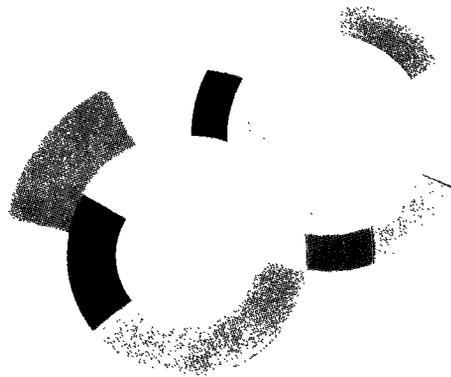




**Gestion INIS**  
Doc. Enreg. le ... 17/12/99  
N° TRN F.R. 0002942



DAPNIA/SPHN-99-04T

10/1999

**Nouvelle détermination expérimentale des  
paramètres de résonances neutroniques de  $^{237}\text{Np}$   
en dessous de 500 eV**

**DAPNIA**

Vincent GRESSIER

Ce travail est le fruit d'une collaboration entre le Service de Physique Nucléaire (SPhN) de la direction des Sciences de la Matière (DSM) du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) et de l'Institute of Reference Materials and Measurements (IRMM), un des Centres Communs de Recherche de la Communauté Européenne.

Je tiens à remercier en premier lieu mon directeur de thèse, Paul Reuss, pour nos nombreux et très enrichissant échanges au cours de ces trois années. Par ses remarques pertinentes, son soutien constant et son engouement pour chaque aspect de ce travail, il a grandement contribué au bon déroulement de cette thèse, sans compter les multiples signatures administratives.

Je tiens également à remercier Alfred Leprêtre de m'avoir offert l'opportunité d'effectuer ces travaux de recherche au sein de son groupe et pour son encadrement quotidien. Les nombreuses discussions que nous avons pu avoir sur les divers aspects expérimentaux m'ont permis de prendre conscience des multiples difficultés inhérentes à nos mesures. Je tiens également à le remercier pour son soutien, son aide dans les expériences de capture et les corrections minutieuses du manuscrit.

Je ne peux qu'exprimer ma gratitude à Frank Gunsing qui a toujours patiemment (et avec brio) répondu aux multiples questions et requêtes que je pu lui soumettre durant ces trois années. Nos nombreux échanges sur la réduction des données et l'analyse ont été particulièrement fructueux. Ce travail lui doit beaucoup !

Je suis forcé d'exprimer ma gratitude envers Caroline Raepsaet qui m'évita de refaire bon nombre de figures. Je la remercie particulièrement pour les calculs à l'aide de NJOY, ses encouragements et sa bonne humeur contagieuse. Sur ce dernier point, je me dois de mentionner également Gabriele Fioni. Je le remercie pour sa contribution au premier chapitre et pour ses explications sur la fonction de pondération.

Cette thèse fut cofinancée par l'IRMM dont je fus membre 18 mois durant. Je tiens à remercier Hermann Weigmann de m'avoir accueilli au sein de son service et d'avoir soutenu ce travail.

Je suis également très reconnaissant envers Antonio Brusegan qui m'enseigna l'art des mesures de transmission. Ses connaissances, sa passion et sa rigueur nous ont ainsi permis d'obtenir des mesures de grande qualité. Je ne peux que le remercier de m'avoir aidé avec une rare disponibilité sur la base de vol 4 de GELINA. Je remercie également à ce niveau Egidio Macavero pour son assistance.

Les expériences menées sur la base de vol 2 n'auraient pu avoir lieu sans le concours de Pierre Ribon et Peter Siegler. Je les remercie pour nos nombreuses discussions, en particulier sur l'aspect expérimental de l'effet Doppler, et d'avoir accepté de manière enthousiaste d'effectuer un bon nombre de tests et expériences supplémentaires. Je tiens également à remercier Klaus Bürkholz et Zachary Hudson pour leur assistance dans ces expériences.

Je remercie également Franco Corvi et Paolo Mutti pour l'utilisation de leur installation de capture et pour leur aide. Je remercie plus particulièrement Jorge Gonzalez, Anna Panagopoulou pour leur assistance au niveau du système d'acquisition ainsi que, bien entendu, Claude Bastian.

La réussite de ces expériences incombe également aux équipes de techniciens chargées du fonctionnement de GELINA. Ils ont toute ma reconnaissance que j'adresse également à Jean-Marie Salomé et Peter Rullhusen.

De même, je remercie l'ensemble du personnel qui s'est chargé de la préparation des échantillons ou de leur analyse et plus particulièrement Chris Ingelbrecht ainsi qu'Inès Leopold du laboratoire PSI.

Enfin, je n'oublie pas de remercier tous ceux qui rendirent les séjours à Geel plus agréables, à commencer par Emmeric, Pascal, Olivier, Stephane et Laurence.

Pour les derniers 18 mois de ce travail, au sein du SPhN, je tiens à remercier Jacques Martino et Bijan Saghai pour leur accueil et leur soutien marqué. Je suis également reconnaissant envers Isabelle Richard et Danielle Coret de m'avoir si souvent simplifié les tâches administratives. Enfin, je tiens à remercier tous ceux qui contribuèrent à rendre ce séjour particulièrement agréable : je pense notamment à Michael, Christophe, Yves, Pascal, Nicolas, ou encore la nocturne Maud.

En ce qui concerne l'étude de l'effet Doppler, je ne peux qu'être reconnaissant envers Dmitri Naberejnev et son fantastique travail sur le modèle cristallin harmonique. Sans DOPUSH, je n'aurai pu obtenir ce que je considère être les plus beaux résultats de ce travail. Je remercie également particulièrement Claude Mounier pour les discussions que nous avons eu à ce sujet et pour son aide de premier plan dans les calculs d'évolution avec APOLLO2.

REFIT serait sans doute resté un mystère sans l'aide salvatrice de son créateur Mick Moxon. Je le remercie pour les longues discussions et plus particulièrement d'avoir consacré des mois à l'incorporation de DOPUSH dans REFIT. Là encore, ce fut une intervention majeure sans laquelle ce travail n'aurait pu aboutir.

Je tiens également à remercier Eric Fort pour son aide dans l'utilisation d'ESTIMA et ses multiples encouragements enthousiastes. Je le remercie, ainsi qu'Alain Giorni, d'avoir accepté d'être rapporteur. Je remercie également Ernst Radermacher pour ses encouragements et d'avoir brillamment présidé ma soutenance de thèse.

Enfin, j'aimerais remercier de manière plus particulière, en lui dédiant cet ouvrage, mon épouse Anne pour son soutien constant et combien important, ainsi que pour avoir supporté de vivre ces derniers mois avec un fantôme.

<b>INTRODUCTION</b> . . . . .	13
<b>CHAPITRE I: Cadre de l'étude</b> . . . . .	17
<b>1 Les déchets nucléaires</b> . . . . .	17
1.1 Présentation . . . . .	17
1.1.1 Production . . . . .	17
1.1.2 Risques et classification . . . . .	18
1.2 Gestion des déchets nucléaires . . . . .	21
1.2.1 Options pour le combustible irradié . . . . .	21
1.2.2 Le stockage profond . . . . .	22
1.2.3 La loi Bataille . . . . .	23
1.3 La transmutation des déchets nucléaires . . . . .	23
1.3.1 Généralités . . . . .	23
1.3.2 Mise en oeuvre . . . . .	24
1.3.3 Importance des sections efficaces . . . . .	25
<b>2 Le neptunium-237</b> . . . . .	27
2.1 Présentation . . . . .	27
2.1.1 Historique . . . . .	27
2.1.2 Voies de production . . . . .	27
2.1.3 Radiotoxicité . . . . .	27
2.2 Transmutation de $^{237}\text{Np}$ . . . . .	27
2.2.1 Séparation de $^{237}\text{Np}$ . . . . .	29
2.2.2 Incinération de $^{237}\text{Np}$ . . . . .	29
2.2.3 Scénario avec les réacteurs du parc actuel . . . . .	31
2.3 Impact de la section efficace de capture de $^{237}\text{Np}$ dans un REP . . . . .	32
2.3.1 Impact sur la teneur isotopique du combustible . . . . .	32
2.3.2 Impact sur le facteur de multiplication infini . . . . .	37
2.3.3 Etude de la radiotoxicité du combustible . . . . .	39
2.4 Impact de la section efficace de capture de $^{237}\text{Np}$ dans un réacteur rapide . . . . .	40
2.4.1 Coefficient de réactivité . . . . .	40

2.4.2	Coefficient de vidange sodium . . . . .	41
2.4.3	Résultats de l'étude . . . . .	42
2.5	Conclusion . . . . .	42
<b>3</b>	<b><i>L'effet Doppler dans les réacteurs</i></b> . . . . .	<b>45</b>
3.1	Influence de l'effet Doppler . . . . .	45
3.2	Buts d'une étude sur l'effet Doppler . . . . .	47
 <b>CHAPITRE II: Aspects théoriques</b> . . . . .		<b>49</b>
<b>1</b>	<b><i>Notion de section efficace</i></b> . . . . .	<b>49</b>
1.1	La section efficace microscopique . . . . .	49
1.2	La section efficace macroscopique . . . . .	50
<b>2</b>	<b><i>Interaction neutron-noyau</i></b> . . . . .	<b>51</b>
2.1	Historique de la théorie des réactions nucléaires . . . . .	51
2.1.1	Modèle à particules indépendantes . . . . .	51
2.1.2	Modèle statistique du noyau composé . . . . .	51
2.1.3	Théorie de la matrice-R . . . . .	52
2.1.4	Limites du modèle du noyau composé . . . . .	53
2.1.5	Modèle optique et potentiel complexe . . . . .	54
2.1.6	Bilan . . . . .	54
2.2	Processus de l'interaction neutron-noyau . . . . .	55
2.2.1	Diffusion potentielle . . . . .	56
2.2.2	Absorption . . . . .	56
2.2.3	Le noyau composé . . . . .	57
2.2.4	Mode de décroissance du noyau composé . . . . .	58
2.2.5	Les sections efficaces partielles . . . . .	60
2.2.6	Cas du neptunium-237 . . . . .	61
2.3	Formalisme de la matrice-R . . . . .	63
2.3.1	Description . . . . .	64
2.3.2	Hypothèses de départ de la théorie de la matrice-R . . . . .	66
2.3.3	Voies . . . . .	66

2.3.4	Rayon $a_c$ . . . . .	67
2.3.5	Sections efficaces . . . . .	68
2.3.6	Relation entre matrice de collision et matrice-R . . . . .	69
2.3.7	La matrice inverse . . . . .	70
2.3.8	Formalisme de Breit et Wigner (simple niveau) . . . . .	70
2.3.9	Formalisme de Reich-Moore . . . . .	73
2.4	Propriétés statistiques des paramètres de résonances . . . . .	74
2.4.1	Espacement moyen et densité de niveaux . . . . .	75
2.4.2	Distribution des espacements . . . . .	77
2.4.3	Distribution des largeurs partielles de désexcitation . . . . .	79
2.4.4	Largeur neutronique moyenne et fonction densité . . . . .	81
2.4.5	Variation de la largeur radiative moyenne en fonction de l'énergie et de la masse du noyau . . . . .	83
2.4.6	Largeur de fission . . . . .	84
<b>3</b>	<b><i>Effet Doppler</i></b> . . . . .	<b>89</b>
3.1	Fonction de transfert . . . . .	89
3.2	Modèle du gaz libre . . . . .	90
3.2.1	Calcul de la section efficace effective . . . . .	90
3.2.2	Décalage en énergie des résonances dû à la température . . . . .	91
3.2.3	Fonction de transfert pour le modèle du gaz libre . . . . .	91
3.3	Modèles cristallins . . . . .	93
3.3.1	L'interaction neutron-noyau dans un cristal . . . . .	93
3.3.2	Spectre de fréquences pondéré . . . . .	96
3.3.3	Cas limite du gaz libre . . . . .	97
3.3.4	Autres modèles . . . . .	99
 <b>CHAPITRE III : Dispositif expérimental</b> . . . . .		<b>101</b>
 <b>1 GELINA</b> . . . . .		<b>101</b>
1.1	Généralités sur les sources de neutrons . . . . .	101
1.2	La source de neutron pulsée GELINA . . . . .	102
1.2.1	L'accélérateur linéaire . . . . .	102

1.2.2	L'aimant de compression . . . . .	104
1.2.3	Cible . . . . .	105
1.2.4	Modérateurs . . . . .	106
1.2.5	Les moniteurs . . . . .	107
1.2.6	Les bases de vol . . . . .	108
<b>2</b>	<b><i>Temps de vol et résolution</i></b> . . . . .	<b>109</b>
2.1	Méthode du temps de vol . . . . .	109
2.1.1	Principe . . . . .	109
2.1.2	Mesure du temps de vol . . . . .	109
2.2	La résolution en énergie . . . . .	111
2.2.1	La largeur d'impulsion du faisceau d'électrons . . . . .	112
2.2.2	La cible . . . . .	113
2.2.3	Les modérateurs . . . . .	114
2.2.4	Le détecteur . . . . .	116
2.2.5	Le codage en temps . . . . .	118
2.2.6	Dispersion due à l'électronique . . . . .	118
2.2.7	Bilan . . . . .	118
<b>3</b>	<b><i>Caractéristiques communes des expériences</i></b> . . . . .	<b>122</b>
3.1	Bases de vol . . . . .	122
3.1.1	Caractéristiques générales . . . . .	122
3.1.2	Description des bases de vol de transmission . . . . .	123
3.1.3	Description de la base de vol de capture . . . . .	123
3.2	Fonctionnement de l'accélérateur linéaire . . . . .	124
3.3	Filtre anti-recouvrement . . . . .	124
3.4	Les écrans de bruit de fond . . . . .	127
3.5	L'échantillon . . . . .	130
3.6	Valeur du flux . . . . .	132
3.7	Résolution et largeur Doppler . . . . .	133
3.8	Largeur des canaux expérimentaux . . . . .	135
<b>4</b>	<b><i>Transmission</i></b> . . . . .	<b>138</b>
4.1	Principe . . . . .	138

4.2	Transmission et section efficace . . . . .	138
4.2.1	Calcul de la transmission . . . . .	138
4.2.2	Dépendance temporelle du flux de neutrons . . . . .	139
4.3	Mesure de la transmission . . . . .	140
4.3.1	Détection des neutrons . . . . .	140
4.3.2	Cycle de mesure . . . . .	142
4.3.3	Détermination de la transmission . . . . .	143
4.4	Les échantillons . . . . .	144
4.5	Les expériences . . . . .	146
4.6	Electronique . . . . .	146
4.6.1	Situation . . . . .	146
4.6.2	Description générale . . . . .	147
4.7	Acquisition . . . . .	147
<b>5</b>	<b>Capture . . . . .</b>	<b>149</b>
5.1	Principe . . . . .	149
5.2	Taux de capture et section efficace . . . . .	150
5.2.1	Nombre de captures . . . . .	150
5.2.2	Taux de capture . . . . .	151
5.3	Mesure du taux de capture . . . . .	151
5.3.1	Mesure du flux de neutrons . . . . .	152
5.3.2	Mesure des rayonnements gamma . . . . .	152
5.3.3	Obtention du taux de capture . . . . .	156
5.3.4	Cycle de mesure . . . . .	158
5.4	Echantillons . . . . .	159
5.5	Les expériences . . . . .	159
5.6	Electronique . . . . .	160
5.6.1	Situation . . . . .	160
5.6.2	Signaux issus des $C_6D_6$ . . . . .	160
5.6.3	Signaux issus du détecteur de flux . . . . .	160
5.6.4	Formation du $T_n$ . . . . .	161
5.6.5	Schéma . . . . .	161
5.7	Le système d'acquisition . . . . .	161

## CHAPITRE IV : Réduction des données . . . . . 163

<b>1 Réduction des données de transmission . . . . .</b>	<b>163</b>
1.1 Correction de temps mort . . . . .	164
1.1.1 Origine et mesure du temps mort . . . . .	164
1.1.2 Correction de temps mort . . . . .	165
1.2 Détermination du bruit de fond . . . . .	168
1.2.1 Origine du bruit de fond . . . . .	168
1.2.2 Méthode de détermination usuelle du bruit de fond . . . . .	171
1.2.3 Composantes du bruit de fond : étude de Moxon [138]. . . . .	174
1.2.4 Détermination expérimentale du bruit de fond . . . . .	176
1.2.5 Nouvelle paramétrisation de la résolution expérimentale . . . . .	181
1.2.6 Tentative d'extension de la méthode à la base 2 . . . . .	185
1.2.7 Conclusions . . . . .	187
1.3 Normalisation . . . . .	188
1.3.1 Validité de l'information provenant des moniteurs . . . . .	189
1.3.2 Variations du flux de neutrons . . . . .	190
1.3.3 Stabilisation de la position du faisceau d'électrons . . . . .	191
1.3.4 Détermination de la constante de normalisation et de sa précision . . . . .	193
<b>2 Réduction des données de capture . . . . .</b>	<b>195</b>
2.1 Fonction de pondération par les amplitudes . . . . .	195
2.2 Correction de temps mort . . . . .	197
2.3 Détermination du bruit de fond . . . . .	197
2.3.1 Méthode générale . . . . .	197
2.3.2 Bruit de fond sur le détecteur de flux . . . . .	197
2.3.3 Bruit de fond dans les détecteurs C <sub>6</sub> D <sub>6</sub> . . . . .	198
2.4 Méthode de normalisation . . . . .	199
2.4.1 Normalisation sur des paramètres de résonance connus . . . . .	199
2.4.2 Normalisation sur une résonance saturée . . . . .	200
2.5 Incertitudes sur les expériences de capture . . . . .	201

## CHAPITRE V : Analyse et résultats . . . . . 203

<b>1</b>	<b><i>Le programme d'analyse REFIT</i></b>	203
1.1	Les méthodes d'analyse	203
1.1.1	Analyse de surface	203
1.1.2	Analyse de forme	205
1.2	Calcul de la transmission par REFIT	205
1.2.1	Formalisme des sections efficaces	206
1.2.2	Effet Doppler	206
1.2.3	Construction de la transmission	207
<b>2</b>	<b><i>Remarques préliminaires sur les résultats</i></b>	208
2.1	Erreurs de normalisation sur la base de vol 2	208
2.1.1	Mise en évidence d'un effet systématique	208
2.1.2	Origine et correction	208
2.1.3	Causes possibles de l'écart résiduel	209
2.1.4	Conclusions	209
2.2	Incertitudes sur l'épaisseur des échantillons	210
2.2.1	Observations	210
2.2.2	Origine possible de l'écart	210
2.2.3	Épaisseur des échantillons	210
2.2.4	Homogénéité des échantillons	211
2.2.5	Conclusions	212
2.3	Incertitude sur la forme du bruit de fond et la résolution	212
2.3.1	Estimation de l'impact d'un bruit de fond structuré	212
2.3.2	Effet d'une nouvelle paramétrisation de la résolution expérimentale	215
<b>3</b>	<b><i>Résultats</i></b>	218
3.1	Le rayon de diffusion	218
3.1.1	Ajustement de la valeur du rayon	218
3.1.2	Incertitudes sur la valeur du rayon	218
3.1.3	Valeur du rayon	222
3.2	Domaine thermique	222

3.2.1	Point thermique . . . . .	222
3.2.2	Résonances négatives . . . . .	223
3.3	Les résonances . . . . .	223
3.3.1	Identification des résonances . . . . .	224
3.3.2	Paramètres ajustés . . . . .	225
3.3.3	Détermination de l'incertitude sur les paramètres de résonance .	228
3.3.4	Matrice de covariance . . . . .	231
3.3.5	Liste des paramètres de résonance . . . . .	232
3.4	Distribution et valeur moyenne des paramètres . . . . .	232
3.4.1	Espacement moyen . . . . .	232
3.4.2	Distribution des espacements . . . . .	235
3.4.3	Distribution des largeurs neutroniques réduites . . . . .	236
3.4.4	Fonction densité d'onde-s . . . . .	238
3.4.5	Largeur radiative moyenne . . . . .	240
<b>4</b>	<b><i>Etude de l'effet Doppler</i></b> . . . . .	<b>242</b>
4.1	Validation d'un modèle cristallin . . . . .	242
4.1.1	Structures dans le résiduel et variation de la température effective . . . . .	242
4.1.2	Etudes antérieures . . . . .	243
4.1.3	DOPUSH . . . . .	244
4.1.4	Simulations et comparaisons . . . . .	245
4.1.5	Validité du modèle cristallin de DOPUSH . . . . .	247
4.2	Utilisation du modèle cristallin dans REFIT . . . . .	248
4.2.1	Ajustement des données à basse énergie et température . . . . .	248
4.2.2	Effet sur les paramètres de résonance . . . . .	249
4.2.3	Largeur radiative moyenne . . . . .	252
4.2.4	Compatibilité des résultats entre basse température et température ambiante . . . . .	253
4.3	Conclusions . . . . .	254
<b>5</b>	<b><i>Analyse de la section efficace totale entre 500 eV et 2 keV</i></b> .	<b>255</b>
5.1	Méthode utilisée . . . . .	255
5.2	Résultat . . . . .	255
5.3	Conclusion . . . . .	257

<b>6 Comparaisons des résultats avec les publications antérieures .</b>	<b>258</b>
6.1 Les autres expériences . . . . .	258
6.1.1 Smith (1957) [158] . . . . .	258
6.1.2 Paya (1972) [59] . . . . .	258
6.1.3 Mewissen (1978) [159] . . . . .	259
6.1.4 Weston et Todd (1981) [143] . . . . .	259
6.1.5 Auchampaugh (1983) [61]. . . . .	260
6.2 Les évaluations . . . . .	260
6.2.1 JEF2.2 - ENDF/B.VI . . . . .	260
6.2.2 JENDL 3.2 . . . . .	261
6.2.3 BNL-325 [85] . . . . .	261
6.3 Comparaison des résultats . . . . .	262
6.3.1 Le rayon de diffusion . . . . .	262
6.3.2 Le domaine thermique . . . . .	262
6.3.3 Les paramètres de résonance . . . . .	264
6.3.4 Les paramètres moyens . . . . .	268
 <b>CONCLUSION ET PERSPECTIVES . . . . .</b>	 <b>271</b>
 <b>RÉFÉRENCES . . . . .</b>	 <b>275</b>
 <b>ANNEXE A : Les détecteurs . . . . .</b>	 <b>285</b>
<b>1 Définition de l'efficacité d'un détecteur . . . . .</b>	<b>285</b>
<b>2 Les détecteurs de mesure du flux . . . . .</b>	<b>287</b>
2.1 Les moniteurs . . . . .	287
2.1.1 Description . . . . .	287
2.1.2 Efficacité . . . . .	287
2.2 Les verres au lithium . . . . .	289
2.2.1 Description . . . . .	289

