temps entre le start et le stop. Le raisonnement est inverse pour la détection des éjectiles. Pour un gamma d'énergie (d'amplitude) fixe, la différence de temps sera d'autant plus élevé que l'énergie de l'éjectile est élevée, car il déclenchera alors le TDC plus tôt (figure D.18a) à gauche).

Pour corriger l'effet walk, il existe une méthode nommée "Constant Fraction Triggering" (CFT). Le principe est d'utiliser un seuil de déclenchement en énergie qui représente une fraction constante de l'amplitude du signal afin que le déclenchement du start et du stop du TDC ne dépendent plus de l'amplitude du signal détecté. Malheureusement, comme il a été mentionné au chapitre C, le discriminateur de l'électronique de l'expérience est de type "leading edge" et ne permet pas d'appliquer cette méthode [Leo87]. Ce problème est donc résolu au cours de l'analyse des données en appliquant une fonction mathématique corrigeant les différences de temps observées en fonction de l'énergie détectée de la particule. Les figures D.18b) et c) représentent la différence de temps entre le start et le

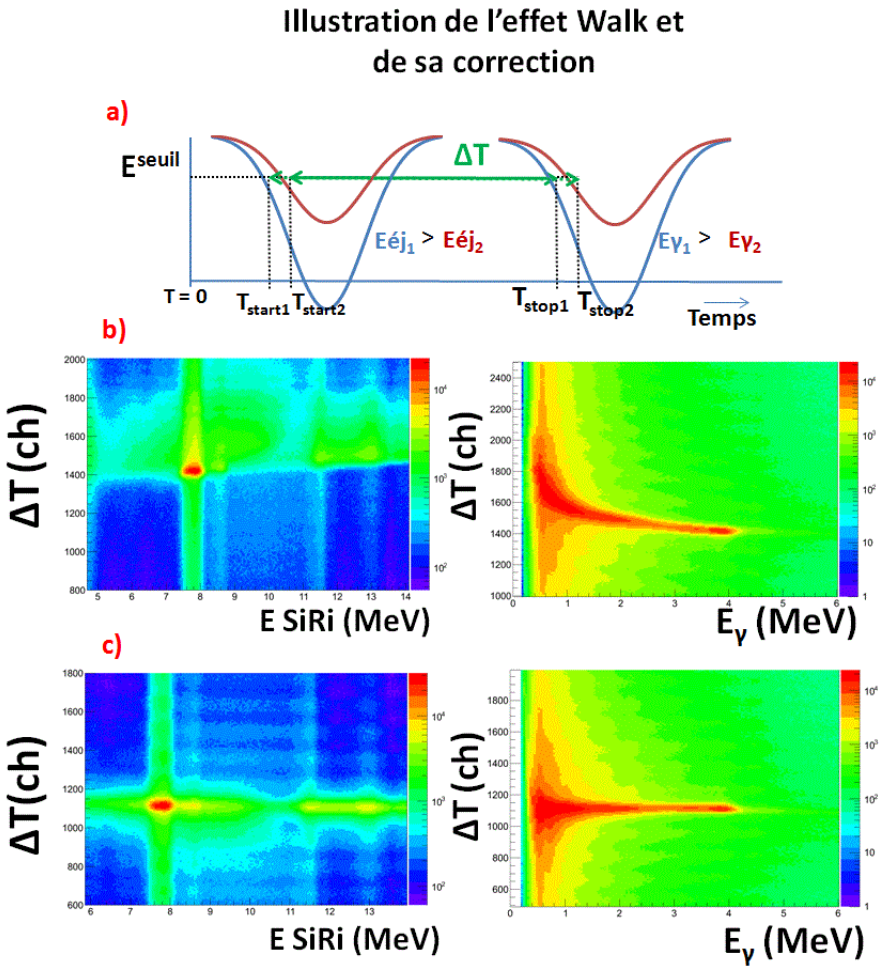


Figure D.18.: Illustration schématique de l'effet walk : deux particules d'énergies distinctes induisent différents écarts de temps ΔT (a). Différence de temps ΔT en fonction de l'énergie déposée par un éjectile dans la partie E du télescope ((b) à gauche), ou en fonction de l'énergie déposée par un gamma pour l'ensemble des NaI ((b) à droite). Mêmes figures après correction de l'effet walk (c). Davantage d'explications sont données dans le texte.

stop en fonction de l'énergie de la particule détectée (gamma ou éjectile), avant et après correction de l'effet walk, respectivement.

Précisons que l'éffet walk est également présent lors de la détection des fragments de fission. Cependant, comme les PPACs utilisés sont incapables de discerner l'énergie déposée par deux fragments différents, l'effet walk devient alors très faible. Ainsi, seul l'effet walk pour la partie télescope doit être corrigée lors de la détection des fragments de fission en coïncidence avec les éjectiles.

Suppression des neutrons par temps de vol Maintenant que l'effet walk est corrigé, il est possible de fixer une fenêtre temporelle de coïncidences proton-gamma en minimisant la sélection d'évènements fortuits. En particulier, les gammas émis au cours de la réaction $(d, pn\gamma)$ peuvent être détectés par les scintillateurs NaI même si la plupart sont de faible énergie et sont éliminés en appliquant un seuil de détection suffisamment élevé (procédure détaillée un peu plus loin). De plus, les noyaux de sodium et d'iode des scintillateurs ne sont pas totalement transparents aux neutrons originaires de la réaction $(d, pn\gamma)$ et peuvent émettre des gammas de capture neutronique de hautes énergies indésirables. Afin de limiter la contribution de ces deux réactions parasites, les neutrons de la réaction $(d, pn\gamma)$ et les gammas souhaités de la réaction $(d, p\gamma)$ doivent être discrimés par temps de vol en appliquant une sélection temporelle sur les coïcidences qui reste à déterminer.

Comme nous le verrons plus en détail un peu plus loin, un seuil en énergie $E_\gamma^{seuil} = 1,5\,MeV$ a été fixé afin de ne détecter que des gammas d'énergie supérieure à 1,5 MeV ce qui permet d'étudier la probabilité d'émission gamma pour ce noyau jusqu'à des énergies d'excitation de 1,5 MeV au dessus de S_n. Dans cette région d'intérêt, l'énergie cinétique maximale E_n^{max} que possède un neutron issu de la réaction $(d, pn\gamma)$ est égale à 1,5 MeV. Par conséquent, aucun neutron d'énergie supérieure à cette valeur ne peut être détecté par les NaI dans la région énergétique d'étude de la probabilité d'émission gamma de l'$^{239}U^*$. Par contre, le seuil en énergie fixé n'empêche pas la détection de neutrons d'énergie cinétique inférieure à celui-ci. Pour estimer la contribution due à ces neutrons, on commence par représenter sur la figure D.19 la proportion d'évènements détectés (normalisée à 1) en fonction de la différence en temps et des seuils en énergie fixés.

La courbe noire illustre la différence de temps pour des gammas émis par l'$^{239}U^*$ uniquement. Pour ce faire, seuls les gammas provenant des noyaux d'énergie d'excitation inférieure au S_n ont été sélectionnés. La ligne en pointillée symbolise la position de la valeur de la différence en temps ΔT correspondant au maximum du pic des gammas ne provenant que de la désexcitation de l'$^{239}U^*$. C'est cette valeur de différence de temps qui est prise pour référence afin d'estimer la contribution des neutrons détectés par les NaI. Les courbes bleues et rouges représentent, pour deux seuils E_γ^{seuil} différents, des évènements provenant des gammas émis par l'$^{239}U^*$, mais aussi de la capture neutronique des noyaux de sodium et d'iode des scintillateurs. Les neutrons émis par l'$^{239}U^*$ étant moins rapides que la lumière, ils sont détectés à des temps plus élevés entrainant un déplacement de la valeur moyenne du pic gamma prompt vers les temps élevés. La valeur de la différence de temps peut être déduite à partir de la fréquence utilisée du cyclotron. Le temps entre deux pulses successifs, correspondant à environ 140 canaux au

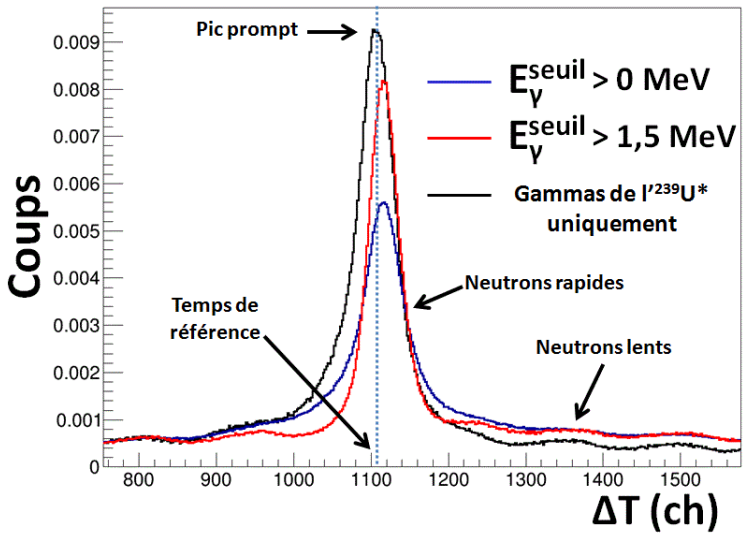


Figure D.19.: Proportion d'évènements détectés (normalisée à 1) en fonction de la différence en temps. La courbe noire ne concerne que les gammas émis par l'$^{239}U^*$ d'énergie d'excitation inférieure au S_n, alors que les courbes rouge et bleue incluent également la contribution due aux neutrons détectés pour différents seuils de détection en énergie. Le temps de coïncidence de référence correspond au maximum du pic gamma prompt et est symbolé par la ligne en pointillée.

regard de la figure D.13, est de 42 ns. En utilisant des fenêtres temporelles plus ou moins larges autour du pic gamma prompt, il est possible d'estimer l'énergie des neutrons en dessous de laquelle une partie des neutrons est exclue. En sachant que la distance de vol moyenne des neutrons avant interaction est de 25 cm [Wil12], l'énergie cinétique des neutrons E_n se calcule selon l'équation D.10 :

$$E_n = \frac{m_n.d_{vol}^2}{2.1,6.10^{-19}.t_{vol}^2} \tag{D.10}$$

Avec :

- E_n l'énergie cinétique du neutron (eV)
- m_n la masse du neutron (kg)
- d_{vol} la distance de vol (m)
- t_{vol} le temps de vol du neutron (s)

La figure D.20 représente le nombre d'évènements détectés en fonction de la différence de temps entre les télescopes et l'ensemble des NaI. Elle correspond à la projection sur l'axe des temps de la figure D.18c) (à droite). Une largeur de fenêtre en temps de 11 ns centrée autour du pic gamma prompt a été placée (lignes vertes) afin de ne détecter que les évènements se situant à l'intérieur de celle-ci. D'après l'équation D.10, un temps de vol de 11 ns correspond à une énergie cinétique du neutron de 2,7 MeV. Affirmer que tous les neutrons d'énergie inférieure à 2,7 MeV sont écartés en appliquant cette fenêtre en temps est faux car la résolution en temps des NaI n'est pas infinie, il existe donc une certaine proportion de neutrons qui sont détectés. En supposant que la résolution de détection des neutrons est de type gaussienne, la valeur moyenne du pic neutron prompt situé à 1σ correspond à un temps de vol du neutron de 18 ns et à une énergie cinétique d'environ 1 MeV. Ainsi, l'utilisation d'une largeur de fenêtre temporelle de 11 ns entraîne la suppression de 68% des neutrons de 1 MeV ainsi qu'une plus grande proportion encore de neutrons de plus faible énergie. Par exemple, la valeur moyenne du pic neutron prompt situé à 2σ de la fenêtre temporelle correspond à un temps de vol des neutrons de 30 ns et à une énergie cinétique d'environ 0,360 MeV, ces neutrons sont supprimés à hauteur de 95 %.

Les neutrons d'énergie inférieure à 1,5 MeV non supprimés peuvent interagir avec les atomes de sodium et d'iode. Pour évaluer les conséquences de ces neutrons détectés sur nos données, on commence par représenter sur la figure D.21, les sections efficaces neutronique de capture (en vert) et inélastique (en bleu) en fonction de l'énergie du neutron incident, pour le ^{23}Na (à gauche) et ^{127}I (à droite).

On observe que la section efficace de capture du sodium est très faible (pour une moyenne de 10^{-3} barns), par conséquent la quantité de gammas détectés provenant de ce processus est négligeable. En revanche, la section efficace de capture de l'iode est relativement élevée pour des énergies de neutrons incidents de quelques centaines de keV, même si la diffusion inélastique devient très majoritaire au delà de $E_n = 0,5\,MeV$.

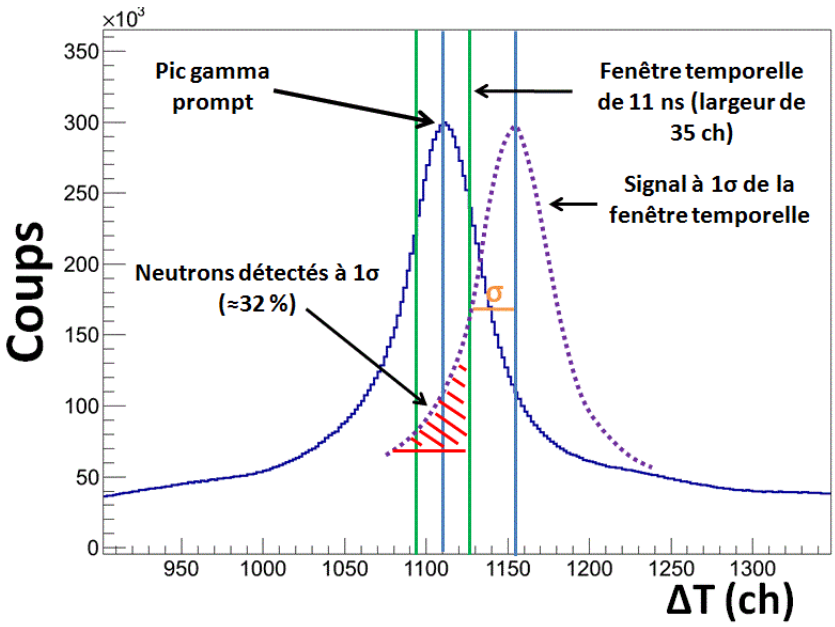


Figure D.20.: Nombre d'évènements en fonction de la différence de temps entre les télescopes et l'ensemble des NaI pour la réaction $^{238}U(d,p)$. La ligne bleue fixe le maximum du pic prompt. Seuls les évènements situés dans une fenêtre temporelle (en vert) fixée à 11 ns et centrée sur le pic prompt sont détectés. Elle permet de supprimer 68 % des neutrons dont le pic prompt se situe à 1σ de cette fenêtre.

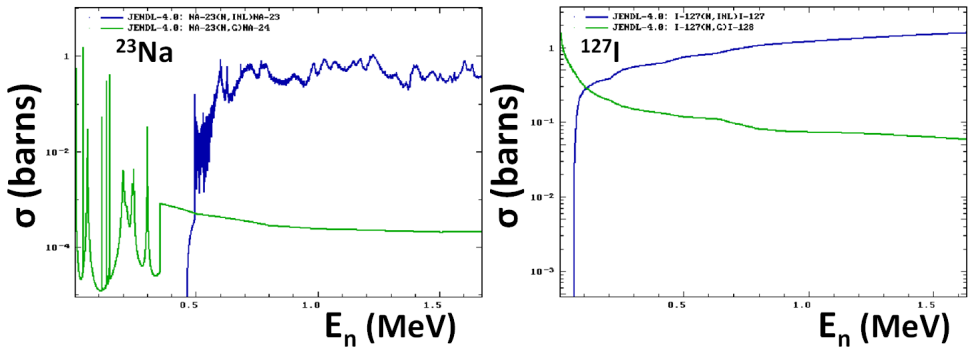


Figure D.21.: Sections efficaces neutronique de capture (en vert) et inélastique (en bleu) en fonction de l'énergie du neutron incident, pour le ^{23}Na (à gauche) et l'^{127}I (à droite).

Toutefois, une partie des gammas provenant de la capture neutronique par les NaI sont éliminés par l'application du seuil E_γ^{seuil} de 1,5 MeV. Notons également, comme nous le verrons un peu plus loin, que les gammas issus des réactions inélastiques entre les neutrons et les noyaux de sodium et d'iode sont intégralement supprimés grâce à l'application du seuil E_γ^{seuil} de 1,5 MeV.

Au final, aucun neutron de la réaction $^{238}U(d,pn\gamma)$ d'énergie supérieure à 1,5 MeV n'est détecté dans la région d'intêret, et une majorité des neutrons d'énergie inférieure sont supprimés par l'application d'une fenêtre de coïncidence de 11 ns. De plus, parmi la faible proportion des neutrons capturés par les NaI, une partie des gammas provenant de la désexcitation des noyaux de sodium et d'iode sont éliminés grâce au seuil E_γ^{seuil} de 1,5 MeV utilisé. La contribution au spectre des coïncidences $N_{c\gamma}(E^*)$ des neutrons de capture détectés par les NaI reste donc très modeste dans la région énergétique d'intérêt.

Notons que l'utilisation d'une fenêtre temporelle plus réduite que 11 ns aurait eu l'avantage de supprimer encore plus de neutrons, mais aurait surtout eu l'inconvénient de diminuer drastiquement le nombre de gammas d'intérêt. L'argument est exactement opposé pour des largeurs de fenêtre plus élevées dont la contribution des neutrons devient trop importante. Une fenêtre de 11 ns représente un bon compromis pour supprimer un nombre conséquent de neutrons tout en conservant un nombre suffisant de gammas pour des raisons de statistiques. Nous verrons à la section D.5.1 que l'influence de la largeur temporelle utilisée quant aux valeurs de la probabilité d'émission gamma de l'$^{239}U^*$ (et donc indirectement sur la quantité de neutron détectés) est très faible, ce qui valide les choix d'analyse appliqués dans cette section.

Suppression des gammas parasites Comme cela a été indiqué au début de la section, un gamma détecté en coïncidence avec un éjectile peut provenir de l'émission gamma de l'$^{239}U^*$, des fragments de fission, ou de l'$^{238}U^*$ au travers de la réaction $^{238}U(d,pn\gamma)$. Maintenant que la sélection temporelle des évènements est fixée et que la grande majorité des gammas de capture des NaI ont été éliminés, l'objectif dans ce qui suit est de parvenir à discriminer les gammas émis par l'$^{239}U^*$ des gammas indésirables.

Suppression des gammas de la réaction $^{238}U(d,pn\gamma)$ Les télescopes SiRi et les détecteurs NaI étant calibrés, il est possible de représenter l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$ formé en fonction de l'énergie du gamma détecté en coïncidence avec le proton. Une telle représentation est donnée par la figure D.22 et permet de repérer visuellement la répartition des différents types de gammas détectés en fonction de différentes zones énergétiques.

Un noyau formé ne peut pas émettre de gamma d'énergie supérieure à sa propre énergie d'excitation, ce qui explique que la zone se situant en dessous de la diagonale noire de la figure D.22 est vide d'évènements de coïncidence (seuls quelques évènements fortuits sont à déplorer). La ligne horizontale placée au niveau de S_n symbolise la limite à partir de laquelle la voie de désexcitation par émission neutron s'ouvre. Tous les évènements à des énergies plus faibles que S_n sont purement des gammas émis par l'$^{239}U^*$ puisque $P_\gamma(E^* < Sn) = 1$ pour ce noyau. Au delà de S_n, les gammas détectés peuvent également

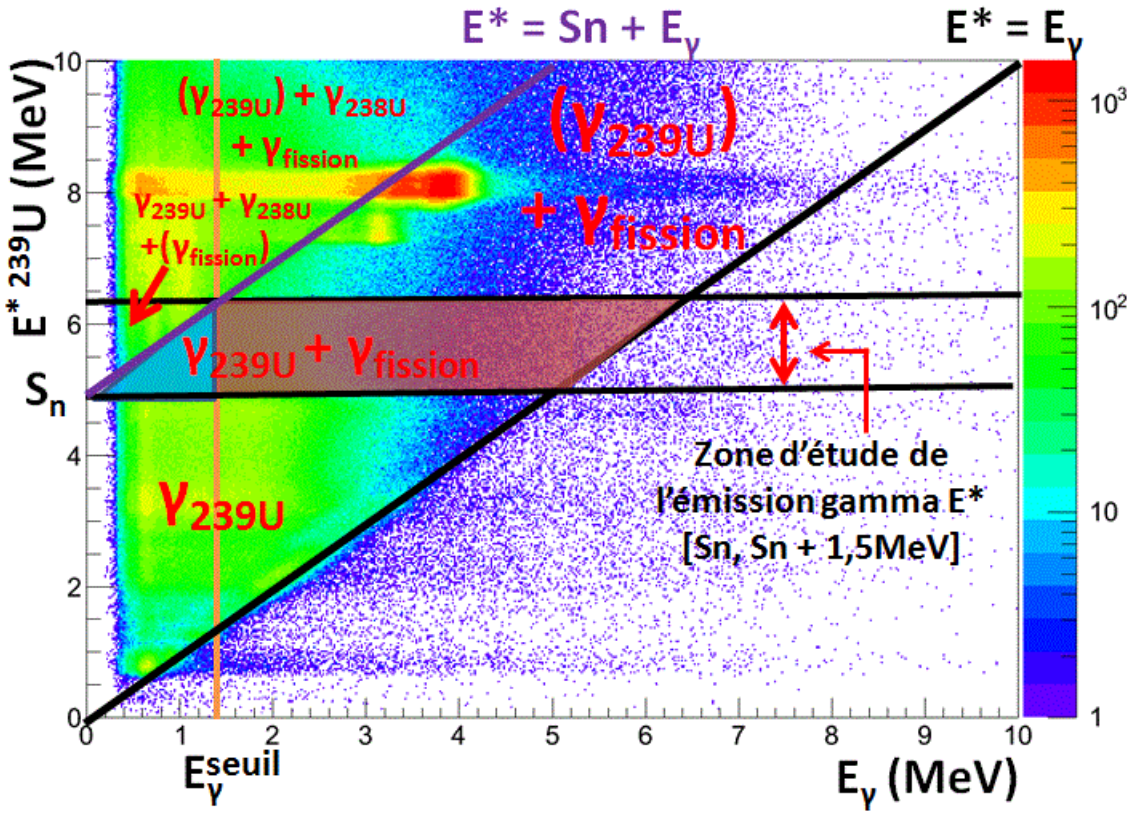


Figure D.22.: Energie d'excitation du noyau composé formé en fonction de l'énergie du gamma détecté en coïncidence. Les différentes sources de provenance des gammas sont indiquées selon plusieurs zones d'énergies et sont mises entre parenthèses lorsqu'elles sont minoritaires par rapport aux autres sources.

venir du noyau résiduel $^{238}U^*$ formé après émission d'un neutron, il s'agit dans ce cas de la réaction $^{238}U(d,pn\gamma)$. Enfin, pour des énergies d'excitation aux environs de 6 MeV, la voie de désexcitation du noyau $^{239}U^*$ par fission s'ouvre et des gammas provenant des fragments de fission peuvent être détectés à partir de ces énergies.

Le principe de conservation de l'énergie totale nous permet d'écrire qu'un gamma émis après émission d'un neutron par l'$^{239}U^*$ possède une énergie maximale donnée par l'équation D.11 :

$$E_\gamma^{max} = E^* - S_n \tag{D.11}$$

Cette contrainte est illustrée par la ligne violette à droite de laquelle les gammas de la réaction $^{238}U(d,pn\gamma)$ ne peuvent pas être présents. Ainsi, définir un seuil d'énergie de détection des gammas E_γ^{seuil} (fixé ici à 1,5 MeV par la ligne orange) permet, d'après l'équation D.11, de s'affranchir de tous les gammas de la réaction $^{238}U(d,pn\gamma)$ jusqu'à des énergies d'excitations à hauteur de S_n+ E_γ^{seuil}, soit 4,806 + 1,5 = 6.306 MeV dans notre cas. L'idéal serait d'utiliser un seuil dépendant de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$ afin de prendre compte une partie des gammas que nous ne considérons pas en utilisant un seuil fixe (gammas de la zone triangulaire bleue). Cependant, l'efficacité de détection d'une cascade gamma (détaillée dans une section ultérieure) dépend fortement du seuil utilisée ce qui rend l'analyse plus laborieuse. De plus, le gain en statistique et donc de précision des probabilités d'émission gamma obtenue en utilisant un seuil dynamique resterait faible, et ne concernerait que les premiers points de mesure proches de S_n. C'est pourquoi nous avons opté pour l'utilisation d'un seuil fixe en énergie. Au final, les gammas pris en compte pour la détermination du spectre des coïncidences sont situés dans le trapèze rouge de la figure D.22. Une relative faible quantité de gammas de fission reste néanmoins à soustraire dans la zone énergétique d'étude.

Remarquons qu'on trouve également sur cette figure des gammas émis par les états excités de contaminants comme c'est par exemple le cas des deuxième et troisième états excités du $^{13}C^*$ qui émettent de nombreux gammas à 3,685 et 3,854 MeV respectivement.

Nous avons vu qu'il fallait imposer des conditions contraignantes afin de supprimer les gammas de la réaction $^{238}U(d,pn\gamma)$ et de limiter au maximum les gammas de capture des NaI. De plus, le nombre de gammas émis par l'$^{239}U^*$ diminuent rapidement dès l'ouverture de l'émission neutron au S_n pour ne représenter qu'une proportion minoritaire des gammas détectés lorsque la voie de fission devient importante. Ces raisons justifient pourquoi l'étude de la capture ne peut pas s'effectuer sur une plage d'énergie beaucoup plus élevée que d'environ 1-2 MeV au dessus de S_n.

Suppression des coïncidences fortuites Avant de procéder à la suppression des gammas de fission, il convient de soustraire les gammas fortuits. La procédure utilisée est similaire à celle pour les fragments de fission qui est détaillée dans un paragraphe de la section D.1.3.1. Il convient cependant d'adapter la quantité de coïncidences fortuites à soustraire avec la largeur de la fenêtre temporelle. En effet, la quantité absolue de gammas fortuits à supprimer est d'autant plus faible que la largeur de la fenêtre temporelle utilisée est étroite. La figure D.23 (à droite) représente le spectre des coïncidences

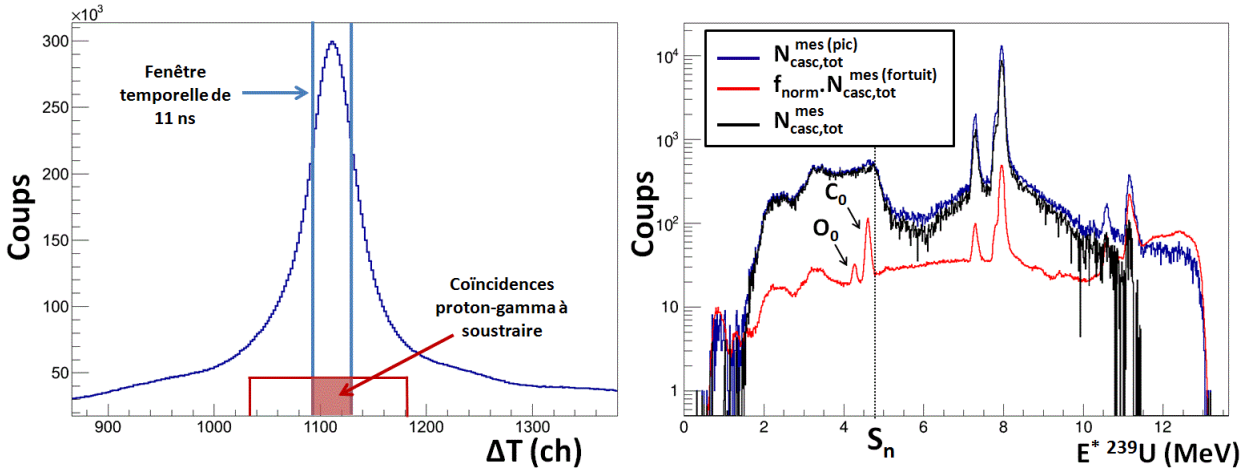


Figure D.23.: Spectre des temps pour l'ensemble des détecteurs NaI (à gauche) et spectre des coïcidences $N^{mes}_{casc,tot}$ obtenu après soustraction des coïncidences fortuites pour la somme des pistes à 126°(à droite) pour la réaction $^{238}U(d,p)$.

proton-gamma avant ($N^{mes\,(pic)}_{casc,tot}(E^*)$), et après ($N^{mes}_{casc,tot}(E^*)$) soustraction du spectre des coïncidences fortuites ($N^{mes\,(fortuit)}_{casc,tot}(E^*)$), dont la contribution est estimée par la zone carrée rouge (à gauche). Le spectre final obtenu représente le nombre total de cascades gamma mesurées (émission par l'$^{239}U^*$ + fission) et est noté $N^{mes}_{casc,tot}(E^*)$. Celui-ci reste très proche du spectre initial, la contribution des gammas de coïncidence fortuite est donc très faible. Notons également que pour ce spectre, on observe une diminution du nombre des coïncidences à partir des énergies d'excitation égales à S_n, ce qui est tout à fait compréhensible puisqu'à partir de cette énergie, la voie d'émission d'un neutron entre en compétition avec l'émission d'une cascade gamma émise par l'$^{239}U^*$. Toujours d'après ce spectre, la présence des pics gamma pour des E^* correspondant aux noyaux O_0 et C_0 suggèrent que les NaI détectent des gammas venant de l'état fondamental de ces noyaux, ce qui est impossible. Ils peuvent en réalité provenir de n'importe quel état excité de n'importe quel noyau mais ont été détectés par hasard en coïncidence avec un proton issu de la formation d'un ^{13}C ou d'un ^{17}O dans son état fondamental. Il en était de même pour la fission où l'on observe des coïncidences proton-fission pour le $^{13}C^*$ alors que ce noyau ne fissionne pas. Il est clair que les coïncidences fortuites sont dépourvues de sens physique, il est donc important de les exclure de l'analyse.

Suppression des gammas des fragments de fission La dernière correction à apporter pour obtenir le spectre pur des coïncidences proton-gamma émis par l'$^{239}U^*$ est de supprimer les gammas provenant des fragments de fission de l'$^{239}U^*$. Mathématiquement, cela se traduit selon l'équation :

$$N^{mes}_{casc}(E^*) = N^{mes}_{casc,tot}(E^*) - N^{mes}_{casc,f,tot}(E^*) \tag{D.12}$$

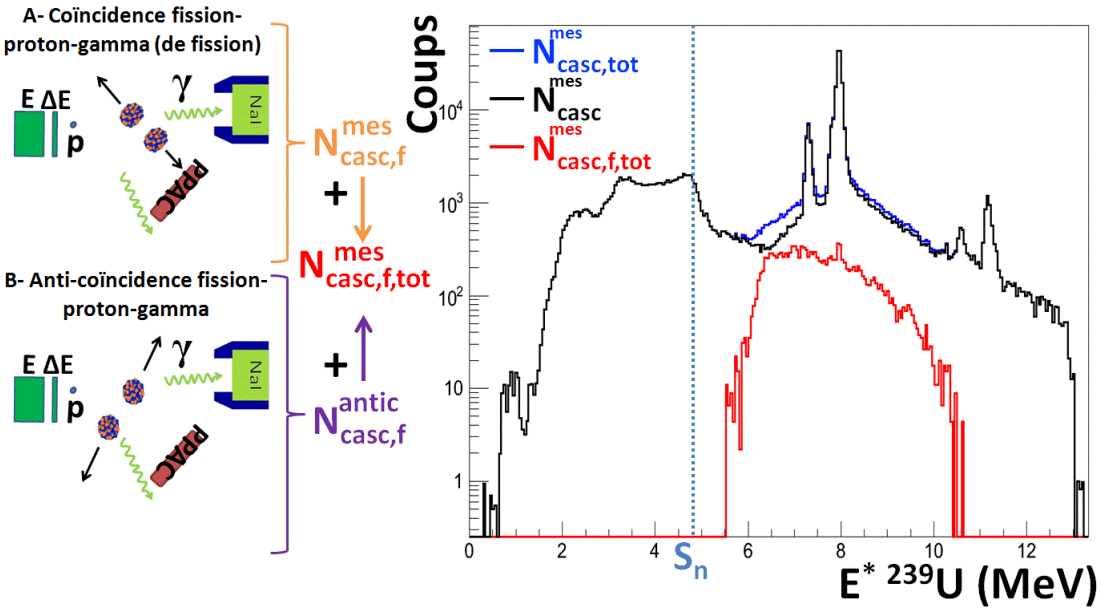


Figure D.24.: Spectre des coïncidences proton-gammas N^{mes}_{casc} émis par l'$^{239}U^*$ obtenu après soustraction des gammas provenant des fragments de fission pour la somme des pistes à 126°.

Avec :

- $N^{mes}_{casc}(E^*)$ le spectre mesuré de cascades gamma émises par l'$^{239}U^*$.
- $N^{mes}_{casc,tot}(E^*)$ le spectre total mesuré de cascades gamma (émises par l'$^{239}U^*$ et les fragments de fission).
- $N^{mes}_{casc,f,tot}(E^*)$ le spectre total mesuré de cascades gamma émises par les fragments de fission de l'$^{239}U^*$.

Les gammas du spectre $N^{mes}_{casc,f,tot}(E^*)$ proviennent de deux contributions distinctes, comme l'illustre la figure D.24 (à gauche). En effet, ils peuvent provenir soit du nombre de gammas issus de la triple coïncidence fission-proton-gamma $N^{mes}_{casc,f}$ (cas A), soit du nombre de gammas issus de ce que l'on nommera l'anti-coïncidence fission-proton-gamma $N^{antic}_{casc,f}$ (cas B). En effet, les détecteurs PPACs ne couvrent qu'une fraction de l'espace et ne peuvent, par conséquent, pas détecter tous les fragments émis. Dans ce cas précis, les gammas détectés des fragments de fission sont indiscernables de ceux émis par l'$^{239}U^*$. Il existe cependant un moyen de s'affranchir de cette contribution parasite. En effet, le spectre des anti-coïncidences fission-proton-gamma $N^{antic}_{casc,f}(E^*)$ peut s'exprimer en fonction du spectre mesuré des coïncidences proton-gamma-fission $N^{mes}_{casc,f}(E^*)$ selon l'équation :

$$N^{antic}_{casc,f}(E^*) = \frac{1-\varepsilon_f(E^*)}{\varepsilon_f(E^*)}.N^{mes}_{casc,f}(E^*) \tag{D.13}$$

Avec $\varepsilon_f(E^*)$ l'efficacité de détection des fragments de fission qui dépend de l'énergie d'excitation du noyau composé formé et qui sera déterminée en détail à la section D.3.1. Ainsi le spectre $N^{mes}_{casc,f,tot}(E^*)$ de l'équation D.12 s'exprime donc :

$$N^{mes}_{casc,f,tot}(E^*) = N^{antic}_{casc,f}(E^*) + N^{mes}_{casc,f}(E^*) = \frac{N^{mes}_{casc,f}(E^*)}{\varepsilon_f(E^*)} \tag{D.14}$$

Le spectre $N^{mes}_{casc,f}(E^*)$ a été obtenu en appliquant les mêmes conditions en temps et en énergie sur les gammas que pour l'obtention du spectre mesuré de cascades gamma totales $N^{mes}_{casc,tot}$ mais en considérant la triple coïncidence fission-proton-gamma. La soustraction décrite mathématiquement par l'équation D.12 est illustrée par la figure D.24 (à droite) et permet d'obtenir le spectre final $N^{mes}_{casc}(E^*)$ des coïncidences proton-gammas émis par l'$^{239}U^*$. Notons que le nombre de coups augmente à partir d'environ 6,3 MeV, c'est à dire à partir des énergies où le seuil de 1,5 MeV appliqué ne permet plus de supprimer tous les gammas de la réaction $(d, pn\gamma)$. Les spectres de coïncidence proton-gammas émis par l'$^{239}U^*$ ont également été déterminés pour tous les autres angles de détection du proton.

D.2. Analyse des réactions $(^3He, d)$, $(^3He, t)$ et $(^3He, ^4He)$

Au départ, il n'avait pas été prévu d'utiliser un autre faisceau que celui de deuton. Mais comme la collecte de données a été jugée suffisante, il a été décidé de réaliser une mesure additionnelle en utilisant un faisceau d'^3He sur la cible d'uranium durant les derniers jours qui ont été accordés pour cette expérience. La méthode d'analyse des réactions impliquant le faisceau d'^3He est similaire à celle décrite précédemment concernant le faisceau de deuton. Pour cette raison, seuls seront développés les points d'analyse pour lesquels il existe des différences de traitement notables.

D.2.1. Sélection des voies de réaction

La figure D.25 représente la perte d'énergie ΔE de l'éjectile traversant une piste d'un télescope en fonction de l'énergie résiduelle E mesurée pour la réaction $^3He + ^{238}U$ à 24 MeV. L'utilisation d'un faisceau d'^3He permet d'accéder à davantage de voies de réaction que pour le faisceau de deuton. En effet, la détection des éjectiles $p, d, t, ^3He$ et ^4He attestent de la formation des noyaux $^{240}Np^*$, $^{239}Np^*$, $^{238}Np^*$, $^{238}U^*$ et $^{237}U^*$, respectivement. La présence de trop nombreux contaminants sur toute la plage énergétique de la voie $(^3He, p)$ rend trop difficile la suppression de la contamination ainsi que l'extraction des spectres associés au $^{240}Np^*$. De plus, pour cette voie de réaction, une partie des protons n'est pas arrêtée dans la partie E du télescope. L'énergie de ces protons n'est donc pas connue et ils sont difficilement discernables des protons arrêtés de forte énergie. Par conséquent cette voie de réaction est écartée. La voie de réaction $(^3He, ^3He)$ est

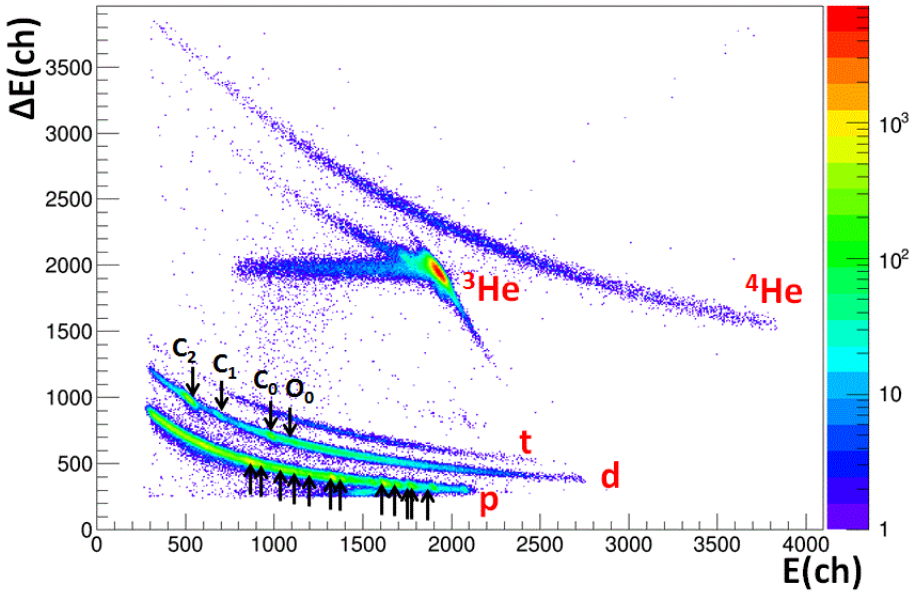


Figure D.25.: Perte d'énergie des éjectiles dans les deux parties du télescope ΔE-E pour une piste (à 126°) impliquant le faisceau d'^{3}He et la cible d'^{238}U. Les flèches noires signalent la présence d'une contamination venant de la réaction sur un noyau léger de ^{12}C, ^{13}C ou ^{16}O.

caractérisée par la présence d'une zone à la statistique intense qui est attribuée à la réaction élastique $^{3}He + ^{238}U \rightarrow ^{3}He + ^{238}U$. Cette voie est également mise de côté puisque l'énergie d'excitation des noyaux $^{238}U^{*}$ formés est trop faible pour étudier les différentes voies de désexcitation. Les trois autres voies de réaction $(^{3}He, d)$, $(^{3}He, t)$ et $(^{3}He, ^{4}He)$ ne possèdent pas ces inconvénients et peuvent donc être étudiées.

D.2.2. La question de la calibration des SiRi

D.2.2.1. Méthode

Tout comme pour le faisceau de deuton, une mesure expérimentale avec une cible de plomb a été réalisée avec le faisceau d'^{3}He afin d'utiliser les états discrets bien connus pour calibrer chacune des voies de réactions. Malheureusement, le gain de l'amplificateur utilisé pour la détection des éjectiles a été mal réglé, empêchant la détection des états d'énergies du plomb qui auraient pu être utilisés pour la calibration. De plus, rien ne garantissait le succès de la calibration en utilisant cette méthode comme c'était le cas avec la réaction (d, p) où la cause a été attribuée à une mauvaise définition de l'énergie du faisceau de deuton.

La calibration avec la cible de plomb n'étant pas possible, il convient de trouver une solution alternative. La présence de contamination pour la voie $(^{3}He, d)$ permet d'utiliser la même méthode de calibration que pour la voie (d, p) décrite à la section D.1.1.4. Il

n'est pas possible de l'appliquer pour des réactions que l'on nommera "propres" pour lesquels aucune forme de contamination n'est à déplorer comme pour les voies $(^3He, t)$ et $(^3He,^4 He)$. Cependant, le comportement des télescopes est similaire vis à vis de la détection d'éjectiles de même nombre de charge Z. Les coefficients de calibration de la voie $(^3He, d)$ peuvent ainsi raisonnablement être utilisés pour la voie de transfert $(^3He, t)$. Pour la voie $(^3He,^4 He)$, deux points de calibration peuvent être utilisés. Le premier est le point représentant la diffusion élastique du faisceau sur la cible d'^{238}U. Pour obtenir le second, une mesure expérimentale supplémentaire de quelques heures a été effectuée sur une cible de ^{90}Zr afin d'obtenir le point représentant la diffusion élastique $^3He +^{90} Zr \rightarrow^3 He +^{90} Zr$.

D.2.2.2. Le problème de "l'effet levier"

Malheureusement, aucune des voies de calibration n'a été calibré correctement en utilisant la méthode décrite précédemment, ce qui peut sembler surprenant, surtout lorsqu'on étudie le cas de la voie $(^3He, d)$ qui est très similaire à celui de la réaction $^{238}U(d, p)$. En effet, après analyse, le seuil de fission de première chance pour les trois noyaux étudiés se situe environ 1 MeV au-delà du seuil des données neutroniques. Il est théoriquement possible que le seuil de fission soit décalé vers des énergies d'excitation plus hautes si la distribution de spin peuplée au cours des réactions de transfert est centrée sur des valeurs plus élevées que celle peuplée lors des réactions induites par neutron. Cependant, ce résultat n'a jamais été observé jusqu'à présent pour des réactions similaires. C'est par exemple le cas de Gavron et al [Gav76], Petit et al., [Pet04] ou encore Kessedjian et al. [Kes10] qui ont observé des seuils de fission de première chance très proches de ceux des voies induites par neutron correspondantes pour les réactions $^{238}U(^3He, t)$,$^{232}Th(^3He, p)$ et $^{243}Am(^3He,^4 He)$, respectivement.

Pour comprendre la raison de ce problème rencontré, nous reprenons les données de la voie $^{238}U(d, p)$ et testons différentes calibrations. La figure D.26 représente le spectre singles pour la voie $^{238}U(d, p)$ obtenu pour différentes calibrations. En haut de la figure D.26 est représentée une illustration des droites de calibration de la perte d'énergie de l'éjectile dans ΔE pour différents cas. La courbe bleue est un ajustement linéaire de cinq points contaminants $(O_0, C_0, C_1, C_4, C_5)$ considérés pour l'analyse de la voie $^{238}U(d, p)$, il s'agit donc de la calibration de référence. La droite rouge ne prend en compte que trois points (C_1, C_4, C_5) alors que la courbe verte n'en considère que deux (C_4, C_5). Une calibration est d'autant plus précise que le nombre de points considéré est important et lorsqu'ils couvrent une large gamme d'énergie d'excitation. Les trois cas de calibration ont en commun les points C_4 et C_5, il semble donc cohérent que les spectres singles coïncident dans la région énergétique voisine à ces points. Par contre, on observe un décalage qui augmente entre les spectres à basse énergie, qui est directement lié au nombre et à la précision des points contaminants pris en compte par l'ajustement linéaire : c'est "l'effet levier".

La description de ce phénomène est simplifiée ici et n'a pour objectif que d'en expliquer le principe puisqu'une calibration complète requiert également les valeurs des pertes d'énergies dans E et pas uniquement dans ΔE. De plus, l'écart à la linéarité des points

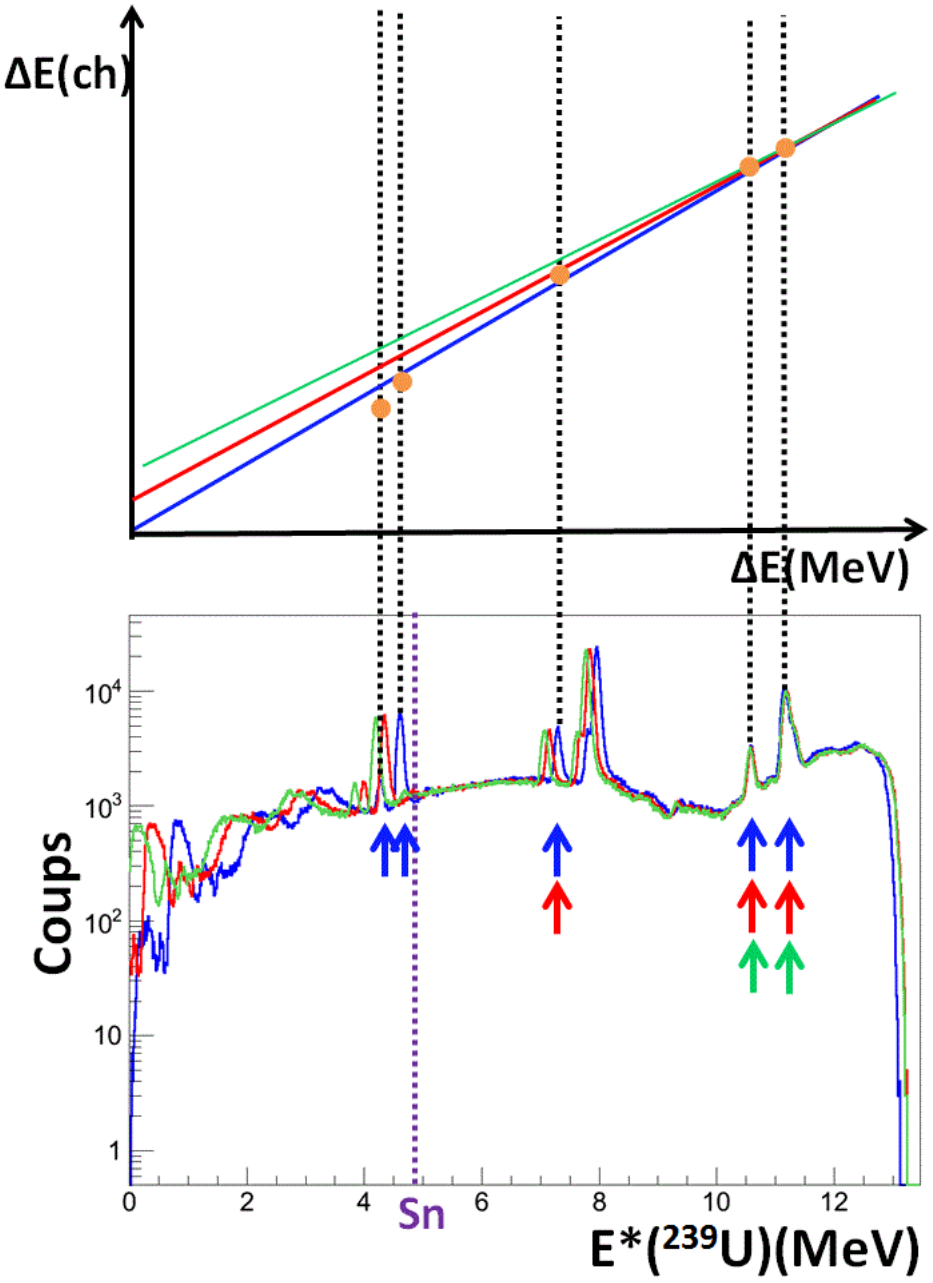


Figure D.26.: Illustration du principe de l'effet levier. Spectres singles obtenus pour différentes calibrations pour la réaction $^{238}U(d,p)$. Le spectre bleu est identique à celui de la figure D.10 et représente donc la calibration de référence. Les points de calibration pris en compte dans chaque cas sont symbolisés par les flèches de couleur

contaminants de la courbe bleue a été exagéré pour mieux illustrer le problème. Cependant, cette description exprime clairement qu'un manque de points de calibration sur une large gamme en énergie d'excitation peut représenter un fort handicap pour calibrer une réaction. Dans le cas de la réaction $(^3He, d)$, les quatre contaminants présents (voir figure D.26) correspondent à des $E^*(^{239}Np)$ de plusieurs MeV au dessus de S_n. La région pour les hautes $E^*(^{239}Np)$ est ainsi calibrée correctement, au contraire de la région proche de S_n, qui subit l'influence de l'effet levier par manque de contaminants à ces énergies.

L'effet levier est donc une conséquence du manque de points de calibration sur une large gamme en énergie, mais aussi de la mauvaise résolution en énergie des pics contaminants. En effet d'après l'équation D.5, l'impact de l'incertitude de l'angle de détection θ_{ej} sur l'énergie déposé par l'éjectile (et donc sur l'énergie d'excitation du noyau composé) sera d'autant plus élevé que la masse du noyau de recul est faible. C'est pourquoi il est en général préférable d'utiliser des états du plomb plutôt que des états de noyaux contaminants légers pour la calibration, puisque ces derniers possèdent une moins bonne résolution en énergie. Cette incertitude sur les énergies ΔE et E déposées est également responsable de l'effet levier lors de l'extrapolation des droites de calibration. La méthode utilisée pour calibrer la réaction $(^3He,^4 He)$ n'a pas non plus fonctionnée à cause de l'utilisation de deux points de calibration seulement. Il n'est pas exclu que l'impossibilité de calibrer correctement la réaction ne soit pas également lié en parti à une mauvaise définition du faisceau comme cela avait été le cas pour la réaction $^{208}Pb(d, p)$.

A cause de l'effet levier, une procédure itérative est mise en place afin de calibrer le seuil de fission de première chance des réactions $(^3He, t)$ et $(^3He,^4 He)$ à celui extrait des données des réactions neutroniques correspondantes. Concernant la réaction $(^3He, d)$, les données sont calibrées sur la chute de la probabilité de fission qui survient au S_n. En effet, pour les noyaux fissiles comme le ^{239}Np, la probabilité de fission est élevée avant S_n, puis elle chute dès l'ouverture de la voie de désexcitation par émission neutron.

Cette procédure de recalibration consiste à modifier manuellement les coefficients de calibration des droites ΔE et E jusqu'à ce que les seuils de fission des réactions de transfert et des réactions induites par neutron coïncident à la résolution près du détecteur. Comme l'illustre la figure D.26, cette méthode de recalibration se résume à l'application d'un décalage non linéaire du spectre singles et des spectres des coïncidences. L'utilisation de cette procédure est justifiée grâce aux résultats préliminaires d'une expérience réalisée à l'IPN d'Orsay en 2015 faisant intervenir les mêmes réactions de substitution. Au cours de cette expérience, la définition de l'énergie du faisceau d'^3He est très précise, et les télescopes ont pu être calibrés de façon indépendante avec la réaction $^3He +^{208} Pb$. Les seuils de fission et d'émission gamma pour les trois voies de réaction étudiées coïncident parfaitement avec les seuils des mesures induites par neutron. Ces résultats valident ainsi la méthode de recalibration exploitée pour les réactions impliquant l'utilisation du faisceau ^3He.

D.2.3. Corrections

D.2.3.1. Suppression des réactions sur le support et les contaminants de la cible

Pour les réactions $(^3He, t)$ et $(^3He,^4 He)$, il n'y a pas de contamination à soustraire au contraire de la réaction $(^3He, d)$. Ses états contaminants interviennent à des énergies d'excitation de plusieurs MeV au dessus de S_n dans le spectre singles et n'influencent donc nullement la probabilité d'émission gamma. Les contaminants sont soustraits directement à leur base par interpolation de la même manière que pour la voie $^{238}U(d, p)$. Le spectre obtenu représente alors une très bonne approximation de ce qu'il serait sans contamination.

D.2.3.2. Suppression des gammas parasites

Nous avons constaté à la section D.1.3.1 que la majorité des coïncidences fortuites provenaient de la détection d'un contaminant. Pour les trois réactions étudiées ici, l'absence de contaminant dans la région énergétique d'intérêt limite suffisamment la présence de coïncidences fortuites pour qu'elles soient négligées.

La largeur de la fenêtre en temps des coïncidences gamma pour les réactions $(^3He, d)$ et $(^3He, t)$ est identique à celle utilisée pour la voie (d, p) : 11 ns. Comme nous l'avons vu au paragraphe D.1.3.2, la grande majorité des gammas détectés et issus de la capture neutronique des NaI est éliminée par temps de vol et par le seuil sur l'énergie des gammas E_γ^{seuil} fixé. Concernant la réaction $(^3He,^4 He)$, la statistique de réaction est très faible comme le suggère la figure D.25. C'est pourquoi la largeur de la fenêtre en temps des coïncidences à été élargie à environ 38 ns (120 ch), afin de capter suffisamment de gammas pour pouvoir étudier les probabilités de décroissance, au risque de détecter davantage de gammas provenant de la capture neutronique des NaI. Il faut donc garder à l'esprit que pour des raisons évidentes de statistique insuffisante, la probabilité d'émission gamma de l'^{237}U sera légèrement surestimée de l'ordre de quelques pourcents comme on le montrera à la section D.5.

Pour des raisons de statistique, le seuil énergétique de détection des gammas E_γ^{seuil} pour les réactions $(^3He, d)$, $(^3He, t)$ et $(^3He,^4 He)$ a été fixé à 1 MeV, 1 MeV et 1,5 MeV, respectivement. On rappelle que le seuil d'énergie gamma qui est fixé permet non seulement d'éliminer les gammas émis après émission d'un neutron, mais également de s'affranchir d'une majorité de gammas de capture des neutrons par les NaI qui n'auraient pas été éliminés par temps de vol. Comme la fission démarre à plus haute énergie d'excitation pour l'$^{237}U^*$ que pour les autres noyaux, il est nécessaire d'imposer un seuil de détection des gammas plus élevé pour pouvoir comparer les probabilités gamma et de fission à une même énergie d'excitation.

Enfin, les gammas détectés provenant des fragments de fission ont été soustraits comme décrit au paragraphe D.1.3.2. Cette correction introduit des incertitudes plus importantes quant à la connaissance des probabilités d'émission gamma, spécialement pour les réactions à faible statistique. Le détail des calculs d'incertitudes sera donnée à la section D.4.

D.2.4. Obtention des spectres singles et de coïncidences

La figure D.27 représente les spectres singles $N_s(E^*)$, de coïncidences fission $N_{cf}(E^*)$ et de coïncidences gamma $N_{c\gamma}(E^*)$ (qu'on a renommé $N^{mes}_{casc}(E^*)$ maintenant que toutes les corrections ont été appliquées) pour les noyaux composés ^{239}Np, ^{238}Np et ^{237}U, de haut en bas. De manière générale, la statistique de réaction relativement faible comparativement à la voie (d,p) a imposé l'utilisation d'un pas en énergie large de 200 keV par point expérimental (contre 50 keV pour la voie (d,p)). De cette manière la statistique s'élève à quelques centaines d'évènements par point en énergie dans la région d'intérêt pour la fission, ce qui réduit fortement les incertitudes de mesures comme nous le verrons plus tard.

De son côté, le nombre d'évènements de coïncidence gamma reste peu élevé, surtout à cause de la soustraction des gammas de fission. Cela induit une incertitude de mesure non négligeable mais qui ne peut être contournée. On observe sur les différents spectres que la chute des coïncidences gamma (en plus des coïncidences fission pour le noyau fissile ^{239}Np) intervient au S_n du noyau en question. Dans le domaine d'énergie d'intérêt, on observe également une structure généralement lisse du spectre des singles qui reflète la haute densité de niveaux des noyaux étudiés. Pour l'^{237}U cependant, on remarque une structure très marquée autour de 7-8 MeV d'énergie d'excitation. Cette structure n'a pas été observée dans le spectre singles de l'^{237}U extrait de l'analyse préliminaire de l'expérience à l'IPN d'Orsay. On peut néanmoins affirmer que cette forme ne provient pas de la réaction avec un noyau léger puisque qu'elle ne subit pas de déplacement cinématique selon l'angle de détection de l'éjectile. Cette structure ne provient probablement pas de réactions avec des contaminants de la cible d'^{238}U puisqu'elle est isotopiquement pure, elle peut en revanche provenir de réactions avec des contaminants plus lourd du dispositif expérimental environnant. On rappelle que pour l'^{237}U, la probabilité de désexcitation gamma est étudiée jusqu'à S_n + 1,5 MeV, soit environ 6,6 MeV d'énergie d'excitation et par conséquent, seule la probabilité de fission sera concernée par cette structure.

D.3. Calcul des efficacités

Maintenant que les termes E^*, $N_{c\chi}(E^*)$ et $N_s(E^*)$ de l'équation D.1 ont été déterminés pour les quatre noyaux étudiées, seul un terme reste à définir pour extraire les probabilités de fission et d'émission gamma : il s'agit de l'efficacité de détection $\varepsilon_\chi(E^*)$ qui est propre à chacune des voies de désexcitation. Comme il est impossible de détecter tous les fragments de fission ou tous les gammas d'intérêt émis dans tout l'espace, les probabilités doivent être corrigées de l'efficacité de détection qui représente en fait la proportion des particules détectées par rapport à celles émises dans tout l'espace.

D.3.1. Efficacité de fission

D.3.1.1. Définition

L'importance de la connaissance de l'efficacité de fission est double. D'abord elle est nécessaire pour obtenir la probabilité de fission, mais pas seulement. En effet, comme

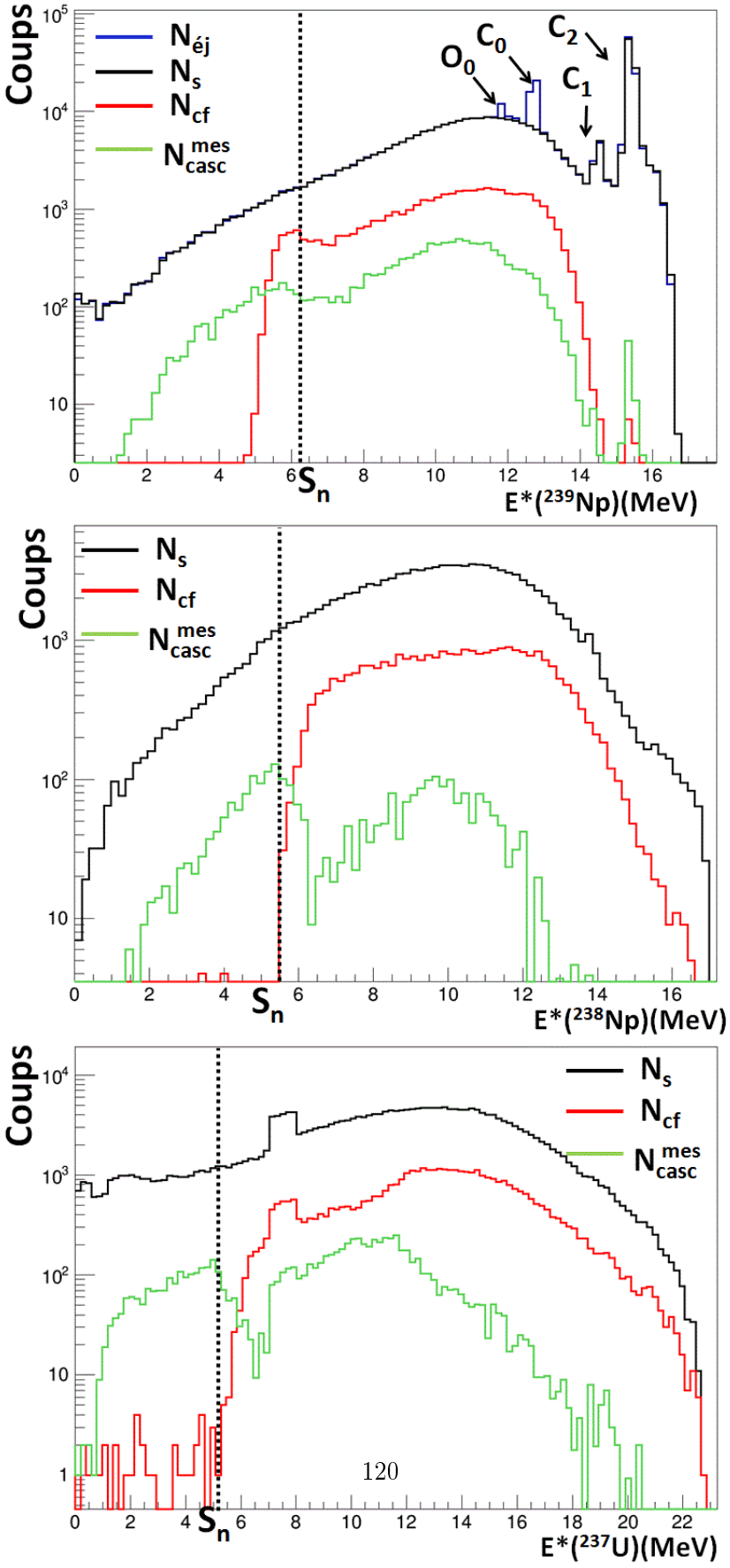


Figure D.27.: Spectres singles $N_s(E^*)$, de coïncidences fission $N_{cf}(E^*)$ et de coïncidences gammas $N_{casc}^{mes}(E^*)$ pour les noyaux composés ^{237}U, ^{238}Np et ^{239}Np. La ligne en pointillé représente l'énergie de séparation du neutron.

le montre l'équation (D.13), elle est également indispensable pour estimer le nombre de gammas de fission à soustraire des gammas totaux détectés afin d'en déduire le nombre provenant du noyau d'intérêt. L'efficacité totale de détection de fission $\varepsilon_f^{tot}(E^*)$ dépend de deux effets :

- L'efficacité géométrique du détecteur de fragments de fission
- L'émission anisotrope dans l'espace des fragments de fission qui dépend de l'énergie cinétique, de l'angle et du moment angulaire du noyau fissionnant.

Chacun de ces effets sera développé par la suite.

D.3.1.2. Efficacité géométrique

L'efficacité géométrique de fission se détermine expérimentalement avec l'aide d'un noyau dont les fragments sont émis isotropiquement dans l'espace (cf ANNEXE C). Pour cela il doit fissionner spontanément sans effet de recul et son moment angulaire doit être 0^+. Le ^{252}Cf remplit ces deux conditions. L'efficacité géométrique de fission se mesure expérimentalement comme le rapport du nombre de fragments détectés N_d sur le nombre de noyaux émis N_e dans l'espace :

$$\varepsilon_{géo} = \frac{N_d}{N_e} \tag{D.15}$$

Le nombre de fragments émis se déduit à partir de l'activité de la cible de ^{252}Cf. Celle-ci a été mesurée plusieurs mois après l'expérience d'Oslo comme étant égale à $2803^{+}_{-}20$ Bq. Pour connaître l'activité de cette même cible au jour de l'expérience, nous appliquons la loi de décroissance radioactive :

$$A_{^{252}Cf}(t_{Oslo}) = A(t_0).e^{\frac{ln2}{T_{1/2}}(t_0 - t_{Oslo})} \tag{D.16}$$

Avec :

- $A(t_{Oslo})$ l'activité de la cible de ^{252}Cf mesurée au temps t_{Oslo}, c'est à dire lors de l'expérience d'Oslo.
- $A(t_0)$ l'activité de la cible de ^{252}Cf mesurée au temps t_0 (postérieur à t_{Oslo}).
- $T_{1/2}$ la période radioactive du ^{252}Cf .

L'analyse numérique permet d'obtenir $A_{^{252}Cf}(t_{Oslo}) = 3216^{+}_{-}20$ Bq. Puisque le ^{252}Cf fissionne spontanément à 3,092 % et qu'une fission produit deux fragments de fission, on déduit que le nombre de fragments émis N_e est de 198,8 fragments par seconde. Sachant que le nombre de fragments détectés est de 40,87 fragments par seconde, l'efficacité géométrique est donc de 20,56 % de 4π (dans l'espace entier). Or, pour des raisons de conservation de l'impulsion, les deux fragments sont émis dans l'espace dans des directions opposées. Une distinction est faite entre le nombre de fissions et le nombre de fragments de fission. Dans l'équation D.1, le terme N_{c_f} représente le nombre de fissions

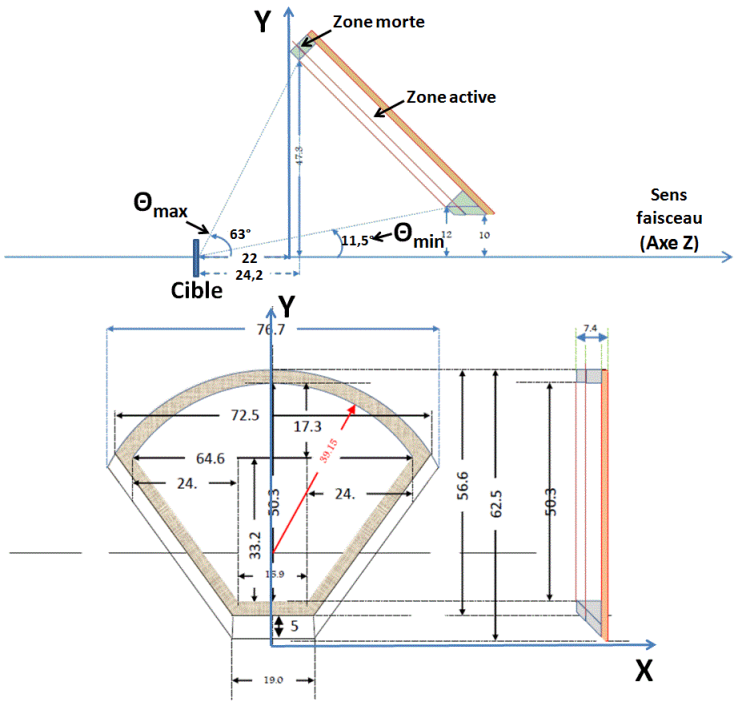


Figure D.28.: Dimensions d'un PPAC et positionnement par rapport à l'axe du faisceau. Les cibles d'^{238}U et de ^{252}Cf sont placées à 22 mm de la projection d'un PPAC sur l'axe Z.

détectées, l'efficacité géométrique de détection d'un fragment de fission est donc deux fois plus importante et s'élève à $41,1\,\% \pm 0,26$ de 2π (dans le demi-espace), l'erreur de l'efficacité géométrique est donc inférieure au pourcent en relatif.

Nous avons développé un programme de simulation monte carlo de détermination de l'efficacité géométrique, qui peut aussi en prendre en compte la contribution de l'émission anisotrope des fragments afin d'en déduire l'efficacité totale de fission. Pour réaliser une simulation, la géométrie complète des quatre détecteurs PPACs montrée sur la figure D.28 est reproduite dans un repère en trois dimensions. La cible de ^{252}Cf est placée à 22 mm de la projection d'un PPAC sur l'axe Z.

Au centre du repère utilisé, on simule plusieurs millions de trajectoires rectilignes (jouant le rôle d'évènements de fission) émises isotropiquement dans l'espace à partir d'un noyau fissionnant possédant une énergie de recul nulle. La figure D.29 représente les résultats d'une telle simulation. En haut à gauche sont représentés les quatre PPACs du dispositif expérimental. Chaque point noir correspond à l'intersection entre la trajectoire d'un fragment et le plan du PPAC. La direction du faisceau est celle des Z croissants. Le graphique en haut à droite exprime le nombre de trajectoires interceptées en fonction de l'angle θ par rapport à l'axe du faisceau. On constate après simulation que θ prend des valeurs comprises entre 11,5° et 63°, exactement comme il est indiqué sur la figure

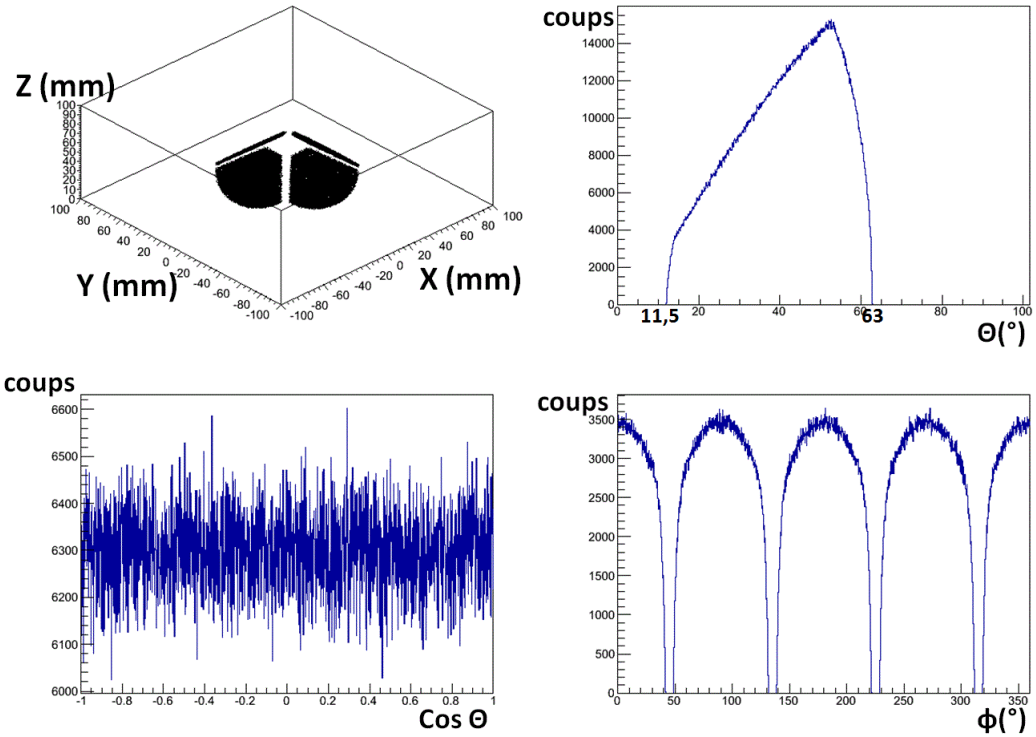


Figure D.29.: Résultats de la simulation Monte Carlo du détecteur de fission. En haut à gauche : interception des trajectoires avec les plans des PPACs. En haut à droite : angle θ couvert par les détecteurs. En bas à gauche : nombre d'évènements émis en fonction de $cos\theta$. En bas à droite : angle ϕ couvert par les détecteurs.

D.28. Le graphique en bas à droite représente le nombre de fragments de fission détectés par les quatre PPACs en fonction de l'angle ϕ qui correspond à l'angle par rapport à l'axe X après projection de la trajectoire dans le plan XOY. Chaque PPAC couvre un interval $\Delta\phi$ de détection d'environ 80°. Enfin en bas à gauche est représenté le nombre d'évènements en fonction de $cos\theta$ et est directement relié à la fonction d'anisotropie des fragments de fission qui sera développée à la section D.3.1.3. Comme dit précédemment, les fragments du ^{252}Cf sont émis de manière isotrope dans tout l'espace dans le cadre de la simulation ce qui n'est à priori pas le cas des noyaux étudiés comme nous le verrons par la suite.

La simulation donne une valeur de l'efficacité géométrique de 42,8 % ce qui est bien supérieur à la valeur expérimental de 41,1 %. Or en pratique, il est très probable que le positionnement et les dimensions des PPACs ne respecte pas rigoureusement celles définies par le plan initial (figure D.28), ce qui peut altérer la valeur de l'efficacité géométrique. Pour prendre en compte cet effet, une erreur sur la distance entre la cible et les PPACs est introduite dans la simulation afin reproduire l'efficacité géométrique expérimentale. L'écart par rapport à la valeur expérimentale de 41,1% est corrigé en introduisant un décalage de 4 % sur la disposition des PPACs.

D.3.1.3. Anisotropie des fragments de fission

Dans notre expérience, les fragments issus de la fission du noyau composé sont "entrainés" par l'énergie de recul de celui-ci, provoquée par l'interaction avec le faisceau incident. Pour prendre en compte ce phénomène, il faut passer d'une simulation purement géométrique où on a seulement considéré l'interception de trajectoires dans tout l'espace avec les plans des détecteurs, à une simulation qui prend en compte la cinématique des réactions de transfert et aussi la cinématique de la fission.

Dans un repère sphérique, la valeur des composantes du vecteur vitesse dans le référentiel du laboratoire du noyau fissionnant $\overrightarrow{V_{rec}^{lab}}$ s'exprime selon les équations suivantes :

$$\begin{cases} \overrightarrow{V_{Xrec}^{lab}} = \sqrt{\frac{2E_{rec}}{M_{rec}}} sin\Theta_{rec} cos\varphi \\ \overrightarrow{V_{Yrec}^{lab}} = \sqrt{\frac{2E_{rec}}{M_{rec}}} sin\Theta_{rec} sin\varphi \\ \overrightarrow{V_{Zrec}^{lab}} = \sqrt{\frac{2E_{rec}}{M_{rec}}} cos\Theta_{rec} \end{cases} \quad \text{(D.17)}$$

Avec :

- E_{rec} et M_{rec} l'énergie cinétique et la masse du noyau de recul fissionnant
- θ_{rec} l'angle du noyau de recul imposé par les calculs de cinématique
- φ l'angle du noyau de recul généré aléatoirement par la simulation

Le code GEF (GEneral Fission)[GEF] fournit les énergies cinétiques et les masses des fragments dans le centre de masse (CM) du système où les fragments sont émis dans des directions opposées. Les angles θ et φ des fragments dans le centre de masse du système sont obtenus à partir d'un tirage aléatoire suivant des distributions angulaires.

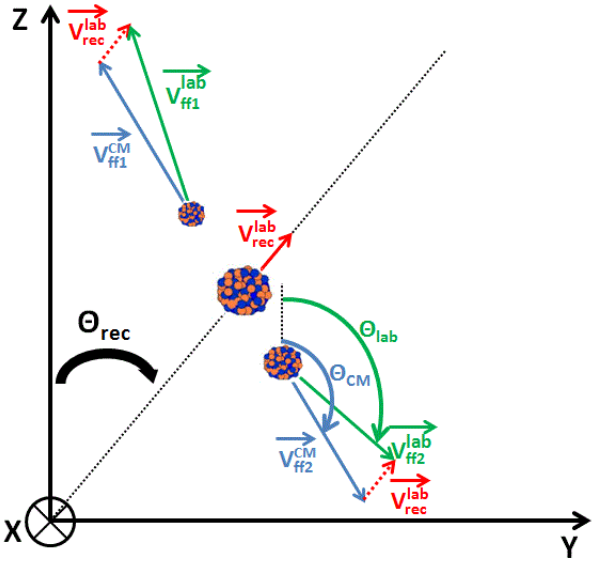


Figure D.30.: Illustration de l'effet de recul du noyau fissionnant dans le plan YOZ.

Il est ainsi possible de simuler la vitesse dans le centre de masse $\overrightarrow{V_{ff}^{CM}}$ de chacun des fragments de fission à partir du code GEF. La valeur du vecteur vitesse d'un fragment dans le référentiel du laboratoire $\overrightarrow{V_{ff}^{lab}}$ se détermine à l'aide de l'équation suivante :

$$\overrightarrow{V_{ff}^{lab}} = \overrightarrow{V_{ff}^{CM}} + \overrightarrow{V_{rec}^{lab}} \tag{D.18}$$

La figure D.30 illustre comment la trajectoire d'un fragment de fission est modifiée par l'énergie de recul du noyau fissionnant. La contribution de l'effet d'entrainement du noyau fissionnant dans le calcul de l'efficacité totale de fission a été prise en compte dans les simulations pour les quatre noyaux étudiés. Elle est associée dans chaque cas à une augmentation de l'efficacité totale de l'ordre de 5-10% en relatif dans le demi-espace 2π. Comme l'énergie et l'angle de recul du noyau fissionnant dépendent de l'énergie d'excitation de ce dernier, cette correction est recalculée pour chaque point en énergie utilisé.

Les fragments de fission provenant des noyaux étudiés ne sont pas émis isotropiquement dans l'espace. On représente généralement ce phénomène d'émission anisotrope des fragments à l'aide de la fonction d'anisotropie W définie comme [VDB12] :

$$W(\theta) = 1 + \alpha.cos^2(\theta) \tag{D.19}$$

Où α est le facteur d'anisotropie qui est égal à $\frac{W(0°)}{W(90°)} - 1$. Le facteur d'anisotropie α est une manière plus intuitive de caractériser l'anisotropie d'émission des fragments. Un facteur $\alpha < 0$ signifie qu'une proportion plus grande de fragments (par unité de surface) est émise orthogonalement à l'axe du faisceau. Au contraire, $\alpha > 0$ signifie

	α_{moyen}	α_{min}	α_{max}	*Référence*
$^{232}Th(^{3}He,p)$	0,45	0,3	0,7	[Pet02]
$^{232}Th(^{3}He,d)$	0,25	0,1	0,7	[Pet02]
$^{238}U(d,p)$	0,6	0,2	1	[Bri70]

Table D.3.: Valeurs expérimentales approximatives du facteur d'anisotropie α de deux réactions de transfert mesurées par M.Petit et al [Pet02].

qu'une proportion plus grande de fragments (par unité de surface) est émise dans l'axe du faisceau. Malheureusement ce facteur est, pour la plupart des réactions que nous avons étudiées peu, voire pas du tout connu car très peu de mesures expérimentales dédiées à leur mesure existent à ce jour.

En effet, la situation expérimentale idéale est de disposer de détecteurs de fragments de fission segmentés capables de mesurer la distribution angulaire des fragments mais les PPACs utilisés ne possèdent pas ces caractéristiques. Pour la réaction $^{238}U(d,p)$, une mesure du facteur d'anisotropie a été réalisée par Britt et Cramer [Bri70] en 1970 pour une plage d'énergie d'excitation du noyau composé allant jusqu'à 1 MeV au dessus de la barrière de fission. La mesure a été faite avec un faisceau de deuton de 18 MeV, mais nous supposerons que l'anisotropie est la même à 15 MeV ce qui semble raisonnable vu que les deux énergies sont très proches. Leur mesure permet d'extraire des valeurs du facteur α situées entre 0,2 et 1 pour une moyenne d'environ 0,6 , même s'il est difficile de déterminer une réelle tendance à cause des fortes incertitudes de mesures. Ces valeurs sont prises pour référence pour le calcul de l'effet de l'anisotropie des fragments sur l'efficacité. Pour les trois autres noyaux obtenus par réaction de transfert avec le faisceau d'^{3}He, aucune mesure du facteur α n'existe actuellement à notre connaissance. Petit et al [Pet02] ont mesuré le facteur d'anisotropie sur une plage d'énergie d'excitation d'environ 10 MeV pour les réactions $^{232}Th(^{3}He,p)$ et $^{232}Th(^{3}He,d)$. Le tableau D.3 rassemble les valeurs minimales, moyennes, et maximales de α selon la réaction.

Une fois encore, le facteur α restera inconnu pour les noyaux étudiés tant que la mesure expérimentale ne sera pas faite. Cependant le tableau D.3 donne certains renseignements généraux. On constate en effet des valeurs relativement proches pour les trois réactions. Il n'est donc à priori pas déraisonnable de supposer que les réactions étudiées possèdent des valeurs de facteur α_{moyen} assez proches de celles mesurées par Petit et al, surtout que le noyau cible d'^{238}U utilisé est pair-pair et son état fondamental un 0^{+}, tout comme le noyau cible de ^{232}Th. De plus, la mesure a été réalisée avec le même type de faisceau, et avec le même éjectile pour un des cas. La contribution de l'anisotropie des fragments dans le calcul de l'efficacité totale de fission a été prise en compte dans les simulations en considérant $\alpha_{moyen}(^{239}U) = 0,6$ et $\alpha_{moyen}(^{237}U,^{238}Np,^{239}Np) = 0,3$ ce qui a conduit à une augmentation de l'efficacité totale de l'ordre de 5-10% en relatif. Au final, l'efficacité de fission totale est proche de 47-48 % dans la plage énergétique d'étude et selon le noyau étudié.

D.3.1.4. Incertitudes sur l'efficacité de fission

Tous les ingrédients pour déterminer l'efficacité totale de fission à toutes les énergies d'excitation du noyau fissionnant ont été passés en revue. La principale source d'incertitude du calcul provient de la méconnaissance de l'anisotropie d'émission des fragments due au moment angulaire du noyau fissionnant pour les quatre réactions étudiées. L'incertitude sur l'anisotropie a été estimée en comparant les efficacités maximales, moyennes et minimales calculées respectivement avec α_{max}, α_{moyen} et α_{min}. Les valeurs maximale et minimale du facteur d'anisotropie considérées pour l'$^{239}U^*$ sont celles présentées dans le tableau D.3. Pour les noyaux ^{237}U, ^{238}Np et ^{239}Np que nous étudions également, nous avons considéré $\alpha_{min} = 0,1$ et $\alpha_{max} = 0,7$. L'incertitude sur l'efficacité géométrique induit une erreur inférieure au pourcent sur le calcul de l'efficacité totale de détection, elle peut par conséquent être négligée par rapport à l'erreur sur l'anisotropie. Au final l'erreur totale de fission s'exprime selon la formule D.20:

$$\Delta\varepsilon^{tot}_{fission}(E^*) \approxeq max\left(\frac{\varepsilon^{tot}_f(E^*,\alpha_{max}) - \varepsilon^{tot}_f(E^*,\alpha_{moyen})}{\varepsilon^{tot}_f(E^*,\alpha_{moyen})} ; \frac{\varepsilon^{tot}_f(E^*,\alpha_{moyen}) - \varepsilon^{tot}_f(E^*,\alpha_{min})}{\varepsilon^{tot}_f(E^*,\alpha_{moyen})}\right) \tag{D.20}$$

Pour donner un ordre de grandeur, l'incertitude relative de l'efficacité totale de fission définie par le rapport $\frac{\Delta\varepsilon^{tot}_{fission}(E^*)}{\varepsilon^{tot}_{fission}(E^*)}$ est d'environ 7 % pour les quatre noyaux.

D.3.2. Efficacité de détection d'une cascade gamma

L'efficacité de détection d'une cascade gamma est le dernier ingrédient nécessaire à la détermination des probabilités d'émission gamma des noyaux étudiés. Deux méthodes sont actuellement utilisées pour évaluer cette efficacité pour les réactions de transfert : la méthode des fonctions de poids (ou PHWT pour Pulse Height Weighting function Technique) et la méthode d'extrapolation de l'efficacité (ou EXEM pour EXtrapolated Efficiency Method) [Bou13]. Les sections qui suivent visent à expliquer ces deux méthodes puis à les comparer. Précisons que dans le cadre de la thèse de Boutoux [Bou11], il a été démontré que les deux méthodes donnent des résultats d'efficacité de détection gamma qui sont en accord pour des lanthanides. Cette étude permettra de confronter les résultats obtenus avec les deux méthodes dans la région des actinides.

D.3.2.1. La méthode des fonctions de poids

Principe L'efficacité de détection d'un gamma individuel ε_γ d'un NaI n'est pas proportionnelle à l'énergie E_γ du gamma détecté. La méthode des fonctions de poids a été développée par Maclin et Gibbons [Mac67] dont l'idée principale est d'utiliser une fonction mathématique dite "de poids" afin de rendre cette proportionnalité possible, ce qui permet d'obtenir $\varepsilon_\gamma = k.E_\gamma$ où k est une constante. Cette propriété permet de déterminer l'efficacité d'une cascade ε_c comme nous le verrons par la suite. Une condition nécessaire à l'application de cette méthode est que l'efficacité de détection ε_i d'un gamma

du dispositif expérimental soit très inférieure à 1. En considérant toute la largeur du pic de coïncidence éjectile-gamma, l'efficacité de détection d'un gamma s'élève à 0,152 pour une énergie gamma $E_\gamma = 1,33$ MeV. On peut considérer cette efficacité très inférieure à 1 puisque la détection de deux gammas provenant de la même cascade est seulement de l'ordre de 2 %. De cette manière l'efficacité de détection d'une cascade ε_c est approximativement égale à la somme des efficacités de détecter les gammas de la cascade :

$$\varepsilon_c \approxeq \sum_i \varepsilon_{\gamma_i} \, (avec \, \varepsilon_{\gamma i} << 1) \tag{D.21}$$

La proportionnalité de l'efficacité des détecteurs avec l'énergie permet de simplifier l'équation D.21 selon :

$$\varepsilon_c = k. \sum_i E_{\gamma_i} = k.E_c = k.E^* \tag{D.22}$$

Où l'énergie de la cascade E_c correspond à l'énergie d'excitation E^* du noyau composé. L'équation D.22 montre que l'efficacité de détection d'une cascade γ est indépendante du chemin de désexcitation du noyau, ce qui implique par exemple que la probabilité de détecter une cascade γ d'énergie totale $E_c = 4$ MeV est la même si un unique gamma de 4 MeV est émis, ou si quatre gammas de 1 MeV sont émis en cascade, ce qui facilite considérablement la détermination de l'efficacité. Cependant ce raisonnement n'est valide que si une fonction de poids est appliquée sur les fonctions de réponse des détecteurs NaI afin de remplir la condition de proportionnalité.

Détermination de la fonction de poids Les fonctions de réponse $R(E_d, E_i)$ des détecteurs NaI représentent la probabilité qu'un gamma d'énergie incidente E_i dépose une énergie E_d dans le détecteur. Le groupe de recherche de l'université d'Oslo a déterminé 512 fonctions de réponse pour des énergies des gammas incidents allant de 0 MeV jusqu'à environ 10 MeV par pas de 20 keV, à partir d'interpolation de fonctions de réponse déterminées expérimentalement. Ces dernières ont été mesurées quelques mois seulement après l'expérience pour la même géométrie [Gut13], elles doivent donc être tout à fait appropriées pour décrire la réponse des détecteurs des NaI durant la période de notre expérience. Pour un gamma d'énergie incidente E_i, la somme sur les énergies détectées E_d de la fonction de réponse vérifie :

$$\sum_{E_d} R(E_d, E_i) = \varepsilon_{\gamma i}^{exp} \tag{D.23}$$

Où $\varepsilon_{\gamma i}^{exp}$ est l'efficacité expérimentale de détection. La figure D.31 reproduit les fonctions de réponse sous forme matricielle. La projection de cette matrice sur l'axe des énergies déposées E_d à une énergie E_i fixée permet d'obtenir la représentation d'une fonction de réponse $R(E_d, E_i)$, dont l'intégrale (correspondant à la projection sur l'axe des énergies incidentes E_i) représente l'efficacité expérimentale d'un gamma $\varepsilon_{\gamma i}^{exp}$ à l'énergie indicente E_i considérée. La forme de l'efficacité gamma expérimentale $\varepsilon_{\gamma i}^{exp}$ aux basses

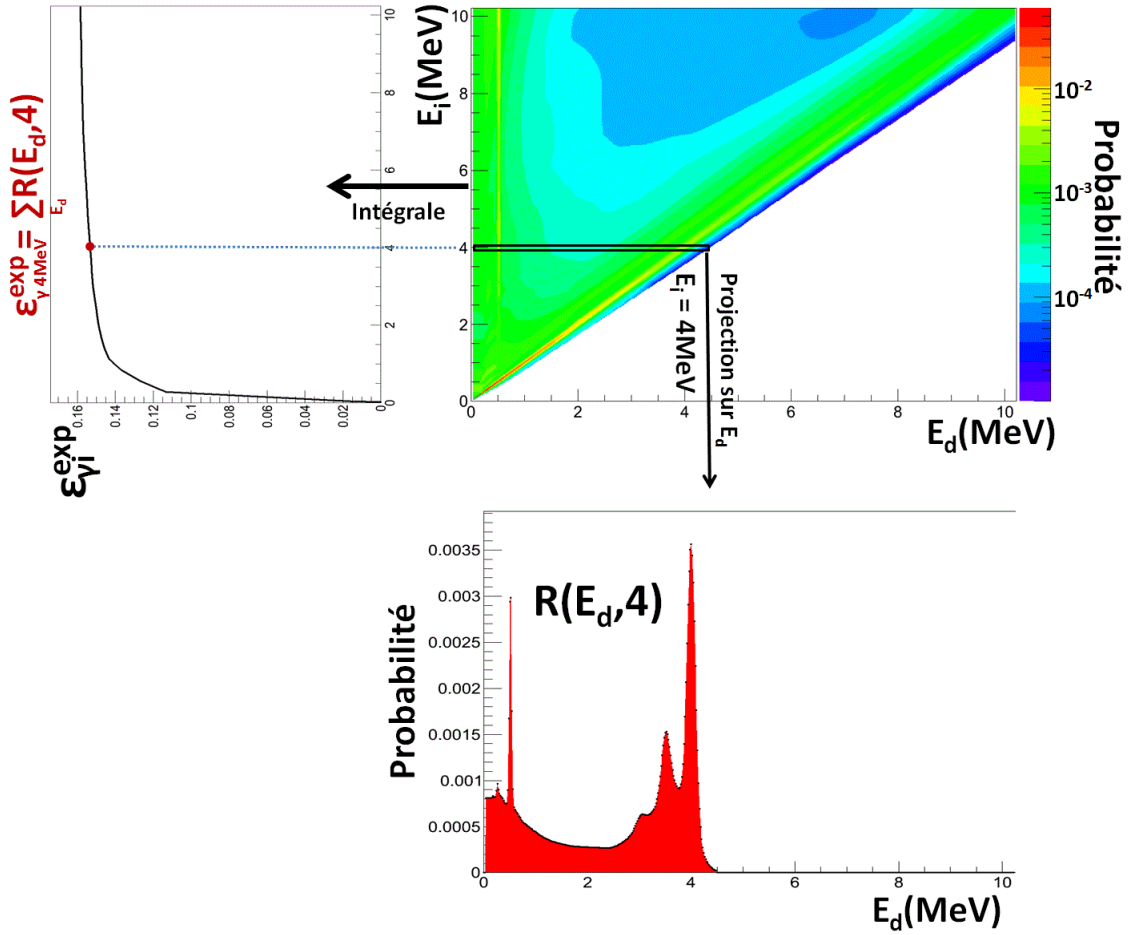


Figure D.31.: Matrice de réponse de CACTUS (au centre). Fonction de réponse de CACTUS pour des gammas d'énergie incidente de 4 MeV (en bas). L'intégrale sur les énergies déposées E_d d'une fonction de réponse $R(E_d, E_i)$ donne l'efficacité expérimentale de détection d'un gamma monoénergétique $\varepsilon^{exp}_{E_i}$ à E_i considérée (à gauche).