2.2.2 Temps de réponse . . . . .	290
2.2.3 Efficacité . . . . .	290
2.2.4 Discrimination des signaux . . . . .	292
2.2.5 Caractéristiques des détecteurs utilisés . . . . .	293
2.3 La chambre à ionisation à dépôt de bore-10 . . . . .	295
2.3.1 Description . . . . .	295
2.3.2 Principe de fonctionnement . . . . .	295
2.3.3 Temps de réponse . . . . .	296
2.3.4 Efficacité . . . . .	297
<b>3 Les détecteurs de rayonnement gamma . . . . .</b>	<b>299</b>
3.1 Définition des efficacités . . . . .	299
3.2 Les scintillateurs liquides C <sub>6</sub> D <sub>6</sub> . . . . .	300
3.2.1 Description . . . . .	300
3.2.2 Temps de réponse . . . . .	301
3.2.3 Efficacité . . . . .	301
<b>ANNEXE B: Les échantillons . . . . .</b>	<b>305</b>
<b>1 Echantillons pour les mesures de transmission . . . . .</b>	<b>305</b>
1.1 Echantillons SP96094 et SP96095 . . . . .	305
1.1.1 Description . . . . .	305
1.1.2 Epaisseur des différents éléments . . . . .	306
1.2 Echantillon NS97048 . . . . .	308
1.2.1 Description . . . . .	308
1.2.2 Epaisseur des différents éléments . . . . .	309
<b>2 Echantillons pour les mesures de capture . . . . .</b>	<b>310</b>
2.1 Echantillon SP94065 . . . . .	310
2.1.1 Description . . . . .	310
2.1.2 Epaisseur des différents éléments . . . . .	310
2.2 Echantillon NS98052 . . . . .	311

2.2.1 Description . . . . .	311
2.2.2 Epaisseur des différents éléments . . . . .	311

**ANNEXE C : Description des différentes expériences . . 313**

<b>1 Expériences de transmission . . . . .</b>	<b>313</b>
1.1 Février97 . . . . .	313
1.2 Juin97 . . . . .	314
1.3 Octobre97 . . . . .	315
1.4 Janvier98 . . . . .	315
1.5 Février98 . . . . .	317
1.6 Juin98 . . . . .	317
1.7 Juin99 . . . . .	318
<b>2 Expériences de capture . . . . .</b>	<b>320</b>
2.1 CapFévrier97 . . . . .	320
2.2 CapFévrier98 . . . . .	321
2.3 CapNovembre98 . . . . .	322

**ANNEXE D : Détails sur l'électronique utilisée en transmission . . . . . 323**

<b>1 La salle de mesure . . . . .</b>	<b>323</b>
1.1 Le signal amplitude . . . . .	323
1.2 Le signal temps . . . . .	323
1.3 Stabilisation des alimentations . . . . .	324
<b>2 La salle d'acquisition . . . . .</b>	<b>324</b>
2.1 Le signal amplitude . . . . .	324
2.2 Le signal temps . . . . .	324
2.3 Les autres signaux . . . . .	325

<b>ANNEXE E : Influence de la position du faisceau d'électrons de GELINA . . . . .</b>	<b>327</b>
<i>1 Dispositif installé . . . . .</i>	<i>327</i>
1.1 Rayonnement OTR . . . . .	327
1.2 Description du dispositif . . . . .	328
1.3 Observation du faisceau d'électrons . . . . .	329
<i>2 Position du faisceau d'électrons et flux de neutrons . . . . .</i>	<i>330</i>
2.1 Incidence sur le rapport des moniteurs . . . . .	330
2.2 Variations du flux . . . . .	332
2.3 Variations de la transmission . . . . .	333
2.3.1 Flux intégré et moniteurs . . . . .	333
2.3.2 Les différentes transmissions . . . . .	334
2.3.3 Interprétation . . . . .	335
<i>3 Conclusion . . . . .</i>	<i>337</i>
<b>ANNEXE F : Liste des paramètres de résonance . . . . .</b>	<b>339</b>

# Introduction

Ce travail a été réalisé en collaboration entre le Service de Physique Nucléaire (SPhN) de la Direction des Sciences de la Matière (DSM) du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) et l'Institute of Reference Materials and Measurements (IRMM), un des Centres Communs de Recherche (CCR) de la Communauté Européenne. Il s'inscrit dans le cadre des recherches entreprises sur la transmutation des déchets nucléaires à vie longue issus du combustible irradié dans les réacteurs. Le neptunium-237 est, en masse, l'un des actinides mineurs les plus importants et son très long temps de demi-vie (plus de 2 millions d'années) pose le problème de son stockage à long terme. Des projets de réacteurs dédiés à la transmutation (par capture de neutron) et à l'incinération (par réaction de fission) des déchets nucléaires sont élaborés actuellement par un grand nombre de nations et fait encore aujourd'hui l'objet de débats passionnés.

Les données nucléaires, en permettant de calculer les sections efficaces des corps présents dans le coeur, sont un point essentiel dans la conception de ces futurs réacteurs. Pour de nombreux noyaux, les sections efficaces sont connues avec une précision assez faible. Dans le cas de  $^{237}\text{Np}$ , cette précision est estimée à environ 10 %, ce qui est suffisant pour des études préliminaires mais peut avoir un impact non négligeable dans la phase de conception des réacteurs.

La demande d'une détermination des paramètres de résonances entre 0 et 500 eV de  $^{237}\text{Np}$  a donc été demandée, par la France notamment. Ces paramètres permettront de reconstruire la section efficace dans cette gamme d'énergie mais également de déterminer les paramètres moyens, essentiels pour calculer la section efficace à plus haute énergie.

Les mesures des sections efficaces neutroniques (expériences de transmission et de capture radiative) ont été effectuées, entre 0,3 eV et 2 keV, auprès de l'accélérateur à électrons de 100 MeV de Geel (Belgique) qui offre une source pulsée de neutrons. Les résonances apparaissant dans les sections efficaces de la réaction ( $n, ^{237}\text{Np}$ ) correspondent aux niveaux excités du noyau composé ( $^{238}\text{Np}$ ) d'énergies immédiatement supérieures à celle de l'énergie de liaison d'un neutron dans ce noyau (5,5 MeV). La densité de niveau est très élevée à une telle énergie d'excitation, mais

l'excellente résolution offerte par les mesures de temps de vol permet de séparer et de paramétrer plusieurs centaines de résonances d'énergie inférieure à 500 eV. Ces paramètres sont définis dans le cadre de théories formelles dont celle de la matrice R que nous avons utilisé et leurs propriétés statistiques permettent d'obtenir des informations sur le mécanisme des réactions nucléaires.

La largeur des résonances observée expérimentalement pour des noyaux lourds est fonction de la résolution expérimentale et de l'effet Doppler. Ce dernier a pour origine le fait que le noyau cible n'est pas au repos mais soumis à une agitation thermique, dont les caractéristiques dépendent de la structure cristalline dans laquelle se trouve ce noyau (la plupart des actinides sont sous forme de dioxyde dans les réacteurs). La description de l'élargissement Doppler est de première importance pour extraire des paramètres de résonance avec une grande précision, mais également dans le cadre de la reconstruction des sections efficaces pour les calculs de réacteur.

Cet exposé a été divisé en cinq parties, quelques détails supplémentaires et les paramètres de résonances étant présentés dans les annexes. Certaines parties, notamment à propos des conditions expérimentales et de la réduction des données ont été particulièrement développées afin de donner le maximum d'informations sur les hypothèses formulées. Ceci facilitera l'analyse des expériences de capture qui n'ont pu être entreprises dans le temps imparti à ce travail ainsi qu'un futur travail d'évaluation qui tiendrait compte de nos résultats.

Dans la première partie, un rapide survol des déchets nucléaires, une présentation des solutions envisagées pour  $^{237}\text{Np}$  et quelques notions sur l'importance de l'effet Doppler dans les réacteurs sont présentés. Le point essentiel de cette partie est cependant une étude de l'impact de la précision de la section efficace de capture de  $^{237}\text{Np}$  dans les réacteurs actuels et dans des réacteurs dédiés à l'incinération ou transmutation des déchets nucléaires.

Le chapitre II s'attache à décrire le processus de l'interaction neutron-noyau intervenant dans nos expériences ainsi que les formalismes utilisés pour obtenir les paramètres de résonances. Les propriétés statistiques de ces paramètres seront également introduites avec les différentes relations permettant de remonter aux paramètres moyens. Enfin, une description de l'effet Doppler et de ses modèles sera entreprise.

Le chapitre suivant est consacré à la description des techniques expérimentales et des mesures. La résolution expérimentale a fait l'objet d'une étude particulière.

En effet, dans le chapitre IV, qui décrit les différentes étapes de la réduction des données (c'est à dire de la correction de divers effets expérimentaux), certains éléments amènent à penser que cette résolution doit être étudiée plus avant. Une nouvelle paramétrisation de celle-ci sera proposée en étroite relation avec une étude effectuée sur le bruit de fond.

Enfin le chapitre V présentera les résultats de l'analyse des expériences de transmission entre 0,3 eV et 500 eV, dans la cadre de l'ensemble des hypothèses formulées tout au long de cet exposé. Nous donnerons les paramètres de résonances obtenus ainsi que leur propriétés statistiques. Nos résultats seront comparés à ceux des expériences précédentes et une tendance sur le choix de la section efficace de capture au point thermique sera notamment proposée. Une partie importante de ce chapitre est également consacrée aux succès obtenus dans l'utilisation d'un modèle cristallin harmonique pour l'élargissement Doppler et à l'impact de la modélisation de l'effet Doppler sur les paramètres de résonances en dessous de quelques électrons-Volts.

# CHAPITRE I

## Cadre de l'étude

### 1 Les déchets nucléaires

#### *1.1 Présentation*

D'après la définition donnée par l'IAEA (International Atomic Energy Agency), on appelle déchet radioactif "tout matériau qui contient ou est contaminé par des radionucléides avec des concentrations ou des niveaux de radioactivité supérieurs aux seuils établis par les autorités compétentes et pour lequel aucun usage n'est envisagé" [1]. Les déchets radioactifs issus de l'industrie de l'énergie nucléaire sont souvent appelés déchets nucléaires.

Il apparaît donc, qu'au delà des aspects physiques et techniques, les déchets nucléaires dépendent fortement de la législation et du contexte socio-économique de chaque pays. Par exemple, en France, le plutonium issu du combustible irradié peut être réinjecté dans le cycle électro-nucléaire comme constituants des combustibles MOX (Mélange d'OXYdes) et ne plus être ainsi considéré comme déchet nucléaire.

#### *1.1.1 Production*

La source principale, en terme de radioactivité, des déchets nucléaires est le combustible irradié dans les réacteurs. Environ 8000 tonnes sont déchargées annuellement au niveau mondial [2]. Mais les déchets peuvent également provenir des autres étapes (en amont ou en aval du réacteur) du cycle électro-nucléaire, avoir une origine militaire (environ 200 t de plutonium dans le monde) ou encore être issus d'une activité industrielle ou médicale. Il existe aujourd'hui, dans le monde, environ 100 000 tonnes de combustible irradié non retraitées et entreposées pour le

moment en piscine. Toutefois, dans le cas de la France, les déchets nucléaires ne représentent que 0,04 % de la masse des déchets industriels, eux-même ne comptant que pour moins de 20 % de la masse totale des déchets produits [3].

Le combustible irradié est composé de deux types de corps radioactifs :

-les actinides : ce sont les noyaux d'uranium n'ayant pas fissionés dans le réacteur et les noyaux formés par capture neutronique, et éventuellement désintégration  $\beta^-$ , à partir de l'uranium.

Les actinides sont classés en deux catégories :

-les *actinides majeurs* que sont les différents isotopes de l'uranium et du plutonium.

-les *actinides mineurs* (car produits en bien moindre quantité) : neptunium, américium, curium, etc...

-les produits de fission : ce sont les différents isotopes issus de la fission des actinides. La plupart (près de 90% en masse dans le cas d'un REP, Réacteur à Eau Pressurisé, du parc français) donne des résidus stables en moins de 3 ans. Il reste donc à considérer les Produits de Fission à Vie Moyenne (tels que  $^{79}\text{Se}$  et  $^{137}\text{Cs}$  dont la période de décroissance radioactive est de l'ordre de 30 ans) et les Produits de Fission à Vie Longue (dont  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{135}\text{Cs}$  de période très supérieure à 30 ans).

La quantité des différents radionucléides dans le combustible irradié dépend du type de réacteur, du combustible lui-même et du temps d'irradiation. Considérons un REP de 900 MW du parc français fonctionnant à un taux de combustion de rejet de 33000 MWj/t avec un renouvellement par tiers. Sur la tonne initiale d'uranium enrichi à 3,5 % en  $^{235}\text{U}$  (combustible appelé UOX pour OXyde d'Uranium), il ressortira un combustible irradié dont la composition, après un refroidissement de 3 ans en piscine, est donnée dans le tableau 1 [4].

### 1.1.2 *Risques et classification*

Le principal problème posé par les déchets nucléaires n'est toutefois pas tant le volume que la radiotoxicité à long terme.

Les risques engendrés par les matières nucléaires sont de plusieurs ordres.

En effet, un élément peut présenter un risque biologique de par sa toxicité (au contact ou par ingestion) envers les organismes vivants.

Le risque radiologique est dû aux rayonnements émis par les différents isotopes radioactifs. Mais il dépend également de la mobilité dans l'environnement et donc des propriétés chimiques et physiques des éléments radioactifs.

Les déchets ne possèdent pas tous le même niveau de risque radiologique et sont donc classés en catégories (les valeurs sont extraites de la référence [3]):

Tableau 1 : Inventaire des différents isotopes présents dans le combustible UOX, enrichi à 3,5 % en  $^{235}\text{U}$ , d'un REP de 900 MW pour un taux de combustion de 33000 MWj/t avec un renouvellement du combustible par tiers [4].

		Masse (kg)	Période (année)
<b>Uranium</b>	$^{235}\text{U}$	10,3	$7,08 \cdot 10^8$
	$^{236}\text{U}$	4,1	$2,34 \cdot 10^7$
	$^{238}\text{U}$	940,4	$4,47 \cdot 10^9$
	<i>Total uranium</i>	<i>954,7</i>	
<b>Plutonium</b>	$^{238}\text{Pu}$	0,15	87,7
	$^{239}\text{Pu}$	5,7	24119
	$^{240}\text{Pu}$	2,2	6569
	$^{241}\text{Pu}$	1,2	14,4
	$^{242}\text{Pu}$	0,5	$3,7 \cdot 10^5$
	<i>Total plutonium</i>	<i>9,75</i>	
<b>Actinides mineurs</b>	$^{237}\text{Np}$	0,4	$2,14 \cdot 10^6$
	$^{241}\text{Am}$	0,2	432,2
	$^{243}\text{Am}$	0,1	7380
	$^{243}\text{Cm}$	$\simeq 0$	28,5
	$^{244}\text{Cm}$	0,02	18,1
	$^{245}\text{Cm}$	0,003	8500
	<i>Total actinides mineurs</i>	<i>0,75</i>	
<b>Produits de fission</b>	$^{79}\text{Se}$	0,005	70000
	$^{90}\text{Sr}$	0,5	28
	$^{93}\text{Zr}$	0,7	$1,5 \cdot 10^6$
	$^{99}\text{Tc}$	0,8	$2,1 \cdot 10^5$
	$^{107}\text{Pd}$	0,2	$6,5 \cdot 10^6$
	$^{126}\text{Sn}$	0,02	$10^5$
	$^{129}\text{I}$	0,2	$1,57 \cdot 10^6$
	$^{135}\text{Cs}$	0,4	$2 \cdot 10^6$
	$^{137}\text{Cs}$	1,1	30
	$^{151}\text{Sm}$	0,02	93
	Autres (résidus stables)	30,7	
<i>Total produits de fission</i>	<i>34,7</i>		

-les déchets de type A sont des déchets de faible et moyenne activité ne contenant que des isotopes dont la période est inférieure à 30 ans. Produits à raison de 25000 m<sup>3</sup> par an, ils représentent 90 % de la masse des déchets nucléaires, mais uniquement 5 % de la radioactivité totale.

-les déchets de type B sont des déchets de faible et moyenne activité contenant des émetteurs  $\alpha$  à vie longue (> 30 ans). Leur production annuelle s'élève à 4000 m<sup>3</sup>.

-les déchets de type C sont les déchets de haute activité. Les déchets issus du combustible irradié entrent dans cette catégorie. Le volume annuel est limité (200 m<sup>3</sup>), mais ce type de déchet représente la majeure partie de la radioactivité totale.

Les déchets de type A sont stockés en surface et seront surveillés pendant 300 ans (> 10 périodes) avant d'être considérés comme déchets non-nucléaires.

Les déchets de type B et C, ces derniers étant préalablement vitrifiés, sont pour le moment stockés en piscine dans l'attente d'une solution quant à leur devenir.

Pour évaluer le risque radiologique deux notions sont utilisées :

-la radiotoxicité potentielle qui, à un instant donné, est la somme pondérée, sur les différents radionucléides présents à cet instant, du risque encouru par l'ingestion d'un élément radioactif, sans tenir compte d'éventuelles barrières entre les nucléides et l'homme.

La radiotoxicité potentielle est donnée à l'instant t par :

$$R(t) = \sum_k \sum_i \frac{N_{ik}(t)}{N_k(0)} \frac{D_i}{M_k T_i} \quad (\text{I.1})$$

$R(t)$ : radiotoxicité potentielle à l'instant t (Sv /g)

$N_k(0)$  : nombre de noyaux de l'isotope père k à l'instant initial

$N_{ik}(t)$  : nombre de noyaux du descendant i de l'isotope père k à l'instant t

$M_k$  : masse molaire de l'isotope père k

$T_i$  : période de décroissance radio-active du descendant i

$D_i$  : facteur de dose efficace pour l'ingestion de l'isotope i (en Sv/ Bq) donné par la CIPR 72 [5].

Sur la figure 1, la radiotoxicité (pour l'ensemble du parc français) de chaque type de radionucléide présent dans le combustible est représentée en fonction du temps, dans le cas d'un cycle ouvert c'est à dire sans aucune politique de retraitement [6]. Si à court terme, ce sont les produits de fission (principalement <sup>79</sup>Se et <sup>137</sup>Cs) qui dominent la radiotoxicité, on peut voir que c'est le plutonium qui, au delà d'une centaine d'années, est la plus grande source de radiotoxicité. Pour des temps inférieurs à 10000 ans, on notera également l'importance du curium et de l'américium, alors que pour des temps plus longs, ce sont au contraire l'uranium et le neptunium qui contribuent plus nettement à la radiotoxicité.

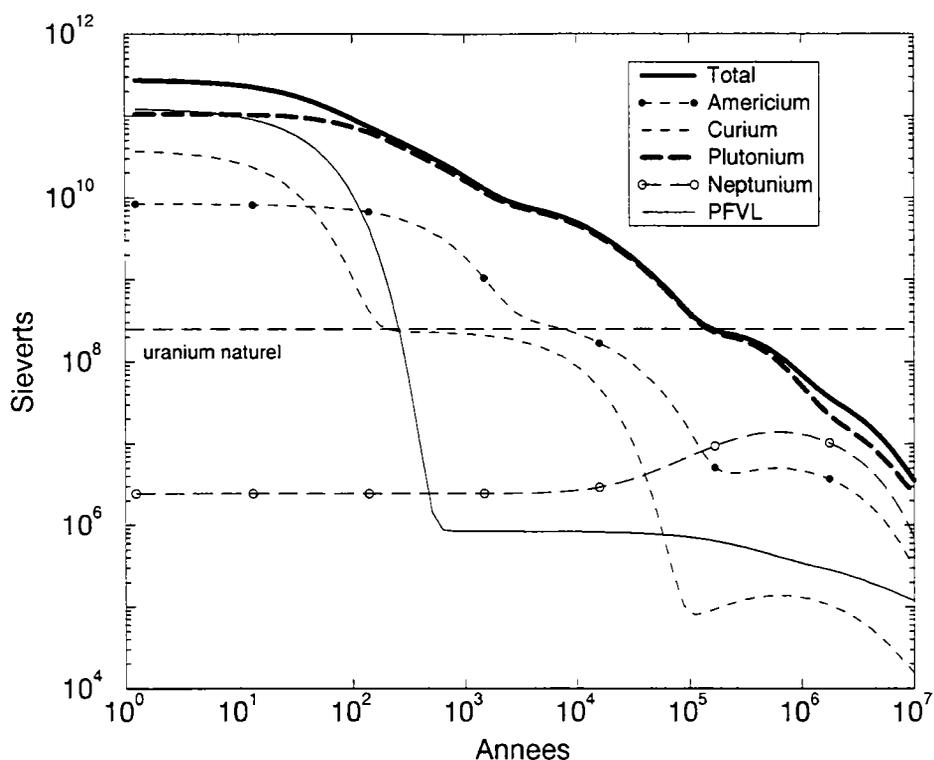


Fig.1 : Evolution de la contribution de chaque type de radionucléide à la radiotoxicité du combustible de l'ensemble du parc français (8100 t de UOX enrichi à 4,5 % irradié pendant 5 ans) [6]. Cas d'un cycle ouvert, c'est à dire qu'aucun retraitement n'est opéré au déchargement du combustible.

-la radiotoxicité résiduelle prend en considération, à la différence de la radiotoxicité potentielle, les barrières instaurées entre les éléments radioactifs et la biosphère. Seuls interviendront alors les isotopes ayant réussi à traverser ces barrières par migration.

## 1.2 Gestion des déchets nucléaires

### 1.2.1 Options pour le combustible irradié

Du fait de la grande chaleur dégagée par rayonnement  $\beta$  et  $\gamma$ , le combustible irradié est d'abord refroidi 3 à 5 ans en piscine.