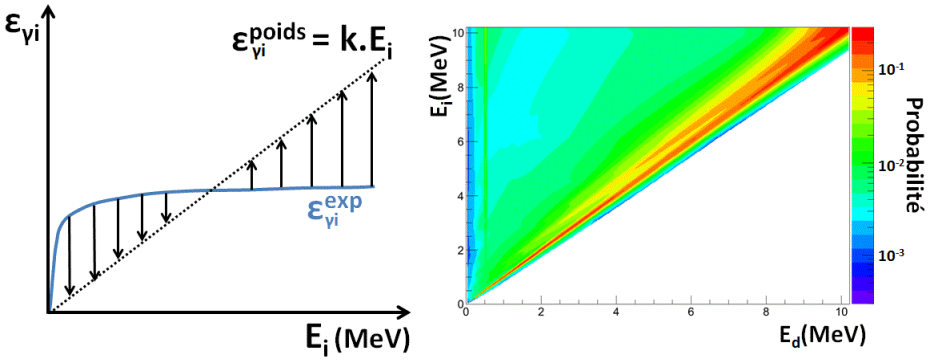


Figure D.32.: Illustration de l'effet de la fonction poids sur l'efficacité expérimentale de détection (à gauche). Matrice de réponse obtenue après application de la fonction de poids (à droite).

énergies du gamma incident est liée à l'effet de seuil de détection qui coupe une proportion plus ou moins grande du spectre. Une fois ce seuil dépassé, l'efficacité est légèrement croissante avec l'énergie du gamma incident.

Nous introduisons ensuite une fonction de poids $W(E_d)$ permettant d'obtenir la proportionnalité entre l'efficacité de détection et l'énergie du gamma incident E_i selon :

$$\sum_{E_d} W(E_d).R(E_d, E_i) = \varepsilon_{\gamma i}^{poids} = kE_i \tag{D.24}$$

Où $\varepsilon_{\gamma i}^{poids}$est l'efficacité de détection gamma après application de la fonction de poids. La valeur du coefficient k choisi importe peu, et est choisie comme étant égal à 1 MeV^{-1}. Pour que la méthode fonctionne, l'équation D.24 doit être valable pour toute énergie incidente E_i. La figure D.32 (à gauche) illustre la manière dont la fonction de poids modifie l'efficacité de détection expérimentale $\varepsilon_{\gamma i}^{exp}$ (et donc la fonction de réponse) obtenue pour chaque énergie E_i de gamma incident. Puisqu'elle est constituée de 512 fonctions de réponse, la matrice de réponse est aussi modifiée par l'application d'une fonction de poids, comme le montre la figure D.32 (à droite) .

Nous recherchons une unique fonction de poids $W(E_d)$ s'appliquant sur chacune des 512 fonctions de réponse $R(E_d, E_i)$ pour chaque énergie incidente E_i afin de satisfaire l'équation D.24. La fonction de poids optimale est obtenue par minimisation du χ^2 sur les E_i selon l'équation suivante :

$$minimisation\left(\chi^2 = \sum_{E_i}\left[\sum_{E_d}(W(E_d).R(E_d, E_i)) - k.E_i\right]^2\right) \tag{D.25}$$

Où pour des raisons de simplicité, la fonction de poids est représentée par une fonction polynômiale décrite par l'équation D.26.

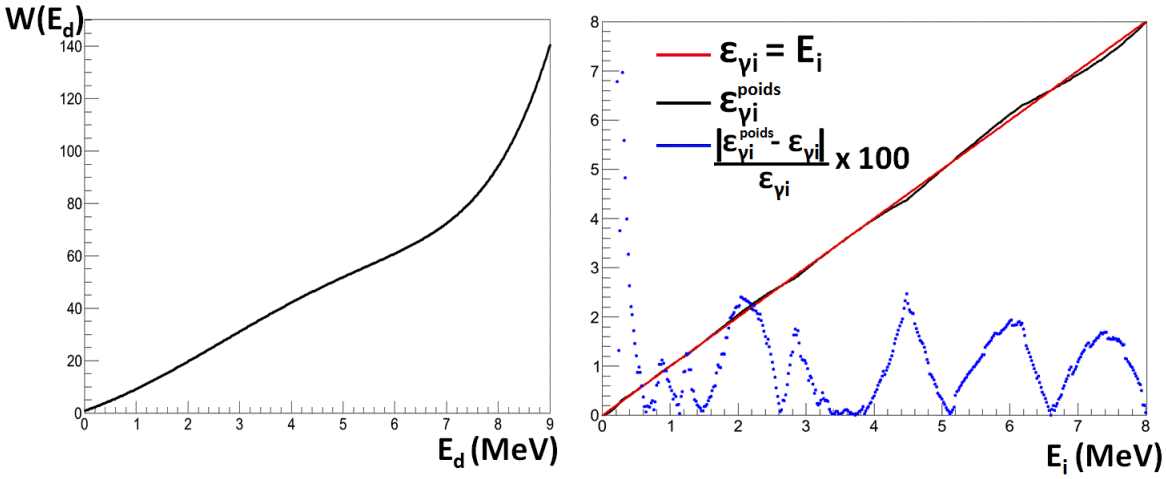


Figure D.33.: Fonction de poids obtenue (à gauche) et valeur absolue de l'écart relatif (en %) à la linéarité de l'efficacité ε_i^{poids} obtenue pour k = 1 MeV^{-1} (à droite).

$$W(E_d) = \sum_{n=1}^{N=6} a_n.(E_d)^n \tag{D.26}$$

Le polynôme $W(E_d)$ décrivant la fonction de poids minimisant le χ^2 est d'ordre 6 et est representé sur la figure D.33. La fonction de poids a été calculée pour des énergies des gammas déposées allant jusqu'à 9 MeV, ce qui est amplement suffisant puisque la probabilité de détecter un gamma de cette énergie est extrêmement faible. Sur la droite de cette même figure, les points bleus symbolisent la valeur absolue de l'écart relatif à la linéarité de l'efficacité $\varepsilon_{\gamma i}^{poids}$ obtenue après application de la fonction de poids sur les fonctions de réponse. On observe des écarts généralement compris entre 0% et 3%, avec tout de même un maximum allant jusqu'à 7% pour une énergie des gammas incident de 511 keV. En effet, il est difficile avec une fonction de poids polynomiale de rendre linéaire les efficacités pour lesquelles la structure des fonctions de réponse changent très rapidement comme c'est le cas pour des énergies détectées correspondant à l'annihilation électron-positron.

En combinant les équations D.1 et D.24, la probabilité d'émission gamma est donnée par :

$$P_\gamma^{poids}(E^*) = \frac{N_{c_\gamma}(E^*)}{N_s(E^*).\varepsilon_\gamma(E^*)} = \frac{\sum_{E_d}[N_{casc}^{mes}(E^*, E_d).W(E_d)]}{N_s(E^*).k.E^*} \tag{D.27}$$

Où $N_{casc}^{mes}(E^*, E_d)$ est appelé spectre gamma et est associé au spectre de coïncidences $N_{c_\gamma}(E^*)$. Le terme $\sum_{E_d}[N_{casc}^{mes}(E^*, E_d).W(E_d)]$représente l'intégrale du spectre gamma pondéré par la fonction de poids et est aussi noté N_{casc}^{poids}. De plus, on rappelle que dans notre cas, nous déterminé les fonctions de poids correspondant à k = 1 MeV^{-1}. D'après

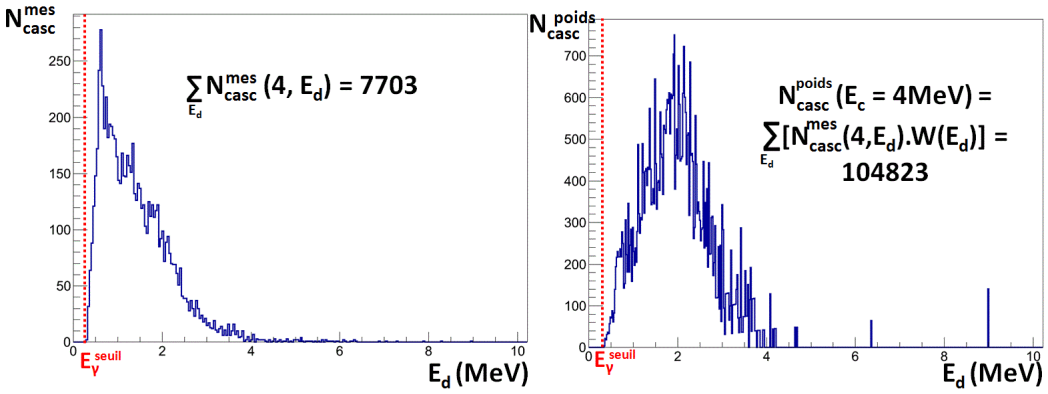


Figure D.34.: Spectre gamma mesuré à $E^*(^{239}U) = E_c = 4$ MeV pour la somme des pistes à 126° (à gauche) et spectre gamma après application de la fonction de poids (à droite). Le nombre total de cascades gamma est calculé dans les deux cas. La ligne rouge représente le seuil électronique de détection E_γ^{seuil}.

l'équation D.27, l'efficacité de détection d'une cascade gamma devient donc :

$$\varepsilon_\gamma(E^*) = \frac{N_{c_\gamma}(E^*).E^*}{N_{casc}^{poids}} \tag{D.28}$$

Application de la méthode Nous allons montrer ici un exemple d'application de la méthode des fonctions de poids sur les données concernant l'$^{239}U^*$ pour lesquelles le nombre de cascades N_{casc}^{mes} est suffisamment élevée pour limiter au maximum les biais statistiques. Comme nous le verrons plus en détail à la section D.3.3, pour pouvoir comparer les efficacités de cascade gamma extraites avec la méthode des fonctions de poids et avec la méthode EXEM, il est nécessaire de ramener les seuils de détection des gammas E_γ^{seuil} à une valeur nulle pour la détermination des spectres $N_{casc}^{mes}(E^*, E_d)$ (alors qu'on rappelle que pour l'analyse, nous avons fixé $E_\gamma^{seuil} = 1$ MeV pour les noyaux $^{238}Np^*$ et $^{239}Np^*$, et $E_\gamma^{seuil} = 1,5$ MeV pour les noyaux $^{237}U^*$ et $^{239}U^*$).

La figure D.34 montre un spectre gamma expérimental avant (à gauche) et après application de la fonction de poids (à droite) pour une énergie d'excitation E^*= 4 MeV pour la somme des pistes à 126°. L'absence d'utilisation d'un seuil de détection E_γ^{seuil} n'empêche pas la présence d'un seuil électronique de détection E_γ^{seuil} d'environ 300 keV (symbolisé par la ligne rouge). Or, l'hypothèse de proportionnalité de l'efficacité est valable sur toute la gamme d'énergie et la fonction de poids est déterminée sans considération de seuil électronique de détection. La partie manquante des spectres gammas expérimentaux en dessous de 300 keV n'a malheureusement pas pu être évaluée. L'impact de cette contribution manquante sur la probabilité d'émission gamma est d'autant plus important que l'énergie d'excitation est faible puisqu'alors, une proportion relative plus importante du spectre gamma expérimental est inconnu. Il faut cependant relativiser cet

impact pour des E^* plus élevées. En effet, d'après la figure D.33, les spectres gamma sont multipliés par la fonction de poids qui se révèle être très faible à basse énergie gamma puisqu'il s'agit un polynôme à constante nulle, et à faibles coefficients pour les degrés élevés. La contribution manquée du spectre gamma pour des énergies inférieures à 300 keV ne représente alors qu'une faible proportion du spectre total comme on peut le supposer au regard de la figure D.34 (à droite). Connaissant le nombre total de gammas N_{casc}^{poids}, il est désormais possible de déduire l'efficacité de détection gamma $\varepsilon_\gamma(E^*)$ d'après l'équation D.28. Ce calcul sera menée pour différentes énergies $E^*(^{239}U)$ (qu'on rappelle comme étant égales à E_c) et comparé aux résultats obtenus par la méthode EXEM à la section D.3.3.

Incertitudes sur l'efficacité d'émission gamma L'écart à la linéarité de l'efficacité ε_γ déterminée avec la méthode des fonctions de poids est la première source d'erreur sur la connaissance de l'efficacité. De plus comme nous l'avons vu, les spectres gamma ne sont pas connus pour des gammas incidents de basse énergie (inférieurs au seuil électronique de détection), induisant une erreur supplémentaire sur l'efficacité gamma difficilement quantifiable. En prenant en compte ces deux effets, il a été montré [Wil03] que l'incertitude globale absolue de l'efficacité gamma déterminée par la méthode des fonctions de poids est de l'ordre de 5%.

D.3.2.2. La méthode EXEM

Principe La méthode d'extrapolation de l'efficacité EXEM est une technique récente qui a été developpée par le groupe ACEN, pour, et dans le cadre des réactions de transfert [Bou13]. Son principe est basée sur l'hypothèse que si l'on connait l'efficacité de détection d'une cascade gamma ε_γ jusqu'à une certaine énergie E^* et qu'elle suit une certaine tendance, alors l'efficacité peut être extrapolée pour des E^* supérieures selon cette tendance. Contrairement aux réactions induites par neutron, les réactions de transfert permettent d'accéder à des noyaux composés dont l'énergie d'excitation est inférieure au S_n. Pour les noyaux où l'énergie de séparation du proton S_p est supérieure au S_n, il existe une énergie d'excitation limite E^*_{lim} en dessous de laquelle la désexcitation par émission gamma est la seule voie possible. Dans le cas des noyaux non fissiles comme l'$^{237}U^*$, l'$^{239}U^*$ et le $^{238}Np^*$, $E^*_{lim} = S_n$. Pour les noyaux fissiles comme le $^{239}Np^*$, E^*_{lim} correspond à l'énergie où démarre la fission, soit à environ 4,5 MeV pour ce noyau (voir figure D.27). Ainsi l'équation D.1 se simplifie de la façon suivante :

$$P_\gamma(E^* < E^*_{lim}) = 1 \Longleftrightarrow \varepsilon_\gamma(E^* < E^*_{lim}) = \frac{N^{mes}_{casc}(E^* < E^*_{lim})}{N_s(E^* < E^*_{lim})} \tag{D.29}$$

L'équation D.29 exprime le fait que le rapport entre le spectre des coïncidences gamma et le spectre singles est égal à l'efficacité moyenne de détection d'une cascade gamma pour des énergies d'excitation inférieures à E^*_{lim} du noyau étudié. Cette équation n'est plus valable au-delà de E^*_{lim} puisque la désexcitation du noyau composé par émission neutron (pour un noyau non fissile) ou par fission (pour un noyau fissile) entre en compétition avec l'émission gamma. C'est pour des énergies d'excitation à partir de E^*_{lim} que

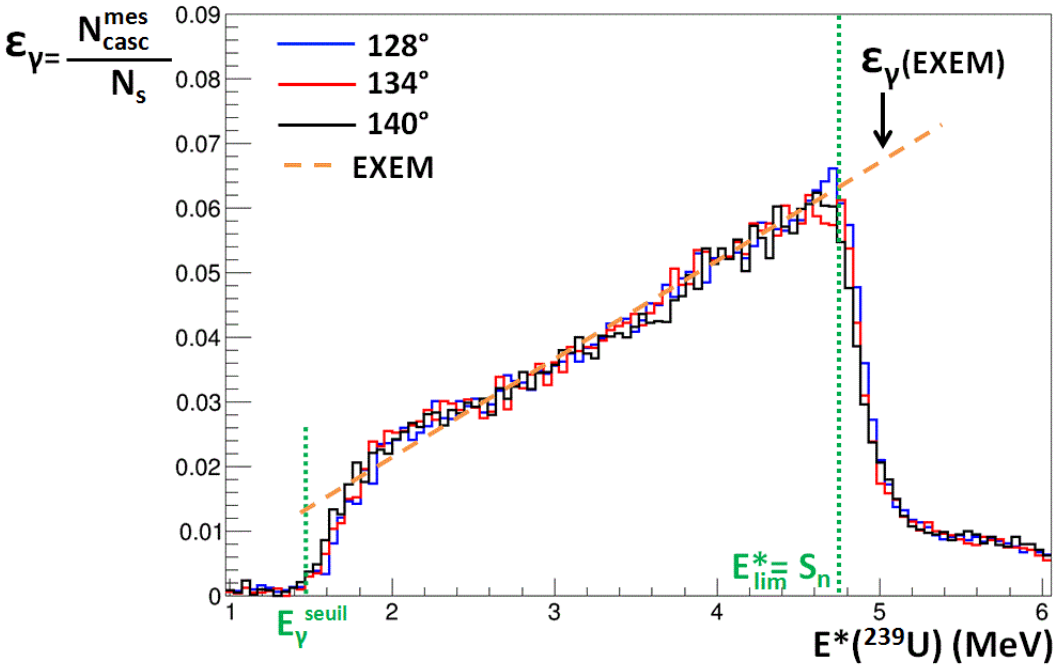


Figure D.35.: Illustration de la méthode EXEM pour le noyau non fissile $^{239}U^*$ aux angles 128°, 134° et 140°. La ligne verte à droite symbolise E^*_{lim} à gauche de laquelle l'efficacité d'une cascade gamma est égale au rapport $\frac{N^{mes}_{casc}(E^*)}{N_s(E^*)}$ mesuré, alors qu'à droite de celle-ci, la méthode EXEM est appliquée. La ligne verte à gauche représente le seuil de détection E_γ^{seuil} fixé à 1,5 MeV. Enfin la ligne orange représente un ajustement linéaire des efficacités.

la méthode d'extrapolation de l'efficacité s'applique alors. La figure D.35 représente le rapport $\frac{N^{mes}_{casc}}{N_s}$ (donc l'efficacité gamma pour $E^* < E^*_{lim}$) en fonction de l'$E^*(^{239}U)$ pour trois angles différents de détection du proton (les autres angles n'ont pas été représentés pour plus de visibilité). On observe que l'efficacité de détection d'une cascade gamma est indépendante de l'angle de détection du proton aux fluctuations statistiques près. La courbe d'ajustement des efficacités symbolisée par la ligne orange montre une tendance linéaire à la hausse de celles-ci avec l'énergie d'excitation. La méthode EXEM suppose que l'efficacité gamma poursuit cette tendance au delà de E^*_{lim}. La multiplicité et l'énergie moyenne des gammas émis lors de la désexcitation des noyaux lourds dépendent de la fonction force gamma et de la densité de niveaux de celui-ci. Or, on ne s'attend pas à des changements soudains de ces deux quantités aux énergies à partir desquelles l'émission gamma n'est plus la seule voie de désexcitation, cette méthode d'extrapolation de l'efficacité semble donc raisonnable à première vue. D'autres arguments seront présentés à la section suivante visant à justifier l'utilisation de cette méthode.

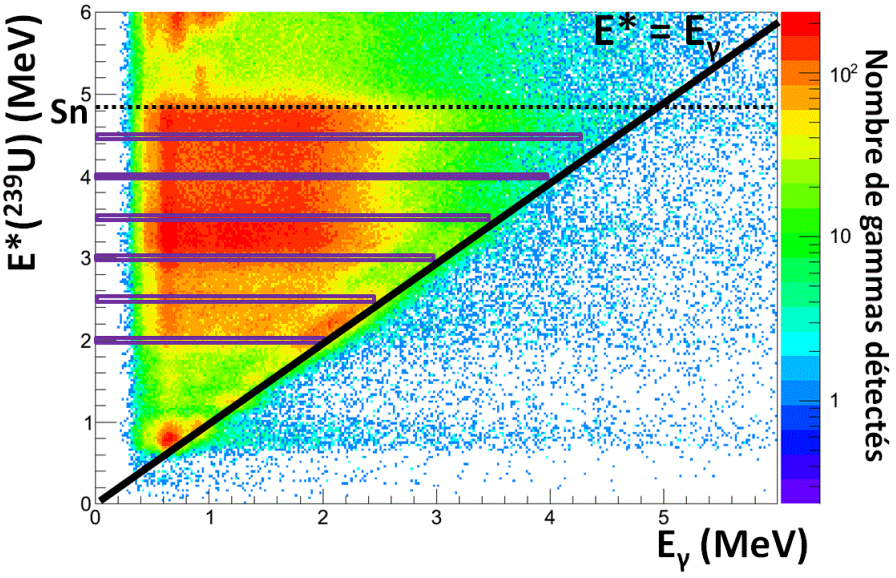


Figure D.36.: Energie d'excitation des noyaux $^{239}U^*$ en fonction des énergies des gammas détectés pour l'ensemble des pistes à 126°. La ligne noire en pointillée symbolise le S_n et les rectangles violets encadrent les énergies d'excitation considérées pour le calcul de $< M_\gamma >$ et de $< E_\gamma >$.

Confrontation avec des calculs EVITA L'équation de conservation de l'énergie totale d'un noyau qui se désexcite uniquement par émission de gammas s'écrit :

$$E^* =< M_\gamma > . < E_\gamma > \tag{D.30}$$

Où $< M_\gamma >$ et $< E_\gamma >$ sont respectivement la multiplicité moyenne et l'énergie moyenne des gammas émis lors de la désexcitation. Or, nous avons vu que l'efficacité gamma dépend linéairement de l'énergie d'excitation à partir de E_γ^{seuil} et au moins jusqu'à S_n pour l'$^{239}U^*$. L'efficacité gamma dépend donc directement des valeurs de $< M_\gamma >$ et de $< E_\gamma >$ pour chaque E^*. Il semble alors intéressant de déterminer expérimentalement les valeurs de $< M_\gamma >$ et de $< E_\gamma >$ pour des E^* fixées afin de comprendre l'allure observée de l'efficacité, pour ainsi éventuellement justifier l'utilisation de la méthode EXEM. Pour ce faire, l'énergie des gammas détectés est associée à l'énergie d'excitation du noyau l'ayant émis comme l'illustre la figure D.36. Nous considérons tous les noyaux d'$^{239}U^*$ d'énergie d'excitation allant de 2 MeV jusqu'à S_n par pas de 0,5 MeV. Connaissant le nombre de gammas détectés et leur énergie déposée, l'énergie moyenne des gammas pour chaque énergie d'excitation du noyau composé est définie sans difficulté. La multiplicité moyenne des gammas est ensuite déduite à l'aide de l'équation D.30.

Les valeurs de $< M_\gamma >$ et de $< E_\gamma >$ pour ces énergies d'excitation ont également été évaluées théoriquement à l'aide du code de calcul EVITA développé au CEA de Bruyères-le-châtel. Dans ce code Monte Carlo basé sur le modèle statistique, on calcule la désexcitation de l'$^{239}U^*$ à plusieurs énergies d'excitation et moments angulaires initiaux. Les

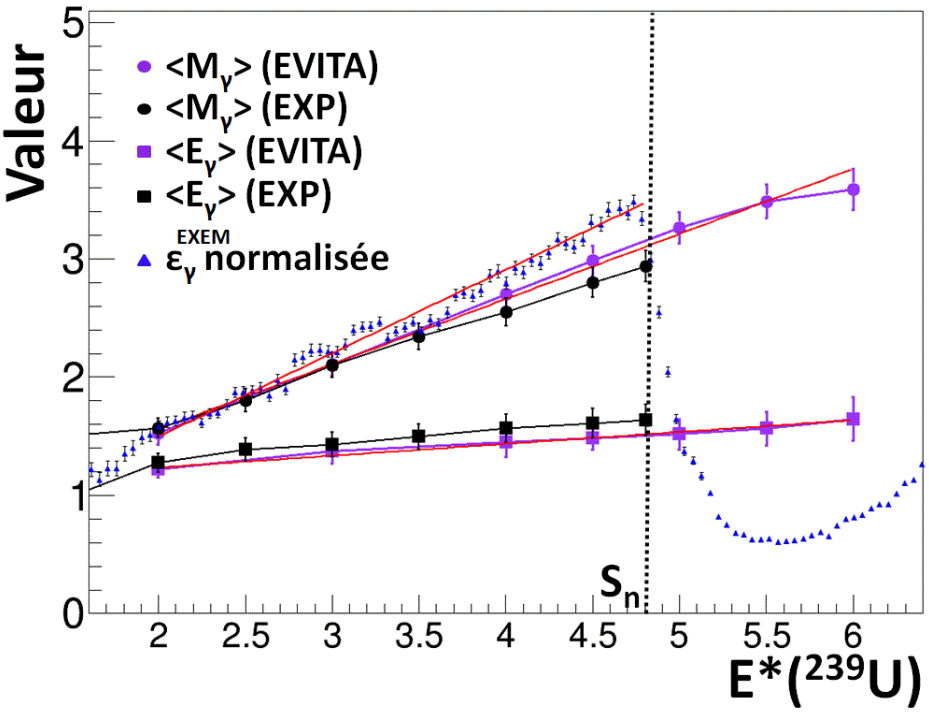


Figure D.37.: Comparaison des multiplicités et énergies moyennes des gammas émis pour des noyaux d'$^{239}U^*$ à différentes énergies d'excitation pour la somme des pistes à 126° avec les résultats du code Monte Carlo basé sur le modèle statistique EVITA. Les lignes rouges correspondent à des ajustements linéaires. Les triangles bleus représentent l'efficacité gamma normalisée à la valeur de la multiplicité moyenne pour $E^* = 2$ MeV.

gammas d'énergie inférieure au seuil de détection électronique de 300 keV qui sont émis au cours de la désexcitation ont été écartés pour se rapprocher des conditions expérimentales. La figure D.37 confronte les résultats théoriques et expérimentaux. Les résultats montrent avant tout un très bon accord entre l'expérience et les calculs théoriques concernant les valeurs des multiplicités et énergies moyennes des gammas émis de l'$^{239}U^*$ pour des E^* inférieures au S_n. On observe ensuite une hausse strictement monotone de $< M_\gamma >$ et de $< E_\gamma >$ avec l'énergie d'excitation E^* tout comme l'efficacité de détection gamma. Cette dernière a d'ailleurs été normalisée à la valeur de $< M_\gamma >$ pour $E^* = 2$ MeV pour visualiser l'influence qu'ont les valeurs $< M_\gamma >$ et $< E_\gamma >$ sur l'efficacité $\varepsilon_\gamma^{EXEM}$. La pente de la multiplicité moyenne étant plus proche de celle de l'efficacité que ne l'est celle de l'énergie moyenne montre que c'est bien la multiplicité moyenne qui impacte majoritairement l'allure de l'efficacité. Plus précisément, comme les NaI de CACTUS remplissent la condition $\varepsilon_\gamma << 1$, l'efficacité est par conséquent directement proportionnelle à la multiplicité moyenne (à E_γ fixée). Or, l'énergie moyenne des gam-

mas détectés ne varie pas beaucoup avec l'énergie d'excitation de $^{239}U^*$. De plus, la figure D.31 (en haut à gauche) rappelle que l'efficacité n'augmente que légèrement avec l'énergie du gamma incident, une fois un certain seuil en énergie dépassé. L'efficacité dépend donc moins de l'énergie gamma que de la multiplicité gamma ce qui explique la forte corrélation observée entre l'efficacité de détection expérimentale avec la multiplicité moyenne des gammas.

De plus, les calculs EVITA montrent que la tendance haussière linéaire se poursuit pour les valeurs de $< M_\gamma >$ et $< E_\gamma >$ au-delà de S_n. Pour ces raisons, l'extrapolation de l'efficacité gamma pour des énergies d'excitation supérieures au S_n jusqu'à environ 6 MeV semble tout à fait justifiée.

L'efficacité pour des énergies d'excitation inférieures au S_n est déduite en sachant que $P_\gamma(E^* < S_n) = 1$ pour les noyaux non fissiles. Notons que l'application d'un seuil E_γ^{seuil} fait diminuer l'efficacité de détection gamma en supprimant un nombre important de gammas N_{casc}^{mes} , cependant, et contrairement à la méthode des fonctions de poids, la perte de cascades à cause du seuil E_γ^{seuil} n'est pas pénalisante pour la détermination de l'efficacité de détection d'une cascade gamma, la méthode EXEM fonctionne donc quelque soit le seuil fixé. En d'autres termes, l'application d'un seuil E_γ^{seuil} fait diminuer l'efficacité $\varepsilon_\gamma^{EXEM}$, et sa renormalisation sous à la condition $P_\gamma(E^* < S_n) = 1$ (pour les noyaux non fissiles) n'influence en rien les résultats de P_γ. En revanche pour la méthode des fonctions de poids, l'application d'un seuil E_γ^{seuil} supprime une partie du spectre $N_{casc}^{mes}(E^*)$ et modifie les résultats de P_γ qui, sans estimation de la quantité manquante du spectre $N_{casc}^{mes}(E^*)$, est faussée. C'est pourquoi aucun seuil de détection E_γ^{seuil} n'a été appliqué (E_γ^{seuil} est en fait égal au seuil électronique) afin de rendre comparable les résultats des deux méthodes.

Incertitudes sur l'efficacité d'émission gamma On définit l'erreur absolue sur l'efficacité gamma EXEM comme étant égale à l'erreur des coefficients de la droite d'ajustement de l'efficacité. Selon le noyau, l'erreur relative de l'efficacité sur la gamme d'énergie d'étude est généralement comprise entre 5% et 15%.

D.3.3. Comparaison méthode des fonctions de poids-EXEM

Comme dit précédemment, les efficacités d'émission gamma ont été déterminées en ne fixant pas de seuil de détection E_γ^{seuil} lors de l'analyse des données. Les gammas détectés ont donc une énergie supérieure au seuil électronique de détection de 300 keV environ. En ce qui concerne la méthode des fonctions de poids, ces conditions impliquent la détection des gammas de capture des NaI et des gammas de la réaction $(d, pn\gamma)$ qui sont responsables d'une source d'erreur non négligeable pour le calculs de l'efficacité.

La figure D.38 compare des résultats de calculs d'efficacité gamma à 126° de l'$^{239}U^*$ avec la méthode des fonctions de poids et avec la méthode EXEM. Le S_n de l'^{239}U est de 4,806 MeV. La probabilité d'émission gamma pour des $E^* < S_n$ est théoriquement de 1 puisqu'elle est la seule voie de désexcitation possible pour ces énergies. On constate que l'efficacité de détection gamma est en bon accord entre les deux méthodes à moins de 13% près jusqu'à des énergies d'excitation de 5,5 MeV. Ce résultat mène à

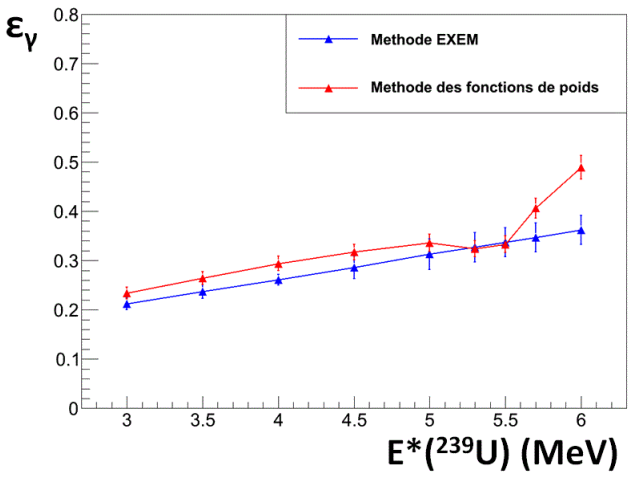


Figure D.38.: Comparaison des efficacités d'émission gamma à 126° de l'$^{239}U^*$ pour différentes $E^*(^{239}U)$ obtenues avec les méthodes des fonctions de poids et EXEM. Sn(^{239}U) = 4,806 MeV.

deux conclusions. D'abord, il permet de prouver que les gammas manquant pour des énergies inférieures au seuil électronique pour le calcul de l'efficacité avec la méthode des fonctions de poids ne représentent qu'une faible proportion de N_{casc}^{poids} (voir figure D.34). De plus, ce résultat montre que très peu de gammas indérisables provenant de la réaction $(d, pn\gamma)$ sont détectés jusqu'à des énergies de 5,5 MeV. En effet, si le nombre de gammas indésirables détecté au-delà de S_n était plus important, l'efficacité obtenue avec la méthode des fonctions de poids serait en désaccord avec l'efficacité calculée avec la méthode EXEM pour laquelle l'extrapolation de l'efficacité se base sur la détection des gammas émis par l'$^{239}U^*$ uniquement. Le calcul de l'efficacité avec la méthode des fonctions de poids serait faux puisque trop de gammas seraient alors pris en compte.

Au delà de $E^* = 5,5$ MeV, la contribution des gammas de la réaction $(d, pn\gamma)$ augmente fortement avec l'énergie d'excitation, traduisant l'écart observé des efficacités à ces énergies.

Il serait possible de supprimer les gammas de la réaction $(d, pn\gamma)$ avec la méthode des fonctions de poids comme il est fait avec la méthode EXEM en fixant un seuil E_γ^{seuil} de 1,5 MeV par exemple. Seulement, tous les gammas de capture d'énergie inférieure à ce seuil seraient également supprimés, ce qui fausserait totalement la valeur de N_{casc}^{poids} et donc de l'efficacité.

Au final, il est impossible dans notre cas d'estimer sans simulation le nombre de gammas émis par l'$^{239}U^*$ qui ont été supprimés à cause du seuil fixé. Une méthode a été développée [Bou13] pour estimer la partie manquante du spectre $N_{casc}^{poids}(E^*)$ à cause du seuil de détection appliqué, mais elle n'a pas pu être utilisée par manque de temps. Par conséquent, la méthode des fonctions de poids ne peut pas être appliquée pour déterminer des efficacités de détection gamma dans la gamme d'énergie d'intérêt. De plus la statisque très limitée des spectres gamma à une énergie E^* fixée pour les noyaux ^{239}Np,

^{238}Np et ^{237}U induit une incertitude statistique inacceptable lors de la détermination du spectre gamma après application de la fonction de poids, à cause de la forte pondération.

La méthode EXEM ne possède pas les inconvénients liés au seuil, et a l'avantage d'être moins sensible à la statistique des réactions. De plus, les résultats comparables des probabilités gamma obtenus avec la méthode des fonctions de poids pour des énergies d'excitation proches de S_n (mais supérieures) pour l'$^{239}U^*$ est un argument supplémentaire à la robustesse de la méthode EXEM. C'est pourquoi cette méthode est utilisée pour déterminer l'efficacité gamma pour les quatre noyaux étudiés.

D.4. Analyse des incertitudes

Maintenant que tous les ingrédients pour déterminer les probabilités de fission et d'émission gamma sont connus, il est essentiel d'évaluer le plus précisément possible l'incertitude de chacun des termes qui composent l'équation D.1. En effet, l'interprétation de résultats est intimement lié à la connaissance des incertitudes de mesure. Cette section est consacrée à l'étude des incertitudes pour la probabilité de fission et la probabilité d'émission gamma. L'analyse formelle des erreurs diffère selon si l'analyse a été effectuée en sommant les 64 pistes (une probabilité moyenne est donc obtenue pour les noyaux $^{237}U^*$ et $^{238}Np^*$) ou en considérant huit pistes à huit angles différents (une probabilité moyenne à chaque angle est donc obtenue pour les noyaux $^{239}U^*$ et $^{239}Np^*$). Ce choix d'analyse est principalement motivé par la statistique des différentes réactions.

D.4.1. Expressions formelles

L'expérience d'Oslo met en jeu différentes réactions nucléaires entre le faisceau et la cible dont la probabilité p d'interaction est très faible. Cependant comme le nombre d'atomes A intervenant est très élevé, la moyenne $\mu = A.p$ est un nombre fini quantifiable. Ces caractéristiques de l'expérience font que les variables mesurées comme le nombre de singles ou le nombre de coïncidences peuvent être décrites par une loi de distribution de probabilité dite de Poisson. L'incertitude d'une variable mesurée N est reliée à la variance Var et à l'écart type σ de la distribution selon l'équation D.31:

$$Var(N) = \sigma_N^2 = N \tag{D.31}$$

L'erreur relative de la probabilité de désexcitation pour chaque énergie i peut être exprimée comme la somme d'une erreur statistique et d'une erreur systématique (liée notamment à la géométrie du dispositif et à la présence de contaminants) selon :

$$\frac{Var(P_{\chi_i})}{(P_{\chi_i})^2} = \frac{Var(P_{\chi_i})_{stat}}{(P_{\chi_i})^2} + \frac{Var(P_{\chi_i})_{syst}}{(P_{\chi_i})^2} \tag{D.32}$$

Où χ représente la fission ou l'émission gamma selon la voie de désexcitation étudiée. Après quelques développements présentés plus en détails dans [Kes15], les erreurs relatives statistique et systématique de la probabilité de désexcitation sont exprimées en fonction des variables mesurées de la manière suivante :

$$\frac{Var(P_{\chi_i})_{stat}}{(P_{\chi_i})^2} = \frac{Var(N_{c_{\chi_i}})}{(N_{c_{\chi_i}})^2} + \frac{Var(N_{s_i})}{(N_{s_i})^2} - 2.\frac{cov(N_{c_{\chi_i}}, N_{s_i})}{N_{c_{\chi_i}}.N_{s_i}} \tag{D.33}$$

$$\frac{Var(P_{\chi_i})_{syst}}{(P_{\chi_i})^2} = \frac{2.\sqrt{Var(N_{e-b_i})}.\left(\sqrt{Var(N_{e-b_i})} - \sqrt{Var(N_{s_i})}\right)}{(N_{s_i})^2} + \frac{Var(\varepsilon_{\chi_i})}{(\varepsilon_{\chi_i})^2} - 2.\frac{cov(N_{c_{\chi_i}}, \varepsilon_{\chi_i})}{N_{c_{\chi_i}}.\varepsilon_{\chi_i}} + 2.\frac{cov(N_{s_i}, \varepsilon_{\chi_i})}{N_{s_i}.\varepsilon_{\chi_i}} \tag{D.34}$$

où $cov(N_{c_{\chi_i}}, N_{s_i})$, $cov(N_{c_{\chi_i}}, \varepsilon_{\chi_i})$ et $cov(N_{s_i}, \varepsilon_{\chi_i})$ sont les termes de covariances et représentent le degré d'interdépendance existant entre les différentes variables. Alors que la variance d'une variable est égale à la valeur de celle-ci dans une loi de distribution de probabilité de Poisson, les termes de covariances sont définis par la façon dont les variables ont été mesurées et peuvent modifier de manière significative l'incertitude des probabilités comme le suggèrent les équations D.33 et D.34. La méthode qui a été utilisée pour déterminer ces termes est décrite dans la section D.4.3.

Pour les noyaux $^{239}U^*$ et $^{239}Np^*$ pour lesquels l'analyse des données est réalisée pour les huit angles, la probabilité de désexcitation finale résulte d'une moyenne pondérée des huit probabilités extraites, dont les incertitudes à chaque énergie d'excitation E_i^* répondent aux équations D.33 et D.34. Comme démontré dans [Kes15], les valeurs moyennes de la probabilité $< P_{\chi_i} >$ et de l'incertitude $Var(< P_{\chi_i} >)$ s'obtiennent à partir des valeurs des "$l^{ième}$" probabilités $P^l_{\chi_i}$ dont le terme principal d'incertitude s'exprime selon :

$$\frac{Var(P^l_{\chi_i})_{weight}}{(P^l_{\chi_i})^2} = \frac{Var(N^l_{c_{\chi_i}})}{(N^l_{c_{\chi_i}})^2} + \frac{Var(N^l_{s_i})}{(N^l_{s_i})^2} + \frac{2.\sqrt{Var(N^l_{e-b_i})}.\left(\sqrt{Var(N^l_{e-b_i})} - \sqrt{Var(N^l_{s_i})}\right)}{(N^l_{s_i})^2} - 2.\frac{cov(N^l_{c_{\chi_i}}, N^l_{s_i})}{N^l_{c_{\chi_i}}.N^l_{s_i}} - 2.\frac{cov(N^l_{c_{\chi_i}}, \varepsilon_{\chi_i})}{N^l_{c_{\chi_i}}.\varepsilon_{\chi_i}} + 2.\frac{cov(N^l_{s_i}, \varepsilon_{\chi_i})}{N^l_{s_i}.\varepsilon_{\chi_i}} \tag{D.35}$$

La probabilité moyenne $< P_{\chi_i} >$ est exprimée selon la somme pondérée des probabilités alors que l'erreur finale de $< P_{\chi_i} >$ est donnée par la somme pondérée des erreurs sur chaque probabilité et par l'erreur sur l'efficacité :

$$< P_{\chi_i} >= \sum_l^{m=8} \frac{(P^l_{\chi_i})}{\frac{Var(P^l_{\chi_i})_{weight}}{(P^l_{\chi_i})^2}} / \sum_l^{m=8} \frac{1}{\frac{Var(P^l_{\chi_i})_{weight}}{(P^l_{\chi_i})^2}}$$

$$\frac{Var(< P_{\chi_i} >)}{< P_{\chi_i} >^2} = \frac{1}{\sum_l^{m=8} \frac{1}{\frac{Var(P^l_{\chi_i})_{weight}}{(P^l_{\chi_i})^2}}} + \frac{Var(\varepsilon_{\chi_i})}{(\varepsilon_{\chi_i})^2} \tag{D.36}$$

Les huit probabilités $P^l_{\chi_i}$ ont été mesurées simultanément avec la même cible, et avec les mêmes détecteurs de rayons gammas et de fragments de fission. Ainsi, seule l'efficacité ε_{χ_i} est commune aux huit mesures et doit figurer comme un terme additif indépendant comme le montre l'équation D.36.

D.4.2. Incertitude du terme de coïncidences gamma

Le terme $N_{c_{\chi_i}}$ présent dans les équations D.33 , D.34 et D.35 représente plus explicitement N^{mes}_{casc} pour l'émission gamma. Ce terme provient, d'après l'équation D.12, de la soustraction entre le nombre des gammas totaux et les gammas provenant des fragments de fission détectés (on rappelle que les gammas émis après émission d'un neutron sont supprimés en appliquant un seuil). Pour chaque énergie E^*_i , cette équation se reformule selon:

$$N_{c_{\gamma_i}} = N^{mes}_{casc,i} = N^{mes}_{casc,tot_i} - \frac{N^{mes}_{casc,f_i}}{\varepsilon_{f_i}} \tag{D.37}$$

Après application de la propagation d'erreurs sur l'équation D.37, l'expression de $Var(N^{mes}_{casc,i})$ s'exprime :

$$Var(N^{mes}_{casc,i}) = Var(N^{mes}_{casc,tot_i}) + \frac{Var(N^{mes}_{casc,f_i})}{\varepsilon^2_{f_i}} + \left(\frac{N^{mes}_{casc,f_i}}{\varepsilon_{f_i}}\right)^2 . \frac{Var(\varepsilon_{f_i})}{\varepsilon^2_{f_i}}$$
$$-2.\frac{cov(N^{mes}_{casc,tot_i}, N^{mes}_{casc,f_i})}{\varepsilon_{f_i}} + 2.\frac{cov(N^{mes}_{casc,tot_i}, \varepsilon_{f_i}).N^{mes}_{casc,f_i}}{\varepsilon^2_{f_i}} - 2.\frac{cov(N^{mes}_{casc,f_i}, \varepsilon_{f_i}).N^{mes}_{casc,f_i}}{\varepsilon_{f_i}} \tag{D.38}$$

On remarque alors que l'évaluation de l'incertitude de la probabilité d'émission gamma nécessite la connaissance de trois termes de covariances supplémentaires par rapport à la fission. La section suivante est dédiée à l'évaluation de tous les termes de covariances rencontrés dans les équations précédentes.

D.4.3. Détermination des termes de covariances

D.4.3.1. Définition mathématique

La probabilité de désexcitation est décrite par une distribution à multi-variables $P_{\chi i}(N_{s_i}, N_{c_{\chi_i}}, \varepsilon_{\chi i})$ dont il existe trois termes de covariances : $cov(N_{s_i}, N_{c_{\chi_i}})$, $cov(N_{s_i}, \varepsilon_{\chi i})$ et $cov(N_{c_{\chi_i}}, \varepsilon_{\chi_i})$. La covariance mesure si les fluctuations (incertitudes) d'une variable induisent des fluctuations sur une autre variable. La covariance entre deux variables (par exemple N_{s_i} et $N_{c_{\chi_i}}$) peut être caractérisée par leur corrélation linéaire qui est définie par :

$$\rho = \frac{cov(N_{s_i}, N_{c_{\chi_i}})}{\sigma_{N_{s_i}} . \sigma_{N_{c_{\chi_i}}}} \tag{D.39}$$

Le coefficient de corrélation ρ varie entre -1 et +1 et le signe indique le sens de la corrélation. Deux variables sont entièrement linéairement corrélées si $|\rho = 1|$. Deux

variables sont parfaitement linéairement indépendantes si $\rho = 0$. Dans la référence [Kes15], les termes de covariance ont été déduits de façon mathématique, ici nous avons développé une méthode pour les déterminer de manière expérimentale.

D.4.3.2. Principe de détermination expérimentale

L'objectif est d'évaluer les différents termes de covariances pour la fission et l'émission gamma. Nous faisons le choix de travailler sur les données de la réaction $^{238}U(^{3}He,^{4}He)$ qui n'est pas polluée afin de limiter de potentielles sources d'erreurs qui proviendrait de réactions sur des contaminants.

Pour expliquer plus simplement le principe de la mesure expérimentale de la covariance entre deux variables N_1 et N_2 quelconque, nous prendrons l'exemple des variables N_s et N_{c_f}. La covariance entre ces deux variables aléatoires mesurées n fois se calcule à l'aide de l'estimateur suivant :

$$cov(N_{s_i}, N_{c_{\chi_i}}) = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(N_{s_i} - \bar{N}_{s_i}).(N_{c_{\chi_i}} - \bar{N}_{c_{\chi_i}}) \tag{D.40}$$

Pour déterminer la covariance expérimentalement, il faudrait répéter la même mesure de N_s et N_{c_f} exactement dans les mêmes conditions un nombre important de fois (n fois d'après l'équation D.40). A chaque nouvelle mesure correspondra une nouvelle valeur de ces variables suivant la loi de distribution de Poisson. Pour parvenir à réaliser cela, les données expérimentales ont été découpées en différents groupes totalement indépendants où une valeur de N_{c_f} est mesurée à partir d'une valeur de N_s tirée aléatoirement d'une gaussienne centrée autour de N_s^{moyen} avec $\sigma = \sqrt{N_s^{moyen}}$. Cette manière de procéder permet de simuler les variations de N_{cf} en fonction des fluctuations (maîtrisées) de N_s comme si l'expérience avait été réalisée un grand nombre de fois.

D.4.3.3. Liste des différents termes de covariances

En tout, six termes de covariances sont à déterminer pour l'équation D.35 : $cov(N_{c_f}, N_s)$, $cov(N_{c_\gamma}, N_s)$, $cov(N_{c_f}, \varepsilon_f)$, $cov(N_{c_f}, \varepsilon_\gamma)$, $cov(N_s, \varepsilon_f)$ et $cov(N_s, \varepsilon_\gamma)$, ainsi que trois autres termes pour l'équation D.38 : $cov(N^{mes}_{casc,tot}, N^{mes}_{casc,f})$, $cov(N^{mes}_{casc,tot}, \varepsilon_f)$ et $cov(N^{mes}_{casc,f}, \varepsilon_f)$.

Résultats expérimentaux des termes $cov(N_{c_f}, N_s)$ et $cov(N_{c_\gamma}, N_s)$ D'après le principe décrit à la section D.4.3.2, les variations obtenus de N_{c_f} en fonction de N_s sont représentées sur la figure D.39. Les résultats de cette représentation sont rassemblés dans le tableau D.4 et montrent que $cov(N_s, N_{cf}) \approxeq Var(N_{cf})$. Ce résultat est valable quelque soit la finesse du découpage des groupes de données expérimentales. Cette valeur de covariance est en accord avec les prévisions théoriques menées par Kessedjian [Kes15]. De la même façon, nous obtenons pour l'émission gamma $cov(N_s, N^{mes}_{casc}) \approxeq Var(N^{mes}_{casc})$.

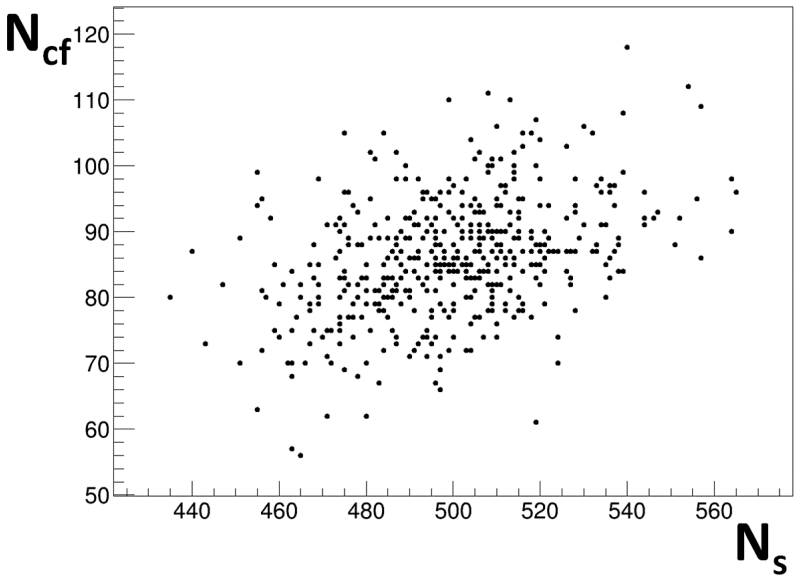


Figure D.39.: Représentation du nombre de coïncidences fission N_{c_f} en fonction du nombre de singles N_s pour la réaction $^{238}U(^3He,^4He)$.

Nombre de découpage	485
N_s^{moyen}	499,38
$N_{c_f}^{moyen}$	85,95
$Var(N_s)$	475,31
$Var(N_{c_f})$	81,63
$cov(N_s, N_{c_f})$	77,73
$cor(N_s, N_{c_f})$	0,394

Table D.4.: Valeurs extraites de la mesure $N_{c_f} = f(N_s)$ pour la réaction $^{238}U(^3He,^4He)$.

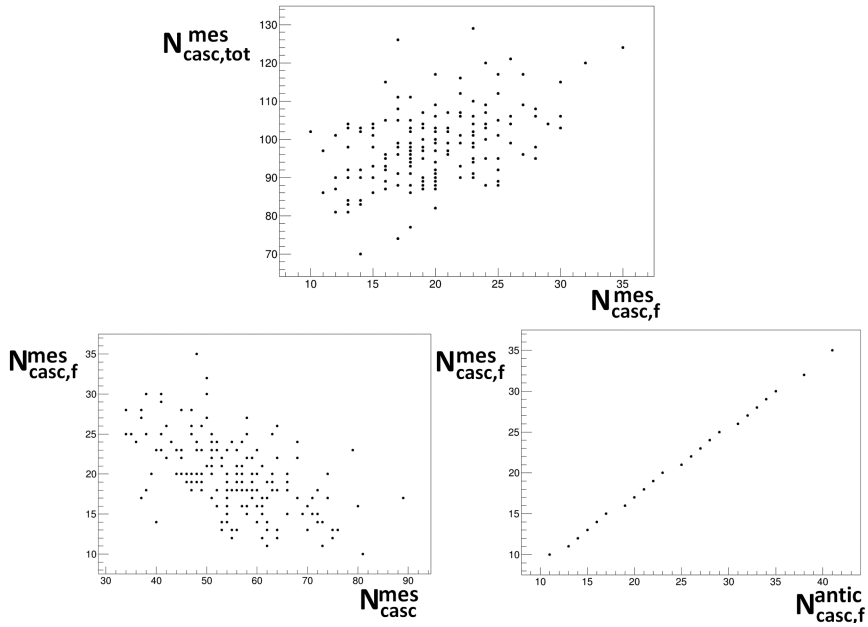


Figure D.40.: Représentation de $N^{mes}_{casc,tot} = f(N^{mes}_{casc,f})$, $N^{mes}_{casc,f} = f(N^{mes}_{casc})$ et $N^{mes}_{casc,f} = f(N^{antic}_{casc,f})$ pour la réaction $^{238}U(^3He,^4He)$.

D.4.3.4. Résultats expérimentaux des autres termes de covariances

Les termes $cov(N^{mes}_{casc,tot}, N^{mes}_{casc,f})$, $cov(N_s, \varepsilon_\chi)$ et $cov(N_{c_\chi}, \varepsilon_\chi)$ se déterminent expérimentalement selon le même principe. Concernant le premier terme, le nombre total mesuré de cascades gamma est composé de gammas émis par le noyau excité, de gammas émis par les fragments de fission, et de gammas en anti-coïncidence avec la fission :

$$N^{mes}_{casc,tot} = N^{mes}_{casc,f} + N^{antic}_{casc,f} + N^{mes}_{casc} \tag{D.41}$$

Les propriétés mathématiques des covariances autorise la séparabilité des termes, on peut donc écrire :

$$cov(N^{mes}_{casc,tot}, N^{mes}_{casc,f}) = cov(N^{mes}_{casc,f}, N^{mes}_{casc,f}) + cov(N^{antic}_{casc,f}, N^{mes}_{casc,f}) + cov(N^{mes}_{casc}, N^{mes}_{casc,f}) \tag{D.42}$$

Où $cov(N^{mes}_{casc,f}, N^{mes}_{casc,f}) = Var(N^{mes}_{casc,f})$. La figure D.40 représente la relation entre les différentes variables. On observe une corrélation linéaire positive entre $N^{mes}_{casc,tot}$ et $N^{mes}_{casc,f}$, une anti-corrélation linéaire entre $N^{mes}_{casc,f}$ et N^{mes}_{casc} et enfin une corrélation linéaire parfaite entre $N^{mes}_{casc,f}$ et $N^{antic}_{casc,f}$. Les covariances obtenues à partir de l'équation D.40 sont rassemblées dans le tableau D.5 et permettent de poser l'approximation $cov(N^{mes}_{casc,tot}, N^{mes}_{casc,f}) \approxeq Var(N^{mes}_{casc,f})$, simplifiant alors nettement le calcul de l'incertitude sur le nombre mesuré de cascades gamma défini par l'équation D.38.

Pour déterminer ensuite les termes $cov(N_s, \varepsilon_\gamma)$ et $cov(N^{mes}_{casc}, \varepsilon_\gamma)$, nous considérons les

$Var(N^{mes}_{casc,f})$	20,62
$cov(N^{mes}_{casc,tot}, N^{mes}_{casc,f})$	19,75
$cov(N^{mes}_{casc}, N^{mes}_{casc,f})$	-25,46
$cov(N^{antic}_{casc,f}, N^{mes}_{casc,f})$	24,59

Table D.5.: Valeurs extraites des mesures $N^{mes}_{casc,tot} = f(N^{mes}_{casc,f})$, $N^{mes}_{casc,f} = f(N^{mes}_{casc})$ et $N^{mes}_{casc,f} = f(N^{antic}_{casc,f})$ pour la réaction $^{238}U(^3He,^4He)$.

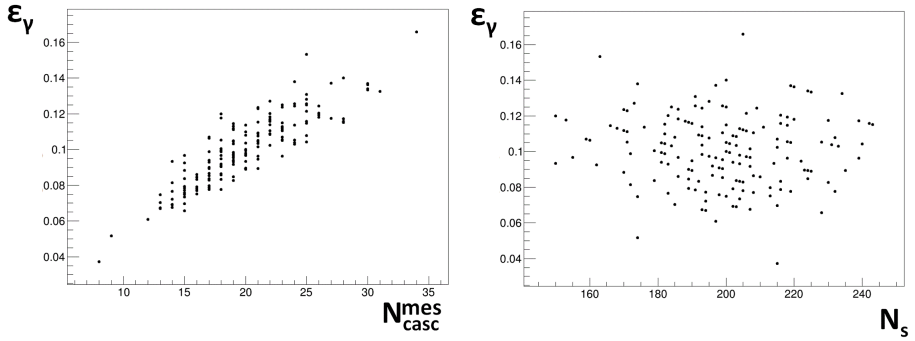


Figure D.41.: Représentation des points de données $\varepsilon_\gamma = f(N^{mes}_{casc})$ et $\varepsilon_\gamma = f(N_s)$.

valeurs expérimentales de ε_γ (non extrapolées) comme étant égales au rapport $\frac{N^{mes}_{casc}}{N_s}$. La figure D.41 représente la relation entre ces différentes variables et le tableau D.6 rassemble les valeurs des covariances (et des corrélations).

On observe que les termes $cov(N_s, \varepsilon_\gamma)$ et $cov(N^{mes}_{casc}, \varepsilon_\gamma)$ sont proches de 0 et peuvent par conséquent être négligés.

Enfin, à propos des quatre derniers termes $cov(N_{cf}, \varepsilon_f)$, $cov(N_s, \varepsilon_f)$, $cov(N^{mes}_{casc,tot}, \varepsilon_f)$ et $cov(N^{mes}_{casc,f}, \varepsilon_f)$, l'efficacité géométrique de fission a été mesurée de manière totalement indépendante en faisant intervenir une source de ^{252}Cf. Il n'existe alors aucune relation entre les variables mesurées et l'efficacité de fission, et par conséquent, les termes de covariances associés sont nuls. Le tableau D.7 résume l'estimation expérimentale des termes de covariances.

Tous les termes intervenant dans les équations de calculs d'incertitudes pour les prob-

$cov(N^{mes}_{casc}, \varepsilon_\gamma)$	-0,026
$cor(N^{mes}_{casc}, \varepsilon_\gamma)$	-0.067
$cov(N_s, \varepsilon_\gamma)$	0,074
$cor(N_s, \varepsilon_\gamma)$	0,877

Table D.6.: Estimation des covariances et des corrélations extraites des mesures $N^{mes}_{casc,tot} = f(N^{mes}_{casc,f})$, $N^{mes}_{casc,f} = f(N^{mes}_{casc,c})$ et $N^{mes}_{casc,f} = f(N^{antic}_{casc,f})$ pour la réaction $^{238}U(^3He,^4He)$.

Covariance	Valeur expérimentale approchée
$cov(N_{c_\chi}, N_s)$	$Var(N_{c_\chi})$
$cov(N_{c_\chi}, \varepsilon_\chi)$	0
$cov(N_s, \varepsilon_\chi)$	0
$cov(N^{mes}_{casc,tot}, N^{mes}_{casc,f})$	$Var(N^{mes}_{casc,f})$
$cov(N^{mes}_{casc,tot}, \varepsilon_f)$	0
$cov(N^{mes}_{casc,f}, \varepsilon_f)$	0

Table D.7.: Estimation expérimentale des termes de covariances. L'indice χ est valable pour la fission ou l'émission gamma.

abilités de désexcitation sont désormais connus et ce, pour chaque énergie d'excitation.

D.4.4. Matrice de corrélation

Les incertitudes des probabilités de désexcitation peuvent désormais être déterminées avec précision. Il reste cependant à décrire la corrélation entre les probabilités déterminées à des énergies différentes. Les matrices de corrélations sont devenues, en plus des incertitudes de mesures, un outil incontournable dans le processus d'évaluation des données nucléaires [Kaw08], c'est pourquoi leur détermination n'est pas à négliger.

Les incertitudes systématiques confèrent une certaine "rigidité" sur les mesures à différentes énergies de sorte que les points mesurés à une certaine énergie ne peuvent pas être modifiés indépendamment des points à d'autres énergies. Dans le cas des noyaux $^{237}U^*$ et $^{238}Np^*$ où une unique probabilité est déterminée pour la fission et l'émission gamma, cette corrélation d'erreurs entre les points d'énergie i et j s'exprime [Kes15]:

$$cor\left(P_\chi(E_i), P_\chi(E_j)\right) = \sqrt{\frac{Var^{syst}_{P_\chi}(E_i).Var^{syst}_{P_\chi}(E_j)}{Var_{P_\chi}(E_i).Var_{P_\chi}(E_j)}} \;\; (i \neq j)$$
$$cor\left(P_\chi(E_i), P_\chi(E_j)\right) = 1 \;\; sinon \tag{D.43}$$

Cette équation montre que la corrélation d'erreurs des probabilités moyennes entre les points d'énergie i et j mesure directement la proportion de l'erreur systématique (par rapport à l'erreur statistique) sur l'erreur totale. En effet, une valeur faible de la corrélation signifie que l'erreur systématique est petite par rapport à l'erreur statistique, alors qu'une corrélation proche de 1 marque la prédominance de l'erreur systématique.

Dans le cas des noyaux $^{239}U^*$ et $^{239}Np^*$ où huit probabilités sont déterminées pour la fission et l'émission gamma, la corrélation d'erreurs des probabilités moyennes entre les points d'énergie i et j devient approximativement [Kes15]:

$$cor\left(< P_\chi(E_i) >, < P_\chi(E_j) >\right) \cong \frac{1}{8}\sum_{l=1}^{m=8} cor\left(P^l_\chi(E_i), P^l_\chi(E_j)\right) \tag{D.44}$$

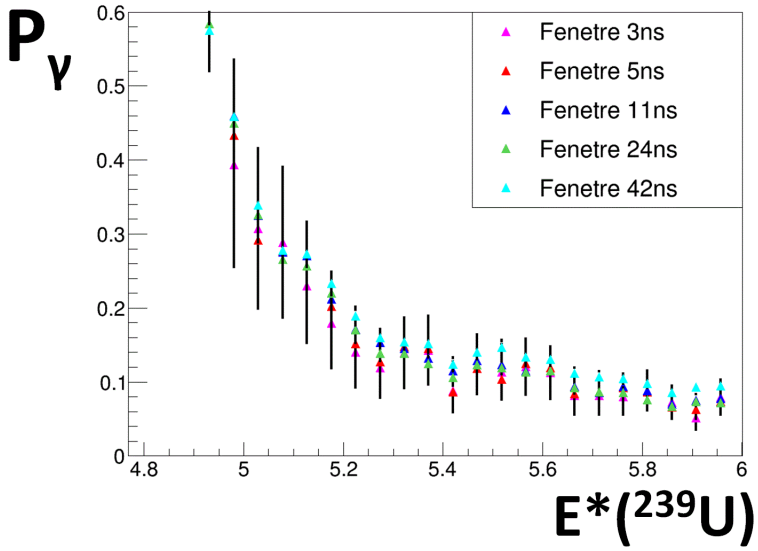


Figure D.42.: Probabilité d'émission gamma à 126° en fonction de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$ pour différentes largeurs de fenêtre temporelle.

D.5. Probabilités de désexcitation

D.5.1. Influence de la fenêtre en temps sur la probabilité d'émission gamma

Comme il est décrit à la section D.1.3.2, le dispositif expérimental ne permet pas de discriminer les gammas des neutrons même si plusieurs méthodes ont été appliquées pour limiter la détection des neutrons. L'objectif de cette section est d'étudier l'influence de la largeur de la fenêtre temporelle de coïncidences des gammas sur la probabilité d'émission gamma. Cette étude permettra de quantifier l'erreur de la probabilité d'émission gamma causée par la détection de cette quantité inconnue de neutrons. La figure D.42 représente la probabilité d'émission gamma en fonction de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$ pour différentes largeurs de fenêtre temporelle. On observe des valeurs sensiblement proches (aux incertitudes près) pour des largeurs de fenêtres allant de 3 ns jusqu'à 24 ns signifiant qu'une quantité très faible de neutrons est détecté pour ces largeurs de fenêtre en temps. En revanche, une fenêtre de 42 ns élève la probabilité d'émission gamma d'au maximum 10% par rapport aux probabilités précédentes. Une proportion non négligeable de neutrons est donc détectée dans ce cas.

Ce résultat montre que le choix de la largeur de la fenêtre en temps en deça de 11 ns influence peu le résultat de la probabilité d'émission gamma. Cela signifie que peu de neutrons sont détectés quelque soit la largeur de la fenêtre, et que la plupart ont été supprimés par l'application du seuil E_γ^{seuil}. Par conséquent, la largeur de la fenêtre temporelle fixée à 11 ns canaux pour l'étude des voies (d,p), $(^3He,d)$ et $(^3He,t)$ semble

adaptée à la détermination d'une probabilité d'émission gamma fiable. Pour des raisons de statistique de réaction, la fenêtre en temps de la réaction (^3He,^4He) a été fixée a 38 ns canaux et devrait, au vu de cette étude, impliquer la détection de neutrons responsable d'une augmentation de la probabilité d'émission gamma entre 5 et 20 %.

D.5.2. Probabilités d'émission gamma et de fission

Dans cette section sont représentées les probabilités de fission et d'émission gamma pour les quatre noyaux d'étude, associées à leur matrice de corrélation des erreurs.

D.5.2.1. $^{239}U^*$

On représente tout d'abord sur la figure D.43 les huit probabilités de fission pour l'$^{239}U^*$ correspondant aux huit angles de détection de l'éjectile. Des différences au niveau du seuil de fission sont observables où la probabilité semble d'autant plus faible que l'angle de détection de l'éjectile est petit. Il se pourrait que ces écarts soient causés par des différences de moments angulaires peuplant les noyaux suivant l'angle de détection. Les probabilités deviennent ensuite indiscernables une fois le plateau de fission atteint. Ces résultats peuvent être comparés à la probabilité mesurée par Britt et Cramer [Bri70] avec la même réaction de transfert mais pour une énergie du faisceau de 18 MeV aux angles de détection de l'éjectile de 150° et avec une cible oxydée d'^{238}U. On constate des différences de plus de 30% au niveau du plateau de fission entre les probabilités mesurées. Les raisons données à ces écarts seront développées dans le chapitre suivant. La matrice des corrélations entre les probabilités de fission à différentes énergies pour la somme des strips à 126° est également représentée sur cette même figure. La corrélation entre mesures est plus élevée à haute énergie ce qui signifie, d'après l'équation D.43, que l'erreur systématique prédomine sur l'erreur statistique à ces énergies.

A l'inverse de la fission, la probabilité d'émission gamma semble (aux erreurs près) plus élevée pour les angles les plus petits comme le montre la figure D.44. A partir de S_n, l'apparition de la voie de désexcitation du noyau par émission neutron entraîne une diminution forte du nombre de gammas émis par l'$^{239}U^*$. Cela entraîne une augmentation de l'erreur statistique par rapport à l'erreur systématique, et se traduit par une diminution des corrélations entre points de mesures à partir de ces énergies.

D.5.2.2. $^{239}Np^*$

Sur les figures D.45 et D.46, seule la moyenne des huit probabilités de fission et d'émission gamma pour le $^{239}Np^*$ sont données. En effet, comme pour ce noyau, les probabilités ont été recalibrées sur les données induites par neutron, il est à priori difficile de se prononcer sur l'influence de l'angle de détection de l'éjectile sur la probabilité. Or, les premiers résultats de l'expérience réalisée à l'IPN d'Orsay ont montré qu'il n'existait aucune dépendance de la probabilité de fission de ce noyau avec l'angle de détection de l'éjectile, justifiant de fait la représentation de la probabilité de fission moyenne du $^{239}Np^*$ entre les angles 126° et 140°. L'observation d'une probabilité de fission importante en dessous de S_n est caractéristique d'un noyau fissile comme celui-ci. Au-delà

de cette énergie, l'ouverture de la voie de désexcitation par émission neutron entraîne la diminution des probabilités de fission et d'émission gamma. La probabilité de fission est comparée à celle mesurée par Gavron [Gav76] dont le seuil se révèle être décalé d'environ 0,5 MeV vers les plus hautes énergies. Comme signalé à la section D.2.2, le démarrage en énergie de la fission pour notre expérience a pu être validé grâce aux résultats préliminaires de la mesure réalisée à l'IPN d'Orsay. En dehors du seuil de fission, la hauteur du plateau est en très bon accord avec les mesures de Gavron validant de fait, la valeur de l'efficacité de fission pour ce noyau aux incertitudes considérées. Les corrélations montrent la dominance des erreurs systématiques sur la majorité de la gamme d'énergie pour la fission. Au contraire, pour l'émission gamma les faibles valeurs des corrélations pour les mesures à plus hautes énergies d'excitation indique que l'erreur statistique est prédominante. Notons que pour des énergies inférieures au $S_n = 6,217$ MeV pour ce noyau, l'émission gamma et la fission sont les deux seules voies de désexcitation possibles du noyau. On remarque que la somme de la probabilité d'émission gamma et de fission est égale à 1 aux incertitudes près, ce qui valide la méthode d'analyse et les corrections appliquées.

D.5.2.3. $^{238}Np^*$

Les figures D.47 et D.48 représentent pour le $^{238}Np^*$ les probabilités de fission et d'émission gamma respectivement, ainsi que les matrices de corrélations. La comparaison avec une mesure réalisée par Gavron [Gav76] permet de constater des différences au niveau de la pente du seuil de fission de première chance ainsi qu'un décalage au niveau du seuil de deuxième chance, contrastant avec le bon accord existant au niveau du plateau. La mesure réalisé à Orsay confirme, une fois de plus, l'emplacement en énergie du seuil de fission de notre expérience. Comme pour le $^{239}Np^*$, les corrélations entre les mesures de probabilités à différentes énergies montrent que l'erreur totale est dominée par l'erreur systématique sur la majorité de la gamme d'énergie. Concernant la probabilité d'émission gamma, on constate qu'elle diminue dès l'ouverture de la voie neutron, à partir de S_n, à la résolution près. Malheureusement, la faible statistique de réaction associée à la faible intensité du faisceau, mais aussi l'augmentation de l'erreur statistique provoquée par la soustraction des gammas provenant des fragments de fission ne permettent d'obtenir que quatre points de mesure au-delà de S_n. Les corrélations montrent que les erreurs systématiques restent néanmoins dominantes par rapport aux erreurs statistiques.

D.5.2.4. $^{237}U^*$

Enfin les probabilités de fission et d'émission gamma pour l'$^{237}U^*$, ainsi que les matrices de corrélations sont données sur les figures D.49 et D.50 respectivement. La probabilité de fission est mesurée jusqu'à 18 MeV d'énergie d'excitation et la probabilité d'émission gamma jusqu'à 6,5 MeV. La même mesure a été réalisée en 2007 par Lyles et al. [Lyl07] par méthode de substitution standard (en rouge) et par méthode ratio (en orange). On observe un très bon accord entre nos résultats et la méthode ratio de Lyles et al. à partir d'environ 9 MeV d'énergie d'excitation. En revanche, la raison de la structure à

basse énergie qui est en désaccord avec les résultats des autres mesures n'a pas pu être clairement identifiée par les auteurs. A l'inverse, la probabilité de fission obtenue par Lyles et al. avec la méthode de substitution standard est relativement en bon accord avec nos données jusqu'au seuil de fission de deuxième chance même si le seuil de fission de première chance de notre expérience est décalé d'environ 150 keV vers les basses énergie par rapport aux résultats de Lyles et al. Précisons que les résultats préliminaires de l'expérience réalisée à l'IPN d'Orsay pour ce noyau montrent un seuil de fission en accord avec nos données. Ces différences de seuils de fission observés pour les noyaux $^{239}Np^*$, $^{238}Np^*$ et $^{237}U^*$ lors d'expériences indépendantes faisant intervenir les mêmes réactions met en évidence l'importance, mais aussi la difficulté, de calibrer précisément les réactions en énergie.

Concernant les corrélations d'erreurs de la probabilité de fission, comme pour les autres noyaux, l'augmentation de la statistique de réaction avec l'énergie d'excitation entraîne une contribution de l'erreur totale dominée par l'erreur systématique pour la fission. Remarquons que la structure inexpliquée mise en évidence dans le spectre singles et des coïncidences autour de 7-8 MeV, et présentée à la figure D.27, n'est pas visible sur une représentation de la probabilité de fission du noyau pour ces énergies d'excitation. Le rapport entre le spectre des coïncidences fission et le spectre singles pour déduire la probabilité de fission a permis d'éliminer cette contribution. Concernant la probabilité d'émission gamma, on observe une chute des valeurs à partir de S_n à la résolution près, tout comme pour les noyaux $^{239}U^*$ et $^{238}Np^*$. La diminution de la statistique de réaction avec l'énergie d'excitation induit une augmentation de la contribution de l'erreur totale due à la statistique de réaction.

Le tableau de l'ANNEXE A rassemble les principales caractéristiques d'analyse des quatre voies de réactions qui ont été développées tout au long de ce chapitre.

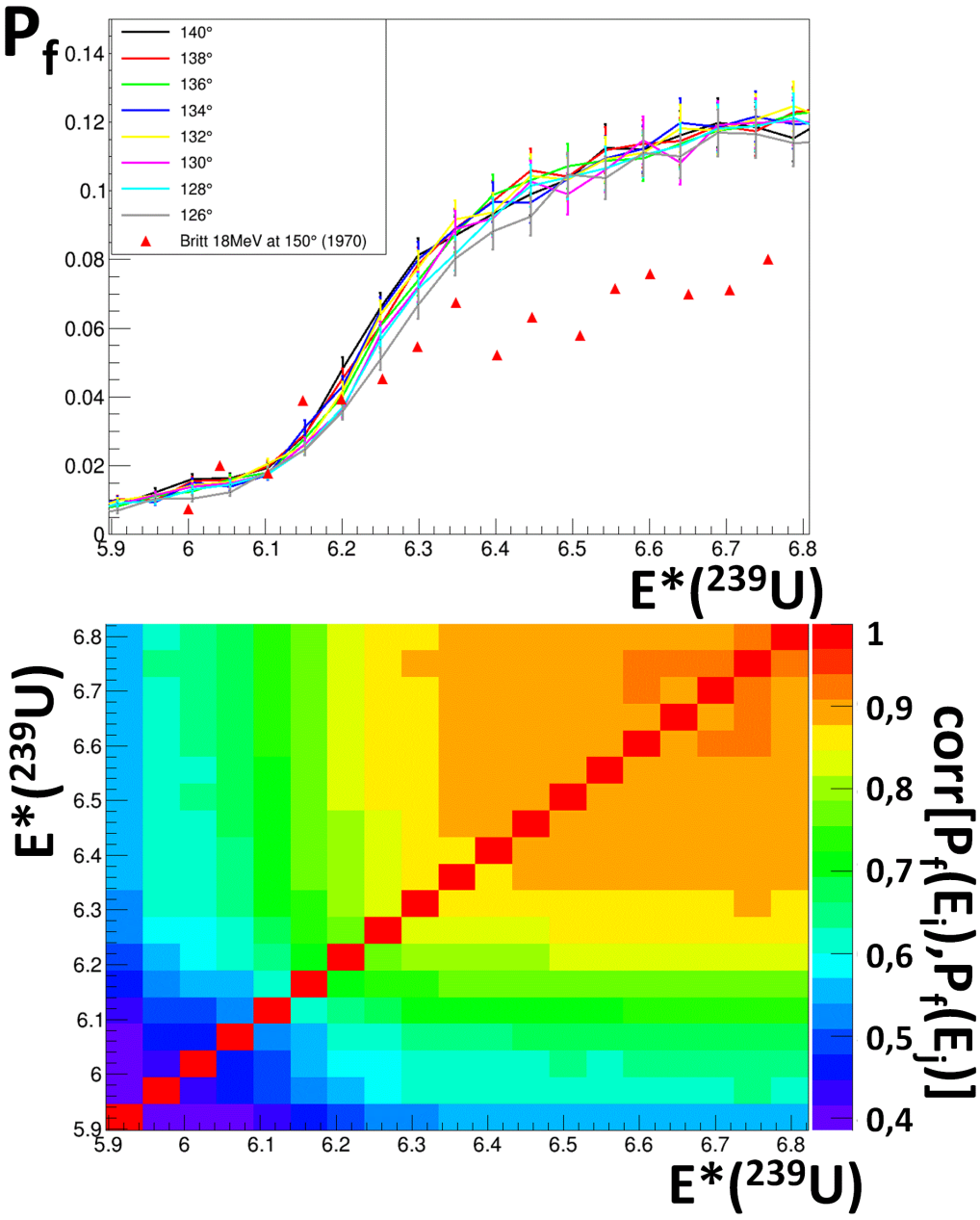


Figure D.43.: Probabilités de fission de l'^{239}U en fonction de l'énergie d'excitation pour les angles de détection du proton de 126°, 128°, 130°, 132°, 134°, 136°, 138° et 140° (en haut). Pour plus de visibilité, le pas en énergie d'excitation (= 50 keV) n'a pas été représentée. Matrice de corrélation des erreurs à 126° (en bas).

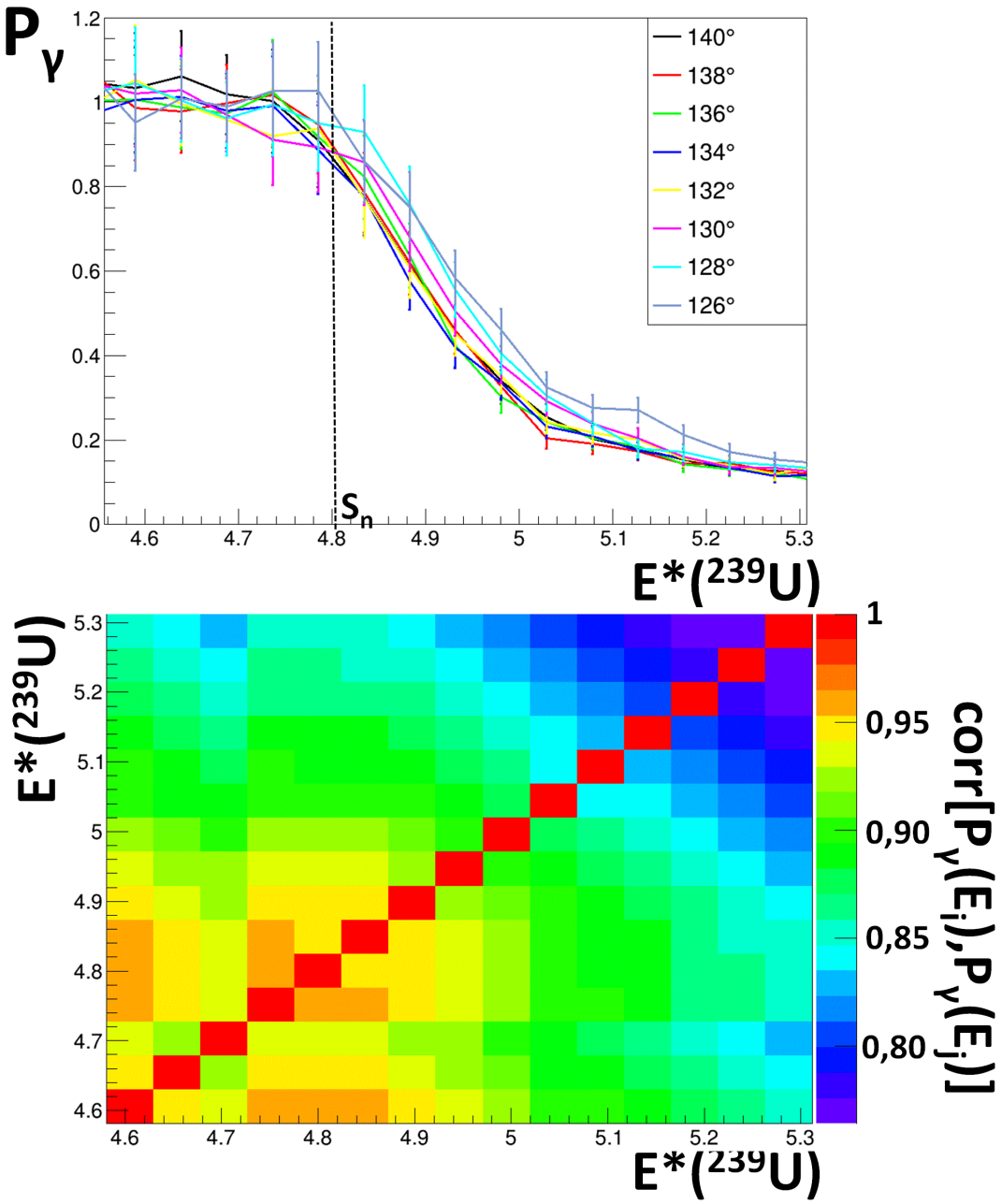


Figure D.44.: Probabilités d'émission gamma de l'^{239}U en fonction de l'énergie d'excitation pour les angles de détection du proton de 126°, 128°, 130°, 132°, 134°, 136°, 138° et 140° (en haut). Matrice de corrélation des erreurs à 126° (en bas).

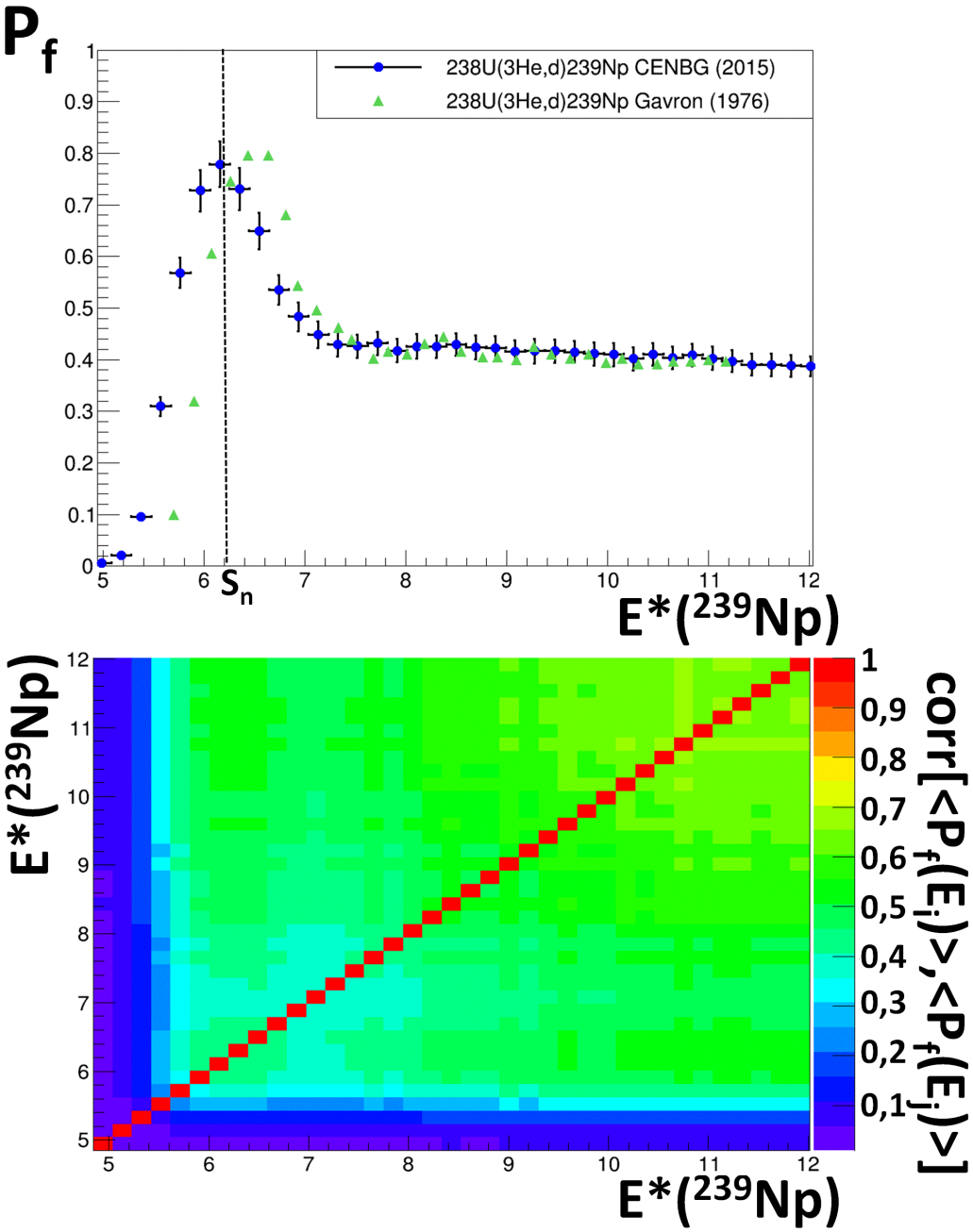


Figure D.45.: Probabilité de fission moyenne du ^{239}Np en fonction de l'énergie d'excitation (en haut). Matrice de corrélation des erreurs moyennes (en bas).

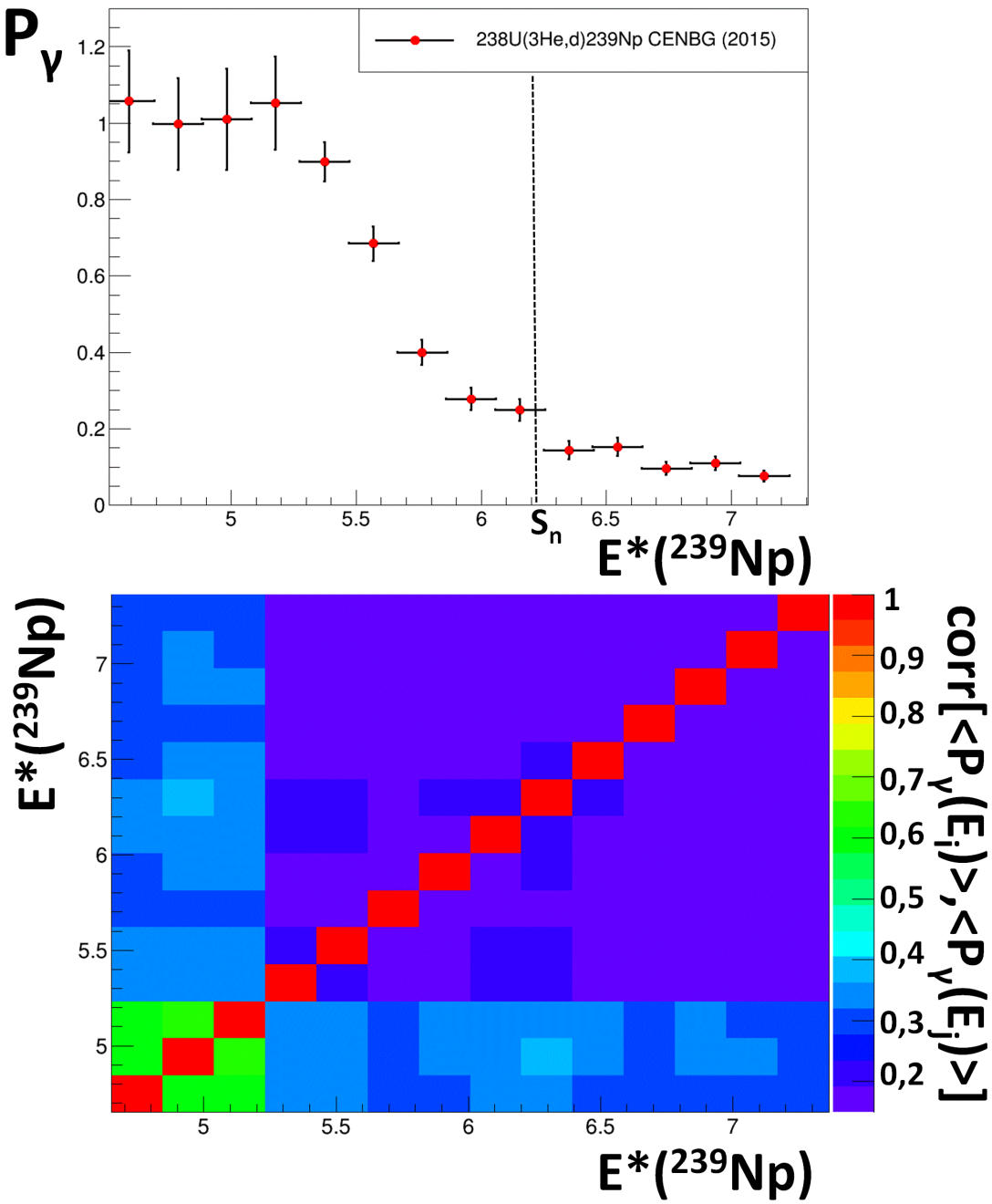


Figure D.46.: Probabilité d'émission gamma moyenne du ^{239}Np en fonction de l'énergie d'excitation (en haut). Matrice de corrélation des erreurs moyennes (en bas).

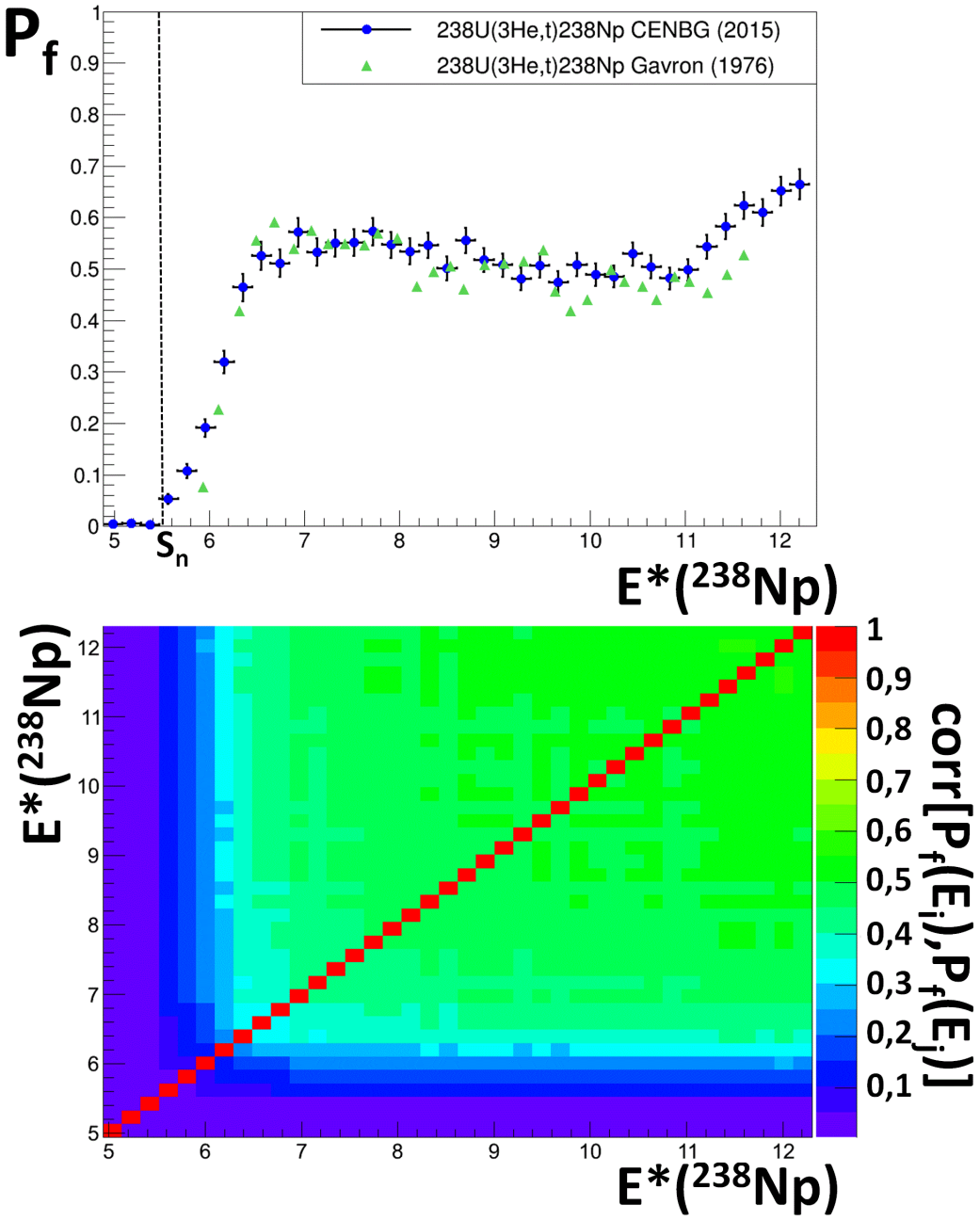


Figure D.47.: Probabilité de fission du ^{238}Np en fonction de l'énergie d'excitation (en haut). Matrice de corrélation des erreurs moyennes (en bas).