Deux schémas sont alors envisageables :

-le retraitement du combustible afin d'y extraire l'uranium et le plutonium, qui représentent 96 % de la masse du combustible irradié, et de conditionner le reste. L'uranium et le plutonium ainsi récupérés peuvent être réinjectés dans le cycle électro-nucléaire pour recréer du combustible (mélange uranium-plutonium MOX, ou éventuellement plutonium seul pour la filière des surgénérateurs). Cette solution choisie par la France, la Grande Bretagne et le Japon, est complexe et financièrement lourde. De plus, l'utilisation d'un combustible multi-recyclé est limitée notamment par l'appauvrissement du plutonium en isotopes fissiles et par l'augmentation de la production d'actinides mineurs. Aussi, le combustible n'est-il retraité en général qu'une seule fois.

-le stockage direct, plus simple mais qui conduit à des volumes de stockage bien plus importants du fait de la quantité accrue de déchets et de la plus grande radioactivité résiduelle. Cette option a été retenue par d'autres pays tels que les USA, la Suède ou l'Allemagne (pour une partie de son combustible).

### **1.2.2 Le stockage profond**

Le stockage souterrain serait basé sur le confinement des déchets dans trois barrières : le conteneur de déchets éventuellement disposé dans un surconteneur, l'enceinte constituée par les différentes parois du site de stockage et enfin la roche où est construit le site.

Le stockage souterrain présente des intérêts multiples [7] :

- il permet d'éviter des accidents susceptibles de se produire en surface.
- l'environnement géochimique souterrain est bien plus stable.
- la structure géologique, dans laquelle seront construits les sites de stockage, forme une barrière de confinement supplémentaire.
- si, malgré tout, des éléments radioactifs arrivent dans la biosphère, le milieu géologique choisi pour le stockage doit assurer une capacité de dilution des effluents pour minimiser la concentration des radionucléides en surface.

Jusqu'à présent, seules des simulations dans différents milieux géologiques ont été entreprises et ont montré que dans le cadre d'une évolution normale (sans accident géologique ou dû à une intrusion), les doses délivrées à long terme dans la biosphère restent très inférieures aux limites imposées par les normes de sécurité actuelles.

Toutefois, le stockage profond n'est pas sans problèmes, notamment au niveau de son acceptation par le public et de son coût élevé. De ce fait, il n'existe actuellement aucun site de stockage opérationnel. Il est, en effet, impossible d'assurer l'absence de risque à très long terme et, dans le cas d'un stockage direct, la présence de grandes quantités de plutonium et d'uranium pose le problème d'un risque de prolifération.

### **1.2.3 La loi Bataille**

En France, à la suite des oppositions rencontrées lors de la recherche d'un site pour un laboratoire d'étude de stockage souterrain, le Parlement votait le 30 décembre 1991 une loi fixant, avant toute décision quant au devenir des déchets nucléaires de haute activité, 3 axes de recherche à explorer de manière plus approfondie [8] :

-Axe 1 : la recherche de solutions permettant la séparation et la transmutation des éléments radioactifs à vie longue présents dans les déchets nucléaires.

-Axe 2 : l'étude des possibilités de stockage réversible ou irréversible dans les formations géologiques profondes, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains.

-Axe 3 : l'étude des procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface des déchets.

L'ensemble des solutions issues de ces 3 axes d'étude devra donner lieu en 2001 à un rapport de faisabilité scientifique et en 2006 à un rapport de faisabilité technique. L'ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets RADIOactifs) pilote l'axe 2, alors que le CEA a la charge des axes 1 et 3. Ces recherches sont menées en coopération avec le CNRS, EDF, FRAMATOME, COGEMA et divers instituts internationaux.

## **1.3 La transmutation des déchets nucléaires**

### **1.3.1 Généralités**

Le but de la transmutation est la transformation, au moyen de réactions nucléaires, d'isotopes à vie longue en isotopes stables ou à vie courte (période inférieure à 30 ans). Lorsqu'on utilise la fission pour transmuter un noyau, on parle plutôt d'incinération des déchets nucléaires.

Seules les réactions induites par des neutrons sont envisageables pour la transmutation ou l'incinération, à la fois du fait de leurs grandes sections efficaces et de la faible énergie qu'elles nécessitent. H.Takahashi et H. Rief ont montré que tout autre processus tel que spallation directe avec protons de haute énergie ou des réactions utilisant des rayonnements gamma intenses ne sont pas économiquement viables [9].

Les produits de fission sont transmutés par réaction de capture neutronique ( $n, \gamma$ ), tandis que pour les actinides c'est plutôt l'incinération, après capture éventuelle qui est le processus de transmutation.

Un exemple intéressant, sur le principe, est celui du technétium 99. C'est un produit de fission à vie longue de période  $2.10^5$  a. Par capture d'un neutron, le

technétium 99 donne généralement du technétium 100 qui décroît en 16 s vers le ruthénium 100, un noyau stable comme le montre la figure 2.

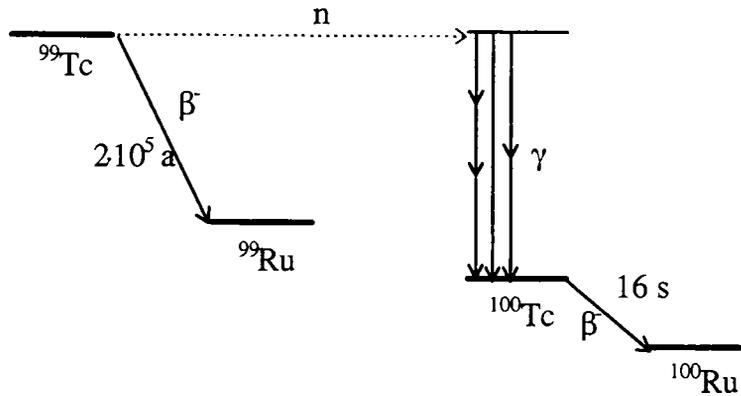


Fig.2 : Schéma de décroissance simplifié du  $^{99}\text{Tc}$  ne représentant que le processus de capture radiative [10].

Alliée à une étape de séparation permettant d'extraire individuellement ou par groupe les différents radionucléides des déchets nucléaires, la transmutation permet de réduire l'impact et le coût du stockage en profondeur (qui restera de toute façon nécessaire) en :

- diminuant le volume de stockage puisque la quantité de déchets et la radioactivité par unité de volume seront moindres.

- réduisant la radiotoxicité à long terme.

Toutefois, cela nécessite des manipulations supplémentaires et donc augmente le risque encouru par les personnes qui y sont impliquées. De plus, la transmutation et l'incinération peuvent engendrer une augmentation de l'activité à court terme et produire d'autres radionucléides à vie longue peu transmutables. Enfin, du fait de la complexité de la mise en oeuvre de la séparation puis de la transmutation, cette étape a un impact économique important.

Le plutonium est l'élément le plus sensible. En effet, d'une part il peut être valorisé en tant que combustible, mais d'autre part il domine la radiotoxicité à long terme. Par conséquent toute étude de gestion des déchets nucléaires dépendra principalement de celle retenue pour le plutonium.

### 1.3.2 Mise en oeuvre

La transmutation / incinération des déchets nucléaires peut être envisagée dans :

-les réacteurs thermiques ou rapides du parc actuel (ou futur) où les déchets sont mélangés au combustible (mélange homogène), ou placés dans des cibles spécifiques à certains endroits du réacteurs (mélange hétérogène). Dans les deux cas, les déchets seront "éliminés" par les réactions de capture radiative neutronique (on assimilera par la suite, dans ce chapitre, l'appellation "capture" à "capture radiative") et de fission.

-des systèmes dédiés plus particulièrement à l'incinération des déchets nucléaires. Diverses études sont actuellement menées avec un accent marqué sur les systèmes hybrides, réacteurs sous-critiques dont le cœur est alimenté par des neutrons issus de réactions de spallation sur du plomb au moyen d'un faisceau de protons. Citons, à titre d'exemple, le projet de Carlo Rubbia [11], mais bien d'autres systèmes de réacteurs pilotés par accélérateurs sont à l'étude utilisant des spectres de neutrons rapides ou thermiques, différents types de combustibles (à base d'uranium, de plutonium ou encore de thorium) ou de constituants (les projets avec les sels fondus par exemple).

### *1.3.3 Importance des sections efficaces*

Quel que soit le système envisagé, les différentes sections efficaces (c'est à dire les différentes probabilités de réaction) des isotopes intervenants dans les études de transmutation jouent un rôle essentiel. L'état de la connaissance de ces données nucléaires est supervisée par des organismes internationaux tels que, en Europe, l'agence pour l'énergie nucléaire de l'OCDE et les données les plus récentes sont regroupées dans différentes banques de données évaluées telles que JEF (Joint European Files) [12].

Entre les années 50 et 70, le développement de l'énergie nucléaire dans les différents pays industrialisés lança certains d'entre eux dans des programmes internes de détermination des différentes données neutroniques qui leur étaient nécessaires. Une fois les corps importants pour les réacteurs nucléaires mesurés, l'imprécision des calculs pour les réacteurs venait principalement des codes utilisés et non plus de la précision des données. Aussi, l'intérêt pour ces dernières se fit-il moindre dès la fin des années 70. De plus, dans les années 80, la plupart des gouvernements optèrent pour une limitation voire un arrêt du développement de l'énergie nucléaire, ce qui a ralenti d'autant l'activité de mesure des données neutroniques de base. A partir des années 80, les ordinateurs gagnèrent très rapidement en puissance et les codes de calculs s'affinèrent au point que ce sont les incertitudes sur les données elle-mêmes qui limitent aujourd'hui la précision des calculs de réacteur. Les études entreprises sur la gestion des déchets nucléaires nécessitent des calculs sur de nouveaux types de combustible et donc font intervenir les sections efficaces de noyaux dont l'étude avait été négligée jusqu'ici, ce qui augmente de manière cruciale

le besoin de déterminations plus fiables des données nucléaires [13]. Toutefois, les précisions requises et la diminution des installations aptes à ce genre d'expériences font qu'il est bien trop coûteux pour chaque pays de prendre en charge seul l'ensemble de ces mesures. C'est pourquoi il existe des collaborations internationales prenant forme notamment dans une liste de haute priorité définissant les besoins de nouvelles mesures ou évaluations de données nucléaires pour les réacteurs, pour chaque section efficace d'un isotope donné, en y précisant les degrés de priorité, les domaines d'énergie et les précisions désirées [14]. Un de ces besoins concernait une nouvelle détermination expérimentale des sections efficaces totale et de capture du neptunium-237 du domaine thermique à 500 eV.

## 2 Le neptunium-237

### 2.1 Présentation

#### 2.1.1 Historique

Le neptunium fut découvert durant la seconde guerre mondiale, au printemps 1940 plus exactement, dans le cadre du *Manhattan Project* par Edwin M. McMullan et P. H. Abelson. Il fut synthétisé en irradiant, par des neutrons, de l'uranium ( $Z=92$ ). Celui-ci doit son nom à la planète Uranus, qui venait d'être découverte quand l'uranium fut identifié en 1789. Le nouvel élément de numéro atomique 93 fut donc nommé neptunium en référence à Neptune, la planète suivante du système solaire.

L'homme n'a toutefois pas inventé le neptunium et on estime que, par le biais de réactions nucléaires naturelles, il existe dans la croûte terrestre une centaine de tonnes de neptunium-237 [15], à comparer aux 4 tonnes artificielles produites annuellement dans le monde.

#### 2.1.2 Voies de production

Le neptunium-237 est formé à partir de la décroissance  $\beta^-$  de l'uranium-237, lui-même formé soit par une double capture neutronique à partir de l'uranium-235, soit par réaction  $(n,2n)$  à partir de l'uranium-238 comme le montre la figure 3 [16].

Une autre voie de production, moins importante, est la décroissance  $\alpha$  de l'américium-241 formé par décroissance  $\beta^-$  à partir du plutonium-241.

#### 2.1.3 Radiotoxicité

La radiotoxicité due au  $^{237}\text{Np}$  est faible comparativement à celle des autres actinides (voir figure 1) et seule sa très longue durée de vie amène réellement à envisager sa transmutation. De plus, la création de  $^{238}\text{Pu}$ , lors de l'irradiation, ainsi que les descendants de ce plutonium vont amener une augmentation de la radiotoxicité du combustible irradié.

## 2.2 Transmutation de $^{237}\text{Np}$

Le neptunium-237 étant un actinide, sa transmutation par capture neutronique ne donnerait qu'un autre actinide à vie longue et ne présente donc pas d'intérêt

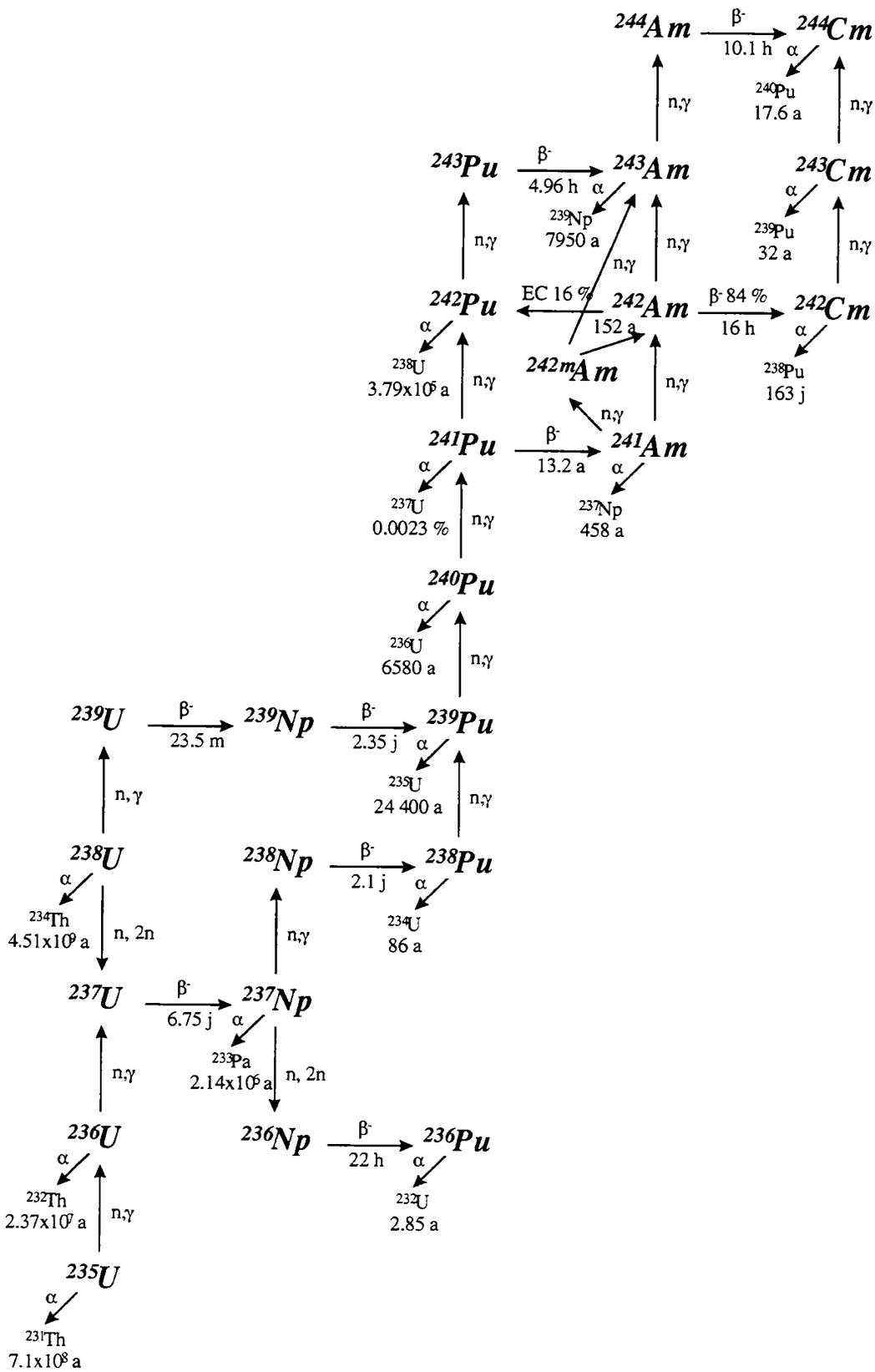


Fig.3 : Chaîne des actinides pour un combustible à base d'uranium-plutonium [16].

direct. Mais la transmutation peut être utilisée pour transformer un noyau lourd en un autre plus facilement fissionable.

### 2.2.1 Séparation de $^{237}\text{Np}$

Avant toute étude de transmutation d'un radionucléide, il faut pouvoir l'extraire sélectivement du combustible. L'uranium et le plutonium sont extraits à l'aide du procédé PUREX (Plutonium Uranium Refining by EXtraction) via un composé organique, le phosphate tribulytique ou TBP. Ce procédé a été mis au point dans les années 40 aux Etats-Unis et est maintenant utilisé au niveau mondial de manière industrielle. Des recherches sur l'amélioration de ce procédé ont montré qu'il est possible d'isoler le neptunium en ajustant l'état d'oxydation du neptunium dans la solution de dissolution du combustible [21].

### 2.2.2 Incinération de $^{237}\text{Np}$

Le neptunium-237 ne possède qu'une très faible section efficace de fission. La valeur moyenne de celle-ci dans un REP est de 0,52 barn et n'est que de 0,32 barn dans le cas d'un réacteur rapide (les valeurs des sections efficaces sont extraites de la référence [18]). Les sections efficaces moyennes de capture étant plus élevées (33 barn et 1,7 barn, respectivement), la transmutation vers le neptunium-238 sera donc favorisée.  $^{238}\text{Np}$  possédant des sections efficaces moyennes de fission plus importantes (134 barn dans un REP et 3,6 b dans un réacteur rapide) que celles de capture neutronique (13,6 barn et 0,2 barn respectivement), la fission prédomine sur la capture.

Malheureusement,  $^{238}\text{Np}$  donne également par décroissance  $\beta^-$  de faible période (2,1 j) du plutonium-238. Cette voie prédomine sur la fission aux valeurs des flux neutroniques des réacteurs actuels ( $10^{13}$  à  $10^{14}$  neutrons / $(\text{cm}^2.\text{s})$  pour les réacteurs thermiques et  $10^{15}$  à  $10^{16}$  neutrons / $(\text{cm}^2.\text{s})$  pour les réacteurs rapides).

En ne tenant en compte que les voies principales (celles décrites sur la figure 3), les équations d'évolution des différentes concentrations  $N_i$ , en noyaux par unité de volume, intervenant à cette étape sont :

$$\begin{aligned} \frac{dN_{237\text{Np}}}{d\tau} &= \frac{\lambda_{\beta^-}}{\Phi} N_{237\text{U}} + \frac{\lambda_{\alpha}}{\Phi} N_{241\text{Am}} - (\sigma_{n,2n} + \sigma_f + \sigma_{n,\gamma} + \frac{\lambda_{\alpha}}{\Phi}) N_{237\text{Np}} \\ \frac{dN_{238\text{Np}}}{d\tau} &= \sigma_{n,\gamma} N_{237\text{Np}} - (\frac{\lambda_{\beta^-}}{\Phi} + \sigma_f) N_{238\text{Np}} \\ \frac{dN_{238\text{Pu}}}{d\tau} &= \frac{\lambda_{\beta^-}}{\Phi} N_{238\text{Np}} - (\sigma_{n,\gamma} + \frac{\lambda_{\alpha}}{\Phi} + \sigma_f) N_{238\text{Pu}} \end{aligned} \quad (\text{I.2})$$

avec

$\Phi$ , le flux intégré sur les énergies

$\tau$ , le taux d'irradiation ou fluence  $\tau = \int_0^t \Phi(t') dt'$

$\sigma_i$ , la section efficace moyenne (intégrée sur les énergies) de la réaction  $i$

$\lambda_i$ , la constante de temps de décroissance radioactive par la voie  $i$

La proportion  $x$  de neptunium détruite, calculée pour le noyau  $^{238}\text{Np}$ , peut être estimée par le rapport de branchement entre fission et décroissance  $\beta^-$  :

$$x = \frac{\sigma_f}{\frac{\lambda_{\beta^-}}{\Phi} + \sigma_f} \sim \frac{\sigma_f}{\lambda_{\beta^-}} \cdot \Phi \quad (\text{si } \frac{\sigma_f}{\lambda_{\beta^-}} \cdot \Phi \ll 1) \quad (\text{I.3})$$

Dans le cas d'un flux thermique, il vaut au plus  $2 \cdot 10^{-3}$  (et  $6 \cdot 10^{-3}$  dans le cas d'un flux rapide) ce qui signifie que pratiquement la totalité du neptunium qui a disparu s'est transformé en  $^{238}\text{Pu}$ . Le résultat de la transmutation de  $^{237}\text{Np}$  dans les réacteurs actuels est donc la transformation du neptunium en plutonium. C'est pourquoi on envisage plutôt de transmuter le neptunium dans le cadre d'une incinération du plutonium, en le mélangeant à du combustible MOX par exemple.

Comme le montre la figure 4, la section efficace de fission de  $^{238}\text{Pu}$  est très faible. Pour l'incinérer dans un REP, il faut d'abord le transmuter par capture neutronique en  $^{239}\text{Pu}$ , une partie non négligeable (de 2 à 55 % selon le type de réacteur et la valeur du flux) du  $^{238}\text{Pu}$  donnant de l'uranium-234.  $^{239}\text{Pu}$  fissionne dans 2/3 à 3/4 des cas (selon le flux de neutrons) et sinon donne, par capture, du  $^{240}\text{Pu}$ . On en vient alors à devoir utiliser au moins 3 neutrons par noyau de  $^{237}\text{Np}$ , ce qui demande un temps d'irradiation bien supérieur au temps de vie conventionnel du combustible, et il reste encore plus de 25 % d'actinides. Par contre, dans un réacteur rapide, si la section efficace de fission est plus faible en valeur absolue, celle-ci est cependant deux fois supérieure à la section efficace de capture radiative : un réacteur rapide permettra donc d'obtenir plus rapidement la fission, en terme de nombre de neutrons.

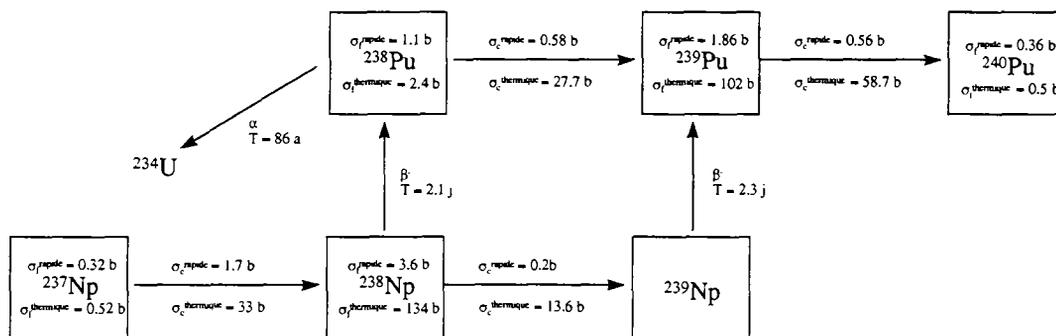


Fig.4 : Incinération du neptunium 237 par fission après captures successives

Pour incinérer  $^{237}\text{Np}$ , il serait donc bien plus économique et efficace d'utiliser des flux beaucoup plus importants (supérieurs ou égal à  $10^{16}$  neutrons / (cm<sup>2</sup>.s)) pour privilégier la fission de  $^{238}\text{Np}$  face à la décroissance vers  $^{238}\text{Pu}$ .

D'après l'équation (I.3), la section efficace intervient au même titre que le flux. Dans ce cas, un flux thermique semble avantageux, car la section efficace de fission du  $^{238}\text{Np}$  y est plus élevée que dans les spectres rapides (134 barn face à 3,6 barn). C'est le but de certaines études sur de nouveaux concepts de réacteurs thermiques sous-critiques pilotés par des accélérateurs [17].

Toutefois, quelle que soit la valeur du flux, le rapport entre section efficace de capture et de fission est plus avantageux pour les neptunium-237 et 238 dans un spectre de neutrons rapides que dans un spectre thermique. De ce point de vue, l'incinération du neptunium serait plutôt à envisager dans des réacteurs rapides, ce qui est d'ailleurs généralisable à l'ensemble des actinides. Toutefois, les réacteurs rapides nécessitent des inventaires plus importants et des temps d'irradiation plus longs.

### 2.2.3 Scénario avec les réacteurs du parc actuel

Introduisons tout d'abord la notion de facteur de multiplication :

Le facteur de multiplication  $k$  est un paramètre caractérisant le régime de fonctionnement d'un réacteur nucléaire. Il correspond au rapport entre le nombre de neutrons utiles engendrés par fission (c'est à dire au nombre de neutrons disponibles pour créer de nouvelles fissions) et le nombre de neutrons responsables de cette fission. Si  $k > 1$ , le nombre de neutrons va croître à chaque cycle de fission. Le réacteur s'emballe alors rapidement et on parle de système sur-critique. Si  $k < 1$ , le nombre de neutrons diminue rapidement et le réacteur s'éteint progressivement : c'est le régime sous-critique. Si  $k = 1$ , le nombre de neutrons "utiles", et donc le nombre de fissions, reste constant : le système est dit critique et c'est la situation recherchée pour le fonctionnement d'un réacteur.

Dans des réacteurs thermiques, l'introduction de neptunium de manière homogène dans le combustible est possible, mais limitée à une concentration massique de l'ordre de 1 % pour des raisons de sécurité de fonctionnement du réacteur [18]. Outre l'augmentation générale de la radiotoxicité, la diminution importante du facteur de multiplication nécessite une augmentation de l'enrichissement en  $^{235}\text{U}$  (passant de 3,5 % à 4,5 % par exemple), ce qui se traduit par un accroissement très sensible du coût et l'apparition d'un problème de non-prolifération.

Dans le cas de réacteurs rapides, la concentration en neptunium-237 est limitée à environ 5 % [19]. Son introduction amène, pour des raisons de criticité, à une

diminution volontaire du taux de combustion du réacteur due à la conversion du neptunium en isotopes du plutonium possédant des sections efficaces de fission plus importantes.

### ***2.3 Impact de la section efficace de capture de $^{237}\text{Np}$ dans un REP***

Dans le cadre de ce travail, une étude de sensibilité de la section efficace moyenne de capture de  $^{237}\text{Np}$  sur le facteur de multiplication et l'évolution de la composition isotopique du combustible irradié a été entreprise dans le cas d'un réacteur à eau pressurisé (REP), soit pour un spectre neutronique en partie thermique et épithermique.

Un modèle simplifié de réacteur REP a été utilisé : une structure de 3 cellules de combustible sur 3, la cellule centrale étant remplie d'eau. Deux types de combustible ont été considérés : un combustible UOX enrichi à 3,5 % en  $^{235}\text{U}$  pour simuler un REP du parc actuel, et un combustible enrichi à 4,5 % contenant 1 % de  $^{237}\text{Np}$  mélangé de manière homogène. Les calculs ont été menés avec le code APOLLO2 [20], en ne tenant pas compte de l'autoprotection des résonances (voir page 46) dans le combustible et des fuites, pour une puissance constante du réacteur de 40 MW.

#### ***2.3.1 Impact sur la teneur isotopique du combustible***

##### Conséquences dues à la présence d'1% de neptunium

Dans le cadre de ce modèle simplifié, le code APOLLO2 a calculé, pour les deux types de combustible, les variations des concentrations de chaque isotope à partir de leurs équations d'évolution. L'évolution de ces concentrations est usuellement représentée en fonction du taux de combustion. Le taux de combustion, ou combustion massique, est l'énergie thermique produite par les fissions rapportée à la masse de matière combustible (à l'exception de l'oxygène) placée initialement dans le coeur. Il s'exprime en joules par kilogramme (J/kg) ou mégawatt-jour par tonne (MWj/t) soit  $86,4 \cdot 10^6$  J/kg [22]. Dans notre étude, pour avoir l'équivalent en jour, il suffit de diviser la combustion massique par 40.

Sur la figure 5 sont comparées les évolutions des différents actinides mineurs et du plutonium dans le cas d'un combustible classique ou contenant initialement 1 % de neptunium, leur quantité en masse étant donnée sous forme de rapport à la masse initiale de combustible. La variation sur les produits de fission est négligeable, tout comme celle sur l'uranium où les seules différences sont dues à un taux d'enrichissement supérieur en uranium-235 (4,5 % au lieu de 3,5 %) et à la création d'uranium-234. On retrouve des valeurs comparables au tableau 1, à

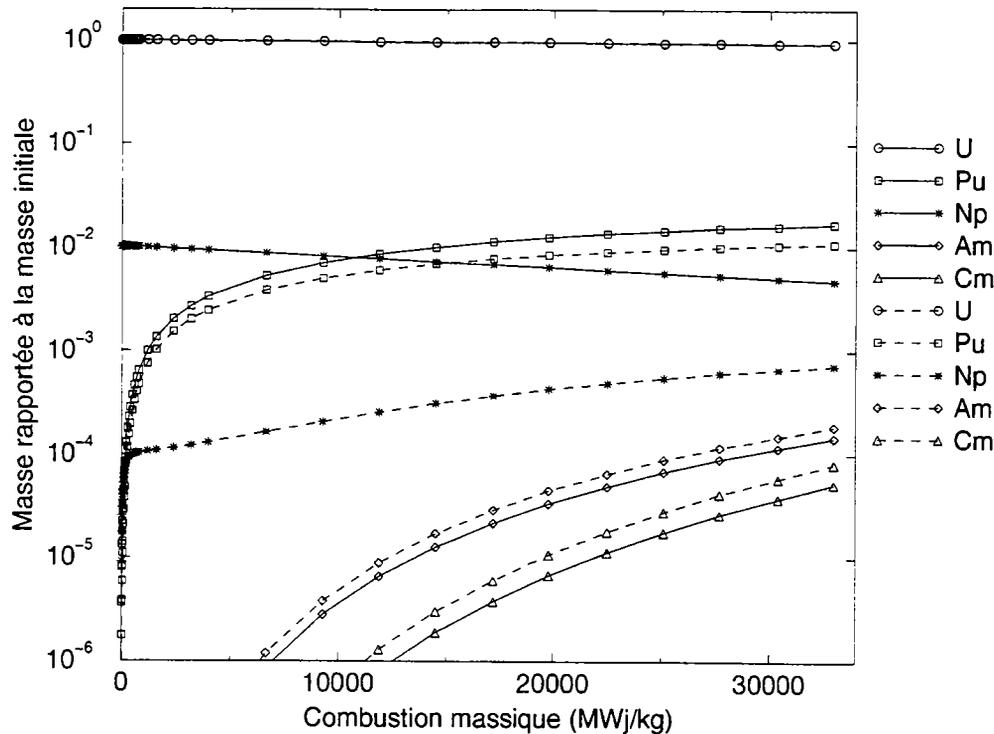


Fig.5 : Comparaison de l'évolution de la masse des différents groupes de radionucléides pour un combustible UOX classique (trait pointillé) ou contenant 1% de neptunium (trait plein).

condition de se placer à un taux de combustion de 22 000 MWj/t car, dans ce calcul, le renouvellement par tiers du combustible n'est pas pris en compte.

Dans le cas d'une introduction de neptunium à hauteur de 1 % de la masse du combustible, on observe principalement :

- une diminution de la quantité de neptunium, essentiellement par conversion en plutonium. Sa masse dans le combustible passant de 10 kg à 4,8 kg à 33 000 MWj/t, le bilan de transmutation pour le neptunium-237 est de 52 %.

- une production accrue de plutonium, due à la décroissance  $\beta^-$  du neptunium-238 en plutonium-238 puis aux autres isotopes du plutonium par captures neutroniques successives. Il y a toutefois une forte augmentation de la part de plutonium-238 dans le volume total de plutonium : à un taux de combustion de 33 000 MWj/t le plutonium-238 ne représente que 2% de la masse totale de plutonium pour un combustible classique, alors que dans le cas d'un combustible contenant 1 % de neptunium-237, il en représente 25 %. Par rapport au combustible classique, il y a un surplus de 5,8 kg de plutonium à 33 000 MWj/t, la différence avec la quantité de neptunium transmutée (5,2 kg) venant de l'augmentation de l'enrichissement en uranium-235. La légère diminution de la concentration en uranium-238 explique également la légère diminution des quantités de curium et d'américium produites.

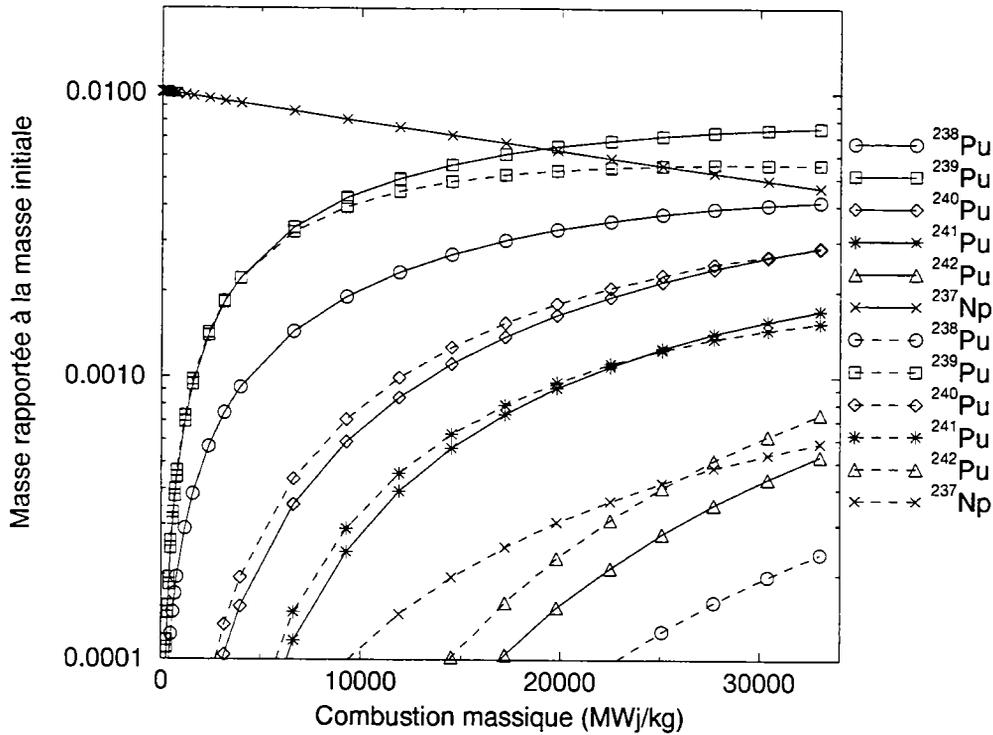


Fig.6 : Evolution, pour un REP, de la masse de chaque isotope du plutonium et du neptunium 237 dans un combustible UOX classique (trait pointillé) ou contenant 1% de neptunium (trait plein).

-notons enfin la forte augmentation d'uranium-234. Les quantités produites restent très faibles mais sont multipliées par un facteur 100, pour un taux de combustion de 33 000 MWj/t, si on introduit 1 % de neptunium dans le combustible : la masse rapportée à la masse initiale de combustible passe en effet de  $2,6 \cdot 10^{-6}$  à  $3,3 \cdot 10^{-4}$ .

Les courbes d'évolution du neptunium-237 et de chaque isotope du plutonium sont représentées sur la figure 6.

#### Influence de la section efficace de capture de $^{237}\text{Np}$

La section efficace neutronique de capture radiative  $\sigma_{n,\gamma}$  du neptunium-237 intervient de façon déterminante dans les équations d'évolution (I.2). Un des objectifs de ce travail est d'en diminuer l'incertitude du domaine thermique à quelques keV. L'erreur estimée sur cette section efficace est de 10 % en dessous de 100 eV et 20 % au delà [23]. Ces variations ont été portées dans le code APOLLO2 sur la valeur de la section efficace moyenne dans ces plages d'énergies et les effets sur la teneur isotopique du combustible ont pu être analysées.

Les seules variations notables, après refroidissement du combustible irradié, concernent les noyaux  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239}\text{Pu}$ . Dans tous les cas, c'est la variation de 10 % portée sur la section efficace moyenne de capture entre 0,3 et 100 eV qui donne lieu aux effets les plus marqués. Dans l'étude ci-dessous, on discutera des résultats

à un taux de combustion de 33 000 MWj/t et toutes les masses seront données par tonne de combustible.

*Cas du combustible classique :*

Pour le neptunium-237, l'écart peut atteindre 14 g, ce qui représente 2 % de la masse finale de  $^{237}\text{Np}$  qui est d'environ 600 g.

Pour le plutonium, il n'est pas étonnant de retrouver la même variation qui se répartit en 10 g sur  $^{238}\text{Pu}$  (soit 4 % des 240 g produits) et 4 g sur  $^{239}\text{Pu}$  (0,06 % des 5,6 kg produits), soit une incertitude engendrée sur la quantité totale de plutonium de l'ordre de 0,1 %.

On peut donc considérer que vu la faible quantité de matière en jeu, la connaissance actuelle sur la section efficace de capture du neptunium-237 est suffisante pour le fonctionnement normal d'un REP et n'amène qu'une très faible erreur sur le bilan isotopique du combustible irradié.

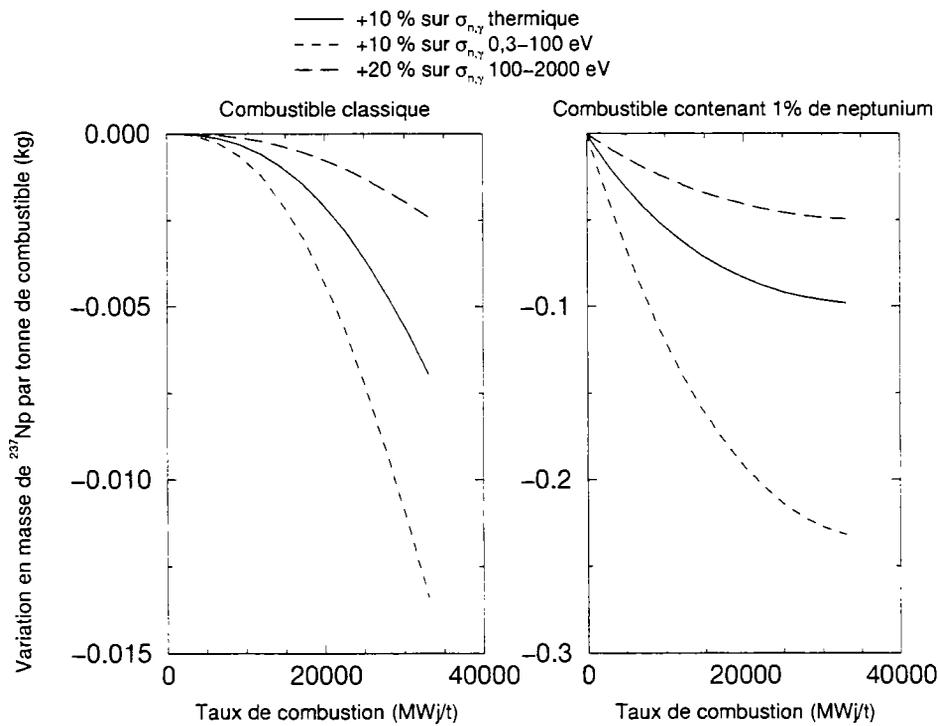


Fig.7 : Evolution de l'écart en masse de neptunium engendré par la variation de la section efficace de capture neutronique du neptunium 237 sur 3 plages d'énergies différentes dans le cas d'un combustible classique (UOX enrichi à 3,5 % en  $^{235}\text{U}$  et sans neptunium à l'instant initial) et d'un combustible contenant 1 % de neptunium remplaçant  $^{238}\text{U}$  (UOX enrichi à 4,5 % en  $^{235}\text{U}$  avec une quantité de neptunium de 10 kg/tonne de combustible à l'instant initial).

*Cas du combustible contenant 1% de neptunium-237 en mélange homogène :*

La quantité de neptunium étant bien plus élevée (10 kg par tonne de combustible sont introduits), les variations seront naturellement plus importantes. La figure 7 montre que pour le neptunium-237, une variation de 10 % de sa section efficace de capture génère, à 33000 MWj/t, un écart de plus de 200 g par tonne de combustible (soit un total de 4 kg par REP) ce qui représente 5 % de la masse de neptunium à ce taux de combustion.

Sur la figure 8, on peut vérifier que ces 200 g se retrouvent bien au niveau du plutonium. Plus précisément, 150 g sont sous forme de plutonium-238 et les 50 g restants sont sous la forme de l'isotope 239, ce qui représente respectivement 3,5 % et 0,7 % de leur masse à ce taux de combustion.

Si on cumule les différentes incertitudes sur la section efficace de capture du neptunium-237, l'erreur engendrée sur la quantité totale de plutonium peut donc atteindre près de 2 %. L'impact reste donc relativement faible, mais dans le cadre d'une politique de transmutation du neptunium à grande échelle, on ne peut complètement le négliger.

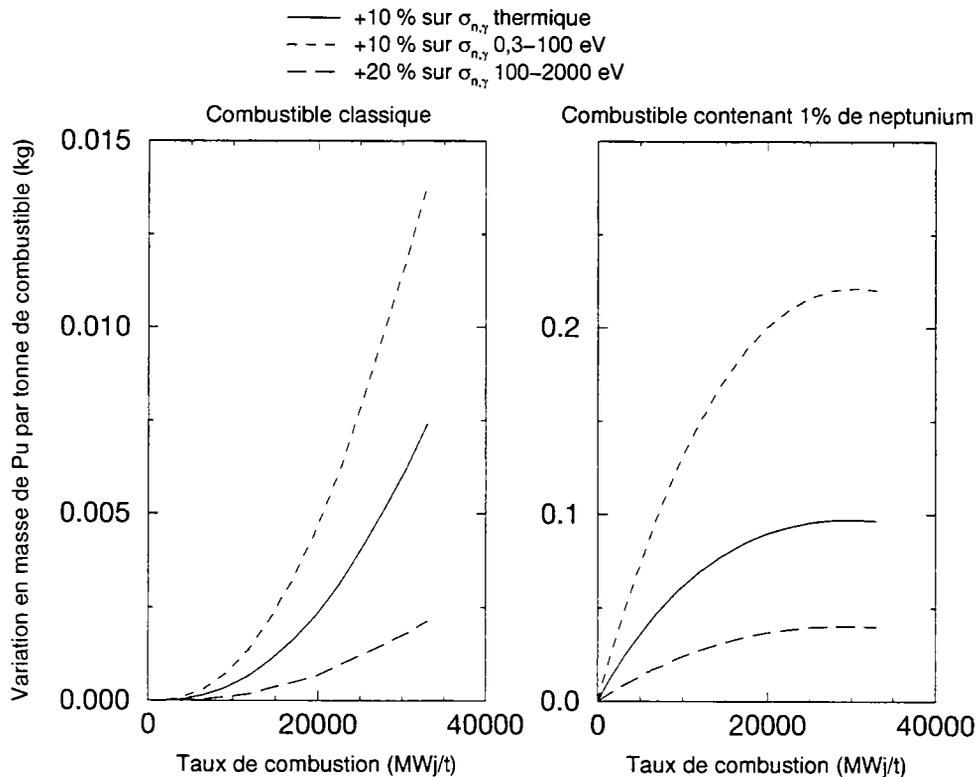


Fig.8 : Evolution de l'écart en masse de plutonium engendré par la variation de la section efficace de capture neutronique du neptunium 237 sur trois plages d'énergies différentes.

### 2.3.2 Impact sur le facteur de multiplication infini

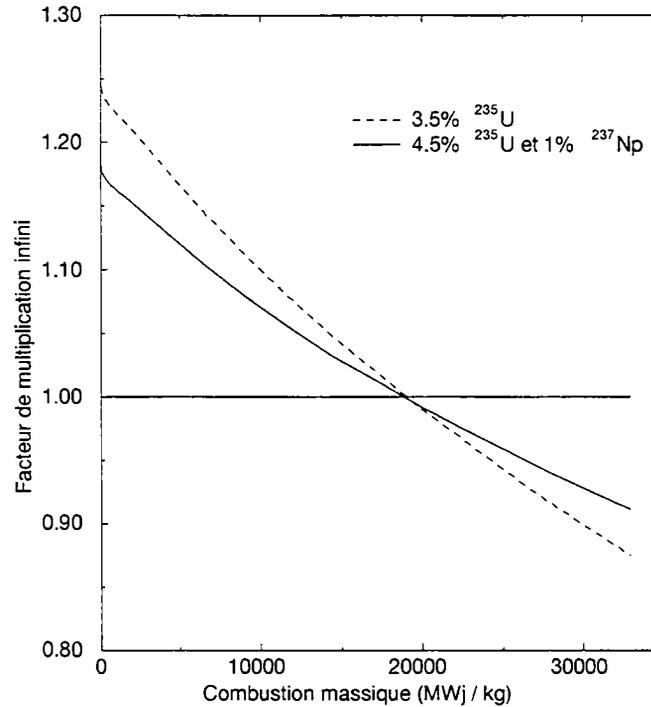


Fig.9 : Variation du facteur de multiplication infini selon le combustible chargé.