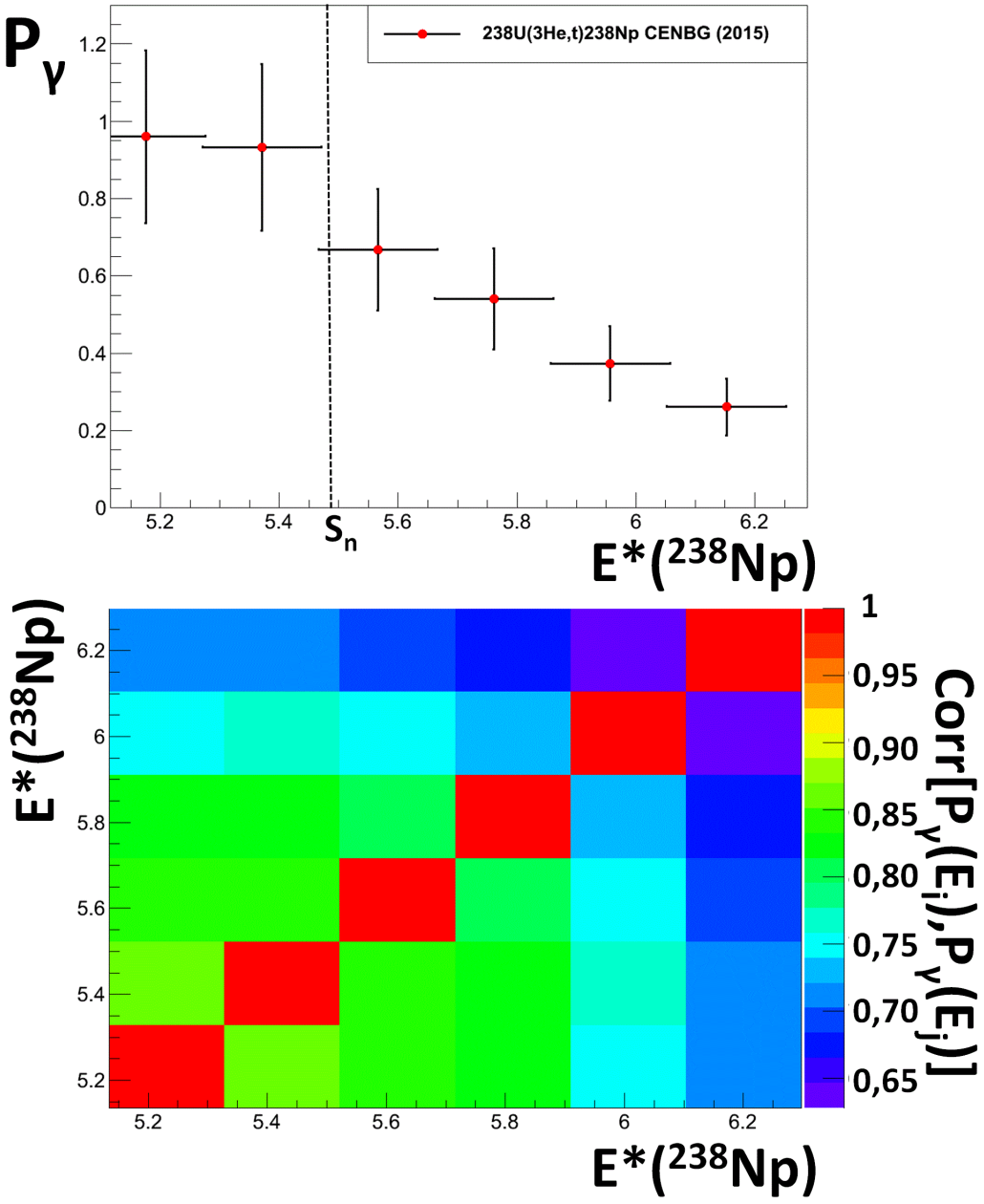


Figure D.48.: Probabilité d'émission gamma du ^{238}Np en fonction de l'énergie d'excitation (en haut). Matrice de corrélation des erreurs moyennes (en bas).

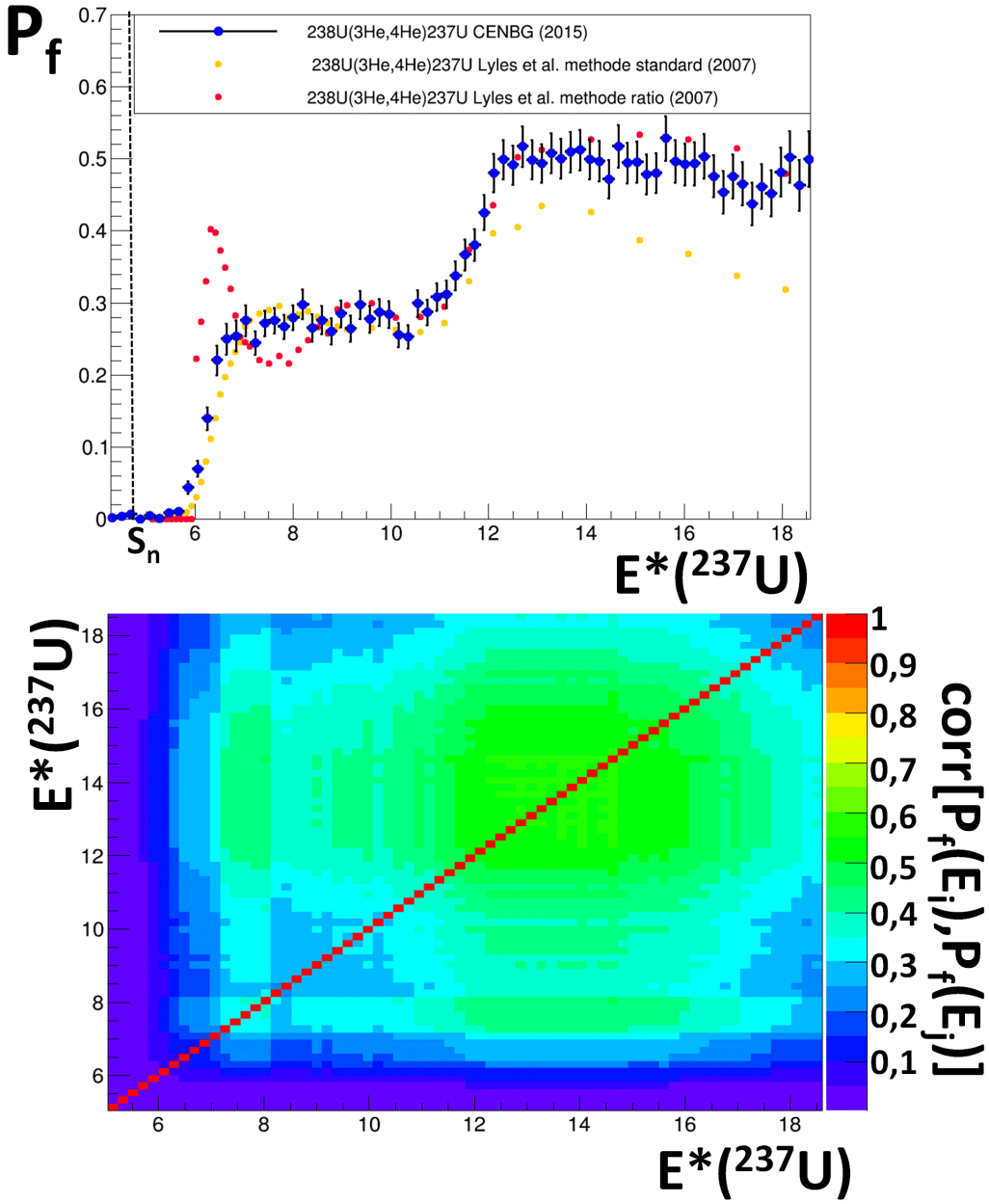


Figure D.49.: Probabilité de fission de l'^{237}U en fonction de l'énergie d'excitation (en haut). Matrice de corrélation des erreurs moyennes (en bas).

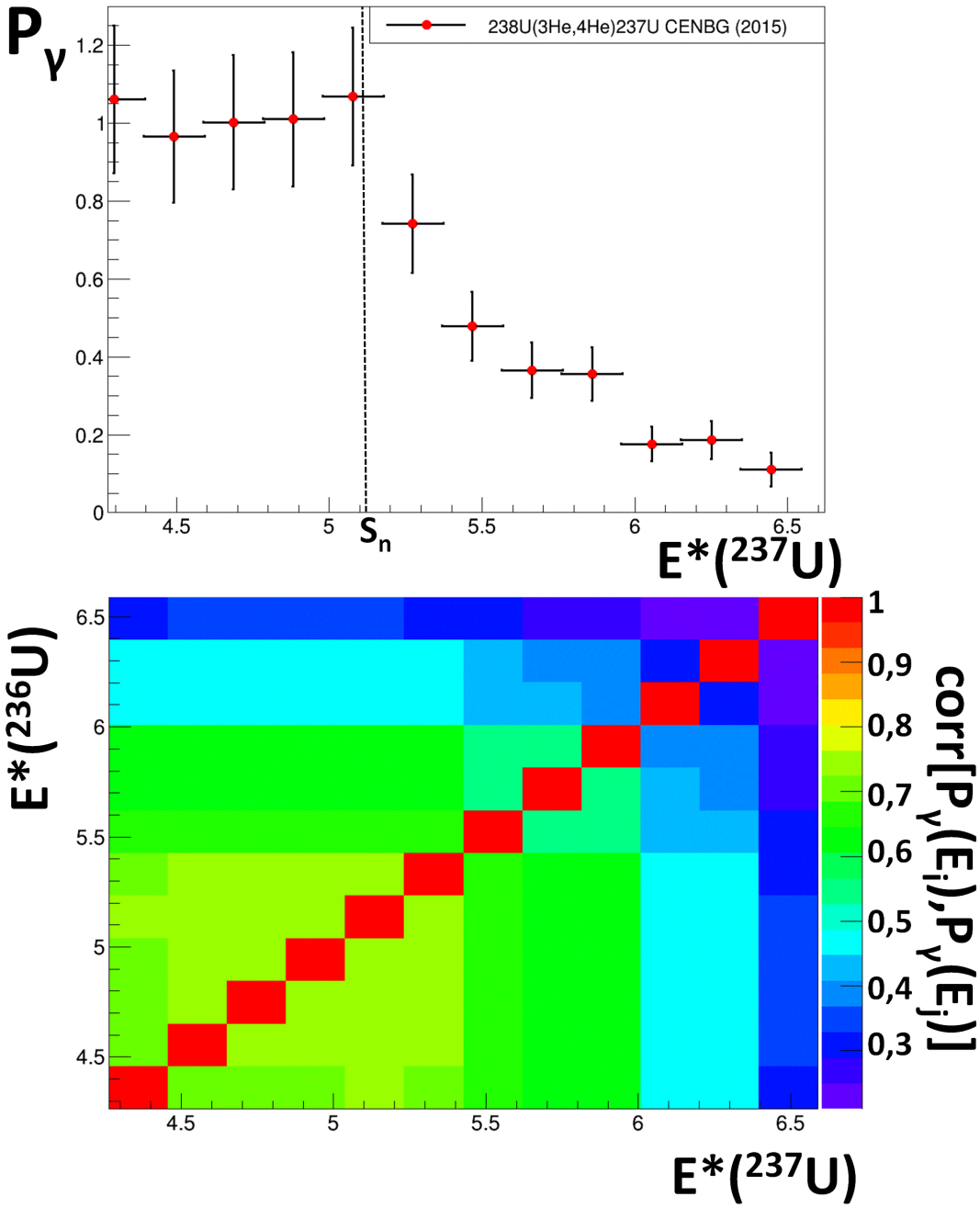


Figure D.50.: Probabilité d'émission gamma de l'^{237}U en fonction de l'énergie d'excitation (en haut). Matrice de corrélation des erreurs moyennes (en bas).

E. Interprétation des résultats

E.1. Probabilités neutroniques de référence

Les sections efficaces neutroniques des noyaux étudiés sont disponibles dans des bases internationales de données évaluées. De haut en bas et de gauche à droite, la figure E.1 représente quelques mesures de sections efficaces neutroniques de fission et de capture de l'^{238}U ([Blo75, Bul88, Lin76, Sch01]), de l'^{236}U ([Bul88, Mea78, Ros72, Tro88]), du ^{237}Np ([Bul88, Lin76, Lis88, Par10]) du ^{238}Np, comparées à trois évaluations internationales : ENDF/B.VII.1, JEFF 3.1 et JENDL 4.0. On observe que pour l'^{238}U, les évaluations ENDF/B.VII.1 et JENDL 4.0 reproduisent mieux les données neutroniques de fission que JEFF 3.1 alors que l'accord est meilleur entre les évaluations pour la capture. Pour l'^{236}U, les évaluations ENDF/B.VII.1 et JENDL 4.0 reproduisent mieux les données neutroniques de fission que JEFF 3.1, au contraire de la capture. Concernant le ^{237}Np, les trois évaluations sont en très similaires alors que pour la capture, l'évaluation JEFF 3.1 est légèrement plus haute à partir de $E_n = 0,2$ MeV. Enfin, il n'existe pas actuellement de mesures de sections efficaces neutroniques pour le ^{238}Np dans la région des neutrons rapides, ce qui peut expliquer les écarts importants pour les évaluations de la section efficace de capture entre JEFF 3.1 et les deux autres ENDF/B.VII.1 et JENDL 4.0 (qui sont confondues). En revanche, pour le même noyau, les évaluations sont similaires jusqu'au plateau de la fission de seconde chance. Notons que la forte chute de la section efficace de fission survenant pour des faibles énergies de neutrons incidents est caractéristique des noyaux fissiles.

Afin d'étudier la validité de la méthode de substitution pour la fission et l'émission gamma dans la région des actinides, les probabilités de désexcitation extraites des réactions de transfert doivent être comparées à celles des réactions induites par neutron lorsqu'elles existent. D'après l'équation A.1, il est possible de traduire une section efficace en probabilité de désexcitation au moyen de la section efficace de formation du noyau composé après absorption d'un neutron. En effet, la probabilité induite par neutron est déduite selon le rapport de la section efficace neutronique sur la section efficace de formation du noyau composé. Au contraire des évaluations ENDF/B.VII.1 et JEFF 3.1, JENDL 4.0 possède l'avantage de fournir les paramètres du modèle optique dans son rapport d'évaluation pour les quatres noyaux étudiés, ce qui permet de calculer la section efficace de formation du noyau composé, et donc de déduire la probabilité de fission ou d'émission gamma induite par neutron selon JENDL 4.0. De plus, la figure E.1 montre que cette évaluation est en très bon accord avec les données neutroniques existantes pour les noyaux étudiés. La base de données JENDL 4.0 semble donc être parfaitement adaptée. Ces probabilités induites par neutron JENDL 4.0 calculées serviront de référence par la suite pour les comparer avec les probabilités de désexcitation expérimentales obtenues

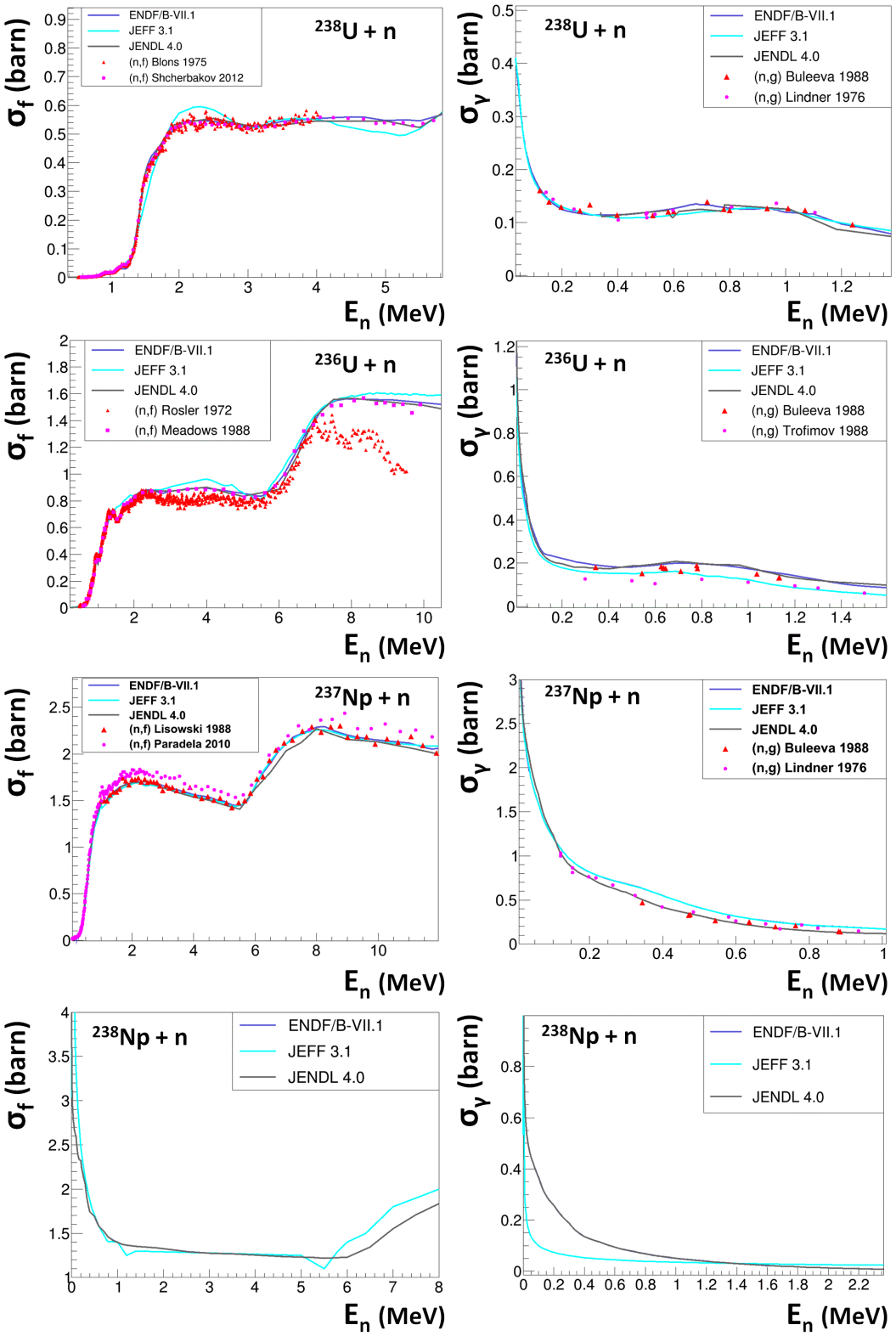


Figure E.1.: De haut en bas et de gauche à droite : sections efficaces neutroniques de fission et de capture de l'^{238}U, de l'^{236}U, du ^{237}Np du ^{238}Np. Les références des mesures sont indiquées dans le texte. Dans chaque cas, trois évaluations internationales ont été représentées : ENDF/B.VII.1, JEFF 3.1 et JENDL 4.0.

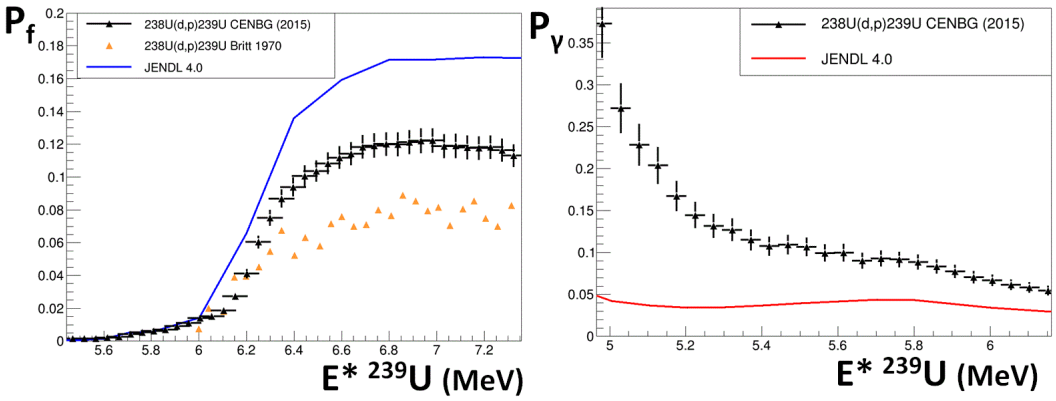


Figure E.2.: A gauche : probabilité de fission correspondant à la moyenne pondérée des probabilités mesurées de l'$^{239}U^*$ aux angles 126° et 140° en fonction de l'énergie d'excitation (en noir), comparée à l'évaluation JENDL 4.0 (en bleu) et aux données expérimentales de Britt et Cramer (en orange) [Bri70]. A droite : probabilité d'émission gamma correspondant à la moyenne pondérée des probabilités mesurées de l'$^{239}U^*$ aux angles 126° et 140° en fonction de l'énergie d'excitation (en noir) comparée à l'évaluation JENDL 4.0 (en rouge).

par la méthode de substitution pour les différents noyaux étudiés.

E.2. Réaction $^{238}U(d,p)$

E.2.1. Comparaison entre les probabilités obtenues par réaction de transfert et induite par neutron

Pour des raisons de lisibilité, on représente sur la figure E.2 les probabilités de fission et d'émission gamma de l'$^{239}U^*$ correspondant à la moyenne des probabilités entre les angles 126° et 140° en fonction de l'énergie d'excitation. Ces probabilités sont comparées à l'évaluation JENDL 4.0 ainsi qu'à la probabilité de fission mesurée par Britt et Cramer [Bri70] obtenue avec la même réaction $^{238}U(d,p)$ mais pour un faisceau de deutons de 18 MeV. La probabilité de fission moyenne obtenue est en bon accord avec les données évaluées par JENDL 4.0 jusqu'à des énergies d'excitation d'environ 6 MeV. Au delà, la probabilité mesurée est systématiquement inférieure aux données évaluées d'environ 30%. Ces différences ont été attribuées au break-up du deuton pour la première fois par Britt et Cramer [Bri70]. Il s'agit d'un phénomène complexe où le deuton incident se brise en un proton et neutron, et où ce dernier n'est pas absorbé par le noyau cible. Par conséquent, une partie des protons détectés ne sont pas associés à la formation d'un noyau composé d'$^{239}U^*$ par la réaction $^{238}U(d,p)$. A cause de la contribution de ces protons dits "stériles", le spectre singles $N_s(E^*)$ mesuré est surestimé, ce qui a pour conséquence directe de sous estimer la probabilité de fission de l'$^{239}U^*$ d'après l'équation A.10. Une

étude plus approfondie du break-up du deuton est développée à la section E.2.1.2.

Les données expérimentales de Britt et Cramer sont environ 30% inférieures à nos données expérimentales au niveau du plateau de fission. Ces différences ne sont probablement pas dues à l'angle de détection du proton de 150° choisi par Britt et Cramer puisque nos données ne montrent pas de telles différences (aux incertitudes près) de probabilités à ces énergies pour des angles compris entre 126° et 140°. En revanche, Britt et Cramer ont utilisé une cible oxydée d'uranium dans le cadre de l'expérience. Les deutons du faisceau incident et les atomes d'oxygène de la cible peuvent être à l'origine de réactions de fusion-évaporation où le noyau de fluor formé peut émettre un proton non associé à la formation d'un noyau d'$^{239}U^*$. Ce phénomène se résume selon l'équation :

$$d + {}^{16}O \rightarrow {}^{18}F^* \rightarrow {}^{17}O^* + p \tag{E.1}$$

Lors de réactions de fusion-évaporation sur un noyau léger, les protons émis couvrent un spectre continu en énergie contrairement aux réactions de transfert où les protons contaminent le spectre des singles à des énergies bien particulières liées à la structure nucléaire du noyau contaminant. La détection de cette contribution de protons non associés au noyau composé $^{239}U^*$ implique une surestimation du spectre singles $N_s(E^*)$ et induit ainsi une sous-estimation de la probabilité de fission. La cible utilisée lors de l'expérience d'Oslo était métallique, et son oxydation a été limitée au maximum. Par conséquent, la contribution des protons de fusion-évaporation sur l'oxygène au spectre singles mesuré devrait être moins importante que pour l'expérience de Britt et Cramer. Une étude plus quantitative de ce phénomène est donnée dans la section suivante. Notons que Britt et Cramer ont utilisé un faisceau de 18 MeV contre 15 MeV pour notre expérience, l'écart entre les probabilités de fission peut être également lié à cette différence en énergie.

La probabilité d'émission gamma représentée sur la figure E.2 (à droite) est en désaccord avec les données neutroniques sur toute la gamme d'énergie étudiée. Les écarts de valeurs se réduisent lorsque l'énergie d'excitation augmente, avec un minimum proche d'un facteur 3 pour des énergies d'excitation d'environ 6,3 MeV. Ces écarts sont probablement la conséquence du peuplement d'une distribution de moments angulaires plus élevés en réaction de transfert qu'en réaction induite par neutron. Pour des énergies d'excitation légèrement supérieures au S_n, l'émission gamma est en compétition avec l'émission neutron qui permet de peupler le niveau fondamental ou les premiers états excités du noyau résiduel ^{238}U. Les états discrets du noyau résiduel ont un spin bien défini et à ces énergies, le moment angulaire emporté par le neutron émis est en général faible (autour de 1 $\hbar$) : l'émission neutron pour des énergies proches de S_n est donc très sensible au spin du noyau $^{239}U^*$. C'est pourquoi si le moment angulaire induit en réaction de substitution est beaucoup plus élevé que celui des premiers états excités du noyau résiduel, alors l'émission neutron vers ces états discrets sera fortement limitée et la désexcitation du noyau composé se fera majoritairement par émission gamma d'après la conservation de la probabilité de désexcitation totale du noyau à ces énergies. Au contraire pour une réaction induite par neutron, l'émission neutron vers les premiers états du noyau résiduel devient rapidement la voie de désexcitation majoritaire pour des énergies d'excitation au dessus de S_n. Cette sélectivité en moment angulaire pour l'émission neu-

tron diminue fortement lorsque la densité de niveaux du noyau résiduel augmente, c'est pourquoi les différences entre les probabilités d'émission gamma mesurée et induite par neutron devraient diminuer lorsque l'énergie d'excitation du noyau composé augmente. C'est d'ailleurs ce qui est observé pour l'$^{239}U^*$. Cependant, les écarts restent bien trop élevés pour considérer que la limite de Weisskopf-Ewing ait été atteinte.

E.2.1.1. Réactions de fusion-évaporation

Des réactions de fusion-évaporation du deuton sur les noyaux de ^{12}C, d'^{238}U, et d'^{16}O peuvent théoriquement avoir lieu, produisant ainsi un fond de protons d'énergie continue contaminant le spectre des singles. L'équation de ces trois réactions de fusion-évaporation sont les suivantes :

$$\begin{aligned} d +^{12} C &\rightarrow^{14} N^* \rightarrow^{12} C^* + p \\ d +^{238} U &\rightarrow^{240} Np^* \rightarrow^{239} U^* + p \\ d +^{16} O &\rightarrow^{18} F^* \rightarrow^{17} O^* + p \end{aligned} \tag{E.2}$$

La détection de protons émis par réaction de fusion-évaporation avec le support en carbone de la cible n'est pas génante puisque cette contribution est directement soustraite par la mesure indépendante du fond généré par une cible de carbone pure (cf section D.1.2.2). Ensuite, la probabilité que la réaction de fusion avec l'uranium suivie de l'évaporation d'un proton aie lieue, est inférieure à une chance sur un million d'après un calcul réalisé par le code de fusion-évaporation PACE IV [Gav80] intégré au logiciel LISE++ [LISE]. La contribution des protons de ce phénomène peut donc être négligée. En fait, la désexcitation du noyau $^{240}Np^*$ riche en neutrons formé, est largement dominée par l'évaporation de neutrons suivie de la fission.

Enfin, l'estimation du nombre de protons détectés provenant du phénomène de fusion-évaporation de deutons sur l'oxygène de la cible s'effectue en deux étapes. D'abord il est nécessaire d'estimer le nombre de noyaux d'oxygène présent dans la cible d'^{238}U. Puis le nombre de protons évaporés détectés sera estimé à l'aide de calculs de fusion-évaporation du deuton sur l'oxygène. Le nombre de noyaux d'oxygène N_{cible}^{ox} présents dans la cible d'^{238}U est estimé de la façon suivante :

$$N_{cible}^{ox} = \frac{N_d^{piste(126^\circ)}}{I_d.\Delta t.(\frac{\Delta\sigma}{\Delta\Omega})_{Ruth}^{\theta=126^\circ}\Delta\Omega^{piste(126^\circ)}} \tag{E.3}$$

Avec

- $N_d^{piste(126^\circ)}$: le nombre de deutons diffusés élastiquement détectés par une piste à 126°
- I_d : l'intensité du faisceau de deuton (particules/s)
- Δt : le temps d'interaction faisceau-cible (s)

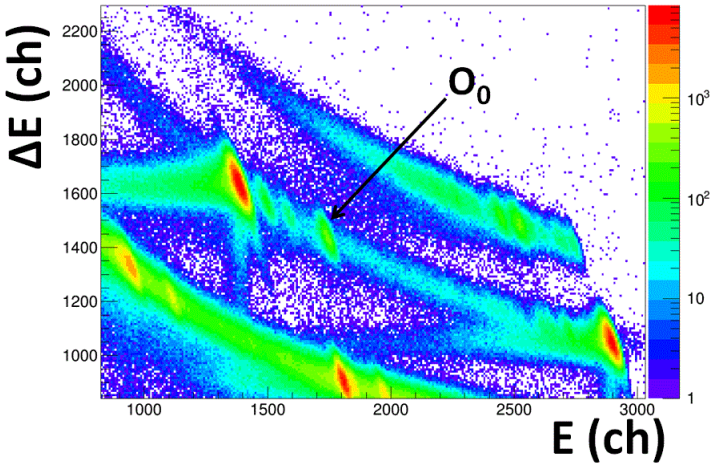


Figure E.3.: Spectre d'identification des éjectiles pour la réaction $d + 238U$ à 15 MeV pour une piste à 126°. Les deutons provenant de la réaction élastique du faisceau sur l'oxygène de la cible d'uranium sont indiqués.

- $(\frac{\Delta\sigma}{\Delta\Omega})^{\theta=126^\circ}_{Ruth}$: la section efficace différentielle de diffusion élastique de Rutherford du deuton sur une cible d'^{238}U pour un angle de détection du deuton de 126°.
- $\Delta\Omega^{piste(126^\circ)}$: l'angle solide de détection couvert par une piste à 126°.

$N_d^{piste(126^\circ)}$ est déterminé en comptabilisant le nombre de deutons détectés par une piste à 126°, ayant été générés par la diffusion élastique du faisceau sur l'oxygène de la cible. Ces deutons sont identifiables dans une représentation $\Delta E - E$ comme le montre la figure E.3.

La formule analytique de la section efficace différentielle de diffusion élastique de Rutherford est connue et le terme $(\frac{\Delta\sigma}{\Delta\Omega})^{\theta=126^\circ}_{Ruth}$ est calculé par le logiciel LISE++. L'angle solide couvert par une piste à 126° se calcule selon :

$$\Delta\Omega^{piste(126^\circ)} = \frac{2\pi}{8} sin\theta\Delta\theta \; avec\, \theta = 126^\circ \pm 1^\circ \tag{E.4}$$

Le coefficient $\frac{1}{8}$ tient du fait que SiRi est composé de huit pistes à 126°. Numériquement, on trouve $N^{ox}_{cible} \backsimeq 3,75.10^{17}\, atomes/cm^2$. Comme la cible d'uranium comporte environ $6.10^{17}\, atomes/cm^2$, les calculs soutiennent la présence d'environ deux noyaux d'oxygène pour trois noyaux d'uranium dans la cible.

Ensuite, le calcul du nombre de protons de fusion-évaporation détectés est donné par :

$$N_p^{fus-evap} = (\frac{\Delta\sigma}{\Delta\Omega})^{\theta=120-130^\circ}_{fus-evap} . \Delta\Omega^{piste(126^\circ)} . I_d . N^{ox}_{cible} . \Delta t \tag{E.5}$$

Où $(\frac{\Delta\sigma}{\Delta\Omega})^{\theta=120-130^\circ}_{fus-evap}$ est la section efficace différentielle de fusion-évaporation (d'un proton) du deuton sur l'oxygène pour des angles de détection du protons allant de 120° à 130°. Ce terme est estimé à l'aide du code de fusion-évaporation PACE IV. Ce code

fournit la distribution angulaire du nombre de protons de fusion-évaporation avec un pas $\Delta\theta = 10°$ et la distribution en énergie des protons E_p émis avec un pas $\Delta E_p = 0,5$ MeV. La résolution angulaire et énergétique expérimentale de détection des protons est bien meilleure que celle fournit par PACE IV, c'est pourquoi les résultats des calculs doivent être considérés comme étant des ordres de grandeur.

Nous souhaitons estimer le nombre de protons de fusion-évaporation détectés pour des énergies d'excitation de l'$^{239}U^*$ comprises entre 6,8 et 7,3 MeV ($\Delta E^* = \Delta E_p = 0,5$ MeV). Dans la région énergétique correspondant au plateau de fission de l'$^{239}U^*$ (voir figure E.2), le nombre total de protons détectés par une piste à 126° est d'environ 72000. Le nombre de protons de fusion-évaporation $N_p^{fus-evap}$ est estimé d'après l'équation E.5 à 4800, ce qui représente une proportion de protons provenant de ce phénomène inférieure à 7%. Les réactions de fusion-évaporation du deuton sur l'oxygène ne peuvent donc pas expliquer un écart aussi grand que celui observé entre la probabilité de fission évaluée par JENDL 4.0 et celle mesurée dans le cadre de ce travail.

L'uranium existe sous quatre formes d'oxyde que sont le dioxyde d'uranium UO_2, le trioxyde d'uranium UO_3, le tétraoxyde d'uranium UO_4 et l'octaoxyde de triuranium U_3O_8. Britt et Cramer ont utilisé une cible oxydée d'^{238}U et donc plus exposée aux réactions de fusion-évaporation mais dont la composition chimique n'est pas connue. Or on peut affirmer que quelque soit sa composition, la cible possède au minimum deux noyaux d'oxygène pour un noyau d'uranium ce qui correspond à une oxydation de la cible au moins trois fois supérieure à celle de notre expérience. Par conséquent, la proportion de protons provenant de la fusion-évaporation serait de 21% au minimum ce qui permettrait de combler partiellement l'écart entre notre probabilité de fission expérimentale et celle de Britt et Cramer. De plus, il ne faut pas oublier que Britt et Cramer ont utilisé un faisceau de deuton de 18 MeV et qu'à cette énergie, la section efficace de fusion-évaporation est plus élevée qu'à 15 MeV, comme lors de notre expérience.

E.2.1.2. Phénomène du break-up du deuton

Un vif intérêt pour l'étude du phénomène de réactions de break-up de projectiles sur des cibles est survenu à partir des années 80. Le break-up peut être vu et modélisé comme un processus à deux étapes. Dans le cas où le projectile est un deuton, la première étape correspond à la dissociation de celui-ci en un proton et un neutron lors de l'approche du champ coulombien et nucléaire du noyau cible A.

Le proton détecté par le dispositif expérimental joue le rôle de spectateur, alors que le neutron peut être diffusée élastiquement ou non-élastiquement avec la cible. Dans le premier cas, le noyau cible est laissé dans son état fondamental, on parle alors de break-up élastique "elastic break-up" (EBU) qui se résume selon :

$$d + {}^{238}U \rightarrow p + n + {}^{238}U \tag{E.6}$$

Quant aux processus non élastique du break-up "non elastic break-up" (NEB), ils modifient l'état du noyau cible et correspondent à la deuxième étape du processus du break-up. Il existe de nombreux processus de break-up non élastiques. Par exemple, le neutron peut

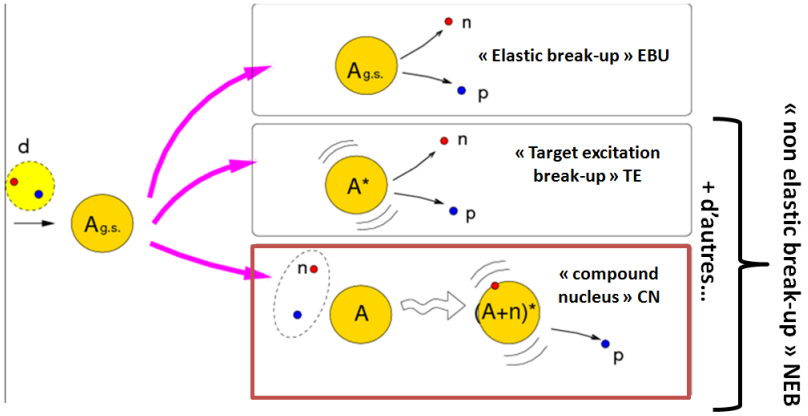


Figure E.4.: Illustration du mécanisme de quelques processus de break-up du deuton approchant un noyau cible A. La composante recherchée correspond à la formation du noyau composé et est encadrée en rouge.

être absorbé partiellement par le noyau cible puis être ensuite réémis avant la formation d'un noyau composé. Ce mécanisme est appelé "target excitation" (TE) car il provoque l'excitation du noyau cible. Aussi, le neutron peut interagir avec quelques nucléons se situant à la périphérie du noyau correspondant au mécanisme de réaction directe... Toutes les composantes ne menant pas à la formation d'un noyau composé sont rassemblés dans un ensemble que l'on nomme "non compound nucleus" ($\overline{CN}$).

Enfin, le neutron issue du break-up du deuton peut être absorbé totalement par le noyau cible, entrainant la thermalisation du sytème et la formation d'un noyau composé. On appelle ce mécanisme "compound nucleus" (CN). La contribution CN du break-up est celle qui nous intéresse puisqu'elle correspond à la formation du noyau composé par l'absorption par la cible du neutron résultant du break-up. D'après les notations utilisées, la composante totale du break-up du deuton "total break-up" (TBU) se déduit :

$$TBU = EBU + NEB = EBU + CN + \overline{CN} \tag{E.7}$$

La figure E.4 illustre la classification de quelques processus du break-up du deuton évoquées.

Il est clair d'après cette illustration que la détection d'un proton seul, comme c'est la cas pour notre expérience, ne permet pas de discriminer les différentes contributions du break-up. A défaut de pouvoir discrimer chacune des composantes du break-up expérimentalement, des calculs ont été entrepris par des collaborateurs théoriciens A. Moro et J. Lei de l'université de Séville afin de quantifier la contribution responsable de la formation du noyau composé par réaction de transfert (CN) de celles qui contaminent la mesure par des protons stériles.

E.2.1.3. Calculs de break-up du deuton

Différents modèles de calculs de break-up du deuton ont été développés comme les modèles d'Ichimura, Austern et Vincent (IAV) [Aus87, Ich85] ou d'Udagawa et Tamura (UT) [Uda81]. Tous les modèles s'accordent sur l'estimation de la contribution élastique du break-up EBU qui est calculée par la méthode "continuum-discretized coupled-channels" (CDCC) [Aus87]. En revanche, la contribution NEB est calculée de manière différente même si elle est décrite par une formule à la structure similaire pour chaque modèle. En effet, pour chacun des modèles, la section efficace inélastique totale doublement différentielle du break-up NEB est proportionnelle à la valeur de l'élément de matrice $< \psi_n^0 | W_{nA} | \psi_n^0 >$ où ψ_n^0 est la fonction d'onde décrivant l'évolution du neutron (après dissociation du deuton) avec la cible dans son état fondamental, et W_{nA} est la partie imaginaire du potentiel optique réprésentant la diffusion du neutron sur la cible A. Seulement, la définition de ces termes diffèrent selon les modèles.

Le modèle de calcul utilisé par A. Moro et J. Lei est celui d'Udagawa et Tamura pour le calcul du break-up élastique, suivi de la formation d'un noyau composé (composante CN). Certaines hypothèses simplificatrices sur la forme de la fonction d'onde et du potentiel optique empêche le calcul d'autres contributions du break-up.

C'est pourquoi A. Moro et J. Lei ont utilisé le modèle IAV pour estimer la contribution NEB. Dans le cadre ce modèle, le potentiel optique peut s'exprimer comme la somme de deux termes :

$$W_{nA} = W_{nA}(CN) + W_{nA}(\overline{CN}) \tag{E.8}$$

Où le premier terme $W_{nA}(\overline{CN})$ est associé à toutes les contributions du break-up qui n'entraîne pas la formation d'un noyau composé, au contraire du terme $W_{nA}(CN)$ dont l'estimation est contrainte par la connaissance de la section efficace de formation du noyau composé calculée par modèle optique. La détermination des deux composantes du potentiel optique imaginaire W_{nA} est néanmoins loin d'être triviale, et fait aujourd'hui l'objet de recherches approfondies.

D'après A. Moro et J. Lei, le modèle UT considère uniquement le break-up élastique du deuton suivi de la formation du noyau composé, il ne prendrait pas en compte d'éventuels réactions de break-up inélastique suivi de la formation d'un noyau composé. Ils admettent donc avoir quelques doutes quant à la fiabilité des calculs de la composante CN à partir du modèle UT. Aujourd'hui, seule la composante NEB peut être calculée par le modèle IAV, mais à terme, A. Moro et J. Lei aimeraient pouvoir aussi calculer la composante CN à partir de ce modèle afin de la comparer avec les résultats issus du modèle UT.

Sur la base de ces deux modèles, des calculs préliminaires des différentes contributions du break-up NEB et CN ont été réalisés pour l'interaction de deutons d'énergie incidente de 15 MeV et de 18 MeV sur des noyaux d'^{238}U afin de reproduire les conditions expérimentales de cette expérience et de celle de Britt et Cramer. Les sections efficaces différentielles sont intégrées pour des énergies et des angles d'émission du proton semblables aux conditions expérimentales.

La figure E.5 représente le calcul préliminaire des différentes contributions du break-up du deuton intéragissant avec une cible d'^{238}U intégrées pour des angles du protons

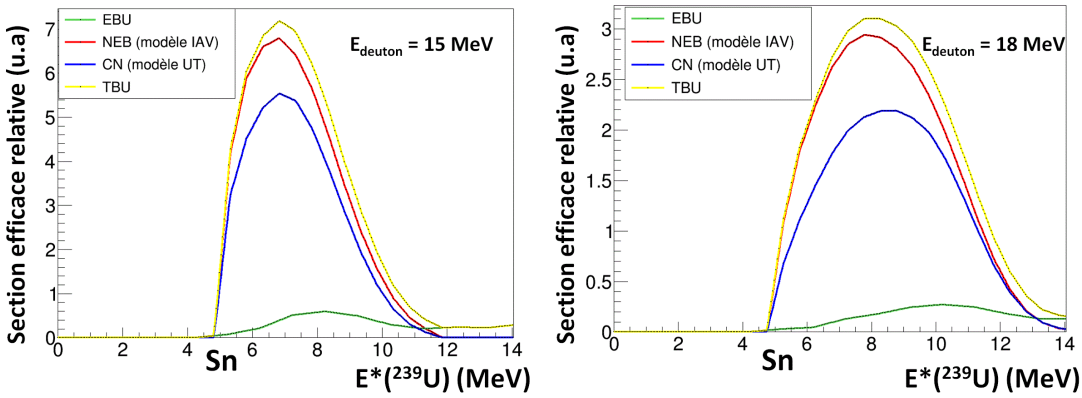


Figure E.5.: Calculs préliminaires [Lei15] de la contribution du break-up à la réaction $d + ^{238}U$ intégrée pour des angles du protons compris entre 125° et 141° en fonction de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$. L'énergie des deutons incidents est de 15 MeV (à gauche) et de 18 MeV (à droite).

compris entre 125° et 141°, en fonction de l'énergie d'excitation de l' $^{239}U^*$. Les calculs à gauche de la figure sont effectués pour des deutons d'énergie incidente équivalente à notre expérience (15 MeV) alors que les calculs à droite de la figure correspondent à des deutons d'énergie de 18 MeV, comme pour l'expérience de Britt et Cramer. Les calculs montrent clairement qu'il n'y a pas de phénomène de break-up jusqu'à des énergies des protons équivalentes au S_n du noyau composé. La preuve théorique se base sur des arguments simples de conservation de l'énergie totale de la réaction (cf ANNEXE D). Contrairement à ce qui a été écrit au cours de l'étude de la réaction $^{232}Th(d,p)$ [Wil12], les calculs attestent de l'omniprésence du break-up du deuton pour des énergies d'excitation du noyau composé supérieures au S_n. On constate aussi que pour les deux énergies de deuton, les résultats sont similaires, et que la proportion aux différentes contributions du break-up est très proche. Plus précisément, dans la région énergétique d'étude de l'$^{239}U^*$ (entre S_n et 7,5 MeV environ), la composante élastique du break-up (EBU) représente dans les deux cas moins de 10 % du break-up total alors que la composante relative à la formation de l'$^{239}U^*$(CN) en représente plus de 75 %. Ces calculs permettent d'évaluer la proportion de protons stériles à soustraire dans la détermination des probabilités de désexcitation de l'$^{239}U^*$.

E.2.1.4. Probabilités de fission et d'émission gamma corrigées de la contribution du break-up du deuton

La détection de protons provenant des composantes du break-up autres que celle menant à la formation du noyau composé $^{239}U^*$ influencent les probabilités de désexcitation.

Comme la composante EBU laisse la cible dans son état fondamental, les protons détectés ne peuvent pas être associés à des gammas ou des fragments de fission en coïncidence et induisent par conséquent, une diminution de la probabilité de désexcitation considérée à cause d'une surestimation du spectre des singles $N_s(E^*)$.