Le facteur de multiplication a été défini à la page 31. Il est facile de concevoir qu'outre les éléments présents dans le combustible, ce paramètre va dépendre de la géométrie et des éléments composant la structure du réacteur. Le facteur de multiplication d'un réacteur est appelé de ce fait facteur de multiplication effectif et est noté  $k_{eff}$ . Lorsque ce réacteur a des dimensions infinies (ce qui revient à négliger les fuites de neutrons dans le réacteur), le facteur de multiplication effectif est appelé facteur de multiplication infini  $k_{\infty}$ .

L'étude a porté sur les variations de  $k_{\infty}$  en fonction du taux de combustion. Sur la figure 9 sont comparées les évolutions de  $k_{\infty}$  dans le cas d'un réacteur classique ou contenant initialement 1 % de neptunium.

On peut y voir que l'introduction de 1 % de neptunium-237 dans le combustible, même compensée par une augmentation de l'enrichissement en uranium-235, amène une diminution importante du facteur de multiplication infini. Par contre, du fait de la production accrue de plutonium dont les sections efficaces de fission sont plus élevées,  $k_{\infty}$  diminue plus lentement en fonction du taux de combustion dans le cas

d'un combustible contenant 1 % de neptunium. On obtient donc un système moins rentable énergétiquement mais de durée de vie similaire.

Les neutroniciens considèrent une variation sur  $k$  comme notable lorsqu'elle dépasse une centaine de p.c.m (part pour cent mille), soit 0,1 %. Sur la figure 10 est représenté l'écart sur le facteur de multiplication infini provoqué par les variations sur la section efficace de capture du neptunium-237.

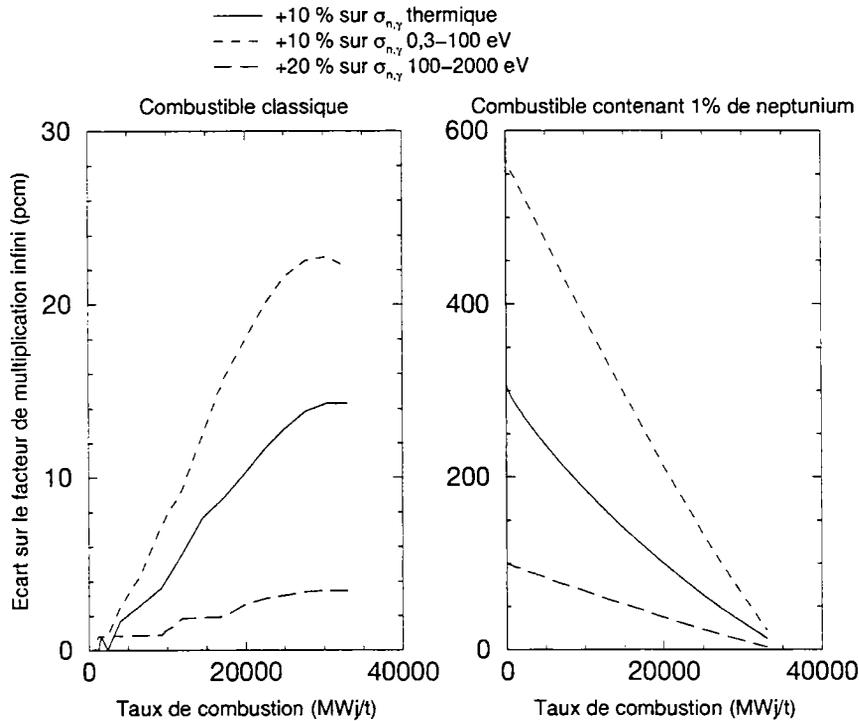


Fig.10 : Evolution de l'écart sur le facteur de multiplication infini engendré par la variation de la section efficace de capture neutronique du neptunium 237 sur 3 plages d'énergies différentes.

Si cet écart est négligeable dans le cas d'un combustible classique (20 p.c.m tout au plus), il n'en va pas de même si 1 % de neptunium est mélangé de manière homogène au combustible, tout au moins pour des taux de combustion faibles, puisqu'il vaut alors plusieurs centaines de p.c.m, atteignant près de 0,6 % au démarrage.

La précision sur la section efficace de capture de  $^{237}\text{Np}$  apparaît par conséquent suffisante pour le fonctionnement classique d'un réacteur thermique. Même s'il reste faible, l'impact devient toutefois notable si une grande quantité de neptunium est introduite dans le réacteur (concentration limitée à 1 %). Dans le cas d'une politique d'incinération du neptunium à grande échelle dans des REP, une amélioration de cette précision semble donc se justifier.

### 2.3.3 Etude de la radiotoxicité du combustible

A partir des calculs d'évolutions effectués pour cette étude, il est possible de déterminer pour un REP l'impact sur la radiotoxicité dû au mélange dans le combustible de 1 % de neptunium, soit 10 kg par tonne de UOX enrichi à 4,5 %.

Au bout de trois ans d'irradiation, en négligeant la faible partie de neptunium incinérée, on peut estimer que les 10 kg de neptunium introduits se trouvent approximativement sous la forme de 4 kg de neptunium-237, 4 kg de plutonium-238 et 2 kg de plutonium-239.

La variation sur la radiotoxicité engendrée par une irradiation de 10 kg de neptunium durant 3 ans dans un REP peut être estimée à partir de la figure 11 : la transmutation du neptunium en plutonium se traduit par une forte augmentation de la radiotoxicité.

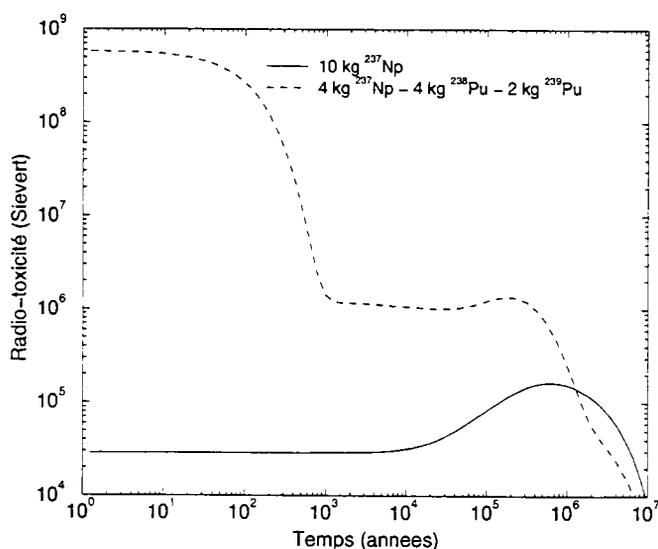


Fig.11 : Comparaison de la radiotoxicité entre 10 kg de neptunium (masse par tonne mélangée au combustible) et celle de la somme des quantités (4 kg de <sup>237</sup>Np - 4 kg de <sup>238</sup>Pu - 2 kg de <sup>239</sup>Pu) des isotopes issus de la transmutation du neptunium initial.

Même si pour des temps supérieurs à 10<sup>6</sup> années le bilan est positif, vouloir incinérer le neptunium dans un REP classique semble être, du point de vue de la radiotoxicité, une mauvaise solution comparée au stockage profond. Toutefois, il convient de nuancer ce propos en fonction de la considération portée au plutonium, celui-ci pouvant être à nouveau soit intégré dans le cycle du combustible. De plus, en

mélangeant le neptunium à un combustible contenant du plutonium l'incinération du neptunium pourrait se faire en parallèle à celle du plutonium.

## ***2.4 Impact de la section efficace de capture de $^{237}\text{Np}$ dans un réacteur rapide***

Des études de sensibilité concernant l'impact des incertitudes estimées de la section efficace de capture radiative du neptunium-237 sur le fonctionnement d'un Réacteur à Neutrons Rapides (RNR) contenant 3 % de neptunium-237 mélangés de manière homogène au combustible a été étudié dans la référence [24].

Dans ces études deux paramètres importants d'un réacteur rapide ont été considérés :

-le facteur de multiplication effectif  $k_{eff}$

-le coefficient de réactivité de vidange sodium  $\delta_{Na}$ . Avant de donner les conclusions de cette étude, précisons ce qui est entendu par coefficient de réactivité de vidange sodium et pour cela il nous faut d'abord introduire la notion de coefficient de réactivité.

### ***2.4.1 Coefficient de réactivité***

La puissance instantanée générée dans un réacteur nucléaire et l'évolution du nombre de neutrons sont régis par le facteur de multiplication  $k_{eff}$  du réacteur, ou par sa réactivité  $\rho$  définie comme :

$$\rho = 1 - \frac{1}{k_{eff}} \quad (\text{I.4})$$

La réactivité peut être modifiée volontairement, par l'introduction plus ou moins marquée de matériaux absorbant les neutrons dans le coeur du réacteur. Cela permet de piloter le réacteur, de compenser toute évolution spontanée et de pouvoir arrêter le réacteur si un problème survient.

Il y a cependant des évolutions spontanées de la réactivité. Nous avons vu dans le paragraphe précédent que l'évolution de la composition isotopique du combustible est un facteur de modification de la réactivité, mais il y a aussi les effets de température.

Si la température des différents matériaux changent, le bilan neutronique et donc la puissance vont être affectés et inversement toute variation de puissance du réacteur se traduira par une variation de chaleur dégagée et donc de température. Un effet directement dû aux variations de température et affectant le bilan neutronique est l'effet Doppler sur lequel nous reviendrons par la suite.

Une variation de température dans le réacteur se traduit essentiellement par une variation du facteur de multiplication. C'est pourquoi on définit des coefficients de température  $\alpha$ , associé à chaque élément du réacteur.

$$\alpha = \frac{\partial k_{eff}}{\partial T} \quad (I.5)$$

Le signe du coefficient de température est primordial. En effet, s'il est positif, toute variation positive de la température se traduira par une augmentation du facteur de multiplication, donc de la puissance et donc de la température : le réacteur est alors instable. Par contre, s'il est négatif, le réacteur s'auto-régulera.

#### 2.4.2 Coefficient de vidange sodium

Dans le réacteur rapide étudié dans la référence [24], le caloporteur (c'est à dire le fluide emmenant la chaleur dégagée par les réactions nucléaires pour pouvoir ensuite la convertir en énergie exploitable) est du sodium liquide.

Le coeur du réacteur est constitué d'aiguilles de combustibles "baignant" dans du sodium.

Par dilatation due à une élévation de température ou par vidange partielle ou totale (bouchage ou diminution du débit de sodium), la densité de sodium dans le réacteur va diminuer, ce qui va engendrer trois effets (qu'on peut associer à trois coefficients de réactivités) :

-la capture des neutrons dans le caloporteur diminue et la réactivité augmente : coefficient positif.

-la diffusion des neutrons dans le caloporteur diminue et donc les fuites augmentent : coefficient négatif. La section efficace de diffusion du sodium étant plus importante que celle de capture, la somme avec le coefficient précédent est négative pour des coeurs de grande taille (où les fuites sont limitées).

-la diminution de la capture des neutrons dans le caloporteur va modifier le nombre moyen de neutrons produits, par neutron incident, à chaque génération pour chaque type de noyaux présents dans le combustible. La valeur et le signe du coefficient associé à cet effet dépend du type de noyau et de l'énergie des neutrons. Les différentes sections efficaces neutroniques des noyaux présents dans le combustible interviennent sur le nombre moyen de neutrons produits et vont donc avoir une influence sur ce coefficient.

Une variation sur la section efficace de capture radiative de  $^{237}\text{Np}$  va donc agir sur la valeur du coefficient de vidange sodium. Notons que ce coefficient n'est pas un coefficient de température tel qu'introduit dans l'équation (I.5), mais un coefficient de densité du sodium qui est affecté par la température.

### 2.4.3 Résultats de l'étude

Les études de sensibilités entreprises dans la référence [24] ont considéré une incertitude de 10 % sur la section efficace de capture radiative de  $^{237}\text{Np}$ . Dans un RNR, si le neptunium-237 est mélangé de manière homogène au combustible (à la place de  $^{238}\text{U}$ ) et à une concentration de 3 %, alors cette incertitude aura l'impact suivant :

-variation de 300 p.c.m sur le facteur de multiplication effectif  $k_{eff}$ .

-variation de 2,7 % sur le coefficient de vidange sodium  $\delta_{\text{Na}}$ . Celui valant environ 2000 p.c.m pour une vidange totale, l'écart maximal est donc de l'ordre de 50 p.c.m.

Une autre étude portant sur l'impact de cette incertitude au niveau de la radiotoxicité du combustible irradié n'a pas révélé d'effets notables [25].

Comme pour les résultats obtenus sur les REP, l'impact des incertitudes estimées est relativement faible dans le cadre d'études conceptuelles préliminaires de transmutation du neptunium-237. Toutefois cet impact pourrait être significatif dans le cadre d'un projet de réacteur. C'est d'ailleurs sur la base de cette étude que la demande d'une nouvelle détermination expérimentale des paramètres de résonances de  $^{237}\text{Np}$  a été introduite dans la liste de haute priorité des mesures de sections efficaces neutroniques.

## 2.5 Conclusion

Nous avons pu voir dans ce qui précède que la connaissance des paramètres de résonance du neptunium-237 est très satisfaisante pour le fonctionnement des réacteurs actuels. Par conséquent l'intérêt de ce travail est à placer avant tout dans le cadre des études de réacteurs dédiés à l'incinération des actinides.

De manière très simplifiée, on peut dire que l'avantage d'un flux thermique pour l'incinération des actinides repose sur leurs sections efficaces plus élevées que dans des flux rapides, d'où une incinération plus élevée pour un même flux. Par contre, dans des flux rapides tous les isotopes deviennent fissionables et le rapport de branchement entre capture et fission est plus faible, donc favorable. L'accumulation de certains isotopes difficiles à incinérer est alors limitée et permet donc de conserver un facteur de multiplication plus avantageux.

Toutefois, comme nous l'avons spécifié auparavant, l'incinération du neptunium-237 va être surtout dépendante de la compétition entre la fission du neptunium-238 et sa désexcitation  $\beta^-$  vers le plutonium-238 :

Dans les REP, la fission du neptunium-238 est insignifiante et la quasi-totalité du neptunium-237 est en fait transmutée en plutonium-238 comme nous avons pu le montrer dans notre étude sur une irradiation de 3 ans. Si un tel système est néanmoins utilisé, il semble préférable de mélanger le neptunium à du combustible

MOX ou tout au moins de considérer son incinération en parallèle à celle du plutonium.

Dans un RNR, d'après la figure 4, l'incinération du neptunium est principalement effectuée par la fission directe du neptunium-237 (fission dans environ 15 % des cas, soit 10 fois plus que pour un REP). En effet, seul un faible pourcentage (typiquement 1 à 2 %) du neptunium-238 va fissionner, le reste donnant du plutonium-238 par décroissance  $\beta^-$ .

Quel que soit le système envisagé (REP ou RNR), le résultat est la transformation de la majorité du neptunium-237 en plutonium-238 et 239, ce qui n'a aucun intérêt du point de vue de la radiotoxicité comme nous l'avons vu précédemment. De plus, la diminution importante du facteur de multiplication amenée par l'introduction du neptunium va avoir un impact économique sensible. Toutefois, les réacteurs à neutrons rapides présentent le net avantage par rapport aux REP d'incinérer également le plutonium en grande quantité.

Une autre solution serait d'utiliser des systèmes possédant des flux neutroniques plus élevés et notamment thermique en ce qui concerne le neptunium. L'incinération du neptunium peut en effet être envisagée dans des réacteurs hybrides possédant de hauts flux thermiques (couplés ou non à un coeur où règne un flux rapide). La figure 12 illustre un calcul d'évolution dans un réacteur super-thermique (flux neutronique thermique de  $10^{16}$  neutrons / (cm<sup>2</sup>.s)) d'un combustible UOX enrichi à 4,5 % avec 1 % de neptunium-237.

Au bout d'un an d'irradiation, on peut voir qu'une grande partie du neptunium a été incinérée, la quantité de plutonium étant principalement produite à partir de l'uranium. Pour des temps plus élevés, la quantité de curium devient par contre prépondérante vérifiant le fait qu'un spectre thermique amène l'accumulation d'isotopes difficiles à incinérer dans de tels spectres. Des temps d'irradiations courts dans un réacteur super-thermique seraient une solution mais de telles discussions dépassent le cadre de cette thèse et le lecteur est invité à consulter, par exemple, la référence [6] pour une étude complète du sujet.

Notre étude se limite à la détermination des paramètres de résonance du neptunium-237 entre 0,3 eV et 500 eV, la mesure s'étendant néanmoins jusque 2 keV. Les résultats seront donc plus directement applicables à des flux thermiques et épithermiques. Toutefois, les paramètres moyens déterminés à partir de nos mesures (notamment l'espacement moyen des résonances, la largeur neutronique réduite moyenne et la largeur radiative moyenne -voir chapitre II-) sont essentiels pour calculer de manière statistique les paramètres à plus hautes énergies et ainsi calculer la section efficace de capture radiative pour des spectres de neutrons rapides. Il convient cependant de noter que nos mesures ne donnent aucune information sur la section efficace de fission et donc sur la possibilité de sa reconstruction dans le

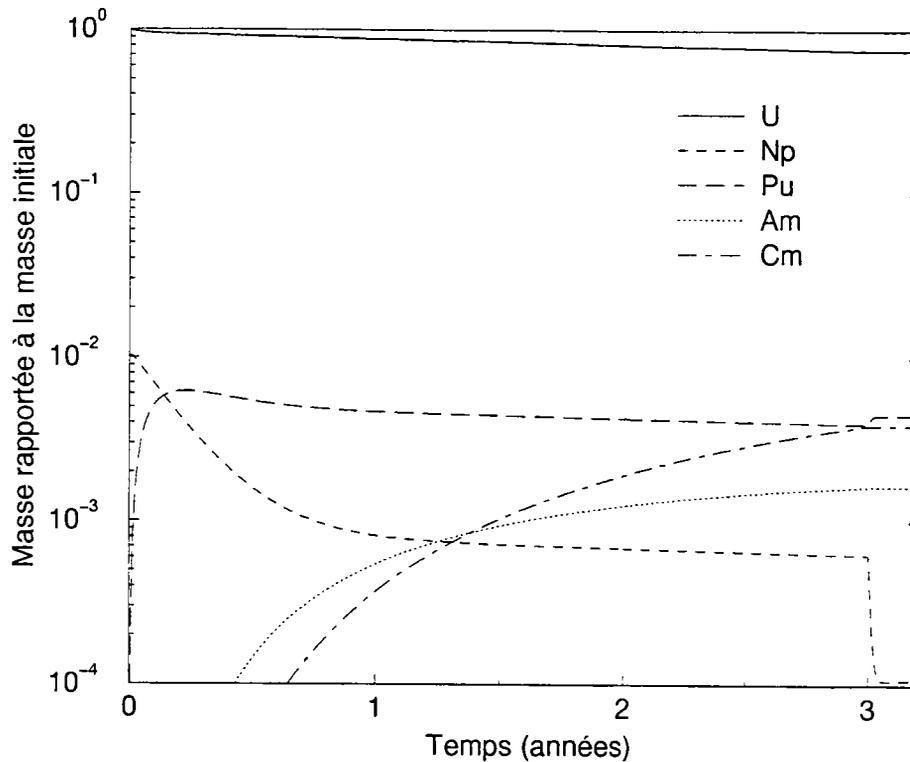


Fig.12 : Evolution en fonction du temps d'irradiation de la composition, en groupe d'actinides, d'un combustible UOX enrichi à 4,5 % et contenant 1 % de neptunium mélangé de manière homogène. Le combustible est irradié pendant 3 ans par un flux thermique de  $10^{16}$  n·cm<sup>-2</sup>·s<sup>-1</sup> puis est refroidi.

domaine rapide. Par conséquent, si ce travail apporte une réponse utile pour les réacteurs rapide, ce n'est qu'une réponse partielle.

La connaissance actuelle de la section efficace de capture du neptunium-237 amène une incertitude sur l'évolution de la composition isotopique du combustible, sur le coefficient de vidange sodium pour les RNR ainsi que sur le facteur de multiplication du réacteur. L'incidence du premier point est relativement faible pour un REP du fait de la forte limitation imposée sur la quantité de neptunium présente initialement dans le combustible. Par contre, dans le cas d'un système hybride utilisant un réacteur thermique couplé à un accélérateur, cette influence pourrait ne pas être négligeable. De plus, nous avons vu que l'effet sur le facteur de multiplication peut être significatif pour le fonctionnement d'un réacteur, ce qui justifie le premier objectif de ce travail : la détermination des paramètres de résonances de <sup>237</sup>Np en dessous de 500 eV.

### 3 L'effet Doppler dans les réacteurs

L'effet doppler est un effet directement dû aux variations de température et affectant le bilan neutronique. Un coefficient de température  $\alpha$ , précédemment introduit, détermine son influence sur la réactivité.

#### 3.1 Influence de l'effet Doppler

L'effet Doppler sera développé plus en détail dans le chapitre II. Nous nous limiterons donc ici à une description fort succincte.

L'effet Doppler se traduit par un élargissement des résonances. On appelle résonances les variations rapides de la section efficace dues à la structure des niveaux d'énergie du noyau composé formé par la capture d'un neutron, dans notre cas (voir chapitre II). Cet élargissement est d'autant plus marqué que la température est élevée comme le montre la figure 13 [26], mais l'aire de la résonance reste inchangée.