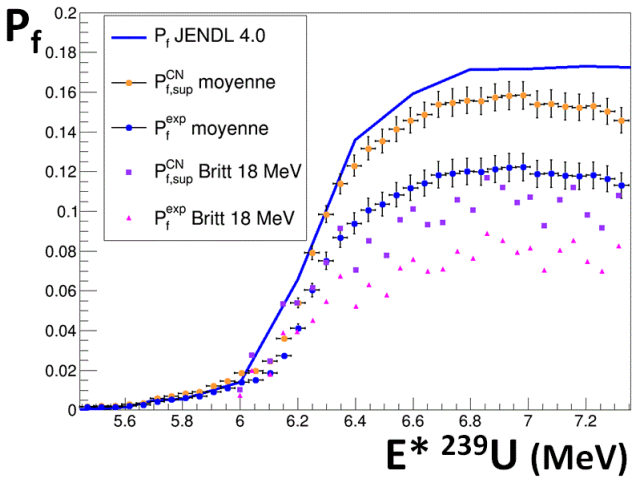


Figure E.6.: Probabilité de fission expérimentale P_f^{exp} et limite supérieure de la probabilité $P_{f,sup}^{CN}$ corrigée du break-up du deuton pour l'$^{239}U^*$. Les probabilités de l'expérience de Britt et Cramer ainsi que la probabilité induite par neutron selon JENDL 4.0. sont également représentées

Dans le cas de la composante TE du break-up, la cible est dans un état excité et les fragments de fission émis au cours de la désexcitation de l' $^{238}U^*$ peuvent être détectés en coïncidence avec le proton du break-up. Cependant, il est fort probable qu'à l'issue de cette réaction, peu de noyaux d'$^{238}U^*$ soient formés avec une énergie d'excitation suffisante (au moins égale à la barrière de fission) pour fissionner. Tout comme la composante EBU, les protons détectés issus du processus de TE induisent donc une diminution de la probabilité de fission expérimentale de l'$^{239}U^*$.

En revanche, la probabilité d'émission gamma mesurée de l'$^{239}U^*$ est potentiellement contaminée par la prise en compte de gammas de coïncidence provenant de la désexcitation de l'$^{238}U^*$. Il est très difficile dans ce cas de savoir dans quelles proportions la composante TE du break-up influence la probabilité d'émission gamma de l'$^{239}U^*$. Cependant, dans le cas de la fission et de l'émission gamma, si on considère qu'aucun gamma ou fragment de fission n'a été détecté en coïncidence avec un proton venant de la composante TE du break-up, il est alors possible de déterminer une limite supérieure de la probabilité de désexcitation P_{sup}^{CN} qui ne prend en compte que la formation du noyau composé, à partir de la probabilité mesurée P^{exp} qui considère toutes les contributions du break-up :

$$P_{sup}^{CN}(E^*) = \frac{P^{exp}}{\sigma_{CN}/\sigma_{TBU}} \tag{E.9}$$

Où σ_{CN} et σ_{TBU} sont les sections efficaces des composantes CN et TBU du break-up. Les probabilités P_{sup}^{CN} et P^{exp} pour la fission et l'émission gamma sont représentées sur les figures E.6 et E.7 respectivement.

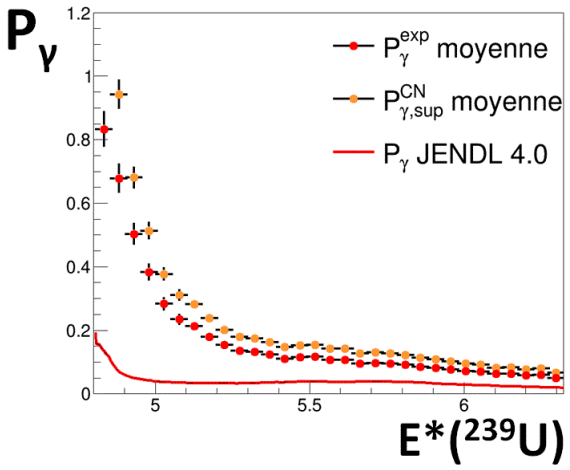


Figure E.7.: Probabilité d'émission gamma expérimentale P_{γ}^{exp} et limite supérieure de la probabilité $P_{\gamma,sup}^{CN}$ corrigée du break-up du deuton pour l'$^{239}U^{*}$, comparées à la probabilité induite par neutron selon JENDL 4.0.

On observe que, pour l'expérience de Britt et Cramer, la limite supérieure de la probabilité corrigée $P_{f,sup}^{CN}$ est inférieure aux données neutroniques d'environ 40%. Ces différences pourraient être dues au moins en partie aux réactions de fusion-évaporation sur l'oxygène de la cible, mais comme l'état d'oxydation de la cible est inconnue, il est impossible de conclure sur la qualité de la correction du break-up apportée par les calculs.

En revanche dans notre expérience, la limite supérieure de la probabilité corrigée $P_{f,sup}^{CN}$ est en bien meilleur accord avec les données neutroniques que P_{f}^{exp}, validant ainsi la méthode utilisée pour le calcul du break-up du deuton à cette énergie du faisceau. La probabilité $P_{f,sup}^{CN}$ reste néanmoins inférieure aux données évaluées d'environ 10% au niveau du plateau de fission, ce qui correspond à l'ordre de grandeur de la proportion de protons stériles provenant des réactions de fusion-évaporation comme il a été mentionné à la section E.2.1.1. Cet écart peut donc raisonnablement être attribué à la fois à ce phénomène, mais aussi à l'incertitude sur les calculs de break-up. En effet, on rappelle que ces calculs sont préliminaires, et que comme des doutes sur les corrections du phénomène du break-up subsistent au sein de l'équipe ayant réalisé ces calculs, il n'est pas impossible que le bon accord constaté ne soit que fortuit.

On observe sur la figure E.7 que la limite supérieure de la probabilité $P_{\gamma,sup}^{CN}$ corrigée de l'effet du break-up admet des écarts encore plus élevées avec les données neutroniques.

La figure E.8 représente la limite supérieure des probabilités de fission et d'émission gamma corrigées du break-up du deuton dans un domaine d'énergie où les deux sont en compétition. Les résultats montrent que pour une région énergétique commune, la probabilité de fission est en bon accord avec les données neutroniques au contraire de la probabilité d'émission gamma. Ces résultats suggèrent que la voie de désexcitation du noyau composé par fission est moins sensible à la voie d'entrée (réaction de transfert ou

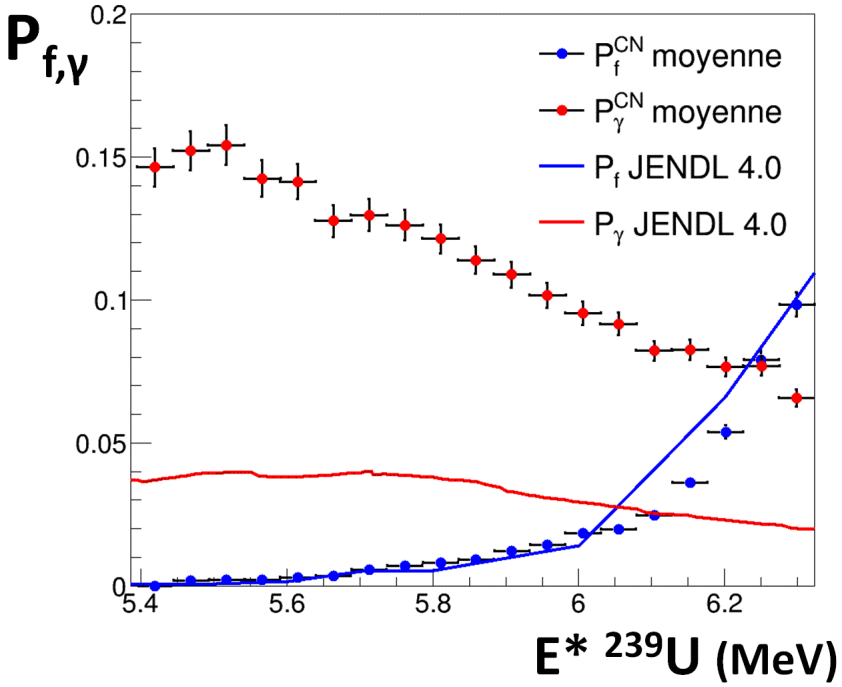


Figure E.8.: Probabilités de fission et d'émission gamma de l'$^{239}U^*$ corrigées du break-up, comparées aux données évaluées dans une région énergétique commune.

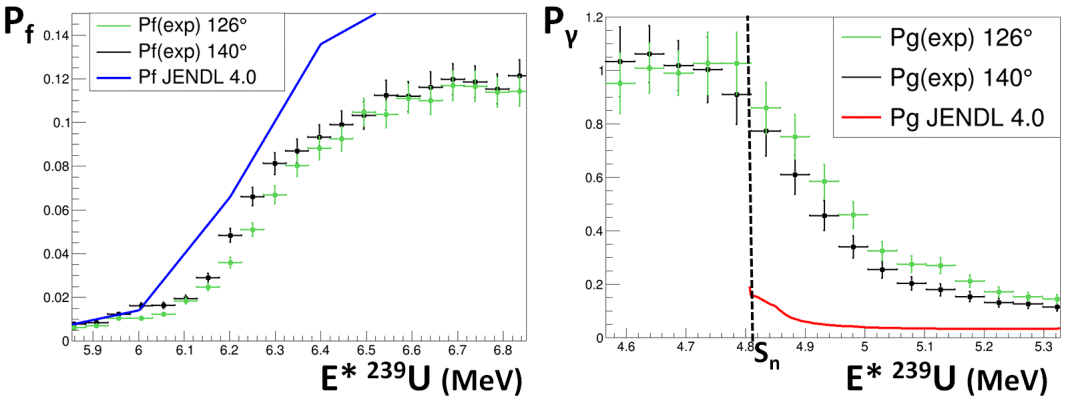


Figure E.9.: Probabilités de fission (à gauche) et d'émission gamma (à droite) de l'$^{239}U^*$ pour les angles de détection du proton situés à 126° et à 140°.

réaction induite par neutron) que ne l'est la voie de désexcitation par émission gamma. Tout se passe comme si la désexcitation par fission se déroulait indépendamment de la voie d'entrée et des autres voies de désexcitation. Il reste à vérifier si cette tendance se retrouve pour les autres noyaux étudiés. Ces résultats seront confrontés avec des probabilités de désexcitation obtenues par calculs de modèle statistique à la section E.2.2 afin de conclure cette étude.

Enfin la figure E.9 représente les probabilités de fission et d'émission gamma de l'$^{239}U^*$ pour les angles de détection du proton situés à 126° et à 140°. La probabilité de fission à 126° est légèrement plus faible que celle à 140°, suggérant que le moment angulaire induit au noyau composé est plus élevé à 126° qu'à 140°. En effet, les états de hauts spins disponibles au dessus de la barrière de fission se situent à plus haute énergie d'excitation, ce qui décale par conséquent le seuil de fission vers les hautes énergies d'excitation. Cette explication est cohérente avec l'observation de la probabilité d'émission gamma qui se révèle être plus élevée à 126° qu'à 140°.

E.2.2. Calculs basés sur le modèle statistique

E.2.2.1. Calculs de désexcitation avec EVITA

Des calculs de désexcitation pour le noyau $^{239}U^*$ ont été réalisés avec le code EVITA au CEA Bruyères le Châtel. Il s'agit d'un code de type Hauser-Feshbach dont les valeurs des paramètres sont issues du code TALYS [Kon]. La densité de niveaux est décrite par le modèle CGCM, la fonction force gamma par le modèle EGLO, et les coefficients de transmission neutron sont calculés à partir du potentiel optique décrit dans la référence [Mor04].

Dans ce type de calcul, on identifie le mode de désexcitation d'un noyau caractérisé par son état initial (E^*, J^π). La figure E.10 représente les probabilités d'émission gamma et de fission calculées par EVITA pour l'$^{239}U^*$ pour différents états quantiques initiaux

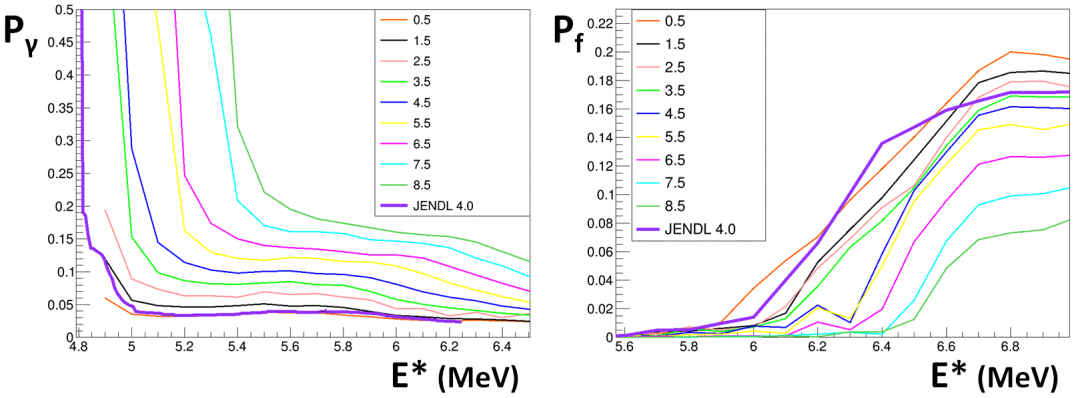


Figure E.10.: Probabilités d'émission gamma (à gauche) et de fission (à droite) calculées de l'$^{239}U^*$ en fonction de (E^*, J^π). Les probabilités d'émission gamma et de fission induites par neutron JENDL 4.0 sont également représentées.

(E^*, J^π). Les calculs couvrent la plage énergétique d'intérêt [Sn-Sn+1,5 MeV] pour laquelle l'émission gamma et la fission ont été mesurées expérimentalement. Les probabilités d'émission gamma et de fission induite par neutron JENDL 4.0 servant de référence sont également représentées sur la figure E.10.

D'après l'équation de conservation du moment angulaire total définit par l'équation A.47, l'émission d'un neutron est favorisée si les moments angulaires totaux du noyau composé et du noyau fils sont voisins (à j_n près). Or, il y a davantage d'états de bas spins que d'états de hauts spins à basse énergie d'excitation, la probabilité d'émission neutron sera ainsi d'autant plus limitée que le moment angulaire du noyau composé est élevé. Par conservation de la probabilité de désexcitation totale, l'émission gamma sera très favorisée si on considère une région énergétique où la fission n'a pas encore démarré. C'est pourquoi on observe une probabilité d'émission gamma plus élevée pour les moments angulaires élevés du noyau composé. Le raisonnement pour le comportement des probabilités de fission avec le moment angulaire est similaire de celui pour l'émission neutron : le nombre d'états de bas spins au dessus de la barrière de fission est plus élevée que le nombre d'états de hauts spins, limitant la fission des noyaux de hauts spins aux basses énergies d'excitation. Cela se traduit par un décalage du seuil de fission vers les hautes énergies d'excitation pour les noyaux de plus grands moments angulaires. Aussi, pour chaque état de spin considéré, on observe une diminution de la P_γ lorsque la P_f démarre, causée par l'augmentation du terme du nombre de voies de fission ouvertes au dénominateur de l'équation A.25.

Sachant que l'état fondamental de l'^{238}U est 0^+ et que le spin d'un neutron est de $\frac{1}{2}$, celui du noyau composé résultant de la capture neutronique sera de $\pm\frac{1}{2}$ pour des faibles énergies du neutron incident. Les calculs montrent que la probabilité de désexcitation théorique pour un spin de $\frac{1}{2}$ reproduit de façon satisfaisante la probabilité induite par neutron sur plusieurs centaines de keV.

La figure E.11 représente un calcul de la distribution du moment angulaire total J

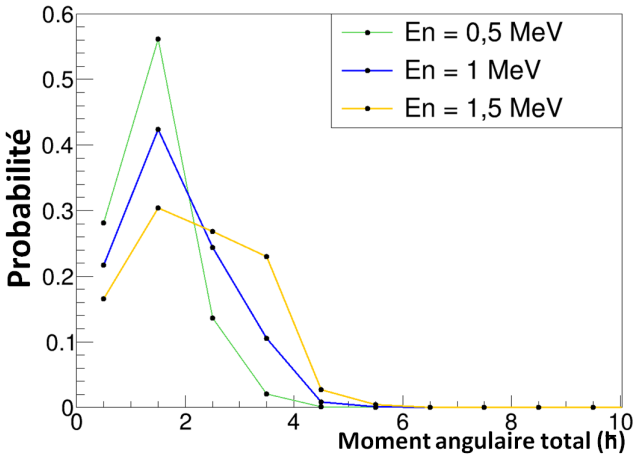


Figure E.11.: Distribution F_n^{CN} du moment angulaire total pour l'$^{238}U^*$ produit lors d'une réaction induite par neutron à différentes énergies en supposant un nombre égal d'états de parité positive et négative. Les paramètres utilisés pour le calcul proviennent de l'évaluation JENDL 4.0.

pour l'$^{239}U^*$ produit lors d'une réaction induite par neutron à différentes énergies en considérant une répartition équiprobable des états de parités positive et négative.

Ces calculs ont été réalisés avec les paramètres de l'évaluation JENDL 4.0, il s'agit donc de distributions de spin pour la réaction $n +^{238} U$ selon JENDL 4.0. En approximant chaque distribution par une gausienne, on obtient des valeurs de $\bar{J} = 1,3; 1,6; 2,0$ et $\sigma = 0,7; 1,0; 1,4$ pour $E_n = 0,5; 1,0; 1,5$ MeV, respectivement. Les distributions de spin sont donc relativement sensibles à l'énergie du neutron incident.

D'après ces calculs, plus les énergies de neutron incident (et donc d'excitation) sont élevées, et plus la plus probabilité que le moment angulaire j_n transféré au noyau composé par la capture neutronique soit grand est élevé. La contribution des probabilités à spins plus élevés pour la reproduction des probabilités de référence P_χ^{JENDL} doit donc augmenter à mesure que l'énergie d'excitation croît.

E.2.2.2. Extraction de la distribution de spin

L'objectif de cette section est d'extraire une distribution de spin F^{CN} des probabilités d'émission gamma mesurée P_γ et induite par neutron JENDL 4.0 P_γ^{JENDL}, à partir des rapports d'embranchement G_γ calculés par EVITA et des équations A.7 et A.12. Les probabilités sont ajustées en considérant (pour simplifier) une distribution de spin F^{CN} gaussienne ayant $\bar{J}$ et σ comme paramètres libres.

On souhaite dans un premier temps tester si la distribution de spin F_n^{CN} extraite de l'ajustement de P_γ^{JENDL} est capable de reproduire P_f^{JENDL}. Ce travail est nécessaire pour valider la cohérence des calculs théoriques. Dans un second temps, il s'agira de tester si la distribution de spin F_{surro}^{CN} extraite de l'ajustement de P_γ est capable de reproduire P_f afin de conclure sur la possibilité ou non de pouvoir expliquer les résultats

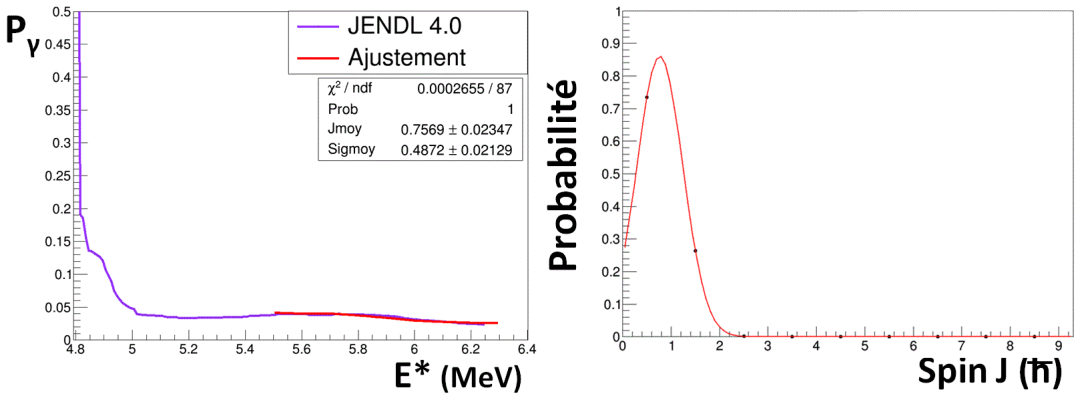


Figure E.12.: L'ajustement de P_γ^{JENDL} à l'aide de l'équation E.10 est représenté en rouge (à gauche). Distribution de spin obtenue grâce à l'ajustement de P_γ^{JENDL} sur la gamme énergétique [5,5-6,3 MeV] (à droite).

des probabilités de transfert à l'aide des calculs basés sur le modèle statistique.

Distributions de spin induites par neutron Comme évoqué précédemment, il est possible d'extraire une distribution de spin $F_n^{CN}(E^*, J^\pi)$ de la probabilité d'émission gamma issue de JENDL 4.0 en ajustant les différentes valeurs par une combinaison linéaire des G_γ^{EVITA} calculées avec EVITA selon l'équation :

$$P_\gamma^{JENDL}(E^*) \approx \sum_{J^\pi} F_n^{CN}(E^*, J^\pi).G_\gamma^{EVITA}(E^*, J^\pi) \tag{E.10}$$

Notons que l'énergie du neutron incident a été transformée en énergie d'excitation équivalente de l'$^{239}U^*$ d'après l'équation A.6. L'ajustement de P_γ^{JENDL} est appliquée entre 5,5 et 6,3 MeV, où les probabilités de désexcitation par émission gamma et par fission sont du même ordre de grandeur. Pour faciliter le raisonnement, nous considèrerons la distribution de spin F_n^{CN} indépendante de l'énergie incidente du neutron (et donc de l'énergie d'excitation de l'$^{239}U^*$) sur cette plage en énergie, même si la figure E.11 montre le contraire. La figure E.12 représente l'ajustement de P_γ^{JENDL} en utilisant l'équation E.10 sur la plage énergétique [5,5-6,3 MeV]. La distribution de spin est centrée en $\bar{J} = 0{,}8\ \hbar$ pour une déviation standard $\sigma = 0{,}5\ \hbar$. Comme le montre la figure E.13, l'utilisation de cette distribution permet d'obtenir une probabilité de fission qui reproduit raisonnablement P_f^{JENDL} dans la gamma énergétique de l'ajustement de P_γ^{JENDL}.

De manière équivalente, la distribution de spin extraite de l'ajustement de P_f^{JENDL} dans la gamme énergétique [5,5-6,3 MeV] permet de reproduire P_γ^{JENDL} comme le montrent les figures E.14 et E.15.

Dans ce cas, la distribution de spin est centrée en $\bar{J} = 1{,}1\ \hbar$ pour une déviation standard $\sigma = 0{,}4\ \hbar$ et se révèle être donc très proche de la distribution de spin extraite lors du fit de P_γ^{JENDL} : les calculs EVITA parviennent à reproduire de manière cohérente les probabilités d'émission gamma et de fission induite par neutron.

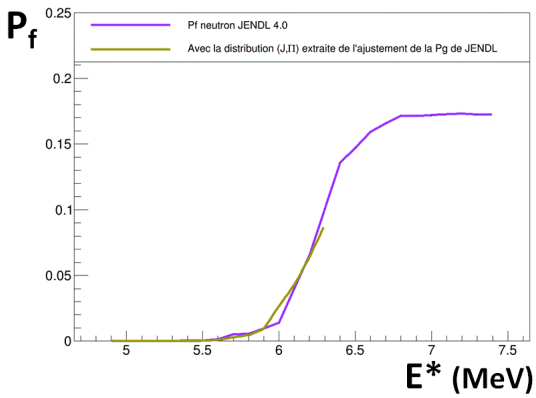


Figure E.13.: Probabilité de fission obtenue avec la distribution de spin extraite de l'ajustement de P_{γ}^{JENDL} à l'aide de l'équation E.10, dans la gamme énergétique [5,5-6,3 MeV] qui est comparée à P_{f}^{JENDL}.

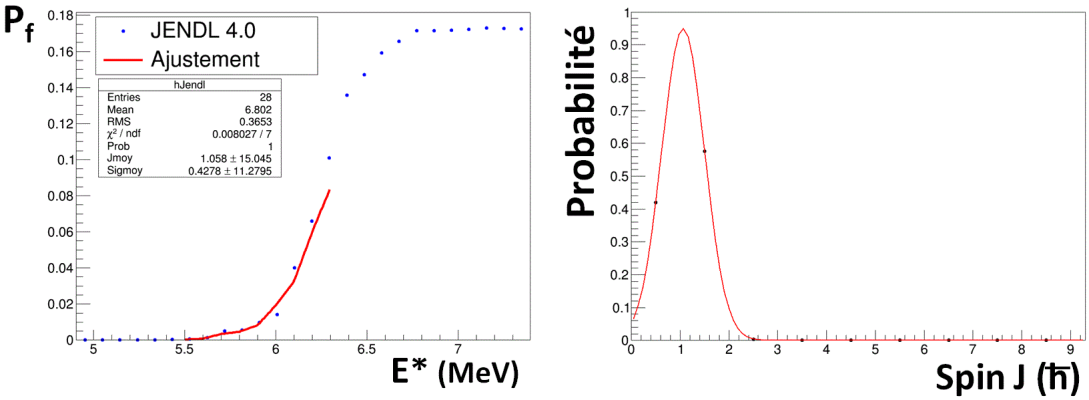


Figure E.14.: L'ajustement de P_{f}^{JENDL} à l'aide de l'équation E.10 est représenté en rouge (à gauche). Distribution de spin obtenue grâce à l'ajustement de P_{f}^{JENDL} sur la gamme énergétique [5,5-6,3 MeV] (à droite).

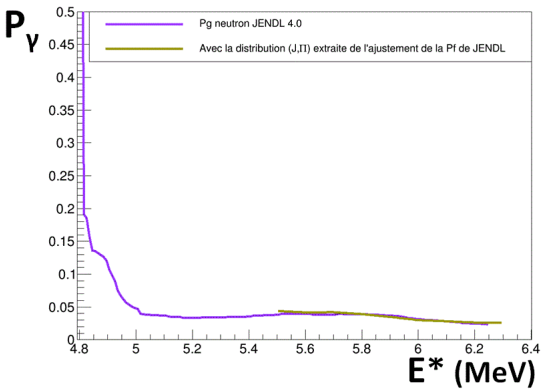


Figure E.15.: Probabilité d'émission gamma obtenue avec la distribution de spin extraite de l'ajustement de P_f^{JENDL} avec l'équation E.10 dans la gamme énergétique [5,5-6,3 MeV] qui est comparée à P_γ^{JENDL}.

L'ajustement réalisée sur la gamme énergétique [5,5-6,3 MeV] correspond à des énergies de neutron de [0,7-1,5 MeV]. Or, les distributions de spin extraites des ajustements sur P_γ^{JENDL} et P_f^{JENDL} sont centrées sur des valeurs de $\bar{J}$ plus faibles que celles provenant des distributions de spin calculées avec $E_n = 0,5; 1,0; 1,5$ MeV (voir figure E.11). La raison est probablement due au fait que les rapports d'embranchement déterminés par EVITA sont calculés de paramètres issus de l'évaluation JEFF 3.1 et non de JENDL 4.0. Ce point sera développé à la section E.3.2.2.

Au final, la compatibilité des distributions de spin extraites des probabilités de fission et d'émission gamma de JENDL 4.0 rend les calculs réalisés par EVITA cohérents. Cette procédure d'ajustement peut donc être appliquée aux probabilités induites par réactions de transfert.

Distribution de spin induites par réaction de transfert $^{238}U(d,p)$ La même procédure est maintenant appliquée sur les données de transfert pour interpréter les résultats. Cependant pour la réaction de transfert $^{238}U(d,p)$, nous supposons que la distribution de spin est considérée comme étant indépendante de l'énergie d'excitation. Cette approximation est justifiée d'après la figure E.16 qui présente des calculs préliminaires de distribution de spin de la réaction $^{238}U(d,p)$, réalisés pour différentes énergies d'excitation du noyau. Ces calculs ont été menés par notre collaboration avec les théoriciens A. Moro et J. Lei, et montrent que la distribution de spin est centrée autour de $\bar{J}$ = 3-4 $\hbar$ pour des énergies d'excitation comprises entre $S_n + 1$ MeV et $S_n + 6$ MeV.

La figure E.17 représente un ajustement de la probabilité d'émission gamma $P_\gamma^{transfert}$ de l'$^{239}U^*$ mesurée dans la gamme énergétique [S_n-6,3 MeV] en utilisant la formule E.10 appliquée aux données de transfert. La distribution de spin est très différente de celle induite par neutron, et se révèle être aussi plus large que celles issues des calculs pour la réaction $^{238}U(d,p)$. En effet elle est ici centrée en $\bar{J}$ = 4,3 $\hbar$ pour une dispersion σ

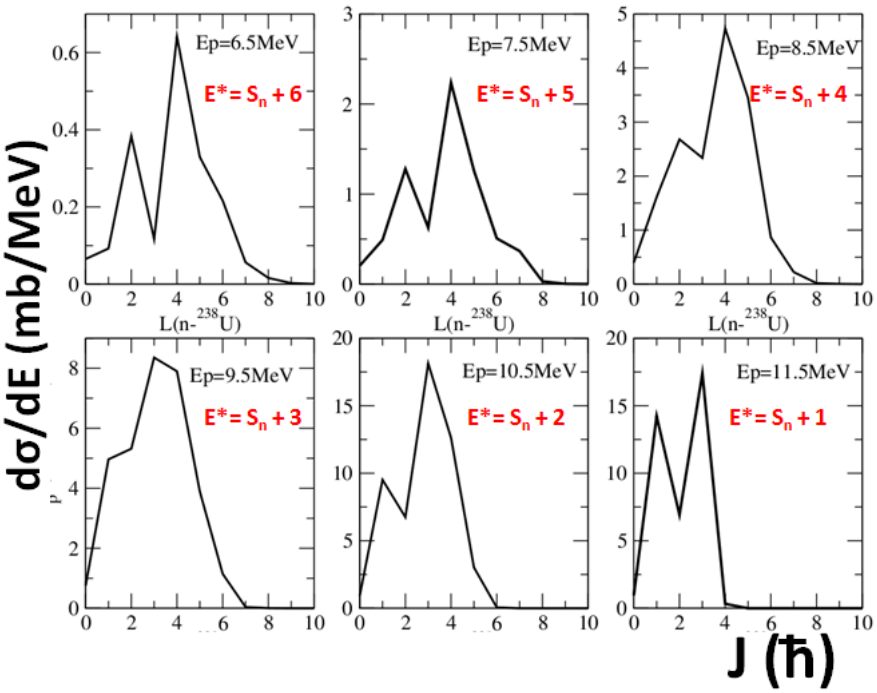


Figure E.16.: Calculs préliminaires de distributions de spin obtenue pour la réaction $^{238}U(d,p)$ en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé.

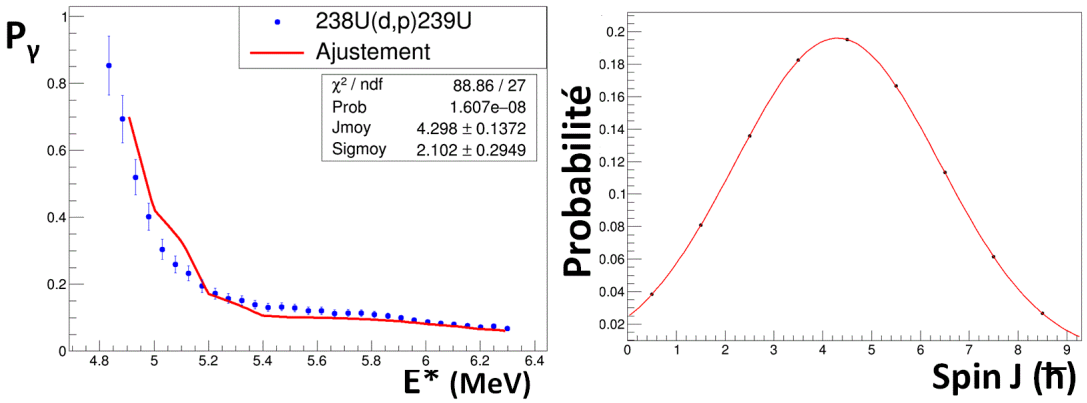


Figure E.17.: L'ajustement de $P_\gamma^{transfert}$ à partir de l'équation E.10 est représenté en rouge (à gauche). Distribution de spin obtenue grâce à l'ajustement de $P_\gamma^{transfert}$ sur la gamme énergétique [S_n-6,3 MeV] (à droite).

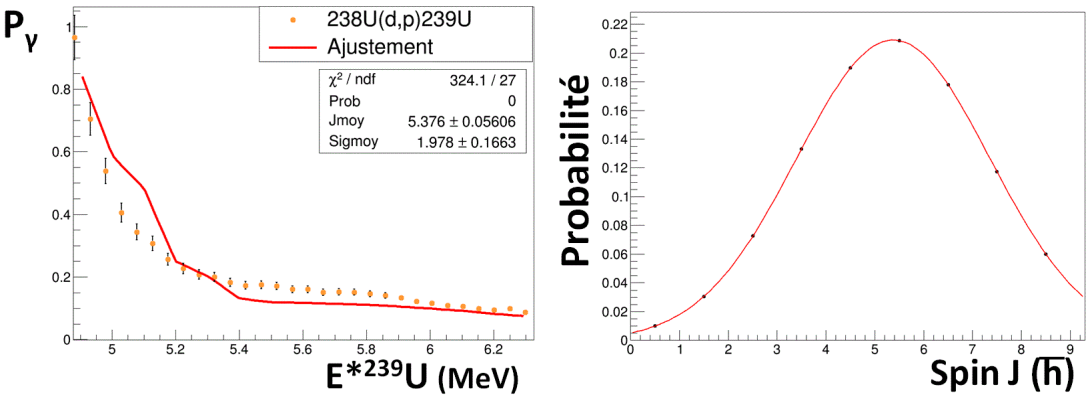


Figure E.18.: L'ajustement de $P_\gamma^{transfert}$ à partir de l'équation E.10 est représenté en rouge (à gauche). Distribution de spin obtenue grâce à l'ajustement de $P_\gamma^{transfert}$ sur la gamme énergétique [S_n-6,3 MeV] (à droite).

= 2,1 $\hbar$. La figure E.18 représente quant à elle l'ajustement de la probabilité d'émission gamma $P_{\gamma,sup}^{CN}$ corrigée du break-up du deuton.

La distribution de spin extraite est centrée en $\bar{J}$ = 5,4 $\hbar$ pour une dispersion σ = 2,0 $\hbar$. Même si l'ajustement n'est pas de très bonne qualité, il n'est pas surprenant d'observer que la distribution de spin issue de $P_{\gamma,sup}^{CN}$ est centrée sur un moment angulaire moyen plus élevée que celui de la distribution de spin $P_\gamma^{transfert}$ puisque $P_{\gamma,sup}^{CN} > P_\gamma^{transfert}$ sur la gamme d'énergie d'excitation considérée.

Enfin la figure E.19 représente la probabilité de fission obtenue en appliquant l'équation E.10 avec la distribution de spin issue de l'ajustement de $P_\gamma^{transfert}$ (en marron).

Les probabilités de fission "brutes" et corrigées du break-up du deuton sont également représentées sur la figure. On remarque que dans les deux cas, les calculs ne permettent pas de reproduire les probabilités de fission. En effet, la distribution de spin appliquée étant centrée à une valeur beaucoup plus grande que celle provenant de la distribution extraite de la fission induite par neutron, les états de plus hauts spins disponibles au dessus de la barrière de fission se situent à plus haute énergie d'excitation, ce qui décale par conséquent le seuil de fission.

Au final, même si l'ajustement de $P_\gamma^{transfert}$ n'est pas de très bonne qualité, et que la distribution extraite diffère de celle des calculs préliminaires théoriques pour la réaction $^{238}U(d,p)$, cette étude montre sans ambiguité que les calculs de modèle statistique opérés par EVITA ne peuvent pas reproduire la probabilité de fission de transfert avec une distribution de spin extraite de la probabilité d'émission gamma. Il sera intéressant de comparer ces conclusions à celles développées un peu loin pour l'$^{237}U^*$, pour lequel des calculs EVITA ont également été effectués.

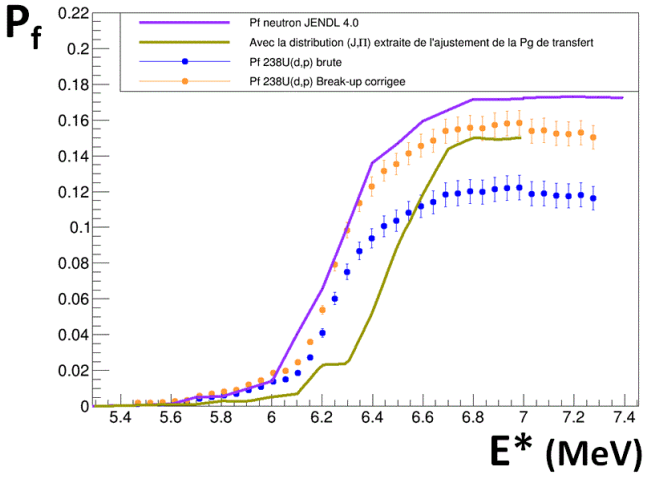


Figure E.19.: Probabilité de fission de l'$^{239}U^*$ obtenue avec la distribution de spin extraite de l'ajustement de $P_\gamma^{transfert}$ dans la gamme énergétique [S_n-6,3 MeV] en comparaison avec la probabilité neutronique donnée par JENDL 4.0 et les données expérimentales obtenues avec la réaction (d,p) non corrigées, et corrigées du break-up.

E.3. Réactions $(^3He, x)$

Tout comme avec le faisceau de deuton, les réactions contaminantes de break-up du faisceau d'^3He et de fusion-évaporation avec la cible sont en principe présentes. Cependant comme il a été précisé à la section C.2.2, l'influence du break-up peut être négligée pour les réactions impliquant le faisceau d'^3He dans notre configuration expérimentale.

De plus, l'évaporation d'un deuton, d'un triton ou d'un noyau d'^4He successif à la fusion d'un noyau de la cible avec le faisceau d'^3He est extrêmement improbable car le noyau de ^{241}Pu formé, a une énergie d'excitation de 33 MeV et fissionne préférentiellement après l'émission d'un ou de plusieurs neutrons, comme l'indiquent des calculs effectués avec PACE IV. De la même manière, l'évaporation d'un deuton ou d'un triton successif à la fusion d'un noyau d'oxygène de la cible ou un noyau de carbone du support avec le faisceau d'^3He a une probabilité très faible de se produire. Par contre, des réactions de fusion avec l'oxygène ou le support en carbone, suivie de l'évaporation d'un noyau ^4He peuvent se produire avec une probabilité non négligeable, mais l'énergie calculée par PACE IV des noyaux émis est trop faible pour être détectée par le dispositif SiRi. Par conséquent toute contamination provenant du break-up du faisceau ou des réaction de fusion-évaporation avec la cible peuvent être négligées.

Des calculs de probabilités de désexcitation par modèle statistique ont pu être réalisés mais seulement pour le $^{237}U^*$, par manque de temps. Comme pour l'$^{239}U^*$, les résultats seront confrontés aux données expérimentales issues de la réaction $^{238}U(^3He, \alpha)$ afin d'apporter des éléments d'interprétation.

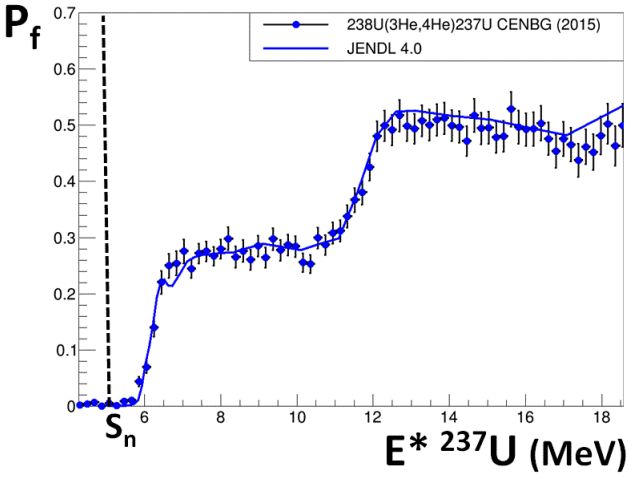


Figure E.20.: Probabilité de fission de l'$^{237}U^*$ en fonction de l'énergie d'excitation comparée à l'évaluation JENDL 4.0.

E.3.1. Réaction $^{238}U(^3He, \alpha)$

E.3.1.1. Comparaison entre les probabilités obtenues par réaction de transfert et induite par neutron

La figure E.20 représente la probabilité de fission de l'$^{237}U^*$ en fonction de l'énergie d'excitation, comparée à l'évaluation JENDL 4.0 qui représente la probabilité induite par neutron. L'accord est excellent entre les probabilités mesurée et induite par neutron sur toute la gamme d'énergie. La contribution aux réactions de pré-équilibre, qui n'a pu être soustraite du calcul de la section efficace de formation du noyau composé après absorption d'un neutron, est donc négligeable à ces énergies d'excitation.

La figure E.21 représente la probabilité d'émission gamma de l'$^{237}U^*$ en fonction de l'énergie d'excitation, comparée à l'évaluation JENDL 4.0. La probabilité d'émission gamma mesurée est plusieurs fois plus élevée que la probabilité induite par neutron évaluée par JENDL, avec un écart minimum d'un facteur 3 à 6,5 MeV. Tout comme la réaction (d, p), la principale raison de cet écart est interprétée comme étant la conséquence de la différence de moment angulaire peuplée entre la réaction de transfert et la réaction induite par neutron associée.

Une autre raison (mais de moindre importance) pouvant contribuer à ces écarts est liée à la largeur de la fenêtre temporelle de détection des gammas qui, à cause de la faible statistique de réaction, a été fixée à 120 canaux (alors qu'elle n'est que de 35 canaux pour les trois autres réactions étudiées). Par conséquent, d'après les conclusions de l'étude de la section D.5.1, la probabilité d'émission gamma est probablement légèrement surestimée (de l'ordre de quelques pourcents) compte tenu qu'une proportion des neutrons n'a pas pu être supprimée par temps de vol.

La figure E.22 représente les probabilités de fission et d'émission gamma de l'$^{237}U^*$

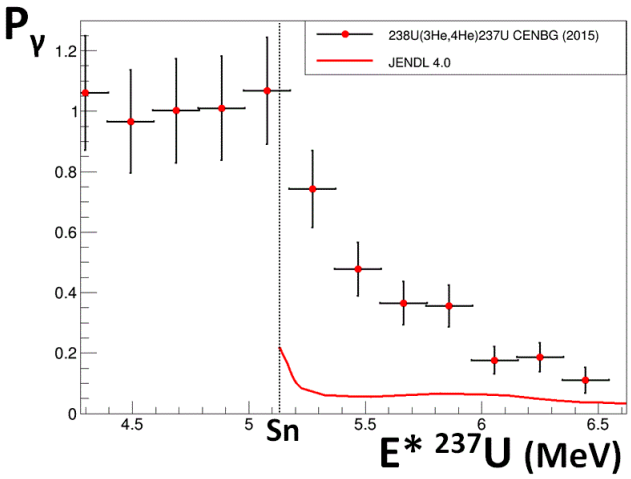


Figure E.21.: Probabilité d'émission gamma de l'$^{237}U^*$ en fonction de l'énergie d'excitation comparée à l'évaluation JENDL 4.0.

dans un domaine d'énergie où les deux sont en compétition. A partir d'environ 6 MeV, l'accord entre les probabilités de fission mesurée et évaluée est très bon alors que pour ces énergies, il existe de fortes différences entre les probabilités d'émission gamma mesurée et évaluée. L'explication de ces résultats est loin d'être évidente. En effet, si l'émission neutron est réduite en réaction de transfert par rapport aux réactions directes, on pourrait s'attendre à ce que la probabilité d'émission gamma ainsi que la probabilité de fission augmentent. Or, les résultats de la figure E.22 montrent qu'à partir d'une certaine énergie, seule l'émission gamma semble impactée par la réduction de l'émission neutron. Tout comme pour la réaction $^{238}U(d,p)$, ces observations suggèrent que pour une énergie d'excitation donnée, la voie de désexcitation du noyau composé par fission est moins sensible à la voie d'entrée (réaction de transfert ou réaction induite par neutron) que ne l'est la voie de désexcitation par émission gamma. Pourtant, on pourrait s'attendre à ce que pour des énergies d'excitation supérieures au S_n, la densité de niveaux des actinides est suffisamment élevée pour que le nombre de voies ouvertes par émission gamma $N_\gamma(E^*, J^\pi)$ ne soit pas très sensible au moment angulaire du noyau composé. De même, la densité de niveaux au dessus des barrières de fission devrait être très élevée ce qui rendrait la fission peu sensible au moment angulaire. Cette discussion sera reprise et développée grâce à l'appui de calculs théoriques à la section E.3.2.3.

E.3.2. Calculs basés sur le modèle statistique

E.3.2.1. Calculs de désexcitation avec EVITA

Des calculs de probabilité de fission et d'émission gamma de l'$^{237}U^*$ ont également été réalisés par le code EVITA. La figure E.23 représente les probabilités d'émission gamma et de fission calculées par EVITA pour l'$^{237}U^*$ en fonction de ses états quantiques

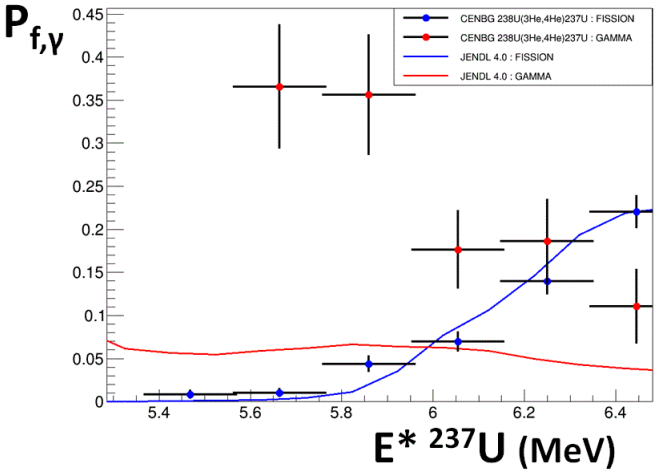


Figure E.22.: Probabilités de fission et d'émission gamma de l'$^{237}U^*$ comparées aux données évaluées dans une région énergétique commune.

(E^*, J^π). Les calculs couvrent la plage énergétique d'intérêt [Sn-Sn+1,0 MeV] pour laquelle l'émission gamma et la fission sont en compétition. Les probabilités d'émission gamma et de fission induite par neutron JENDL 4.0 servant de référence sont également représentées sur la même figure. Le comportement des probabilités d'émission gamma est similaire à celui observé pour l'$^{239}U^*$ sur la figure E.10. Par contre, on observe de nombreuses fluctuations pour les valeurs des probabilités de fission dont l'origine est liée aux états de classe II ou de classe III intégrés dans le code EVITA, puisque la barrière de fission est modélisée par trois bosses pour ce noyau. Lorsque l'énergie d'excitation est voisine de l'énergie d'un ou de deux états, il y a des phénomènes de résonances qui induisent des fluctuations sur la section efficace et donc sur les probabilités de fission.

E.3.2.2. Extraction de la distribution de spin

On applique ici la même procédure décrite à la section E.2.2.2 pour vérifier s'il est possible, à l'aide des calculs théoriques, de reproduire la probabilité de fission JENDL 4.0 à partir de la distribution de spin extraite de la probabilité d'émission gamma JENDL 4.0 et vice-versa. Puis on appliquera la même procédure aux probabilités d'émission gamma et de fission expérimentales mesurées pour la réaction $^{238}U(^3He,^4He)$ afin de conclure sur la possibilité ou non de pouvoir expliquer les résultats des probabilités de transfert pour l'$^{237}U^*$ à l'aide des calculs basés sur le modèle statistique.

Probabilités induites par neutron A partir des calculs EVITA et de l'équation E.10, la distribution de spin des probabilités d'émission gamma et de fission issues de JENDL 4.0 sont extraites pour l'$^{237}U^*$ en ajustant les probabilités entre 5,6 et 6,3 MeV (domaine d'énergie où elles sont du même ordre de grandeur). La figure E.24 représente

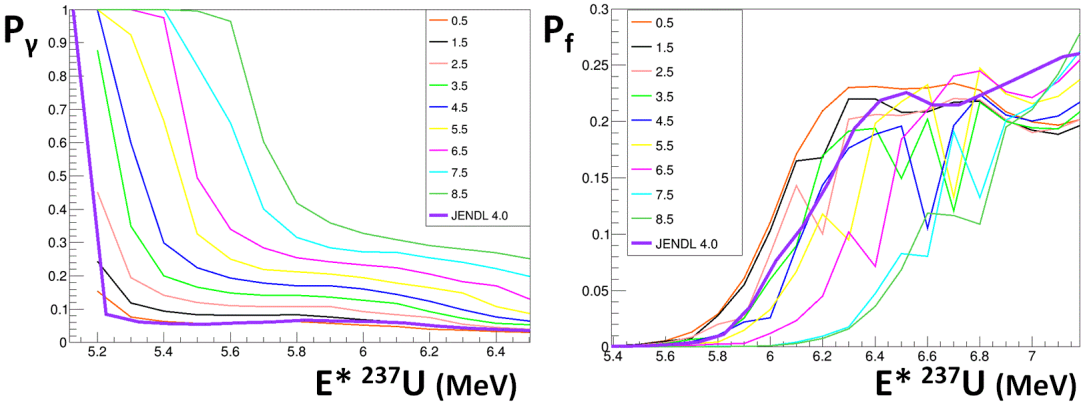


Figure E.23.: Probabilités d'émission gamma (à gauche) et de fission (à droite) calculées de l'$^{237}U^*$ en fonction de (E^*, J^π). Les probabilités d'émission gamma et de fission induite par neutron JENDL 4.0 sont également représentées.

l'ajustement de P_γ^{JENDL} en utilisant l'équation E.10 sur la plage énergétique [5,6-6,3 MeV].

La distribution de spin extraite est centrée en $\bar{J} = 0{,}0\ \hbar$ pour une déviation standard $\sigma = 1{,}0\ \hbar$. La figure E.25 représente quant à elle l'ajustement de P_f^{JENDL} sur la même plage énergétique.

La distribution de spin extraite est centrée sur des valeurs de paramètres beaucoup plus élevés ($\bar{J} = 3{,}3\ \hbar$ pour une déviation standard $\sigma = 2{,}2\ \hbar$. De tels écarts ne permettent pas de reproduire les probabilités d'émission gamma et de fission de JENDL simultanément avec l'une ou l'autre des distributions. Pour illustrer ces propos, la figure E.26 représente la probabilité d'émission gamma obtenue en appliquant la distribution de spin extraite de l'ajustement de P_f^{JENDL}. On constate que la distribution appliquée est centrée sur une valeur de spin trop élevée pour pouvoir reproduire P_γ^{JENDL}.

Tout comme pour l'$^{239}U^*$, des calculs de distributions du moment angulaire total pour l'$^{237}U^*$ produit lors d'une réaction induite par neutron à différentes énergies ont été réalisés et sont représentés sur la figure E.27. Ces calculs ont été réalisés avec les paramètres de l'évaluation JENDL 4.0. En approximant chaque distribution par une gausienne, on obtient des valeurs de $\bar{J} = 1,3; 1,6; 2,1$ et $\sigma = 0,7; 1,0; 1,4$ pour $E_n = 0,5; 1,0; 1,5$ MeV, respectivement. Ces distributions de spin sont donc quasiment identiques à celles calculées pour la réaction $^{238}U + n$. On constate que les distributions de spin extraites des ajustements sur P_γ^{JENDL} et P_f^{JENDL} sont en désaccord avec celles provenant des distributions de spin calculées à l'aide des paramètres de JENDL 4.0.

Afin de tenter d'expliquer ces résultats, on représente sur la figure E.28 quelques résultats de mesures de sections efficaces neutroniques de fission de l'$^{237}U^*$ évaluées par JEFF 3.2 et JENDL 4.0. On observe d'importants écarts entre évaluations au niveau du seuil de fission, ce qui correspond à la plage d'énergie d'excitation utilisée pour l'extraction de la distribution de spin lors de l'ajustement de P_f^{JENDL}. Cependant, l'évaluation JEFF

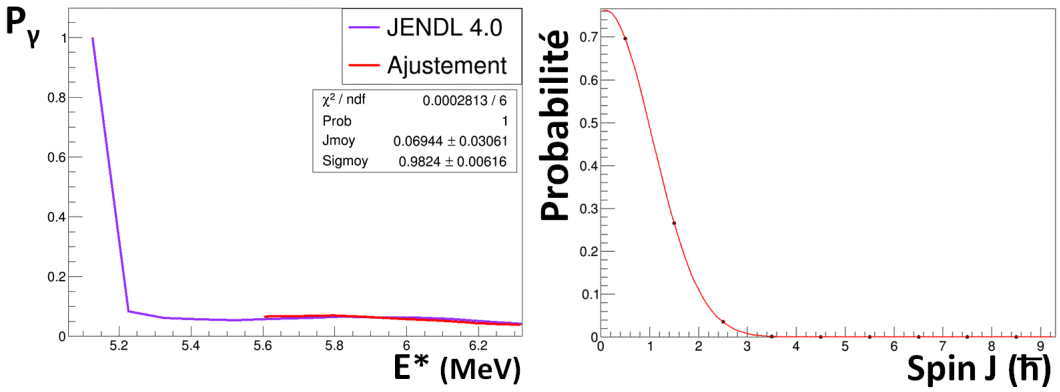


Figure E.24.: L'ajustement de P_{γ}^{JENDL} pour l'$^{237}U^{*}$ à partir de l'équation E.10 est représenté en rouge (à gauche). Distribution de spin obtenue grâce à l'ajustement de P_{γ}^{JENDL} sur la gamme énergétique [5,6-6,3 MeV] (à droite).

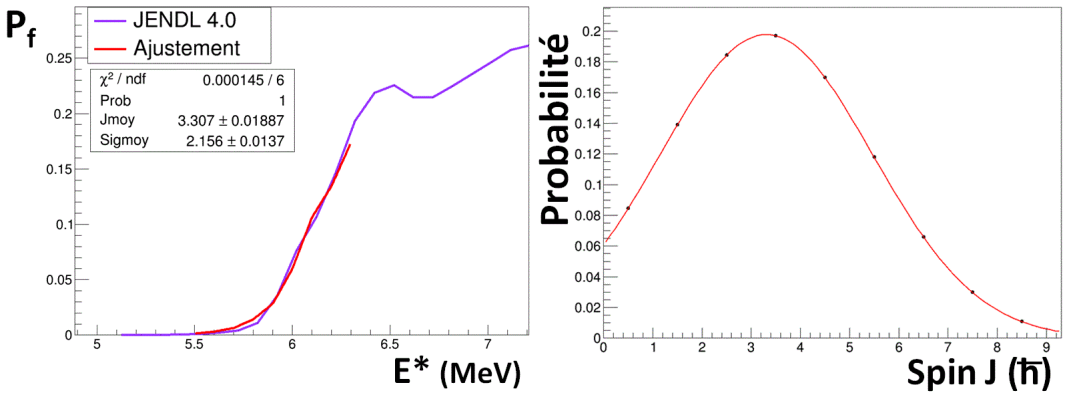


Figure E.25.: L'ajustement de P_{f}^{JENDL} pour l'$^{237}U^{*}$ à partir de l'équation E.10 est représenté en rouge (à gauche). Distribution de spin obtenue grâce à l'ajustement de P_{f}^{JENDL} sur la gamme énergétique [5,6-6,3 MeV] (à droite).

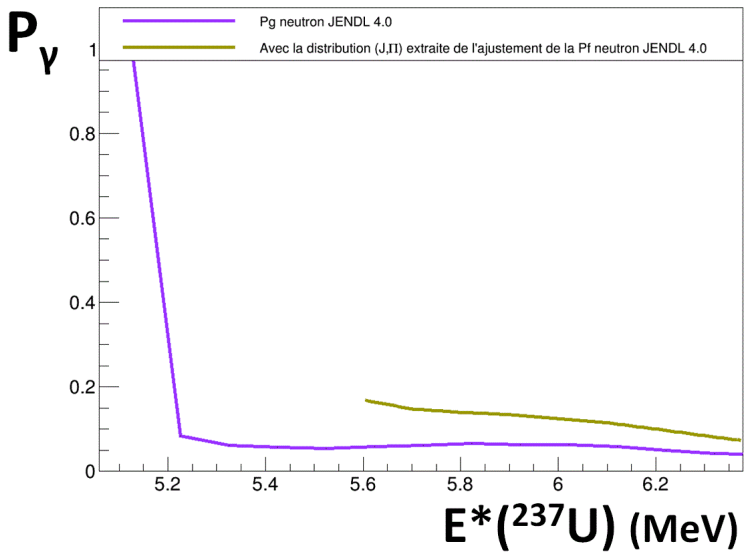


Figure E.26.: Probabilité d'émission gamma (en marron) dans la gamme énergétique [5,6-6,3 MeV] obtenue à partir de l'équation E.10 avec la distribution de spin extraite du fit de P_f^{JENDL} représentée sur la figure E.25 (à droite) .

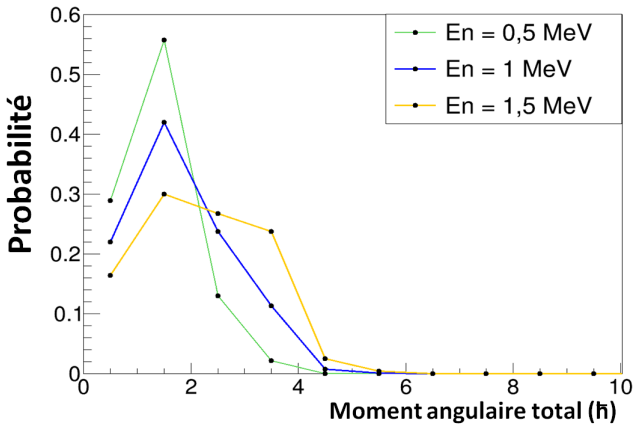


Figure E.27.: Distribution F_n^{CN} du moment angulaire total pour l'$^{237}U^*$ produit lors d'une réaction induite par neutron à différentes énergies en supposant un nombre égal d'états de parité positive et négative. Les paramètres utilisés pour le calcul proviennent de l'évaluation JENDL 4.0.

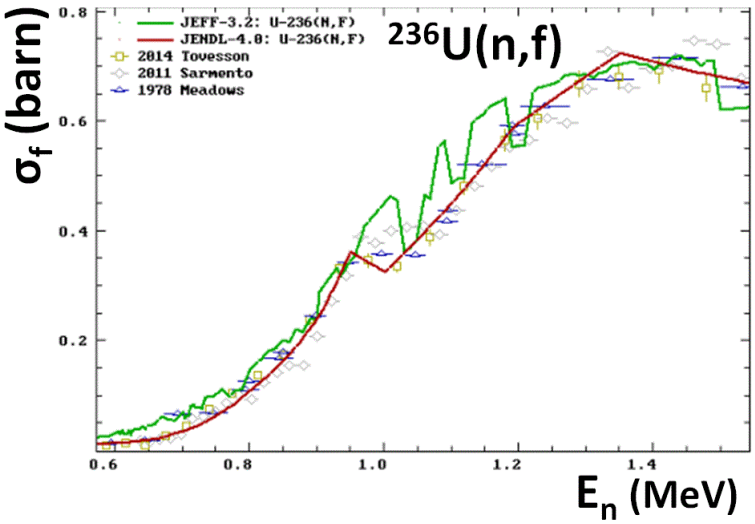


Figure E.28.: Sections efficaces neutroniques de fission $^{236}U(n,f)$ mesurées par [Mea78, Sar11, Tho88] et évaluées par JEFF 3.2 et JENDL 4.0.

pour ce noyau a été effectuée par le code TALYS, sur lequel se base les calculs EVITA. Les probabilités calculées seraient donc plus adaptées pour reproduire la probabilité de fission évaluée par JEFF plutôt que celle évaluée par JENDL. Malheureusement on ne possède pas les calculs des probabilités de désexcitation en fonction de (E^*, J^π) basés sur l'évaluation JENDL.

Parce que la probabilité de fission évaluée par JENDL est plus faible que JEFF, la prise en compte de cette dernière dans la procédure d'ajustement aurait entraînée une distribution centrée sur des valeurs plus petites de spin, et il aurait peut être été possible dans ce cas de reproduire P_γ^{JENDL} et P_f^{JENDL} simultanément, et d'être en meilleur accord avec les distributions calculées entre $E_n = 0,5$ MeV et $E_n = 1,5$ MeV de la figure E.27. Cependant, en plus des raisons décrites à la section E.1 qui nous ont amenées à utiliser JENDL comme évaluation de référence, la bonne qualité de cette évaluation pour ce noyau est mise en évidence par la figure E.28 qui montre que l'évaluation JENDL est en meilleur accord à ces énergies que JEFF avec les mesures expérimentales de section efficace de fission réalisées par [Mea78, Sar11, Tov14].

Probabilités induites par réaction de transfert $^{238}U(^3He,^4He)$ La même procédure est appliquée sur les données de transfert pour l'$^{237}U^*$ afin d'interpréter les résultats des probabilités de désexcitation. La figure E.29 représente un ajustement de la probabilité d'émission gamma $P_\gamma^{transfert}$ de l'$^{237}U^*$ effectué en utilisant la formule E.10. De même que pour la voie $^{238}U(d,p)$, la distribution de spin est ici supposée indépendante de l'énergie d'excitation. Les valeurs de $\bar{J}$ et de σ ont été contraints pour que la distribution de spin ne prenne en compte que des valeurs de moments angulaires qui ont été calculées par EVITA (c'est à dire jusqu'à 8,5 $\hbar$). La distribution de spin extraite est centrée en $\bar{J}$

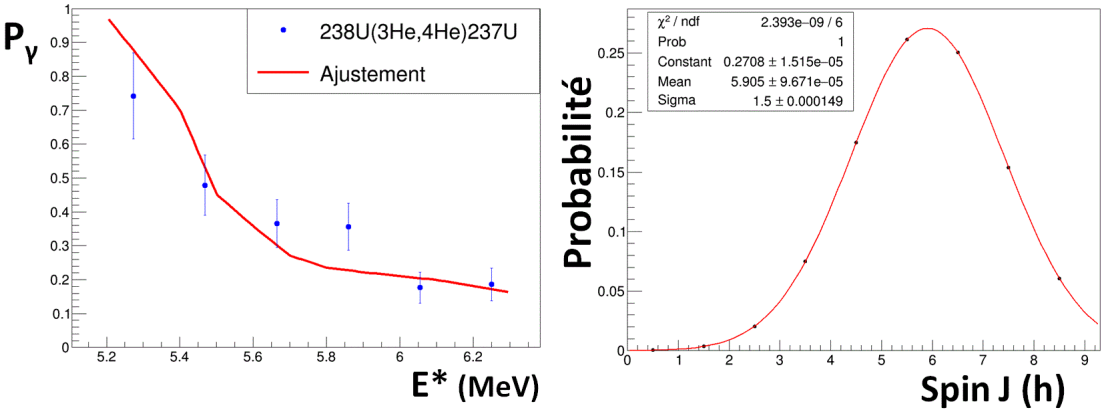


Figure E.29.: L'ajustement de $P_\gamma^{transfert}$ à l'aide de l'équation E.10 est représenté en rouge (à gauche) pour l'$^{237}U^*$. Distribution de spin obtenue grâce à l'ajustement de $P_\gamma^{transfert}$ (à droite).

= 5,90 $\hbar$ pour une dispersion σ = 1,5 $\hbar$. Enfin la figure E.30 représente la probabilité de fission obtenue en appliquant cette distribution de spin (en marron). On remarque que, pour les mêmes raisons que pour l'$^{239}U^*$, les calculs ne permettent pas de reproduire la probabilité de fission de transfert avec une distribution de spin extraite de la probabilité d'émission gamma.

Même si les calculs ne sont pas forcément adaptés pour reproduire parfaitement les données neutron, la tendance générale des résultats et les conclusions retirées de cette étude sont similaires à celle réalisée pour l'$^{239}U^*$: les calculs basés sur le modèle statistique avec des ingrédients dits "standard" ne peuvent pas reproduire les probabilités de fission de transfert avec une distribution de spin extraite de la probabilité d'émission gamma. Ces calculs sont donc, à ce jour, dans l'incapacité de donner une explication physique de l'accord entre les probabilités de fission induites par transfert et par neutron dans un domaine d'énergie où les probabilités d'émission gamma induites par transfert et par neutron sont en fort désaccord. La reproduction des probabilités d'émission gamma et de fission par réaction de transfert ne semble possible que si la probabilité de fission est peu sensible (voire indépendante) à la distribution en spin du noyau composé, ce qui va à l'encontre des résultats actuels des calculs réalisés par EVITA.

E.3.2.3. Influence du moment d'inertie

Les calculs EVITA basés sur des ingrédients de modèles standard ont montré leur limite pour reproduire les probabilités de fission de transfert avec une distribution de spin extraite de la probabilité d'émission gamma. Cependant, de nombreux paramètres présents dans les modèles de désexcitation du noyau possèdent des incertitudes si élevées qu'ils peuvent influencer les résultats de manière conséquente. Par exemple, le seuil de fission est très sensible aux états de transition discrets au dessus des barrières. Au vu de l'équation A.51, la désexcitation par fission n'est possible que si le spin et la parité du

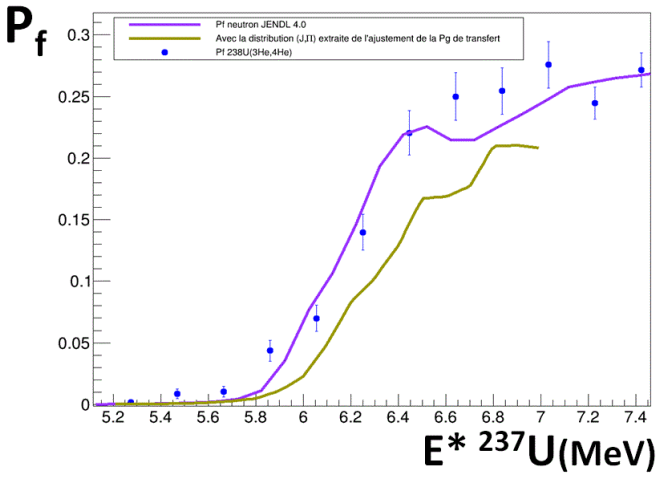


Figure E.30.: Probabilité de fission de l'$^{237}U^*$ obtenue avec la distribution de spin extraite du fit de $P_\gamma^{transfert}$ en comparaison avec la probabilité neutronique donnée par JENDL 4.0 et les données expérimentales obtenues avec la réaction $U(^{2383}He,^4 He)$.

noyau composé et du niveau vers lequel il décroît sont identiques. De plus, cette équation montre que le nombre de voies ouvertes par fission augmente fortement lorsque l'énergie d'excitation du noyau est proche de celle de l'état de transition. Les états discrets au dessus des barrières font partie des données très mal connues car elles sont très difficiles à mesurer bien que RIPL [RIPL] préconise l'utilisation de quelques états de transitions selon le nombre atomique et le nombre de masse du noyau. Or les états de transition de type rotationnels, qui se construisent à partir de l'équation A.53, dépendent essentiellement de la valeur du moment d'inertie I du noyau qui a donc une influence directe sur les seuils de fission. Pour illustrer ces propos, on représente sur la figure E.31 de manière très schématique, le comportement du seuil de la probabilité de fission en fonction de la position des états de transition définie par le moment d'inertie I du noyau. Pour simplifier, seule une barrière de fission est considérée. Deux états discrets 2^+ et 4^+ (définis arbitrairement) sont construits à partir de la tête de bande 0^+ et du moment d'inertie I_1. En utilisant un moment d'inertie I_2 plus grand, les états discrets et par conséquent les seuils de fission sont décalés vers les basses énergies d'excitation. D'après cette illustration, l'espacement des seuils de fission des P_f à différents spins donnés reflète l'espacement des états discrets de mêmes spins. Ainsi un moment d'inertie plus élevé limite la dépendance en spin de la fission.

La vision classique généralement utilisée pour décrire le moment d'inertie est de considérer le noyau comme un rotateur rigide. Le moment d'inertie du noyau s'exprime alors selon :

$$I \backsimeq \frac{2}{5} AMR^2(1 + 0,31\beta) \tag{E.11}$$

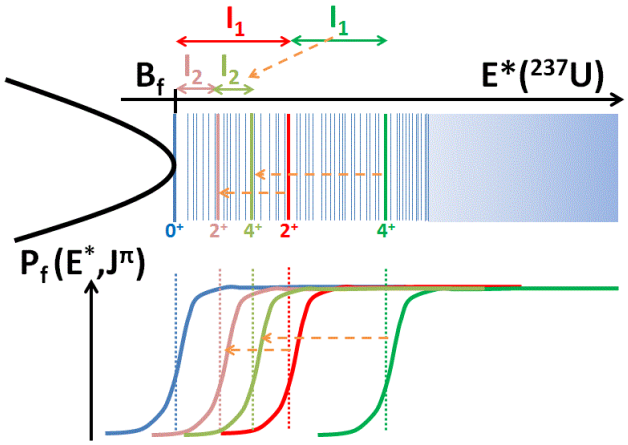


Figure E.31.: Illustration de l'influence du moment d'inertie I sur la position des états de transition et donc sur les seuils de fission. Les états de transition en rouge et vert foncé sont construits à partir du moment d'inertie I_1. Les flèches oranges symbolisent le changement de position des états de transition et de l'influence sur les probabilités si le moment d'inertie devient $I_2(>I_1)$. Chacune des probabilités de fission $P_f(E^*, J^\pi)$ est associée à un état de transition J^π (de même couleur).

Où A,M,R et β représentent respectivement le nombre de masse, la masse d'un nucléon, le rayon et la déformation quadrupolaire du noyau. Le modèle du rotateur rigide est parfois utilisé pour décrire les états rotationnels des noyaux dans le premier puit et à de plus fortes déformations du noyau comme à la barrière de fission. La figure E.32 représente l'évolution du moment d'inertie en fonction de la déformation du noyau ^{240}Pu, considéré comme un rotateur rigide. Ce calcul, réalisé par P. Tamagno [Tam15], fait intervenir une modélisation plus complexe du rotateur rigide où l'énergie de déformation du noyau composé est calculé dans un espace à trois dimensions (donc à trois degrés de liberté collectifs) à l'aide du modèle de Möller [Mol95]. La courbe bleue définie la déformation du noyau pour laquelle le chemin emprunté par le noyau pour le mener à la fission est de moindre énergie. Les moments d'inertie via le modèle du rotateur rigide sont ensuite calculés pour chaque déformation du noyau qui minimise l'énergie du chemin emprunté.

On observe que pour ce noyau, le moment d'inertie pour des déformations à la première et à la deuxième barrière est d'environ 150 $\hbar^2/MeV$ et 210 $\hbar^2/MeV$, soit une augmentation de 15% et de 60%, respectivement, par rapport au moment d'inertie calculé pour la déformation à l'état fondamental du noyau. Cette augmentation est plus élevée que celle décrite par l'équation E.11 où la déformation à la deuxième barrière induit un moment d'inertie environ 30 % plus élevé que le moment d'inertie à l'état fondamental de déformation. Ces calculs montrent que l'espacement des états de la bande rotationnels au dessus des barrières doit être plus faible qu'au dessus du premier puit.

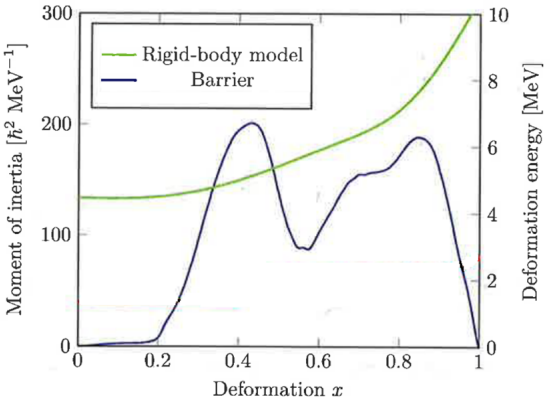


Figure E.32.: Evolution du moment d'inertie du ^{240}Pu en fonction du paramètre de déformation, dans le cadre du modèle du rotateur rigide. Calcul réalisé par [Tam15].

Nous n'avons malheureusement pas pu étudier l'influence de la valeur du moment d'inertie sur les probabilités de fission et d'émission gamma avec EVITA, puisque l'autorisation d'utilisation de ce code est resteinte uniquement à quelques employés du CEA Bruyères-le-châtel. Des calculs pour l'$^{237}U^*$ ont pu quand même être réalisés avec le code FIFRELIN en utilisant, pour les états de déformations du noyau correspondant aux deux barrières, un moment d'inertie plus grand de 50% que celui calculé avec le modèle du rotateur rigide dans l'état fondamental de déformation du noyau. La figure E.33 représente les probabilités d'émission gamma et de fission en fonction de l'énergie du neutron incident pour trois spins différents. La zone énergétique de recouvrement entre les probabilités d'émission gamma et de fission mesurées s'étend jusqu'à environ $E_n = 1,3\,MeV$. On observe que dans cette zone, la probabilité d'émission gamma calculée est beaucoup plus sensible à la différence de spin que la probabilité de fission. On note également que la limite de Weisskopf-Ewing est proche d'être atteinte à plus haute énergie pour les deux voies de désexcitation.

Malheureusement ces calculs ne permettent pas de reproduire les données neutroniques pour la P_γ avec une distribution de spin réaliste. En effet, en appliquant la procédure décrite à la section E.2.2, on reproduit les données neutroniques à basse énergie avec une distribution centrée autour de $5,5\,\hbar$ alors qu'on s'attend à une valeur plutôt centrée autour de $\bar{J} = 1,5 - 2\,\hbar$ d'après la figure E.27. Pour cette raison, ces calculs n'ont donc pas été utilisés pour tester s'ils pouvaient reproduire simultanément les probabilités d'émission gamma et de fission expérimentales avec une même distribution de spin. En revanche, ces calculs préliminaires montrent qualitativement comment la valeur du moment d'inertie peut influencer les seuils des probabilités de fission, et donnent ainsi une explication plausible à la différence de sensibilité au spin des probabilités de fission et d'émission gamma obtenues par réaction de transfert. Comme les calculs EVITA pour ce noyau ont été dans l'incapacité de reproduire la différence de sensibilité au spin des probabilités de fission et d'émission gamma, il est très probable que le modèle décrivant

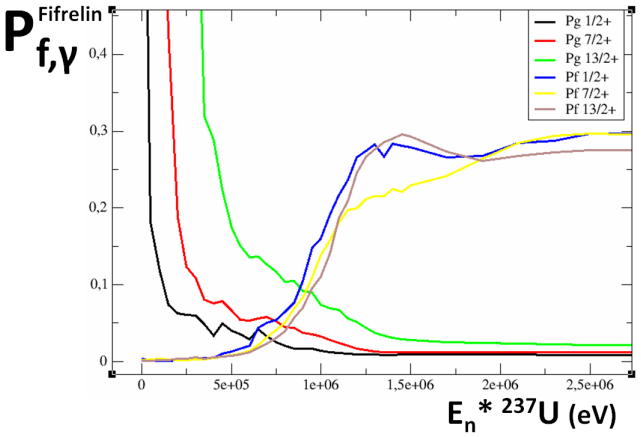


Figure E.33.: Probabilités d'émission gamma et de fission de l'$^{237}U^*$ préliminaires calculées par le code FIFRELIN, en fonction de l'énergie du neutron incident pour des moments angulaires totaux $J = \frac{1}{2}+, \frac{7}{2} + et\ \frac{13}{2}+$.

le moment d'inertie du noyau soit différent de celui utilisé par [Tam15].

E.3.2.4. Pourquoi la probabilité de fission est peu sensible à la distribution de spin contrairement à l'émission gamma ? Eléments de réponse

Dans le cas des terres rares, il a été dit que le désaccord de la probabilité d'émission gamma induite par neutron avec celle obtenue par voie de substitution est lié à la limitation de l'émission neutron qui permet, dans ce dernier cas, de favoriser l'émission gamma par conservation de la probabilité totale de désexcitation du noyau. Dans le cas des actinides où la fission entre en compétition avec l'émission gamma et l'émission neutron, la situation devient plus complexe. Pourquoi en voie de substitution la limitation de l'émission neutron ne favorise-t-elle pas la fission comme elle le fait pour l'émission gamma ? Pour tenter d'obtenir un élément de réponse, il faut revenir à la définition de la probabilité de désexcitation s'exprimant en fonction des largeurs de voies Γ_χ selon :

$$P_\chi = \frac{\Gamma_\chi}{\Gamma_\gamma + \Gamma_n + \Gamma_f} = \frac{\Gamma_\chi}{\sum_i \Gamma_i} \tag{E.12}$$

Le calcul des largeurs Γ pour chacune des voies de désexcitation a été réalisé par le code FIFRELIN pour l'$^{237}U^*$ à une énergie d'excitation fixée $E^* = S_n + 1$. On rappelle que ce code ne reproduit certes pas les données neutroniques, mais que les informations qu'il fournit sur le calcul des Γ et de leur interprétation sont très générales et ne dépendent donc pas du code. Les résultats sont présentés sur la figure E.34.

Les calculs représentés par des lignes pleines utilisent des paramètres standards du modèle statistique décrits dans RIPL-3 [RIPL] et le moment d'inertie utilisé est décrit par le modèle du rotateur rigide (équation E.11). On observe tout d'abord que Γ_γ dépend très faiblement du spin à cette énergie fixée. Ceci peut s'expliquer par le raisonnement

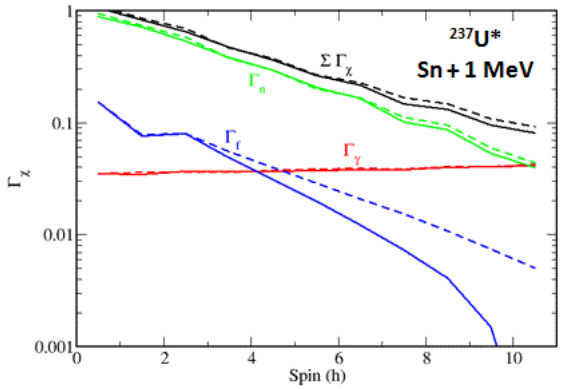


Figure E.34.: Largeurs de voies Γ pour l'$^{237}U^*$ en fonction du spin pour un moment d'inertie décrit par le modèle du rotateur rigide (lignes pleines), et pour un moment d'inertie décrit par le modèle du rotateur rigide augmenté de 50 % aux barrières comme décrit dans E.3.2.3. Calculs réalisés par le code FIFRELIN pour une énergie fixée $E^* = S_n + 1$.

simple suivant : à une énergie d'excitation de $S_n + 1$ MeV, le noyau se situe dans un état du continuum où la densité d'états est si élevée que le noyau trouve toujours un état vers lequel se désexciter par émission gamma quelque soit son spin initial. A l'inverse, le nombre limité d'états disponibles pour l'émission neutron vers les premiers états à basse énergie du noyau résiduel limite l'émission neutron pour les hauts spins, ce qui se caractérise par une largeur Γ_n qui décroit avec le spin. De la même manière, le peu d'états disponibles au dessus des barrières de fission rend le phénomène de fission sensible au spin.

Ainsi d'après ces calculs et d'après l'équation E.12, comme la probabilité d'émission gamma s'obtient en effectuant le rapport entre Γ_γ et la somme des largeurs de voies $\sum_i \Gamma_i$, il est évident que la probabilité d'émission gamma dépendra du spin à cette énergie, et cela, quelque soit le noyau pour lequel la densité d'états du noyau résiduel rend l'émission neutron dépendente du spin initial, incluant ainsi probablement tous les noyaux dans la région des actinides. C'est pourquoi pour des énergies d'excitation proches de S_n, la probabilité d'émission gamma mesurée en voie de substitution ne peut pas être en accord avec la probabilité d'émission gamma induite par neutron. De façon analogue à l'émission gamma, comme la pente de Γ_f est proche de celle de Γ_n, et donc de $\sum_i \Gamma_i$, la probabilité de fission dépendra moins du spin à une énergie fixée que la probabilité d'émission gamma.

De là intervient un important constat : il est maintenant clair avec ces calculs que l'émission gamma (Γ_γ) ne dépend que très faiblement du spin alors que la fission (Γ_f) dépend beaucoup plus fortement du spin initial du noyau. En revanche la probabilité d'émission gamma (P_γ) dépend du spin alors que la probabilité de fission (P_f) dépend

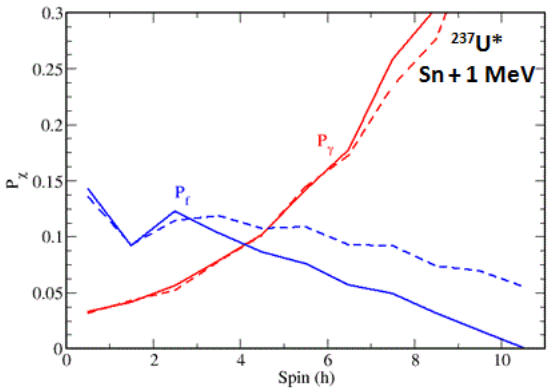


Figure E.35.: Probabilités de fission et d'émission gamma de l'$^{237}U^*$ en fonction du spin à $E^* = S_n + 1$ MeV pour un moment d'inertie décrit par le modèle du rotateur rigide (lignes pleines), et pour un moment d'inertie décrit par le modèle du rotateur rigide augmenté de 50 % aux barrières comme décrit dans E.3.2.3. Calculs réalisés par le code FIFRELIN.

moins du spin initial du noyau.

Les calculs représentés par des pointillés utilisent des paramètres standards du modèle statistique décrits dans RIPL-3 [RIPL] et le moment d'inertie utilisé est décrit par le modèle du rotateur rigide augmenté de 50 % à la déformation aux barrières. Comme dit précédemment, cette augmentation du moment d'inertie entraine une augmentation de la densité de niveaux au dessus des barrières de fission et facilite la transmission des barrières pour les spins plus élevés. Dans ce cas précis, la pente de Γ_f devient quasiment parallèle à celle de $\sum_i \Gamma_i$ ce qui rend la probabilité de fission moins sensible au spin (à cette énergie) qu'elle ne l'était précédemment. Cette faible sensibilité de la probabilité de fission avec le spin avait également été représentée en fonction de l'énergie d'excitation pour trois spins différents sur la figure E.33.

Dépendance de P_γ et de P_f vis à vis du spin à une E^* fixée Les probabilités de fission et d'émission gamma en fonction du spin à une énergie fixée peuvent être déduites grâce à l'expression E.12. La figure E.35 représente les résultats obtenus avec FIFRELIN.

Ce graphique ne fait que confirmer de manière visuelle les propos émis à la section précédente : à $E^* = S_n + 1$ MeV, la probabilité d'émission gamma dépend beaucoup plus du spin que la probabilité de fission. Les probabilités en pointillées proviennent de calculs où le moment d'inertie est décrit par le modèle du rotateur rigide augmenté de 50 % à la déformation aux barrières. On constate alors que dans ce cadre, la probabilité de fission devient quasiment insensible au spin, alors que la probabilité d'émission gamma l'est toujours autant. Ce résultat est très intéressant puisqu'il permet de confirmer le rôle déterminant du moment d'inertie du noyau dans le comportement des probabilités

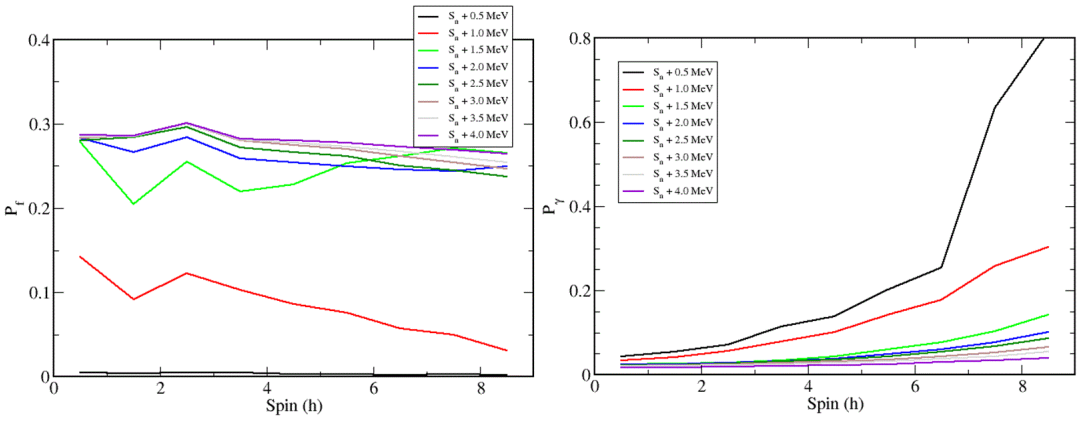


Figure E.36.: Probabilités de fission (à gauche) et d'émission gamma (à droite) de l'$^{237}U^*$ en fonction du spin à différentes E^* pour un moment d'inertie décrit par le modèle du rotateur rigide. Calculs réalisés par le code FIFRELIN.

de fission en fonction du spin. Ainsi, si l'hypothèse émise précédemment selon laquelle le moment d'inertie des actinides augmente plus vite avec la déformation que ce que prédisent actuellement les modèles standards, alors ce résultat pourrait bien être l'explication des résultats expérimentaux observés sur la faible sensibilité de la probabilité de fission vis à vis du spin et de la plus forte sensibilité de la probabilité d'émission gamma avec le spin.

Probabilités de fission et d'émission gamma calculées en fonction du spin à différentes E^* La figure E.36 représente le comportement de la probabilité de fission (à gauche) et de la probabilité d'émission gamma (à droite) de $^{237}U^*$ en fonction du spin pour différentes E^* avec un moment d'inertie du noyau décrit par le modèle du rotateur rigide standard. On constate de cette façon que la probabilité de fission devient relativement insensible au spin dès $E^* = 1,5\,MeV$ alors que l'insensibilité au spin de la probabilité d'émission gamma est atteinte à plus haute énergie. Ces calculs montrent que la limite Weisskopf-Ewing est atteinte plus rapidement pour la probabilité de fission que pour la probabilité d'émission gamma.

E.3.3. Réaction $^{238}U(^3He, t)$

La figure E.37 représente la probabilité de fission du $^{238}Np^*$ en fonction de l'énergie d'excitation, comparée à l'évaluation JENDL 4.0. La probabilité de fission en réaction de substitution est en excellent accord avec les données neutroniques à partir du seuil de fission. Juste avant celui-ci qui se situe à environ 6 MeV d'énergie d'excitation, la probabilité de fission mesurée est très supérieure à celle des données évaluées. La figure E.37 représente la probabilité d'émission gamma du $^{238}Np^*$ en fonction de l'énergie d'excitation, comparée à l'évaluation JENDL 4.0. La probabilité d'émission gamma de la réaction de substitution est environ 3,5 fois plus élevée à 6,2 MeV d'énergie d'excitation.

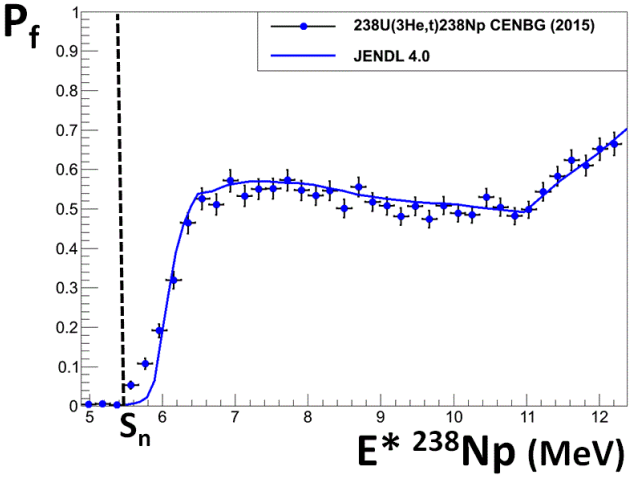


Figure E.37.: Probabilité de fission du $^{238}Np^*$ en fonction de l'énergie d'excitation comparée à l'évaluation JENDL 4.0.

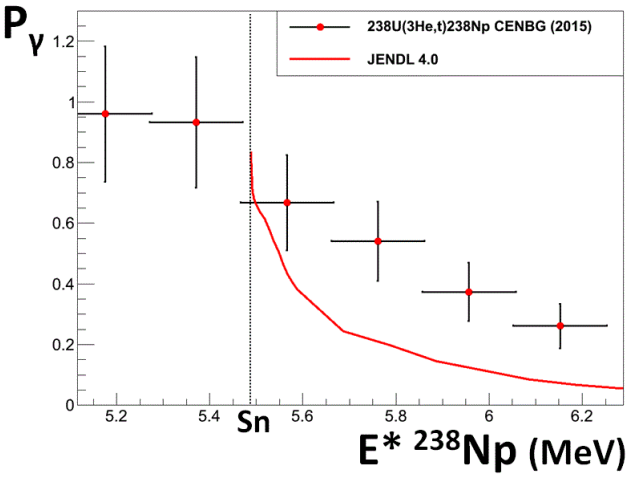


Figure E.38.: Probabilité d'émission gamma du $^{238}Np^*$ en fonction de l'énergie d'excitation comparée à l'évaluation JENDL 4.0.

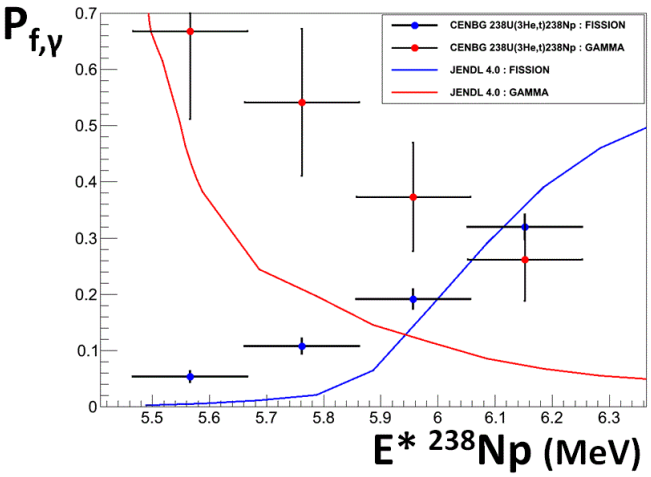


Figure E.39.: Probabilités de fission et d'émission gamma de l'$^{238}Np^*$ comparées aux données évaluées dans une région énergétique commune.

Enfin la figure E.39 représente les probabilités de fission et d'émission gamma de du $^{238}Np^*$ dans un domaine d'énergie où les deux sont en compétition.

Les résultats pour ce noyau sont similaires à l'$^{237}U^*$: l'accord entre les probabilités de fission mesurée et neutroniques est très bon à partir d'environ 6 MeV contrairement aux probabilités d'émission gamma. Les raisons données à cela sont les mêmes que celles décrites à la section E.3.2.4.

E.3.4. Réaction $^{238}U(^3He, d)$

La figure E.40 représente la probabilité de fission moyenne du $^{239}Np^*$ entre les angles 126° et 140° en fonction de l'énergie d'excitation, comparée à la probabilité induite par neutron déduite de JENDL 4.0. Comme ce noyau est fissile, il ne peut exister des données induites par neutron comparables que pour des énergies supérieures à S_n, où l'accord est manifestement très bon entre les probabilités mesurée et évaluée. La diminution de la probabilité mesurée à partir de S_n est liée à l'ouverture de la voie de désexcitation par émission d'un neutron qui entre en compétition avec la fission.