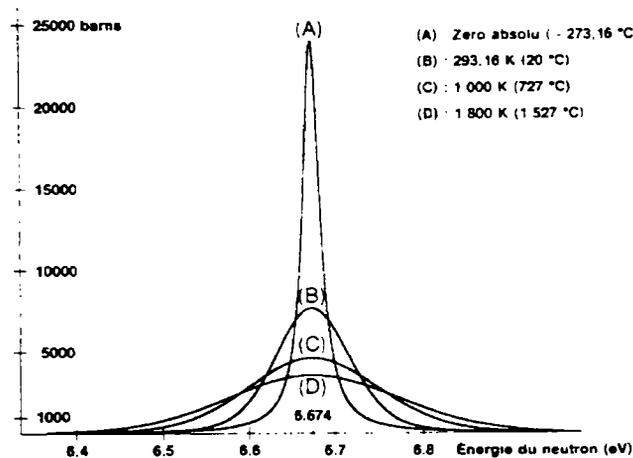


Fig.13 : Elargissement Doppler d'une résonance [26].

L'intégrale de la section efficace ne variant pas, on serait tenté de dire que le facteur de multiplication n'est donc pas affecté. Pourtant ce n'est pas le cas, car le facteur de multiplication ne dépend pas de l'intégrale de la section efficace d'absorption mais de  $I_{eff}$  l'intégrale de la section effective d'absorption, appelée plus communément intégrale effective.

La section effective d'absorption  $\Sigma_a^{eff}$  est une section efficace d'absorption fictive créée pour s'affranchir du creusement du flux neutronique dans un réacteur au niveau d'une résonance (cette section efficace est tabulée, voir référence [22] pour plus de

détails). En effet, les neutrons dont l'énergie est proche de celle des résonances ont une plus grande probabilité de subir une réaction et deviennent moins nombreux : c'est ce qu'on appelle l'autoprotection des résonances. Plutôt que de calculer le taux d'absorption, en s'attachant au flux exact qui présente une structure complexe, la section effective d'absorption donne le bon taux d'absorption en ne considérant que le flux en dehors des résonances. On définit alors l'intégrale effective sur la plage d'énergie désirée, avec  $N$  la concentration de l'élément considéré, comme étant :

$$I_{eff} = \frac{1}{N} \int \Sigma_a^{eff}(E) dE \quad (I.6)$$

Si la température augmente, contrairement à l'intégrale de la section efficace, l'intégrale effective augmente. Qualitativement, la plage en énergie où la résonance est suffisamment grande (section efficace supérieure à 1000 barn) pour être considérée infinie s'élargie, ce qui se voit aisément sur la figure 13.

Le facteur de multiplication peut être décomposé en 5 facteurs [27]:

$$k_{eff} = \varepsilon p f \eta P \quad (I.7)$$

avec

$\varepsilon$ , facteur de fission rapide : gain sur les productions de neutrons résultant des fissions rapides

$p$ , probabilité anti-trappe : probabilité pour les neutrons d'échapper aux captures pendant le ralentissement

$f$ , facteur d'utilisation thermique : probabilité pour que le neutron thermique soit absorbé dans le combustible

$\eta$  facteur de reproduction : nombre de neutrons produits par absorption thermique dans le combustible

$P$ , facteur de non-fuite : probabilité pour que le neutron ne fuit pas hors du réacteur

C'est la probabilité anti-trappe qui dépend de l'intégrale effective.

Moyennant quelques hypothèses simplificatrices [22], on peut démontrer que :

$$\frac{\delta k_{eff}}{\delta T} \simeq \frac{1}{k_{eff}} \cdot \frac{\partial k_{eff}}{\partial T} = \frac{1}{\varepsilon} \cdot \frac{\partial \varepsilon}{\partial T} + \frac{1}{p} \cdot \frac{\partial p}{\partial T} + \frac{1}{f} \cdot \frac{\partial f}{\partial T} + \frac{1}{\eta} \cdot \frac{\partial \eta}{\partial T} + \frac{1}{P} \cdot \frac{\partial P}{\partial T}$$

avec  $\frac{1}{p} \cdot \frac{\partial p}{\partial T} = \ln p \cdot \frac{1}{I_{eff}} \cdot \frac{\partial I_{eff}}{\partial T}$  qui vaut entre -1 et -3 p.c.m/K (I.8)

Le coefficient de température lié à l'effet Doppler est négatif, ce qui est très important au niveau des réacteurs. L'effet Doppler est l'effet le plus rapide intervenant pour des variations de températures. Aussi l'ordre de grandeur du

coefficient de température relatif à l'effet Doppler est-il suffisant pour assurer la stabilité du réacteur.

### *3.2 Buts d'une étude sur l'effet Doppler*

L'effet Doppler est bien modélisé pour les températures de fonctionnement des réacteurs (nous verrons plus loin que ce n'est pas le cas pour les basses températures) sauf en ce qui concerne les résonances aux plus basses énergies (typiquement en dessous d'une dizaine d'électron-volts).

L'élargissement des résonances dans cette gamme d'énergie étant mal décrit, tout corps y ayant d'importantes résonances aura une intégrale effective erronée. Or la contribution des résonances à basse énergie est la plus importante. L'uranium-238, qui constitue la grande majorité des radionucléides du combustible possède une première résonance très importante à 6,67 eV, qui à elle seule représente 30 % de l'absorption neutronique dans un réacteur thermique, d'où l'intérêt de cette étude.

De plus, l'uranium et tous les autres actinides sont sous forme d'oxyde. La structure cristalline de l'oxyde fait entrer en jeu des spectres de vibration du cristal qui accentuent encore l'inadéquation de la modélisation de l'effet Doppler aux basses énergies.

Enfin, pour tous les corps possédant des résonances à basse énergie, la méconnaissance sur l'effet Doppler va se traduire par une mauvaise détermination de la section efficace dans cette gamme d'énergie. Ce problème rejoint alors le besoin de données nucléaires plus précises dans le cadre des études sur la gestion des déchets nucléaires.

Le neptunium possède de grandes résonances à très basse énergie, la première étant à 0,49 eV. C'est donc un candidat idéal pour une étude de l'effet Doppler dans le domaine épithermique qui représente le deuxième objectif de ce travail.

# CHAPITRE II

## Aspects théoriques

Cette partie ne présentera que brièvement les aspects directement reliés à l'interaction neutron-noyau ou à l'effet Doppler dans le cas des résonances neutroniques. Le lecteur intéressé par des études plus approfondies sur le sujet est invité à consulter les références citées tout au long de ce chapitre à commencer par des ouvrages très généraux sur le domaine que sont les références [28] et [29], ainsi que l'ouvrage détaillé de Lynn [30].

Le neutron, découvert par Chadwick en 1932 [31], est du fait de sa charge nulle, une sonde très intéressante pour étudier les noyaux car il est insensible à la barrière coulombienne. Par conséquent, un neutron même d'énergie cinétique pratiquement nulle sera capable d'atteindre un noyau et d'engendrer une réaction nucléaire avec ce dernier.

### 1 Notion de section efficace

La section efficace d'une réaction nucléaire est lié à la probabilité pour un projectile et une cible donnés que l'interaction ait lieu.

Il existe en fait deux types de section efficace [32] : la section efficace microscopique et la section efficace macroscopique.

#### 1.1 *La section efficace microscopique*

La section efficace microscopique est directement reliée à la probabilité d'interaction par unité de surface et pour une épaisseur de la cible égale à 1 atome.

Soit  $n_n$ , le nombre de particules incidentes (les neutrons par exemple) d'énergie cinétique  $E$  (soit de vitesse  $v_n$ ) par unité de surface ( $\text{cm}^2$ ),  $n_A$  le nombre de noyaux A par  $\text{cm}^3$ . Si  $N_R(E)$  est le nombre de réactions nucléaires d'un type donné  $R$  observé par  $\text{cm}^2$  et par seconde pour ces particules incidentes, alors la section efficace

microscopique  $\sigma_R^A$  pour la réaction  $R$  et le noyau  $A$  s'exprime comme :

$$\sigma_R^A(E) = \frac{N_R(E)}{n_n \cdot v_n \cdot n_A} \quad (\text{II.1})$$

L'unité de la section efficace est donc le  $\text{cm}^2$  et on peut assimiler la valeur de la section efficace à la surface d'interaction (pour un type de réaction donné) au niveau du noyau perpendiculairement à la direction du projectile. Toutefois, la section efficace microscopique est plutôt exprimée en barn, unité plus représentative de la surface d'un noyau :

$$1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2 \quad (\text{II.2})$$

## 1.2 La section efficace macroscopique

Ce n'est autre que la section efficace par unité de volume, soit par  $\text{cm}^3$ . Son unité est donc le  $\text{cm}^{-1}$  et elle est reliée à la section efficace microscopique par la relation :

$$\sum_R^A(E) = n_A \cdot \sigma_R^A(E) \quad (\text{II.3})$$

avec

$\sum_R^A(E)$ , section efficace macroscopique pour la réaction  $R$  entre le noyau  $A$  et un projectile donné d'énergie cinétique  $E$ .

Dans la suite, ce que nous appellerons section efficace correspond à la section efficace microscopique.

## 2 Interaction neutron-noyau

### 2.1 Historique de la théorie des réactions nucléaires

La description complète et rigoureuse de l'interaction entre un neutron et un noyau est très complexe car cela revient à vouloir résoudre un système à  $N$  corps. Les théoriciens ont donc vite été amenés à développer des modèles simplifiés.

#### 2.1.1 Modèle à particules indépendantes

Plusieurs physiciens tels que Bethe ou Fermi étudièrent les résultats obtenus dès 1935 par les premières réactions impliquant des neutrons lents (d'énergie inférieure à 1 eV) à l'aide du tout nouvel outil qu'était alors la mécanique quantique. Ils utilisèrent le modèle le plus simple possible appelé modèle à particules indépendantes [33]. Le potentiel d'interaction entre le neutron et le noyau est calculé à partir d'un potentiel moyen (puit de potentiel sphérique) généré par les nucléons considérés indépendants les uns des autres :

$$V(r) = \left\{ \begin{array}{l} -V_0 \quad (r < R) \\ 0 \quad (r > R) \end{array} \right\} \quad (\text{II.4})$$

avec  $R$  le rayon du noyau.

Si ce modèle prévoyait l'existence de résonances, une résonance se traduisant par la variation importante de la section efficace autour d'une énergie donnée (voir figure 17), il était cependant incapable d'expliquer la découverte expérimentale d'un nombre élevé de résonances étroites proches les unes des autres en énergie [34] [35].

#### 2.1.2 Modèle statistique du noyau composé

Bohr apporta une solution à ce problème en 1936 [36] par la théorie du noyau composé.

L'une des premières images historiques du noyau comme système complexe de nucléons est celle de la goutte liquide, dans laquelle les nucléons subissent des collisions fréquentes et aléatoires. A la différence du modèle à particules indépendantes, la théorie de Bohr tient donc compte du fait que le noyau est composé de plusieurs nucléons interagissant entre eux par des forces de courte portée. Si le neutron pénètre dans le noyau alors, d'après cette théorie, il va y subir un grand nombre de collisions. Son énergie va être ainsi distribuée au hasard aux nucléons et finalement répartie uniformément dans tout le noyau : cet état d'équilibre est le noyau composé qui est le noyau cible augmenté d'un projectile (ici un neutron).

### Hypothèse de Bohr :

Bohr se basa sur la largeur  $\Delta E$  des résonances observées (de l'ordre de 10 eV) pour estimer la durée de vie  $\Delta t$  du noyau composé. En considérant  $\Delta E \cdot \Delta t \simeq \hbar \simeq 10^{-15}$  eV.s, la valeur obtenue est  $\Delta t = 10^{-16}$  s, ce qui est 1000 fois supérieur au temps que mettrait un neutron de 100 eV pour parcourir la distance caractéristique du noyau ( $10^{-12}$  cm). Le noyau composé a donc le temps d'exister entre la configuration initiale (neutron et noyau cible) et finale (noyau résiduel et particule ou rayonnement gamma de désexcitation).

Il suggéra alors de diviser le processus en deux parties distinctes :

-la formation du noyau composé : l'énergie du neutron dans le centre de masse, composée de la somme de son énergie cinétique et de l'énergie de séparation du neutron pour le noyau composé, est immédiatement (devant la durée de vie du noyau composé) partagée entre tous les nucléons du noyau.

-la désexcitation du noyau composé.

Toujours du fait de l'importance du temps de vie du noyau composé devant le temps nécessaire à sa création, Bohr émit sa célèbre hypothèse simplificatrice d'indépendance : le mode de désexcitation du noyau composé est indépendant de son mode de formation.

### Etablissement de la théorie :

La théorie issue de ces suggestions de Bohr fut établie par Bethe [37].

Tout se passant comme si le noyau composé avait "oublié" son mode de formation et vue la complexité du système, une interprétation statistique des réactions nucléaires est envisageable.

Dans les années qui suivirent de nombreuses publications (telles que [38]) s'attachèrent à étudier les différentes conséquences de cette théorie qui reste le fondement de celle utilisée aujourd'hui.

Indépendamment du modèle du noyau composé, Breit et Wigner introduisirent l'idée qu'un neutron incident a de grandes chances d'exciter un état particule-trou du noyau cible de longue durée de vie. Ils purent ainsi déterminer, par l'utilisation d'une théorie des perturbations, une expression simple des sections efficaces neutroniques sur laquelle nous reviendront par la suite [40]. Même si l'hypothèse selon laquelle les forces nucléaires peuvent se réduire à de simples perturbations apparaît très douteuse, les différentes modélisations ultérieures montrèrent que la formule de Breit et Wigner s'applique de manière correcte pour des résonances étroites et isolées.

### **2.1.3 Théorie de la matrice-R**

La première théorie rigoureuse, introduite en 1938 par Kapur et Peierls [41], fait intervenir un ensemble complet d'états formels défini dans un volume de dimension nucléaire en imposant des conditions aux limites à la surface de ce volume. Outre

le fait de pouvoir décrire toutes les réactions de manière rigoureuse, cette théorie est très facilement adaptable au modèle du noyau composé en identifiant les états formels aux différents états du noyau composé.

Plusieurs études se sont alors développées à partir de cette théorie et en 1947, Wigner et Eisenbud introduisirent la notion de matrice-R [42]. La théorie de la matrice-R est fondamentalement la même que celle de Kapur et Peierls et diffère essentiellement par les conditions aux limites choisies ici réelles et indépendantes de l'énergie. Cela présente en effet l'avantage de n'avoir à traiter que des fonctions et valeurs propres réelles et des paramètres indépendants de l'énergie : la théorie de la matrice-R a le seul mérite d'être plus explicite.

#### *2.1.4 Limites du modèle du noyau composé*

A partir de 1947, les flux de neutrons disponibles dans les réacteurs et auprès des premiers accélérateurs permirent d'effectuer de nombreuses expériences sur plusieurs ordres de grandeur d'énergie.

Des réactions nucléaires ne passant pas par la formation d'un noyau composé furent ainsi mise en évidence, à relativement basse énergie, et furent appelées réactions directes car dans de telles réactions, les partenaires de la réaction s'effleurent à peine, en des temps très brefs devant le temps de vie du noyau composé [43]. Les réactions directes, à basse énergie, n'ont été observées que sur des noyaux bien spécifiques.

Dans le domaine des résonances, la section efficace moyenne de formation du noyau composé dans l'onde "s" présente de larges résonances si on la représente en fonction de la masse du noyau cible [44]. Ceci est contraire aux prédictions du modèle du noyau composé de dépendance monotone de la section efficace en fonction du rayon et du potentiel nucléaire.

Aux plus hautes énergies, des résonances géantes furent découvertes [45], en contradiction avec la décroissance monotone en fonction de l'énergie prévue par le modèle statistique.

L'explication de ces phénomènes vient du fait que le libre parcours moyen du neutron dans le noyau n'est ni très faible devant les dimensions nucléaires comme il le serait dans une goutte liquide (modèle statistique) ni très grand comme dans le modèle des particules indépendantes. D'autres modèles ont vu alors le jour en affinant la description du potentiel nucléaire grâce au développement du modèle en couche du noyau.

### 2.1.5 *Modèle optique et potentiel complexe*

Historiquement, c'est le modèle du noyau noir [46] qui fut, en 1947, la première tentative pour estimer la probabilité de formation du noyau composé. Le noyau est considéré comme une sphère possédant un coefficient de transmission à sa surface et une absorption totale au centre. Le potentiel moyen est considéré uniforme et constant. Si ce modèle est capable de reproduire la section efficace dans le domaine thermique et à haute énergie, il ne prévoit qu'une variation monotone dans le domaine des résonances.

Le modèle optique a été introduit dès 1940 par Bethe, mais n'a été réellement exploité qu'à partir de 1954 à la suite de la découverte des réactions directes. Le modèle optique remplace le noyau par un puit de potentiel absorbant partiellement les neutrons et laissant échapper les autres. Mathématiquement cela se traduit par un puit de potentiel complexe, la partie imaginaire correspondant à l'absorption des neutrons incidents (ou de l'onde qui les décrit).

Le modèle optique, outre le fait d'offrir une modélisation de la description des réactions nucléaires allant progressivement du noyau composé aux réactions directes, s'applique particulièrement bien à la section efficace de diffusion élastique potentielle et au comportement moyen de la section efficace totale.

Le libre parcours moyen du neutron dans le noyau est en fait plus grand que l'on pourrait croire. En effet, le principe de Pauli dans la matière nucléaire interdit bon nombre de collisions entre les nucléons [48] et augmente ainsi le libre parcours moyen qui peut s'approcher des dimensions du noyau.

De nombreuses modélisations du noyaux, dont la description dépasse le cadre de cette thèse, furent développés par la suite et le modèle optique s'enrichit des retombées des modèles en couche et des modèles collectifs du noyau [49]. D'autres travaux s'attachèrent néanmoins à relier les propriétés des résonances à ces différents modèles [50].

Cela permet de mieux comprendre certains aspects statistiques des résonances tels que les lois de distribution des largeurs partielles [51] et les différentes composantes de la section efficace de capture du neutron par le noyau [52].

### 2.1.6 *Bilan*

Pour les neutrons thermiques et dans le domaine des résonances, le modèle statistique enrichi des retombées du modèle optique est à même de décrire parfaitement les résonances de faible largeur correspondant à des états de longue durée de vie. Les réactions directes apportent une très faible contribution : elles sont de 4 ordres de grandeur inférieures en moyenne à la composante du modèle du noyau composé ou du modèle statistique d'après la figure 14, mais dépendent du noyau considéré. La théorie de la matrice-R, dont une description complète est

donnée dans la référence [53] offre un formalisme adapté au modèle statistique mais également aux réactions directes.

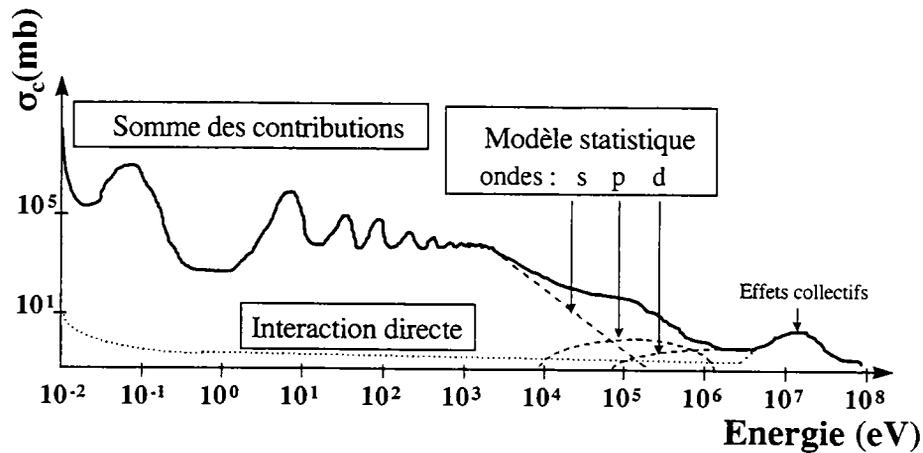


Fig.14 : Schéma des différents mécanismes intervenant dans la section efficace de capture du neutron incident par le noyau en fonction de l'énergie du neutron [54]. Si les interactions directes existent quelle que soit l'énergie, le modèle du noyau composé domine nettement jusqu'à 1 MeV. Au delà, ce sont les effets collectifs (considérés comme interactions directes) qui donnent la forme de la section efficace. Les ondes p et d correspondent à des neutrons amenant un moment orbital non nul et devant donc franchir la barrière centrifuge du noyau.

Pour des énergies de l'ordre du MeV, des modes d'excitation collectifs du noyau entrent en jeu et nous recommandons la référence [54] pour plus de détails à ce sujet.

Dans le cadre de ce travail, seule la théorie de la matrice-R sera considérée. Toutefois avant de présenter sommairement le formalisme de celle-ci, nous allons décrire qualitativement le processus de l'interaction neutron-noyau dans le domaine des résonances.

## 2.2 Processus de l'interaction neutron-noyau

Toute réaction nucléaire peut-être décrite selon une série d'étapes représentées sur la figure 15.

Nous allons décrire étape par étape l'interaction entre un neutron et un noyau. Négligeables pour des neutrons d'énergie inférieure à 1 MeV, les phénomènes de réaction directe et d'effets collectifs sont juste donnés sur la figure précédente à titre indicatif. Dans le cadre de ce travail, nous ne considérerons que le modèle statistique, soit avec formation du noyau composé.

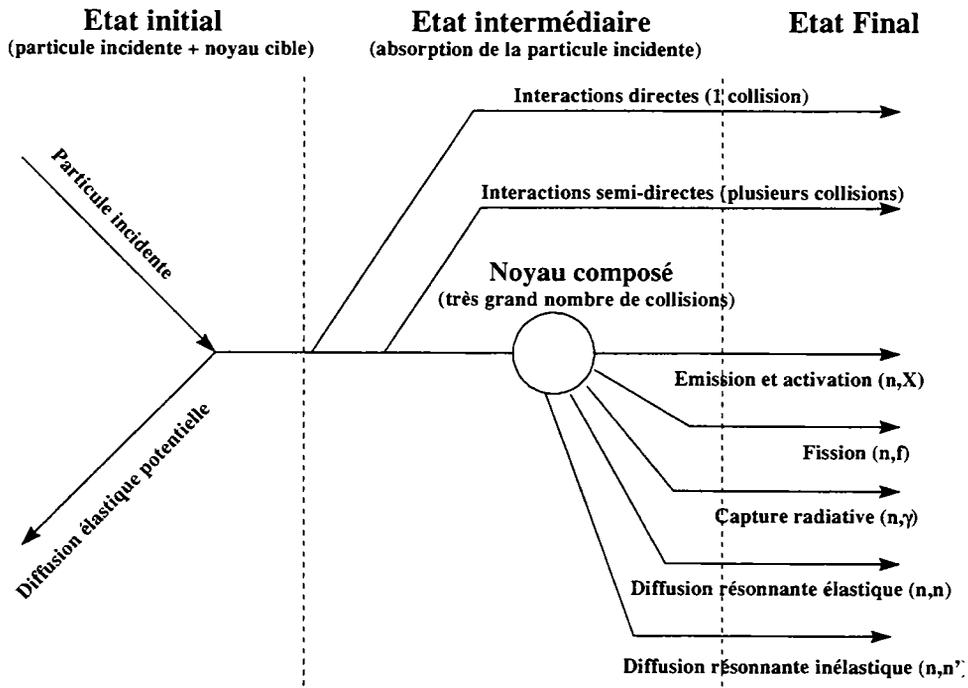


Fig.15 : Schéma des étapes dans l'interaction entre un neutron et un noyau (en dessous du seuil de production des mésons, soit 135 MeV)[57]. S'il pénètre dans le noyau, le neutron incident peut être directement capturé dans le puit de potentiel interagissant éventuellement avec un nucléon (réaction directe), ou après la création de plusieurs couples particule-trou (réaction semi-directe), soit enfin après de multiples collisions nucléons-nucléons amener la formation du noyau composé. Les effets collectifs peuvent intervenir après une réaction directe ou semi-directe.

### 2.2.1 Diffusion potentielle

Le neutron arrivant sur un noyau peut tout d'abord être diffusé en conservant son énergie dans le centre de masse. En effet, le noyau étant considéré comme un puit de potentiel, il présente une discontinuité de potentiel et de ce fait possède un coefficient de réflexion fini pour une onde incidente. L'onde associée au neutron est donc partiellement réfléchi à la surface du noyau comme le schématise la figure 16. La partie de l'onde qui n'est pas réfléchi rentre dans le noyau.

### 2.2.2 Absorption

On considère dans un premier temps l'absorption de la fonction d'onde comme un problème à deux corps.

Les  $A$  nucléons du noyaux sont répartis dans le puit de potentiel selon différentes orbites. L'énergie de ces orbites et le nombre de nucléons sur chacune d'elles sont déterminés par le modèle en couche du noyau et le principe d'exclusion de Fermi.

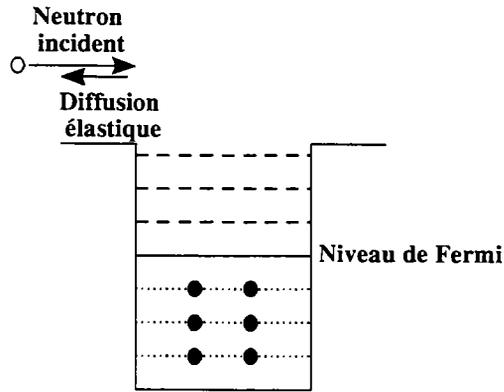


Fig.16 : Schéma simplifié de la structure en couche du noyau cible. Toutes les couches en dessous du niveau de Fermi sont remplies et sont vides au delà. Dans le cas d'une diffusion potentielle pure, le neutron incident ne pénètre pas dans le puit de potentiel que représente le noyau.

En considérant le noyau cible dans son état fondamental, toutes les couches sont remplies jusqu'au niveau de Fermi et vides au delà comme le schématise la figure 16.

Le neutron ayant pénétré dans le noyau tombe dans le puit de potentiel et interagit avec un des nucléons du noyau.

Nous ne considérons que les cas où ce nucléon reste dans le noyau qui possède désormais  $A+1$  nucléon et se trouve dans un état excité (dans le cas de  $^{237}\text{Np}$ , il s'agit du  $^{238}\text{Np}$ ).

L'énergie d'excitation  $E^*$  de ce noyau, appelé également précomposé, correspond à la somme de l'énergie  $S_n$  de séparation du neutron (5,2 MeV dans le cas de  $^{237}\text{Np}$ ) et de l'énergie cinétique  $E_n$  du neutron incident ( $< 1$  keV dans notre cas):

$$E^* = S_n + E_n \simeq S_n \quad (\text{II.5})$$

En négligeant tous les phénomènes de capture directe et semi-directe, les différents nucléons vont interagir entre eux jusqu'à ce que toute l'énergie du neutron incident soit répartie dans le noyau : l'état d'équilibre correspond au noyau composé.

### 2.2.3 Le noyau composé

Le nombre d'interactions entre les nucléons amenant à la formation du noyau composé est si complexe, que ce dernier ne doit pas se "souvenir" (hormis pour les lois de conservation de spin et de parité) de son mode de formation et que par conséquent son mode de désexcitation sera indépendant de son mode de création.

L'existence de résonances neutroniques peut s'expliquer en considérant les niveaux d'énergie du noyau composé. En effet, les seuls niveaux atteignables à l'aide

de neutrons sont les niveaux d'énergie supérieure à celle de l'énergie de séparation des neutrons  $S_n$  du noyau composé comme le montre la figure 17. Un niveau virtuel se manifeste sous la forme d'une résonance dans la section efficace de formation du noyau composé lorsque l'énergie d'excitation du noyau composé est égale à celle d'un tel niveau. Outre son énergie, chaque niveau du noyau composé est caractérisé par son nombre quantique de moment angulaire total  $J$ , appelé communément nombre quantique de spin et d'une parité positive (+1) ou négative (-1).

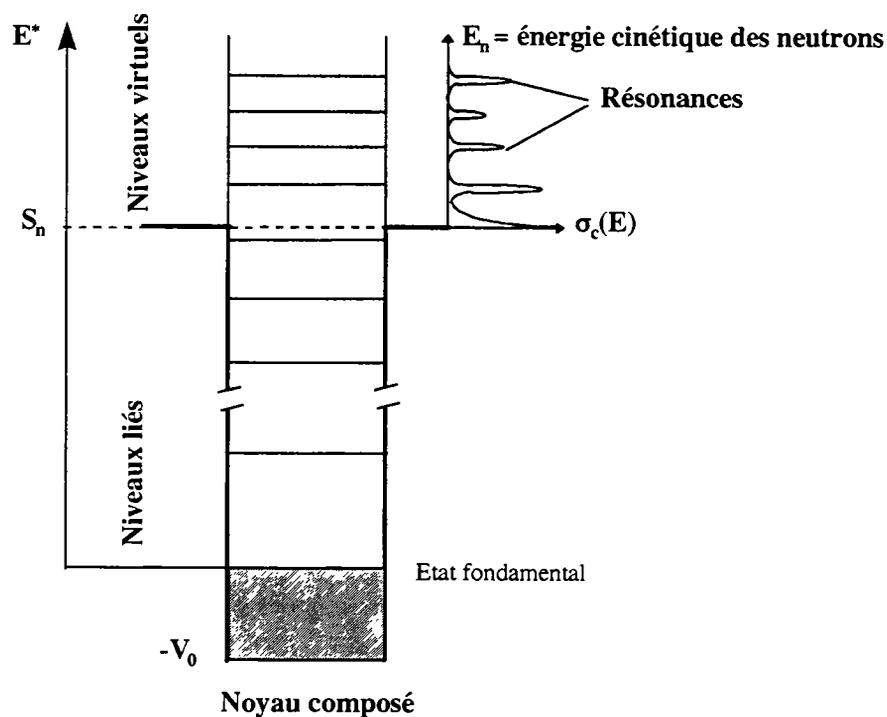


Fig.17 : Schéma simplifié des niveaux d'énergie dans le noyau composé avec les différents types de niveaux (liés et virtuels) et d'échelles en énergie.

#### 2.2.4 Mode de décroissance du noyau composé

Puisque le mode de désexcitation est considéré indépendant du mode de formation du noyau composé, la section efficace de réaction  $(n,i)$  faisant intervenir le noyau composé et où  $i$  est le mode de désexcitation (particule ou rayon gamma) s'exprime pour un noyau cible donné comme :

$$\sigma_{(n,i)}(E) = \sigma_c(E) \cdot P_i(E^*) \quad (\text{II.6})$$

avec

$E$ , énergie cinétique du neutron dans le centre de masse.

$E^*$ , énergie d'excitation du noyau composé.

$\sigma_{(n,i)}(E)$ , la section efficace de réaction  $(n,i)$  avec formation du noyau composé.

$\sigma_c(E)$ , section efficace de formation du noyau composé.

$P_i(E)$ , probabilité de désexcitation du noyau composé selon le mode  $i$ .

Chaque niveau d'un noyau (et même le niveau fondamental pour  $^{237}\text{Np}$  qui est radioactif) possède une largeur  $\Gamma$  (l'incertitude  $\Delta E$  sur l'énergie de ce niveau) car n'a qu'une durée de vie  $\tau$  finie (contrairement aux états liés du noyau), les deux grandeurs étant reliées par la relation d'incertitude d'Heisenberg :

$$\Delta E \cdot \Delta t = \Gamma \cdot \tau \simeq \hbar \quad (\text{II.7})$$

A chaque état excité est associé une probabilité  $\lambda_i$  de décroissance par unité de temps, appelée constante de décroissance, pour un mode de désexcitation  $i$  donné. L'inverse  $\tau_i$  de cette probabilité est alors appelé, par extension, temps de vie du niveau pour le mode de désexcitation  $i$ . Notons que cette appellation temps de vie provient uniquement d'une définition mathématique et n'a pas d'existence réelle contrairement à la durée de vie du niveau.

On définit la largeur partielle  $\Gamma_i$  d'un niveau pour un mode de désexcitation  $i$  comme :

$$\Gamma_i = \hbar \lambda_i = \frac{\hbar}{\tau_i} \quad (\text{II.8})$$

Puisqu'un niveau peut se désexciter selon différents modes, la constante de décroissance du niveau n'est autre que la somme des différentes probabilités de décroissance par unité de temps pour chaque mode. La largeur totale du niveau est donc la somme des largeurs partielles et la durée de vie du niveau est déduite de la largeur totale par la relation d'Heisenberg :

$$\lambda = \sum_i \lambda_i \quad (\text{II.9})$$

$$\Gamma = \sum_i \Gamma_i \quad (\text{II.10})$$

$$\tau = \frac{\hbar}{\Gamma} \quad (\text{II.11})$$

Dans le cas du neptunium-237, la largeur totale est environ égale à 40 meV dans toute notre plage d'étude, ce qui correspond à une durée de vie des niveaux de l'ordre de  $10^{-14}$  s.

A l'aide des précédentes notations, la probabilité de décroissance  $P_i(E)$  introduite dans l'équation (II.6) peut s'écrire comme le rapport  $\frac{\Gamma_i}{\Gamma}$ , soit :

$$\sigma_{(n,i)}(E) = \sigma_c(E) \cdot \frac{\Gamma_i(E^*)}{\Gamma(E^*)} \quad (\text{II.12})$$

où  $\sigma_{(n,i)}(E)$  est appelée section efficace partielle neutronique de réaction  $(n,i)$ .

### 2.2.5 Les sections efficaces partielles

Les différentes sections efficaces partielles sont associées aux largeurs partielles correspondantes par l'équation (II.12).

Ces sections efficaces partielles sont :

-section efficace de diffusion résonnante élastique  $\sigma_{(n,n)}(E)$  : le noyau composé redonne le noyau cible dans son état fondamental par émission d'un neutron de même énergie que le neutron incident. Contrairement à la section efficace de diffusion potentielle  $\sigma_p(E)$  qui ne passe pas par la formation d'un noyau composé, elle est associée à une largeur partielle appelée largeur neutronique et notée  $\Gamma_n$ .

-section efficace de diffusion résonnante inélastique  $\sigma_{(n,n')}(E)$  : le processus est identique au précédent sauf que le noyau cible se retrouve, en sortie, dans un état excité. C'est une réaction à seuil, puisqu'il est nécessaire que l'énergie du neutron incident évaluée dans le centre de masse soit au moins égale à celle du premier niveau excité du noyau cible.  $\Gamma_{n'}$  est la largeur partielle de diffusion inélastique.

-section efficace de capture radiative  $\sigma_{(n,\gamma)}(E)$  : le noyau composé se désexcite par émission d'un ou plusieurs rayonnements gamma. La largeur partielle correspondante est la largeur radiative  $\Gamma_\gamma$ . Notons que le spectre en énergie des rayonnements gamma, déterminé par les règles de sélection, est discret et fonction des énergies, spin et parités des niveaux excités du noyau  $A+1$ .

-section efficace de fission  $\sigma_{(n,f)}(E)$  : le noyau composé dans un état excité éclate et l'énergie d'excitation se retrouve sous forme d'énergie cinétique de deux fragments (dans la plupart des cas), de neutrons et de rayon gamma. Les noyaux résiduels peuvent également être dans un état excité. La largeur partielle de fission se note  $\Gamma_f$ .

-sections efficaces partielles d'émission et d'activation : le noyau composé se désexcite en émettant des particules chargées telles que protons ( $\sigma_{(n,p)}(E)$  et  $\Gamma_p$ ), deutons ( $\sigma_{(n,d)}(E)$  et  $\Gamma_d$ ), tritons ( $\sigma_{(n,^3\text{H})}(E)$  et  $\Gamma_{^3\text{H}}$ ) ou particules  $\alpha$  ( $\sigma_{(n,\alpha)}(E)$  et  $\Gamma_\alpha$ ).

Si le noyau résiduel obtenu est instable, il peut décroître par radioactivité  $\beta^+$  ou  $\beta^-$  : c'est alors une réaction d'activation.

Le noyau composé peut également émettre un neutron. Le noyau résiduel se trouve dans un état excité suffisant pour émettre à son tour un neutron et ainsi de suite. On obtient alors l'émission en cascade de  $n$  neutrons à partir de  $n$  noyaux différents. Sont associées à ce phénomène les sections efficaces partielles d'émission neutronique multiple  $\sigma_{(n,xn)}(E)$  dont la largeur partielle est  $\Gamma_{xn}$ .

Tableau 2 : Schéma de regroupement des différentes sections efficaces neutroniques partielles.

<i>Elastique</i>	Diffusion élastique potentielle Diffusion résonnante élastique (n,n)	<i>Diffusion</i>	<i>Noyau composé</i>	<b>Totale</b>
<i>Inélastique</i>	Diffusion résonnante inélastique (n,n')			
	Capture radiative (n, $\gamma$ ) Fission (n,f) Emission/activation (n,p), (n, $\alpha$ ),..., (n,xn)	<i>Absorption</i>		

On peut également définir plusieurs sections efficaces partielles correspondant à la combinaison des sections efficaces précédentes : section efficace de diffusion et section efficace d'absorption, section efficace élastique et section efficace inélastique et enfin la somme de toutes les sections efficaces partielles qu'est la section efficace totale.

L'organisation des différentes sections efficaces partielles et de leurs combinaisons est résumé dans le tableau 2. La section efficace de formation du noyau composé sera la somme de toutes les sections efficaces partielles à l'exclusion de la section efficace de diffusion élastique potentielle.

### 2.2.6 Cas du neptunium-237

Les sections efficaces partielles du neptunium-237 sont représentées sur la figure 18.

Comme pour tous les noyaux, on peut distinguer plusieurs domaines de comportement spécifique des sections efficaces.

-le domaine thermique : en dessous de 1 eV , en général, la section efficace présente une variation lente en fonction de l'énergie (comportement en  $1/\sqrt{E}$  soit en  $1/v_n$  avec  $v_n$  vitesse du neutron). Dans le cas du neptunium, ce comportement de la section efficace est toutefois perturbé par la présence d'une grande résonance à 0,49 eV.

-le domaine des résonances résolues : ce domaine varie selon le type de noyau allant de 1 eV à quelques keV pour les noyaux lourds (voire moins puisqu'il n'est

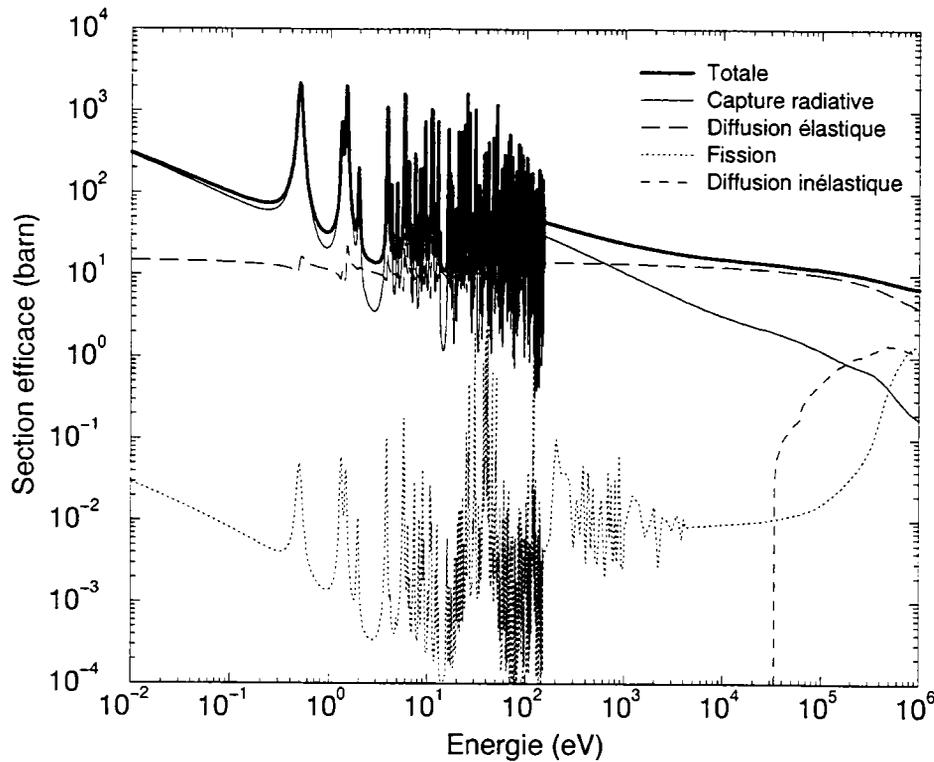


Fig.18 : Sections efficaces partielles et totale du neptunium-237 en fonction de l'énergie, calculée par NJOY [55] à partir du fichier d'évaluation ENDF [56].

que de quelques centaines d'électron-volts pour  $^{237}\text{Np}$ ), ou jusqu'à des énergies de l'ordre du MeV pour les noyaux légers. En première approximation (car la structure en couche du noyau présente des variations notables pour des noyaux très proches selon le remplissage des couches par les différents nucléons), l'espacement entre les résonances sera bien plus faible pour les noyaux lourds (de l'ordre de quelques eV) que pour les noyaux intermédiaires (quelques keV) ou pour les noyaux légers (jusqu'à quelques MeV). La largeur des résonances augmente avec l'énergie tandis que leur amplitude décroît.

Pour le neptunium-237, la largeur des résonances est de l'ordre de 40 meV et l'espacement moyen est entre 0,5 eV et 0,6 eV.

-le domaine des résonances non-résolues : A une énergie donnée, dépendant du noyau considéré, la largeur des résonances devient supérieure à l'espacement entre ces résonances, si bien qu'il devient impossible de distinguer ces résonances entre elles. La section efficace considérée est alors une section efficace moyenne présentant à nouveau des variations lentes. Dans le cas de noyaux lourds comme le neptunium-237, ce n'est pas la largeur naturelle des résonances qui est en cause. En effet, dans

une expérience de mesure de section efficace pour des noyaux lourds, où l'espacement entre les résonances est très faible, la largeur des résonances est rapidement déterminée (au delà de quelques centaines d'électron-volts) par la résolution expérimentale (voir chapitre 3). C'est donc un paramètre d'ordre purement expérimental qui limite le domaine des résonances résolues. Pour l'évaluation JEF2.2 du neptunium-237 [58], cette limite est à 250 eV correspondant à l'énergie de la dernière résonance résolue par Paya en 1972 [59]. En 1984, Auchampaugh possédant une résolution très supérieure a repoussé cette limite à 600 eV [61]. La résolution dont nous disposions était inférieure à celle d'Auchampaugh, d'où une plus grande difficulté à résoudre les résonances. Toutefois, les résonances sont également analysées jusqu'à 600 eV.

-le domaine rapide : Les neutrons sont appelés neutrons rapides à partir de quelques dizaines de keV et neutrons de haute énergie au delà de 10 MeV. Dans ces gammes d'énergie, les sections efficaces présentent en général de faibles variations. Toutefois les sections efficaces associées à certaines réactions à seuil (comme celles de la diffusion inélastique pour  $^{237}\text{Np}$ ) peuvent augmenter brusquement.

#### Bilan :

D'après la figure 18, dans notre gamme d'énergie (en dessous de 1 keV), c'est la section efficace de capture radiative qui prédomine fortement dans les résonances. La contribution de la section efficace de diffusion élastique (potentielle et résonnante) n'est cependant pas négligeable surtout entre les résonances. Enfin, la section efficace de fission, même si étant en moyenne deux ordres de grandeur inférieure aux autres, sera également considérée.

Les grandeurs que ce travail va tenter de déterminer sont les paramètres de résonance, c'est à dire l'énergie  $E_0$  des résonances, les largeurs neutroniques partielles ( $\Gamma_n$  et  $\Gamma_\gamma$ ) et le rayon  $R$  du noyau. La largeur de fission  $\Gamma_f$  n'étant pas accessible par les expériences entreprises, les valeurs déterminées par les expériences précédentes (Plattard et al. [60], Auchampaugh et al. [61] ou Borzakov et al. [62]) seront entrées comme paramètre fixe.

### ***2.3 Formalisme de la matrice-R***

La théorie de la matrice-R est décrite en détail dans la référence [53]. Toutefois, une première approche de cette théorie peut-être obtenue dans les références [63], [64] et [65].

### 2.3.1 Description

Toute théorie qui veut décrire des réactions nucléaires, passant principalement par la formation du noyau composé se doit d'être formulée en terme d'ensemble d'états qui peuvent être associés à ceux du noyau composé. Dans la théorie de la matrice-R est défini un tel ensemble d'états pour tous les nucléons et les sections efficaces peuvent être exprimées en fonction de ces états. Toutefois, la relation algébrique entre ces états et les sections efficaces est très complexe et nécessite l'introduction de quantités intermédiaires que sont les matrices  $U$  (matrice de collision),  $L$ ,  $\Omega$  et  $R$ . Notons que la matrice de collision  $U$  est une formulation générale des interactions nucléaires ne dépendant pas de la théorie de la matrice-R.