La figure E.41 représente la probabilité d'émission gamma moyenne du ^{239}Np entre les angles 126° et 140° en fonction de l'énergie d'excitation, comparée à l'évaluation JENDL 4.0. La probabilité d'émission gamma expérimentale est en désaccord avec les données évaluées d'un facteur 4 environ pour des énergies d'excitation d'environ 1 MeV au dessus de S_n. Ces écarts sont attribués à la différence de distribution de spin peuplée entre la réaction de transfert et la réaction induite par neutron. De même que pour la fission, l'émission neutron entre en compétition avec l'émission gamma et la fission à partir de S_n, c'est pourquoi on observe une diminution de la probabilité d'émission gamma assez prononcée à ces énergies.

Enfin la figure E.42 représente les probabilités de fission et d'émission gamma dans

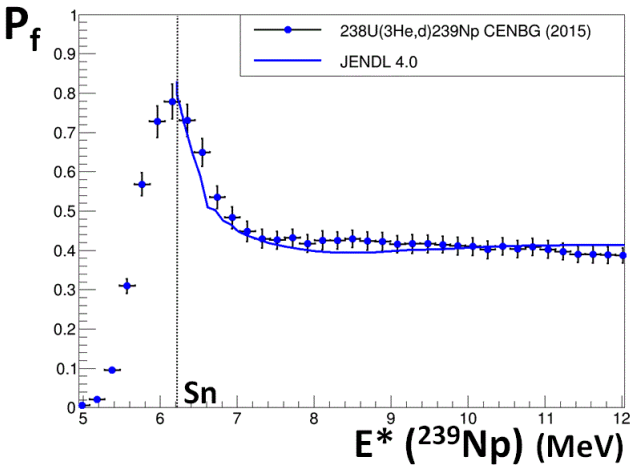


Figure E.40.: Probabilité de fission du $^{239}Np^*$ en fonction de l'énergie d'excitation comparée à l'évaluation JENDL 4.0.

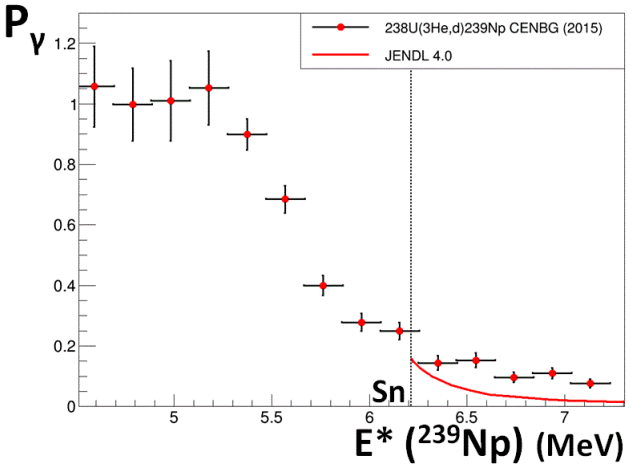


Figure E.41.: Probabilité d'émission gamma du $^{239}Np^*$ en fonction de l'énergie d'excitation comparée à l'évaluation JENDL 4.0.

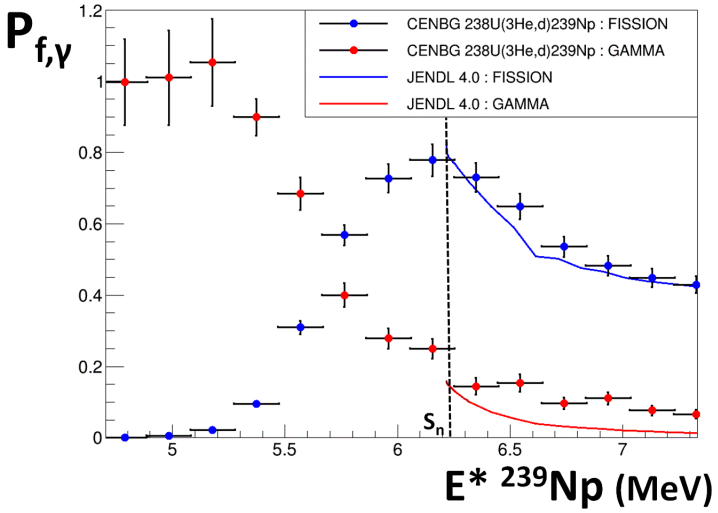


Figure E.42.: Probabilités de fission et d'émission gamma du $^{239}Np^*$ comparées aux données évaluées dans une région énergétique commune.

un domaine d'énergie où les deux sont en compétition. Comme mentionné à la section D.5.2, pour des énergies inférieures à S_n, seules deux voies de désexcitation sont en compétition pour ce noyau : l'émission gamma et la fission. Il est intéressant d'observer sur la figure E.42 que la somme des probabilités de fission et d'émission gamma est très proche de 1, aux incertitudes près. Ce résultat est une confimation de la qualité de la méthode d'analyse appliquée et décrite au chapitre D, et donne confiance à la fois en la la méthode EXEM pour déterminer l'efficacité ε_γ, mais aussi à la méthode de soustraction des gammas issus de la fission pour la détermination de l'efficacité ε_f (méthode appliquée pour la première fois dans ce type d'expérience).

On observe aussi que pour des énergies d'excitation d'environ 7 MeV, les probabilités de fission mesurée et évaluée sont en excellent accord, au contraire des probabilités d'émission gamma ce qui laisse également penser que l'émission gamma est plus sensible à la différence de distribution en spin du noyau que ne l'est la fission. Un comportement similaire des probabilités a été observé pour les trois autres noyaux étudiés.

Soulignons que pour ce noyau très radioactif ($T_{1/2} = 2,12\,jours$), il n'existe actuellement aucune donnée de mesure de section efficace de fission et de capture dans la région des neutrons rapides. C'est dans ce cas de figure que la mesure de probabilités de désexcitation par la méthode de substitution démontre son intérêt principal : apporter des informations sur ces noyaux très peu connus. Concernant le $^{239}Np^*$, le très bon accord entre la probabilité de fission mesurée et évaluée donne confiance aux données expérimentales, mais aussi à l'évaluation. En effet, jusqu'à présent, aucune mesure de probabilité (ou de section efficace) de fission avec la méthode de substitution n'a montré de désaccord avec les données neutroniques (si on exclue les mesures où il y a présence de break-up). Par conséquent, il n'y a pas de raison de penser que la probabilité de

fission mesurée ne serait pas en accord avec celle extraite d'une mesure directe si elle existait. C'est la raison pour laquelle l'évaluation de la probabilité de fission par JENDL 4.0 semble cohérente, même s'il faut rester prudent sur ce type de conclusion tant que le très bon accord systématiquement observé pour les probabilités de fission mesurées n'est pas encore compris.

De même, comme à ce jour les mesures de probabilités d'émission gamma avec la méthode de substitution ont toujours montré des valeurs plus élevées (aux incertitudes près) que les données neutroniques, l'écart observé d'un facteur de plusieurs multiples entre les probabilités d'émission gamma mesurée et évaluée n'est pas surprenant, et semble cohérent au vu des autres résultats.

E.4. Conclusion :

L'étude des quatre noyaux mène à penser que la probabilité de fission ne dépend pas de la voie d'entrée et donc de la forme de la distribution en spin, au contraire de l'émission gamma. Cette remarque, tirée de l'observation simultanée des probabilités de fission et d'émission gamma se révèle être un excellent test pour contraindre les ingrédients du modèle statistique (densité de niveaux, fonction force gamma...) et les paramètres associés afin de reproduire les données expérimentales, mais aussi augmenter la prédictivité des calculs. En effet, les calculs des probabilités de désexcitation actuels dépendent fortement des modèles de calculs et de ses ingrédients. La méconnaissance ou l'incertitude existante parmi le grand nombre de paramètres ajustables sont les causes d'une importante source d'erreur. La qualité d'interprétation des résultats dépend pourtant intimement de la confiance donnée aux calculs théoriques.

Des calculs préliminaires effectués avec le code FIFRELIN ont montré que la dépendance en spin de la probabilité de fission était d'autant plus réduite que le moment d'inertie du noyau fissionant est élevé car la densité de niveaux d'états discrets au dessus des barrières serait supérieure à celle définit par les paramètres standard et préconisés par RIPL. Les états de transitions au dessus des barrières figurent parmi les données les moins connues et pourtant essentielles à la détermination de probabilités de fission. Dans le cadre du modèle du rotateur rigide, une augmentation des valeurs du moment d'inertie par rapport à celles actuellement utilisées dans les calculs de modèle statistique comme EVITA, permettent de donner une explication plausible à la différence de sensibilité au spin observé pour les voies de désexcitation par émission gamma et par fission.

Synthèse et conclusion générale

Ce travail de thèse aura permis de mesurer les probabilités induites par réaction de transfert de fission et d'émission gamma de quatre actinides dans le but d'améliorer notre compréhension de la méthode de substitution. Pour cela, les probabilités de fission et d'émission gamma induites par réactions de transfert pour les noyaux composés $^{237}U^*$, $^{239}U^*$, $^{238}Np^*$ et $^{239}Np^*$ ont été mesurées simultanément pour la première fois. Plus précisément, nous avons étudié la réaction de transfert $^{238}U(d,p)^{239}U^*$ à 15 MeV d'énergie incidente ainsi que les réactions $^{238}U(^3He,d)^{239}Np^*$, $^{238}U(^3He,t)^{238}Np^*$ et $^{238}U(^3He,^4He)^{237}U^*$ à 24 MeV. L'objectif était de démontrer pour la première fois la faible dépendance de la probabilité fission vis à vis de la voie d'entrée, observation que laissaient supposer des mesures précédentes.

L'analyse des données est complexe, en particulier pour l'extraction de la probabilité d'émission gamma, car elle demande l'application d'une série de corrections nécessaires afin de discriminer les gammas d'intérêt de ceux provenant de réactions parasites.

L'étude du noyau fissile $^{239}Np^*$ à travers la réaction $^{238}U(^3He,d)$ a montré que pour des énergies d'excitation inférieures au S_n, $P_f+P_\gamma = 1$. Ce résultat très important est une preuve que les corrections apportées, à la fois pour discriminer les gammas d'intérêt des gammas des fragments de fission, mais aussi pour déterminer les efficacités de détection gamma et de fission, sont toutes correctes, et valide de fait, l'ensemble de la méthode d'analyse appliquée.

Un problème a néamoins été rencontré concernant la calibration des réactions. Nous avons opté pour la recalibration des réactions sur la base du seuil de fission de première chance des réactions induites par neutron correspondantes. Ce choix a été justifié, à postériori, grâce aux résultats préliminaires d'une expérience réalisée en Avril 2015 à l'IPN d'Orsay où la calibration des réactions a été réalisée indépendamment avec une cible de ^{208}Pb. Cette mesure aura permis de valider notre méthode de recalibration et permettra, à terme, d'extraire des P_γ avec des incertitudes moins élevées.

A ce propos, pour chacun des noyaux étudiés, une étude rigoureuse de la propagation des erreurs à l'ensemble des mesures, ainsi qu'entre les mesures à travers les termes de covariances a été effectuée. De plus, une méthode a été développée au sein du groupe pour déterminer expérimentalement les termes des covariances qui ont un impact non négligeable sur la valeur des incertitudes de mesure.

La probabilité de fission obtenue pour le noyau $^{239}U^*$ s'est avérée être plus faible que la probabilité induite par neutron de référence. La majorité de cet écart a été attribué au phénomène du break-up du deuton, dont des résultats de calculs fournis par des collaborateurs théoriciens ont permis d'en corriger la contribution. Des études approfondies du break-up basées sur l'approche IAV seront indispensables, à l'avenir, pour calculer de façon parfaitement fiable la contribution du break-up menant à la formation d'un

noyau composé. L'autre partie du désaccord constaté entre les probabilités de fission a été assigné aux réactions de fusion-évaporation du faisceau sur l'oxygène de la cible. Des calculs réalisés avec le code de fusion-évaporation PACE IV ont permis d'estimer la contribution de ce phénomène sur la probabilité de fission.

Au contraire de cette dernière, la probabilité d'émission gamma pour ce noyau s'est révélée être beaucoup plus élevée que la probabilité induite par neutron de référence, ce qui laisse penser que l'émission gamma est plus sensible à la voie d'entrée que la fission, même s'il est difficile d'être formel sur ce point puisque les résultats sont perturbés par le break-up du deuton.

Les résultats pour les noyaux $^{237}U^*$ et $^{238}Np^*$ ont montré que les probabilités de fission sont en accord avec les données neutroniques alors que les probabilités d'émission gamma sont en profond désaccord. Contrairement pour l'$^{239}U^*$, ces réactions ne sont pas contaminées par la présence de break-up, c'est pourquoi il est possible d'affirmer que ces résultats démontrent véritablement que la probabilité de fission est moins sensible à la distribution de spin que ne l'est la probabilité d'émission gamma.

Nous avons tenté d'interpréter ces résultats à partir de calculs basés sur le modèle statistique avec des ingrédients standards. Ce type de modèle prédit une forte sensibilité de la fission au spin du noyau composé, ce qui est en contradiction avec nos résultats. Ceci se traduit par une distribution de spin associée à la probabilité d'émission gamma qui n'est pas cohérente avec la distribution de spin reproduisant les probabilités de fission expérimentales. Ces résultats dévoilent les limites des calculs du modèle statistique qui sont dans l'incapacité de reproduire les données expérimentales lorsqu'ils sont basés sur des paramètres standards.

Enfin, d'autres calculs de modèle statistique ont montré qu'une dépendance plus importante du moment d'inertie avec la déformation que ce que préconise le modèle du rotateur rigide décrit dans RIPL, provoque une diminution de la sensibilité de la probabilité de fission vis à vis du spin, ce qui pourrait s'avérer être une explication plausible des résultats expérimentaux observés, même si elle mériterait d'être explorée plus en profondeur.

Il est clair que les informations extraites des mesures de substitution actuelles et futures jouent un rôle essentiel dans le développement des ingrédients des calculs basés sur le modèle statistique, et les évolutions apportées seront nécessaires pour mieux caractériser et comprendre la physique des réactions de transfert. Ces efforts mèneront un jour peut être, à un niveau de connaissance suffisant pour permettre l'accès à des sections efficaces de capture à partir de réactions de transfert.

Perspectives

Réactions de transfert en cinématique inverse par faisceau d'ions radioactifs

Nous avons vu au chapitre A que la détermination de probabilités de désexcitation dépend avant tout de la disponibilité de cibles appropriées pour la mesure. Les contraintes liées à la mesure de réaction de transfert en cinématique directe sont diverses : les cibles ne doivent pas être trop radioactives pour respecter les normes de sécurité, de plus, elles ne sont en général pas chimiquement pures et contaminent les spectres de mesures. Enfin elles sont le plus souvent accompagnées d'un support constitué d'un élément léger qui est aussi responsable d'une contamination induisant des incertitudes systématiques lors de l'extraction des probabilités de désexcitation.

Les réactions de transfert en cinématique inverse permettent de s'affranchir d'une grande partie des inconvénients et possèdent en plus l'avantage de permettre l'étude de plus de noyaux qu'il n'est possible d'en étudier en cinématique directe. Dans ce type de réaction, le faisceau et la cible sont inversés par rapport à une réaction en cinématique directe. Un groupe d'expérimentateurs [Caa13, Rod14] a réalisé des mesures pionnières de fission induite par réactions transfert en cinématique inverse au GANIL. L'angle et l'énergie des éjectiles sont mesurés par un télescope en silicium et les fragments de fission sont détectés en coïncidence par le spectromètre VAMOS. Dans cette expérience, de nombreux actinides sont formés par transfert de nucléons entre un faisceau d'^{238}U et une cible de ^{12}C. Cette expérience avait pour but initial de mesurer les rendements en masse et en charge des fragments de fission, mais elle aura aussi permis de mesurer les probabilités de fission des noyaux ^{238}U, ^{239}Np, ^{240}Pu, ^{241}Pu, ^{242}Pu et ^{244}Cm qui se révèlent être en bon accord (pour des énergies supérieures au seuil de fission) avec d'autres mesures réalisées pour les mêmes noyaux en cinématique directe. Le désaccord observé au seuil de fission pourrait être attribué à la résolution limitée en énergie d'excitation de 2,7 MeV (FWHM).

D'autres possibilités de mesures de réactions de substitution existent grâce aux installations de faisceaux d'ions radioactifs comme HIE-ISOLDE au CERN, qui est capable aujourd'hui de délivrer des faisceaux d'ions de nombreux isotopes de pré-actinides comme le radon (Z=86), le francium (Z=87) ou le radium (Z=88). Un projet en cours [Gri12] devrait combiner l'installation HIE-ISOLDE avec l'anneau de stockage "Test Storage Ring" (TSR) pour des études de fission en cinématique inverse. Un composant essentiel de l'anneau de stockage est le refroidisseur à électrons "electron cooler" dont la fonction est d'améliorer l'émittance du faisceau d'ions. Avec un tel système, la résolution en énergie du faisceau d'ions est améliorée d'un facteur 14 alors que sa taille est réduite de quelques

mm à 1 mm de diamètre. Des réactions en cinématique inverse pourraient avoir lieu à l'avenir entre ce faisceau et des cibles "gaz jet" de gaz légers comme H_2, D_2, ^3He et ^4He qui ont l'avantage d'être chimiquement pures et ne de pas posséder de support, évitant ainsi toute contamination indésirable. La faible épaisseur des cibles à gaz légers (environ 10^{14} atomes/cm^2) est compensée par la haute fréquence de recirculation du faisceau dans l'anneau de stockage. La faisabilité d'un tel projet d'un point de vue du taux de comptage des réactions a été démontré récemment [Jur15].

ANNEXES

A-Tableau des réactions

	$^{238}U(d,p)^{239}U$	$^{238}U(^3He,d)^{239}Np$	$^{238}U(^3He,t)^{238}Np$	$^{238}U(^3He,^4He)^{237}U$
S_n du noyau composé	4,806 MeV	6,217 MeV	5,488 MeV	5,126 MeV
Nombre de probabilités déterminées pour la fission et l'émission gamma	8 (1 par angle)	1 (moyenne des angles)	1 (moyenne des angles)	1 (moyenne des angles)
Espacement en énergie	50 keV	200 keV	200 keV	200 keV
Méthode de calibration SiRi	Points contaminants	Seuil fission neutronique	Seuil fission neutronique	Seuil fission neutronique
Contaminants	Oui (^{12}C,^{16}O)	Oui (^{12}C,^{16}O)	Non	Non
Soustraction fond carbone	Oui	Non	Non	Non
Soustraction directe contamination	Oui	Oui	Non	Non
Suppression coïncidences fortuites	Oui (très faible)	Non (négligeable)	Non(négligeable)	Non(négligeable)
Correction effet walk	Oui	Oui	Oui	Oui
Suppression des gammas inélastiques jusqu'à	Sn +1,5 MeV	Sn +1 MeV	Sn +1 MeV	Sn +1,5 MeV
Soustration gammas de fission	Oui	Oui	Oui	Oui
$E_c^{neutron}$ correspondant à la fenêtre en temps utilisée	2,7 MeV	2,7 MeV	2,7 MeV	0,230 MeV
facteur d'anisotropie α des fragments de fission utilisé	0,6	0,3	0,3	0,3
Méthode ε_γ	EXEM	EXEM	EXEM	EXEM
Ordre de grandeur de σ_f^{stat} relative	1,5%	2,5%	3,5%	3,5%
Ordre de grandeur de σ_f^{syst} relative	5,5%	3%	3%	3%
Ordre de grandeur de σ_f^{tot} relative	6%	4,0%	4,5%	4,5%
Ordre de grandeur de σ_γ^{stat} relative	5%	10%	10-20%	10-20%
Ordre de grandeur de σ_γ^{syst} relative	8%	10-15%	20-25%	15%
Ordre de grandeur de σ_γ^{tot} relative	10%	15-20%	25-30%	20-25%

Table .1.: Résumé des caractéristiques principales des 4 réactions de transfert étudiées.

B-Paramètres utilisés pour les calculs de modèle optique

On rappelle l'équation décrivant le potentiel d'interaction neutron-cible :

$$U(r,R,a,E) = [V_v(E) + iW_v(E)].f(r,R_v,a_v) + [V_s(E) + iW_s(E)].g(r,R_s,a_s) \\ +[V_{so}(E) + iW_{so}(E)].\left(\frac{h}{m\pi c}\right)^2.\frac{1}{r}.g(r,R_{so},a_{so})l.\sigma$$

Celle-ci peut se réecrire selon :

$$U(r,E) = [V_{HF}(E) + \Delta V_v(E) + iW_v(E)].f(r,R_v,a_v) + [\Delta V_s(E) + iW_s(E)].g(r,R_s,a_s) \\ +[V_{so}(E) + \Delta V_{so}(E) + iW_{so}(E)].\left(\frac{h}{m\pi c}\right)^2.\frac{1}{r}.g(r,R_{so},a_{so})l.\sigma$$

Avec :

- $V_s(E) = 0$
- $V_{HF}(E) = A_{HF}exp(-\lambda_{HF}(E - E_F))$
- $\Delta V_v(E) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{W(E')}{E'-E}dE'$
- $A_{HF} = V_0\left[1 + (-1)^{Z+1}\frac{C_{viso}}{V_0}\frac{N-Z}{A}\right]$
- $W_v(E) = A_v\frac{(E-E_F)^2}{(E-E_F)^2+(B_v)^2}$
- $W_s(E) = A_s\frac{(E-E_F)^2}{(E-E_F)^2+(B_s)^2}exp(-C_s|E - E_F|)$
- $A_s = W_0\left[1 + (-1)^{Z+1}\frac{C_{Wiso}}{W_0}\frac{N-Z}{A}\right]$
- $V_{so}(E) = V_{so}exp(-\lambda_{so}(E - E_F))$
- $W_{so}(E) = W_{so}\frac{(E-E_F)^2}{(E-E_F)^2+(B_{so})^2}$

Paramètres JENDL 4 / noyau	236U+n	238U+n	237Np+n	238Np+n
Volume :				
V_0(MeV)	49,97	48,62	49,85	49,97
λ_{HF}(1/MeV)	0,01004	0.01037	0,01004	0,01004
C_{viso}(MeV)	15,9	10,0	15,9	15,9
A_v(MeV)	12,04	12,53	12,04	12,04
B_v(MeV)	81,36	90,94	81,36	81,36
r_v(fm)	1,2568	1,253	1,25	1,2568
a_v(fm)	0,633	0,60146	0,57	0,633
Surface :				
W_0(MeV)	17,2	17,73	17,1839	17,2
B_s(MeV)	11,19	11,56	11,19	11,19
C_s(1/MeV)	0,01361	0,01328	0,01361	0,01361
C_{wiso}(1/MeV)	23,5	23,5	23,5	23,5
r_s(fm)	1,1803	1,1808	1,1803	1,1803
a_s(fm)	0,601	0,601	0,601	0,601
Spin-orbite				
V_{so}(MeV)	5,75	6,03	5,75	5,75
λ_{so}(1/MeV)	0,005	0,005	0,005	0,005
W_{so}(MeV)	-3,1	-3,1	-3,1	-3,1
B_{so}(MeV)	160	160	160	160
r_{so}(fm)	1,1214	1,1214	1,1214	1,1214
a_{so}(fm)	0,59	0,59	0,59	0,59
Déformation :				
β_2	0,213213	0,223632	0,212764	0,213
β_4	0,066	0,09	0,066	0,066
β_6	0,0015	-0,0031	0,0015	0,0015

Table .2.: Paramètres de modèle optique issues de la librairie JENDL 4.0 pour les 4 noyaux étudiés

C-Principe de l'émission isotrope de particules dans l'espace

La figure .43 représente un repère sphérique (r, θ, φ). La cible est placée au centre du repère et le faisceau est selon l'axe Z. Si un nombre N de particules sont émises dans un cône d'angle solide $2\pi d\theta$ ($d\varphi = 2\pi$), alors l'élément de surface dS de la sphère qui intercepte la trajectoire de ces particules est calculée selon :

$$dS = 2\pi R sin\theta d\theta \tag{.13}$$

Où R est le rayon de la sphère. Si pour simplifier le raisonnement, on se limite à $\theta \in [0°-90°]$, alors la surface dS est d'autant plus élevée que θ est proche de 90°, c'est pourquoi sur la figure .43, $dS_2 > dS_1$.

L'émission de particules dans l'espace est dite isotrope si le nombre N de particules par unité de surface S est constant, c'est à dire si :

$$\frac{dN}{dS} = \frac{dN}{2\pi R sin\theta d\theta} = K.\frac{dN}{d(cos\theta)} = constant \tag{.14}$$

Où K est une constante. L'équation .14 montre que pour respecter la condition d'émission isotrope de particules au cours d'une simulation Monte Carlo par exemple, il faut réaliser un tirage aléatoire sur la variable $cos\theta$, c'est à dire qu'un nombre dN de particules est émis dans l'espace pour chaque unité $dcos\theta$ comme l'illustre la figure .44 (à gauche).

La figure .44 (à droite) montre qu'un tirage sur des unités constantes $dcos\theta$ implique différentes tranches d'angles d'émission $d\theta$. Autrement dit, pour un tirage aléatoire sur deux unités constantes $dcos\theta$, un même nombre de particules dN est émis dans un cône d'angle solide $2\pi d\theta_1$ ou dans un cône d'angle solide $2\pi d\theta_2$ avec $d\theta_2 < d\theta_1$. On obtient dans ce cas un nombre de particules par unité d'angle $\frac{dN}{d\theta_1} < \frac{dN}{d\theta_2}$. Donc dans une émission isotrope, le nombre de particules émises par unité constante $d\theta$ est moins élevé pour des θ petits (proches de l'axe du faisceau comme θ_1) que pour des θ grands (orthogonalement à l'axe du faisceau comme θ_2).

C'est pourquoi la condition d'émission isotrope de particules ne peut pas être remplie en réalisant un tirage aléatoire sur la variable $d\theta$ car dans ce cas, on aurait $\frac{dN}{d\theta_1} = \frac{dN}{d\theta_2}$.

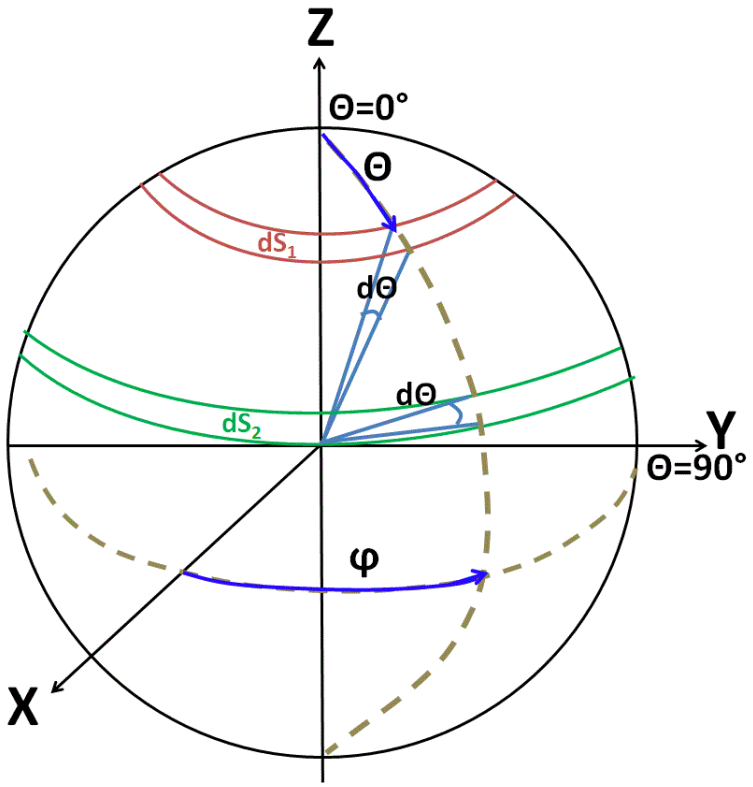


Figure .43.: Repère sphérique. La cible est placée au centre du repère et le faisceau est selon l'axe Z. L'émission de particules dans un cône d'angle solide $2\pi d\theta$ ne couvrent pas des surfaces dS équivalentes selon si ce cône est orienté vers l'axe Z ou vers l'axe Y.

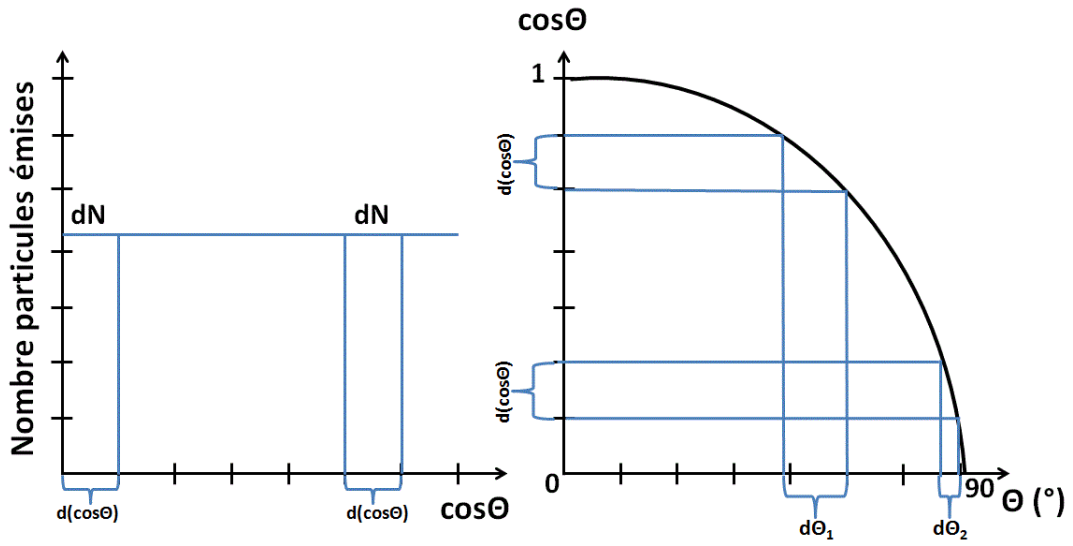


Figure .44.: L'émission isotrope de particules implique l'émission de dN particules pour un tirage aléatoire de la variable $dcos\theta$ (à gauche). Un tirage sur des unités constantes $dcos\theta$ entraîne différentes valeurs d'angles d'émission $d\theta$ (à droite).

D-Cinématique du break-up du deuton

Soit la réaction de breakup élastique $A(d,pn)A$:

$$A + d \rightarrow A + n + p \tag{.15}$$

L'équation de la conservation de l'énergie totale (avec $c^2 = 1$) s'écrit :

$$\begin{aligned} E_d + m_d + M_A &= E_p + E_n + E_A + M_A + m_p + m_n \\ E_p &= E_d + (m_d - m_p - m_n) + E_n + E_A \end{aligned} \tag{.16}$$

Où :

- E_d est l'énergie du faisceau de deuton
- M_A est la masse du noyau A
- m_p est la masse du proton
- m_n est la masse du neutron
- E_n est l'énergie du neutron après break-up
- E_p est l'énergie du proton après breakup
- E_A est l'énergie de recul du noyau A après break-up

Faisons intervenir le défaut de masse Δ_A d'un noyau A quelconque :

$$\Delta_A = M_A - Nm_n - (N - Z)m_p \tag{.17}$$

Où N et Z représente le nombre de neutrons et de protons constituant le noyau A, respectivement. En combinant .16 et .17, on obtient :

$$E_p = E_d + \Delta_d - E_n - E_A \tag{.18}$$

L'énergie maximale des protons du break-up élastique E_{pmax}^{EBU} est atteinte quand $E_n = E_A = 0$, soit :

$$E_{pmax}^{EBU} = E_d + \Delta_d \tag{.19}$$

Rappelons maintenant la cinématique de la réaction de transfert $A(d,p)B^*$:

$$E_d + m_d + M_A = E_p + E_B + M_B + m_p + E_B^* \quad (.20)$$

Où E_B^* est l'énergie d'excitation du noyau de recul B. On peut réecrire cette équation à l'aide de la formule .17 :

$$E_B^* = E_d + \Delta_d + (\Delta_A - \Delta_B) - E_p - E_B \quad (.21)$$

Sachant que $S_n = \Delta_A - \Delta_B$, l'équation .21 devient :

$$E_B^* = E_d + \Delta_d + S_n - E_p - E_B \quad (.22)$$

Or, d'après l'équation .19, l'énergie maximale des protons venant du break-up élastique correspond à une énergie d'excitation minimale du noyau de recul E_{Bmin}^* de :

$$E_{Bmin}^* = E_d + \Delta_d + S_n\text{-}E_{pmax}^{EBU} - E_B = E_d + \Delta_d + S_n\text{-}E_d - \Delta_d - E_B = S_n - E_B$$
$$E_{Bmin}^* = S_n - E_B \quad (.23)$$

Aux énergies mises en jeu dans ce travail de thèse, E_B est très faible devant S_n (de l'ordre du pourcent) et on peut considérer l'approximation suivante :

$$E_{Bmin}^* \simeq S_n \quad (.24)$$

Les protons d'énergie cinétique supérieure à E_{pmax}^{EBU} et qui correspondent à une énergie d'excitation du noyau de recul inférieure au S_n, ne peuvent donc pas provenir du break-up élastique du deuton : les évènements de break-up détectés ne peuvent correspondrent qu'à des énergies d'excitation du noyau composé supérieures au S_n. Les spectres singles ne sont donc pas contaminés par des protons de break-up élastique pour des énergies d'excitation inférieures au S_n.

Le raisonnement est le même pour les réactions de break-up inélastique $A(d, pn)A^*$, et on obtient :

$$E_{Bmin}^* > S_n + E_A^* \quad (.25)$$

Où E_A^* est l'énergie d'excitation du noyau A.

Bibliographie

[Aer06] G. Aerts et al., Phys. Rev. C 73, 054610 (2006).

[All09] J. M. Allmond et al., Phys. Rev. C 79, 054610 (2009).

[And70] B. L. Andersen, B. B. Back, and J. M. Bang, Nucl. Phys. A147, 33 (1970).

[Aus87] N. Austern et al., Phys. Rep. 154, 125 (1987).

[Axe62] P. Axel, Phys. Rev., 126, p. 671 (1962).

[Bac74] B. B. Back, O. Hansen, H. C. Britt, and J. D. Garrett, Phys. Rev. C 9, 1924 (1974).

[Bac74a] B. B. Back, H. C. Britt, O. Hansen, B. Leroux, and J. D. Garrett., Phys. Rev. C 10, 1948 (1974).

[Bac74b] B. B. Back, O. Hansen, H. C. Britt, and J. D. Garrett, Phys. Rev. C9, 1924 (1974).

[Bar73] G. A. Bartholomew et al., Adv. Nucl. Phys. 7, 229-324 (1973).

[Bas09] M. Basunia et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B 267, 1899 (2009).

[Bee88] H. Beer and R. L. Macklin, Astrophys. J. 331, 1047 (1988).

[Ber06] L. A. Bernstein et al., Technical Report, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA.

[Bla52] J. M. Blatt and V. F Weisskopf. Theoretical nuclear Physics. John Wiley and Sons (1952).

[Blo75] Phys. Rev. Lett, vol. 35, p. 1749 (1975).

[Boh36] N. Bohr. Nature 137, no. 344 (1936).

[Bou11] G. Boutoux, Thèse (2011).

[Bou12] G. Boutoux et al., Physics Letters B 712, 319–325 (2012).

[Bou13] G. Boutoux et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 700, 59-64 (2013).

[Boy06] S. Boyer et al., Nucl. Phys. A775, 175 (2006).

[Bri70] H. C. Britt & J. B. Wilhelmy. Phys. Rev. C, vol. 2, no. 5, pages 1758-1768 (1970).

[Bri79] H. C. Britt & J. B. Wilhelmy. Nuclear Science and Engineering, vol. 347, page 222 (1979).

[Bri80] H. C. Britt & J. B. Wilhelmy. Phys. Rev. C, vol. 21, no. 2, pages 761-763 (1980).

[Bul88] N. N. Buleeva et al., Journal of Atomnaya Energiya, vol. 65, Issue.5, p.348 (1988).

[Bur06] J. T. Burke et al., Phys. Rev. C 73, 054604 (2006).

[Bur11] J. T. Burke et al., "Surrogate two-neutron transfer reactions to populate ^{240}U" (2011).

[Caa13] M. Caamano, O. Delaunne, F. Farget et al., Phys. Rev. C 88, 024605 (2013).

[Cap08] R. Capote et al., Journal of Nuclear Science and Technology, vol 45, n°4, p. 333-340 (2008).

[Cea14] CEA Energy Handbook, CEA Saclay, France (2014) (www.cea.fr).

[Chib10] S. Chiba and O. Iwamoto, Phys. Rev. C 81, 044604 (2010).

[Cra70] J. D. Cramer and H. C. Britt, Nucl. Sci. Eng. 41, 177 (1970) .

[Cra70a] J. D. Cramer, H. C. Britt, Phys. Rev. C, vol. 2, no. 6, pages 2350-2358 (1970).

[Dab83] J. W. T. Dabbs, et al., Nucl. Sci. Eng. 83 (1983) 2.

[Des13] V. V. Desai et al., Phys. Rev. C 88, 014613 (2013).

[Des14] V. V. Desai et al., Phys. Rev. C 89, 024606 (2014).

[Des15] V. V. Desai et al., Phys. Rev. C 91, 054618 (2015).

[Duc99] G. Duchene et al., Nucl. Instrum. Methods A 432, 90 (1999).

[Ers78] John R. Erskine, Phys. Rev. C Volume 17, Number 3 (1978).

[Esc06] J. E. Escher and F. S. Dietrich, Phys. Rev. C 74, 054601 (2006).

[Esc10] J. E. Escher and F. S. Dietrich, Phys. Rev. C 81, 024612 (2010).

[Esc12] J. E. Escher et al., Rev. Mod. Phys. 84, 353 (2012).

[Fes54] H. Feshbach, C. E. Porter and V. F. Weisskopf, Phys. Rev. 96, 448 (1954).

[For07] C. Forssén, F. Dietrich, J. Escher, R. Hoffman and K. Kelley, Phys. Rev C 75, 055807 (2007).

[Gav76] A. Gavron et al, Phys. Rev. C Volume 13, Number 6 (1978).

[Gav80] A. Gavron, Phys. Rev. C 21, 230 (1980).

[GEF] http ://www.cenbg.in2p3.fr/-GEF,354-

[Gil65] A. Gilbert and A. G. W. Cameron, Can. J. Phys., 43(8), p. 1446-1496 (August 1965).

[Gol08] B. L. Goldblum et al., Phys. Rev. C 78, 064606 (2008).

[Gol09] B. L. Goldblum et al., Phys. Rev. C 80, 044610 (2009).

[Gol10] B. L. Goldblum et al., Phys. Rev. C 81, 054606 (2010).

[Gor02] S. Goriely and E. Khan, Nuclear Physics A, 706(1-2), p. 217-232 (2002).

[Gri12] M. Grieser, private communication (2012).

[Gut89] M. Guttormsen et al., CACTUS - A Multidetector Set-Up at the Oslo Cyclotron, Department of Physics Report 89-14, Univ. of Oslo, Oslo (1989).

[Gut11] M. Guttormsen et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 648, 168-173 (2011).

[Gut13] M. Guttormsen et al., Phys. Rev. C 88, 024307 (2013).

[Hat10] R. Hatarik et al., Phys. Rev. C 81, 011602 (2010).

[Hau52] W. Hauser and H. Feshbach, Phys. Rev. 87, 366 (1952).

[Hau83] O. Häusser, M. A. Lone, T. K. Alexander, S. A. Kushneriuk, and J. Gascon, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 213, 301 (1983).

[Hil06] S. Hilaire and S. Goriely, Nucl. Phys. A, 779, p. 63-81 (November 2006).

[Hod87] P. E. Hodgson, Rep. Prog. Phys. 50, 1171-1228 (1987).

[Hug12] R. O. Hughes et al., Phys. Rev. C 85, 024613 (2012).

[Ich85] M. Ichimura, N.Austern, and C. M. Vincent, Phys. Rev. C 32, 431 (1985).

[Igna75] Av Ignatyuk, GN Smirenkin and As Tishin, Sov. J. of Nucl. Phys., 21(3), p.255-257 (1975).

[Jur15] B. Jurado, Habilitation à Diriger des Recherches (2015).

[Kaw08] T. Kawano et al., Nucl. Data Sheets 109, 2817 (2008).

[Kes08] G.Kessedjian, Thèse (2008).

[Kes10] G. Kessedjian et al., Phys. Lett. B 692, 297 (2010).

[Kes15] G. Kessedjian et al., Phys. Rev. C 91, 044607 (2015).

[Kib08] T. Kibedi et al., Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A 589, 202 (2008).

[Kno89] Glenn F. Knoll, "Radiation detection and measurement", second edition (1989).

[Kon] A. J. Koning, et al., User Manual TALYS, www.talys.eu.

[Kop90] J. Kopecky and M. Uhl. Phys.Rev. C, 41(5), p. 1941-1955 (1990).

[Kon03] A. J. Koning and J. P. Delaroche, Nucl. Phys. A713, 231 (2003).

[Lei15] J. Lei and A.M. Moro, submitted to PRC (2015).

[Leo87] W.R. Leo. Techniques for Nucl. and Part. Phys. Experiments. Springler-Verlag, 1987.

[Les09] S. R. Lesher et al., Phys. Rev. C 79, 044609 (2009).

[Les10] S. R. Lesher et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 621, 286–291 (2010).

[Lev] http ://www.mn.uio.no/fysikk/english/research/about/infrastructure/OCL/nuclear-physics-research/compilation/

[Lin76] M. Lindner et al., Journal of Nuclear Science and Engineering, vol. 59, p. 381 (1976).

[Lis88] P. W. Lisowski et al., Conf on Nucl. Data for Sci. and Technol., Mito, 97 (1988).

[LISE] http ://lise.nscl.msu.edu/lise.html

[Lip66] R. Lipperheide, Nucl. Phys., A89, 97 (1966).

[Lip67] R. Lipperheide, Z. Phys., 202, 58 (1967).

[Lit10] O. Litaize and O. Serot, Phys. Rev. C 82, 054616 (2010).

[Lon86] M. A. Lone, "Photon strength functions", in : Neutron induced reactions, Proc. 4th. Int. Symp., Smolenice, Czechoslovakia, 1985, J. Kristiak, E. Betak (Eds.), D. Reidel, Dordrecht, Holland, 238 (1986).

[Lyl07] B. F. Lyles et al., Phys. Rev. C 76, 014606 (2007).

[Mac67] R. L. Macklin, J. H. Gibbons, Phys. Rev., vol. 159, no. 4, pages 1007-1012, (Jul 1967).

[Mac78] R. L. Macklin, et al., Los Alamos Scientific Lab. Report, No. LA-7479-MS (1978).

[Mea78] J. W. Meadows et al., Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 65,p. 171 (1978).

[Mol95] P. Möller et al., Atom. Dat. Nucl. Dat. Tab. 59. 185 (1995).

[Mor04] B. Morillon, P. Romain, Phys. Rev., C70, 014601 (2004).

[Nay08] B. K. et al., Phys. Rev. C 78, 061602 (2008).

[Par10] C. Paradela et al., Phys. Rev. C 82, 034601 (2010).

[Pet02] M. Petit, Thèse (2002).

[Pet04] M. Petit et al., Nucl. Phys. A735, 345 (2004).

[Ple05] C. Plettner et al., Phys. Rev. C 71, 051605(R) (2005).

[Ray94] J. Raynal, Notes on ECIS94, CEA Saclay Report No. CEA-N-2772 (1994).

[Rei14] R. Reifarth, C. Lederer et K. Käppeler, J. Phys. G : Nucl. Part. Phys. 41, 053101 (2014).

[Res11] J. J. Ressler et al., Phys. Rev. C 83, 054610 (2011).

[RIPL] https ://www-nds.iaea.org/RIPL-3/

[Rod14] C. Rodriguez-Tajes, F. Farget et al., Phys. Rev. C 89, 024614 (2014).

[Ros72] H. Rosler et al., Phys. Lett. B 38, 501 (1972).

[Sar11] R. Sarmento et al., Phys. Rev. C 84, 044618 (2011).

[Sci08] N. D. Scielzo et al., AIP Conf. Proc. 1005, 109 (2008).

[Sci10] N. D. Scielzo et al., Phys. Rev. C 81, 034608 (2010).

[Sch01] O. Shcherbakov et al., Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 2, p. 230-233 (2002).

[Sin92] A. K. Sinha et al., J. Phys. G : Nucl. Part. Phys. 18 L105 (1992).

[Tam15] P. Tamagno, thèse (2015).

[Tho88] I. J. Thompson, Comp. Phys. Rep. 7, 167 (1988).

[Tor14] T.G Tornyi et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 738, 6-12 (2014).

[Tov04] F. Tovesson et al., Nucl. Phys. A733, 3 (2004).

[Tov14] F. Tovesson et al., Journal of Nuclear Science and Engineering, vol. 178, p. 57-65 (2014).

[Tro88] Yu. N. Trofimov et al., Journal of Atomnaya Energiya, vol. 64, Issue.2, p.150 (1988).

[Uda81] T. Udagawa and T. Tamura, Phys. Rev. C 24, 1348 (1981).

[Vag71] Z. Vager, Phys. Lett. B 36, 269 (1971).

[VDB12] R. Van Den Bosch, Nuclear Fission (2012).

[Voi92] J. Voignier, S. Joly, and G. Grenier, Nucl. Sci. Eng. 112, 87 (1992).

[Wei57] E. Weisskopf. Rev. Mod. Phys. 29, no. 174 (1957).

[Wil03] J. N. Wilson et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 511, 388 (2003).

[Wil12] J. N. Wilson et al, Phys. Rev. C 85, 034607 (2012).

[Wis06] K. Wisshak, et al., Phys. Rev. C 73 015807 (2006).

[You07] P. G. Young et al., Nucl. Data Sheets 108, 2589 (2007).