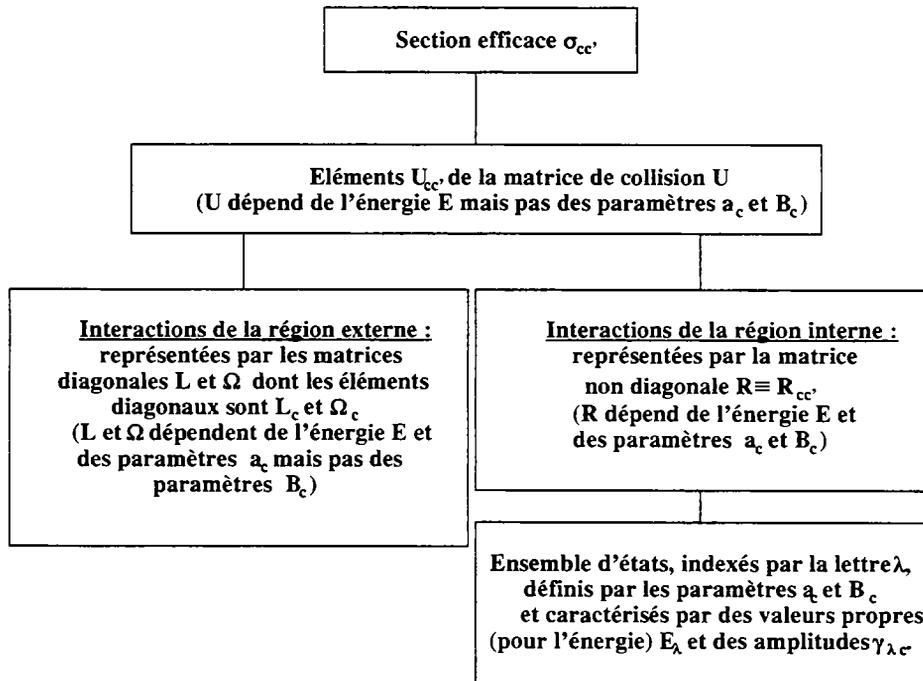


Fig.19 : Schéma de principe de la théorie de la matrice R reliant les différentes matrices représentant les interactions dans les régions externe et interne (cette dernière étant l'espace où la réaction nucléaire peut avoir lieu) aux sections efficaces et ce via la matrice dite de collision [53].

Le principe de la théorie, schématisé sur la figure 19, est le suivant : de l'état initial constitué de deux particules séparées dont les fonctions d'onde sont connues le système devient le noyau composé dont la fonction d'onde interne est inconnue mais qui est reconstituée à la surface de ce noyau par les conditions aux limites (expansion des états propres). Les réactions nucléaires sont considérées binaires,

c'est à dire ne faisant intervenir que deux noyaux ou particules, qu'on appellera couple  $c$ , dans la configuration initiale mais également dans la configuration finale : le résultat de l'interaction est constitué de deux corps appelé couple  $c'$ . Plutôt que de parler de couple de noyaux ou de particules, le terme de voie est employé, chaque voie étant caractérisée par les différentes grandeurs quantiques du couple. Un rayon  $a_c$  définit deux régions de l'espace pour chaque voie  $c$  : une région interne où la réaction peut avoir lieu et une région externe où le potentiel nucléaire est nul. Dans la région externe, deux matrices diagonales ( $L$  et  $\Omega$ ) décrivent toutes les interactions non polarisées agissant à longue distance entre les deux corps indépendants. Dans la région interne c'est la matrice- $R$  qui tient compte des effets de toutes les interactions. La complexité du système à  $N$  nucléons en interaction qu'est le noyau ne permet pas aujourd'hui le calcul détaillé des propriétés internes du noyau et la matrice- $R$  est donc inconnue. Toutefois, en projetant les fonctions d'ondes internes du noyau sur la surface définie par  $a_c$  et en imposant un ensemble de conditions aux limites  $B_c$  sur cette surface, une expression de la dépendance énergétique des éléments de la matrice- $R$  a pu être déterminée par Wigner et Eisenbud [42] :

$$R_{cc'}(E) = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E} \quad (\text{II.13})$$

avec  $\gamma_{\lambda c}$ ,  $\gamma_{\lambda c'}$  et  $E_{\lambda}$  indépendants de  $E$  et dépendant de  $a_c$  et  $B_c$ .

$\lambda$ , indice représentant chaque état de l'ensemble d'états caractérisant la région interne.

$E$ , énergie de la particule (ou du noyau) incidente.

$E_{\lambda}$ , valeurs propres, pour l'énergie, des états  $\lambda$ .

$\gamma_{\lambda c}$ , amplitudes de largeur réduite des voies  $c$  pour les états  $\lambda$ .

Les valeurs des grandeurs  $\gamma_{\lambda c}$ ,  $\gamma_{\lambda c'}$  et  $E_{\lambda}$  ne peuvent être prédites par la théorie et vont être déterminées par ajustement sur les données expérimentales.

Dans l'application de la théorie de la matrice- $R$  au noyau composé, les états de la région interne correspondent aux états du noyau composé. Dans le cas pratique, seuls les états virtuels (au dessus des états liés), dans le domaine d'énergie de nos réactions, est pris en compte.  $E_{\lambda}$  correspond alors à l'énergie de ces états c'est à dire à peu de chose près à l'énergie des résonances.  $\gamma_{\lambda c}$  et  $\gamma_{\lambda c'}$  sont reliées à la racine carrée des largeurs partielles des résonances.

Il s'agit maintenant de remonter aux sections efficaces à partir de ces différentes matrices.  $\sigma_{cc'}(E)$  correspond à la section efficace de production du couple  $c'$  lorsque les deux membres du couple  $c$  sont envoyés l'un sur l'autre. On utilise alors le formalisme général de la matrice de collision  $U$  dont l'élément  $U_{cc'}(E)$  est l'amplitude de l'onde sortante représentant la voie  $c'$  résultant de l'interaction, par unité de flux, provenant de la voie  $c$ . De ce fait, la probabilité de passer de la voie  $c$  à la voie  $c'$  n'est autre que  $|U_{cc'}(E)|^2$  et par conséquent :

$$\sigma_{cc'}(E) \propto |U_{cc'}(E)|^2 \quad (\text{II.14})$$

Maintenant, tout l'intérêt de la théorie de la matrice-R est de relier l'ensemble des matrices définies ci-dessus entre elles, ce qui sera obtenu en projetant sur la surface entre les régions externes et internes, la fonction d'onde de la région externe et en la reliant aux conditions aux limites imposées à la matrice-R. Toutefois, la taille des matrices est telle qu'il est impossible de résoudre de manière exacte la relation entre les matrices et que différentes hypothèses simplificatrices ont été émises, donnant ainsi naissance aux différents formalismes de section efficace. Un résumé rapide des formules principales de la théorie de la matrice-R va être présenté ici ainsi que la présentation de deux formalismes de section efficace : le formalisme de Breit et Wigner applicable aux résonances isolées et dont l'intérêt est de donner une formulation explicite des sections efficaces en fonction des différentes largeurs partielles et le formalisme plus élaboré de Reich-Moore, utilisé par le programme d'analyse dont sont issus les résultats de ce travail.

### 2.3.2 *Hypothèses de départ de la théorie de la matrice-R*

Les approximations de la théorie de la matrice-R sont les suivantes [53] :

- seule la mécanique quantique non relativiste est utilisée vue la faible énergie cinétique des nucléons dans le noyau.
- limitation aux processus faisant intervenir au plus deux corps en entrée comme en sortie (la fragmentation n'est donc pas considérée).
- absence de processus de création ou de destruction, ce qui revient à exclure les photons, mais une étude de perturbation entre le couplage des particules et le champ électromagnétique peut supprimer cette restriction.
- les effets potentiels entre paires de noyaux sont considérés uniquement fonction de la distance radiale au delà d'une certaine distance  $a_c$ .

Toutes ces approximations sont pleinement justifiées dans le domaine des résonances résolues et le grand atout de la matrice-R est de n'apporter aucune hypothèse sur l'interaction entre (dans notre cas) le neutron et le noyau.

### 2.3.3 *Voies*

Le système en interaction est un ensemble de  $A$  nucléons. On considère que celui-ci ne peut être formé que par deux corps contenant respectivement  $A_1$  et  $A_2$  nucléons. Chaque combinaison susceptible de former ce système de  $A$  nucléons forme une voie d'entrée. De même, toute combinaison à deux corps formée par l'interaction sera une voie de sortie.

Ces voies sont caractérisées par plusieurs paramètres :

- $\alpha$  : la composition du système - soit dans notre cas en entrée ( $^{237}\text{Np}, n$ ) et par exemple en sortie ( $^{238}\text{Np}, \gamma$ ) - et l'état d'excitation de chaque corps.

- $s$  : spin de la voie somme du moment angulaire total (ou spin) de chacun des deux partenaire de la réaction.

$$\vec{s} = \vec{I}_1 + \vec{I}_2 \text{ avec } |I_1 - I_2| \leq s \leq I_1 + I_2 \quad (\text{II.15})$$

Le spin du neutron est  $I_1 = 1/2$ , tandis que celui de  $^{237}\text{Np}$  dans son état fondamental est  $I_2 = 5/2$ . Le spin de la voie ne peut donc prendre que deux valeurs :  $s = 2$  ou  $s = 3$ .

- $l$  : le moment angulaire orbital relatif des deux particules. Pour des neutrons lents, seules les faibles valeurs de  $l$  sont autorisées. Dans tout ce travail, on prendra  $l = 0$  (seule les ondes  $s$  sont considérées).

- $J$  : moment angulaire total du système soit :

$$\vec{J} = \vec{s} + \vec{l} \text{ avec } |s - l| \leq J \leq s + l \quad (\text{II.16})$$

Dans notre cas, puisque  $l = 0$ , on aura  $J = s$  et donc  $J = 2$  ou  $J = 3$ .

En appelant  $\nu$ ,  $m$  et  $M$  les projections respectives de  $s$ ,  $l$  et  $J$  sur un axe de l'espace la voie sera finalement caractérisée par un indice  $c$  reprenant l'ensemble des paramètres précédents :

$$c = \{\alpha, s, \nu, l, m\} \quad (\text{II.17})$$

Toutefois,  $\nu$ ,  $m$  et  $M$  n'interviennent que dans la solution de la partie angulaire de l'équation de Schrödinger. Dans notre cas, nous nous limitons à la mesure de sections efficaces intégrées sur l'angle pour lesquelles seule la solution de la partie radiale de l'équation de Schrödinger intervient. La caractérisation de la voie  $c$  peut donc se limiter à :

$$c = \{\alpha, s, l\} \quad (\text{II.18})$$

### 2.3.4 Rayon $a_c$

La valeur du rayon  $a_c$  est plus ou moins arbitraire. En général, c'est la valeur minimale, soit la somme des rayons des deux partenaires de l'interaction, qui est prise :

$$a_c = r_0 \left( A_1^{1/3} + A_2^{1/3} \right) \quad (\text{II.19})$$

avec  $r_0$  une constante dont la valeur est autour de 1,35 fm.

### 2.3.5 Sections efficaces

Seules les expressions finales, ne dépendant que du formalisme de la matrice  $U$ , sont ici présentées.

Pour un  $J$  donné, la section efficace partielle d'une réaction nucléaire dont la voie d'entrée est  $c$  et la voie de sortie  $c'$  s'exprime en fonction des éléments  $U_{cc'}^J$  :

$$\sigma_{c,c'}^J = \frac{\pi}{k_c^2} g_J |\delta_{cc'} - U_{cc'}^J|^2 \quad (\text{II.20})$$

avec

$k_c$ , nombre d'onde associé à la voie d'entrée (nombre d'onde du neutron dans notre cas).

$$k_c = \frac{\sqrt{2 \cdot \mu_c \cdot E}}{\hbar} \text{ avec } \mu_c \text{ masse réduite de la voie d'entrée} \quad (\text{II.21})$$

$J$ , moment angulaire total de la voie d'entrée.

$g_J$ , facteur statistique de spin

$$g_J = \frac{2J + 1}{(2i + 1)(2J + 1)} \quad (\text{II.22})$$

En effectuant la somme de ces sections efficaces sur l'ensemble des voies d'entrée et de sortie, il est possible de définir la section efficace conduisant du système  $\alpha$  au système  $\alpha'$  [30] :

$$\sigma_{\alpha,\alpha'}^J = \frac{\pi}{k_c^2} g_J \sum_{s,s'=|I-i|}^{I+i} \sum_{l=|J-s|}^{J+s} \sum_{l'=|J-s'|}^{J+s'} |\delta_{cc'} - U_{cc'}^J|^2 \quad (\text{II.23})$$

Les différentes sections efficaces partielles se déduisent ensuite de cette formule avec :

-section efficace totale (la somme sur toutes les configurations  $\alpha'$  possible) :

$$\sigma_{\alpha,t}^J = \sum_{\alpha'} \sigma_{\alpha,\alpha'}^J = \frac{2\pi}{k_c^2} g_J \sum_{s=|I-i|}^{I+i} \sum_{l=|J-s|}^{J+s} (1 - \text{Re } U_{cc'}^J) \quad (\text{II.24})$$

-section efficace de réaction ( $\alpha \neq \alpha'$ ) :

$$\sigma_{\alpha,\alpha'}^J = \frac{\pi}{k_c^2} g_J \sum_{s,s'=|I-i|}^{I+i} \sum_{l=|J-s|}^{J+s} \sum_{l'=|J-s'|}^{J+s'} |U_{cc'}^J|^2 \quad (\text{II.25})$$

-section efficace de diffusion élastique :

$$\sigma_{\alpha,\alpha}^J = \sigma_{\alpha,t}^J - \sum_{\alpha' \neq \alpha} \sigma_{\alpha,\alpha'}^J \quad (\text{II.26})$$

Une sommation sur  $J$ , permet ensuite d'obtenir les sections efficaces sur l'ensemble des configurations de spin.

### 2.3.6 Relation entre matrice de collision et matrice-R

Cette relation est obtenue en assurant la continuité de la fonction d'onde du système à la surface séparant la région externe de la région interne. L'expression des différentes fonctions d'ondes dans chacune des régions et leur projection sur la surface sont données dans les différentes références citées en début de cette partie. Nous ne donnerons que le résultat final à savoir la relation entre la matrice de collision  $U$  et la matrice des largeurs (la matrice-R) où les matrices  $P$ ,  $L$ ,  $B$  et  $\Omega$  sont diagonales et la matrice-R est réelle et symétrique.

$$U_{cc'} = \Omega_c P_c^{\frac{1}{2}} [1 - R_{cc'}(L - B)_{cc'}]^{-1} [1 - R_{cc'}(L^* - B)_{cc'}] P_{c'}^{\frac{1}{2}} \Omega_{c'} \quad (\text{II.27})$$

avec

$-\Omega_c = \left( \frac{I_c}{O_c} \right)_{r=a_c}$ , projection du rapport entre l'onde incidente  $I_c$  et l'onde sortante  $O_c$  à la surface ( $r = a_c$ ) de la voie. Pour des particules neutres,  $\Omega_c = e^{-i\Phi_c}$  avec  $\Phi_c$  le décalage de phase provoqué par la diffusion valant pour des neutrons "s" ( $l = 0$ ) :  $\Phi_c = \rho = k \cdot a_c = -\Phi_{c'}$ ,  $k$  étant le nombre d'onde du neutron incident.

$-L_c = S_c + iP_c$  où  $S_c$  et  $P_c$  sont respectivement les facteurs de décalage et de pénétrabilité de la barrière potentielle.

Dans le cas de neutrons "s":  $P_c \equiv P_0 = \rho = k \cdot a_c$  (et  $S_c \equiv S_0 = 0$ ).

$-R_{cc'} = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E}$ , éléments de la matrice-R.

$-B_c = \frac{\delta_{\lambda c}}{\gamma_{\lambda c}}$ , avec  $\gamma_{\lambda c}$  projection sur la surface de la voie  $c$  des fonctions propres réelles  $X_{\lambda}$  de l'hamiltonien  $H$  de la région interne dont  $E_{\lambda}$  sont les valeurs propres :

$$HX_{\lambda} = E_{\lambda}X_{\lambda}. \quad (\text{II.28})$$

$\delta_{\lambda c}$  est la projection sur la même surface de la dérivée de  $X_{\lambda}$  par rapport à la distance radiale  $r$ .  $B_c$  n'est donc rien d'autre qu'une condition aux limites constante (et arbitraire) définie au rayon d'entrée.

La relation précédente peut s'écrire pour des particules incidentes neutres sous la forme :

$$U_{cc'} = e^{-i(\Phi_c - \Phi_{c'})} \left\{ \delta_{cc'} + 2iP_c^{\frac{1}{2}} [(1 - R(L - B))^{-1} R]_{cc'} P_{c'}^{\frac{1}{2}} \right\} \quad (\text{II.29})$$

### 2.3.7 La matrice inverse

La difficulté majeure de la relation précédente est, vue la taille des matrices, l'inversion de  $[1 - R(L - B)]$ . Une méthode pour contourner cette difficulté a été proposée par Wigner en introduisant une nouvelle matrice inverse  $A^{-1}$ , appelée matrice inverse de niveau, telle que [66] :

$$[1 - R(L - B)]_{cc'}^{-1} = \delta_{cc'} + \sum_{\lambda\mu} \gamma_{\lambda c} (L_{c'} - B_{c'}) \gamma_{\mu c} A_{\lambda\mu} \quad (\text{II.30})$$

Dans ce cas, les éléments de la matrice  $A^{-1}$  sont donnés par :

$$\begin{aligned} A_{\lambda\mu}^{-1} &= (E_\lambda - E) \delta_{\lambda\mu} + \Delta_{\lambda\mu} - \frac{i}{2} \sum_c \sqrt{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\mu c}} \\ &= (E_\lambda - E) \delta_{\lambda\mu} + \sum_c (L_c - B_c) \gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c} \end{aligned} \quad (\text{II.31})$$

avec

$$\Delta_{\lambda\mu} \equiv \sum_c (S_c - B_c) \gamma_{\lambda c} \gamma_{\mu c}, \text{ le décalage de niveaux.}$$

$\Gamma_{\lambda c}$  est la largeur partielle associée à l'amplitude de largeur réduite  $\gamma_{\lambda c}$ , soit la largeur partielle de désexcitation des niveaux  $\lambda$  dans la voie  $c$ , avec :

$$\Gamma_{\lambda c} = \gamma_{\lambda c}^2 \cdot 2P_c \quad (\text{II.32})$$

La matrice de collision pour des particules neutres s'écrit alors :

$$U_{cc'} = e^{-i(\Phi_c - \Phi_{c'})} \left\{ \delta_{cc'} + i \sum_{\lambda,\mu} \sqrt{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\mu c'}} A_{\lambda\mu} \right\} \quad (\text{II.33})$$

Dans l'équation (II.31),  $\sum_c \sqrt{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\mu c}}$  correspond à la contribution des éléments non-diagonaux de la matrice  $A^{-1}$  qui correspond aux interférences entre niveaux dans les différentes voies de sortie. Le traitement de cette contribution avec diverses hypothèses simplificatrices va donner naissance aux différents formalismes de section efficace dont celui de Breit et Wigner et celui de Reich-Moore.

### 2.3.8 Formalisme de Breit et Wigner (simple niveau)

Ce formalisme a été développé bien avant la théorie de la matrice-R [40] comme nous l'avons rappelé plus haut. Il apparaît finalement être un cas bien particulier de cette théorie, puisque cela revient à négliger complètement les termes non-diagonaux de la matrice  $A^{-1}$ , c'est à dire les interférences entre les niveaux. C'est

le formalisme le plus simple, mais malgré tout, il peut être utilisé avec une très bonne approximation sur des résonances isolées, c'est à dire dont la largeur est très inférieure à l'espacement entre les résonances voisines et de même spin.

Dans notre plage d'étude, les résonances du neptunium-237 ont une largeur de l'ordre de 40 meV alors que l'espacement moyen entre les résonances est environ de 0,5 eV, soit 10 fois plus élevé. De plus, lors des premières mesures expérimentales des sections efficaces de ce corps, dans les années 60 et 70, la puissance des outils de calculs était relativement limitée face à la complexité des calculs nécessaire à la prise en compte de la contribution des autres résonances (les autres niveaux). Aussi, les résonances du neptunium-237 ont elles été analysées, notamment par Paya [59], à l'aide ce formalisme.

La matrice  $A^{-1}$  est diagonale et dans ce cas :

$$A_{\lambda\mu}^{-1} = A_{\lambda\lambda}^{-1} = (E_\lambda - E) + \Delta_\lambda - \frac{i}{2}\Gamma_\lambda \quad (\text{II.34})$$

avec

$\Gamma_\lambda = \sum_c \Gamma_{\lambda c}$ , largeur totale du niveau  $\lambda$ , soit la largeur totale  $\Gamma$  de la résonance.

$\Delta_\lambda = \sum_c (S_c - B_c) \gamma_{\lambda c}^2$ , décalage entre l'énergie  $E_\lambda$  du niveau  $\lambda$  et  $E_r$ , l'énergie de la résonance :  $E_r = E_\lambda - \Delta_\lambda$ . Les conditions aux limites étant arbitraires, il suffit de les choisir telles que  $B_c = S_c$ . Dans ce cas, le décalage est nul et chaque énergie des résonances correspond bien à l'énergie des niveaux du noyau composé (dans notre cas). Ceci introduit en fait une approximation car  $S_c$  dépend de l'énergie, mais l'écart introduit est négligeable dans le domaine des résonances où nous travaillons [30].

La matrice de collision s'écrit donc :

$$U_{cc'} = e^{-i(\Phi_c - \Phi_{c'})} \left\{ \delta_{cc'} + i \frac{\sqrt{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\lambda c'}}}{(E_\lambda - E) + \Delta_\lambda - \frac{i}{2}\Gamma_\lambda} \right\} \quad (\text{II.35})$$

En choisissant correctement les conditions aux limites  $B_c$ , l'expression devient pour des neutrons "s", en posant  $a_c = R$ , rayon du noyau composé :

$$U_{nc'} = e^{-2ikR} \left\{ \delta_{nc'} + i \frac{\sqrt{\Gamma_{\lambda n} \Gamma_{\lambda c'}}}{(E_\lambda - E) - \frac{i}{2}\Gamma_\lambda} \right\} \quad (\text{II.36})$$

Dans notre cas,  $kR \ll 1$  et en omettant l'indice  $\lambda$ , il en découle que pour les résonances de basse énergie  $E_r$  et de spin  $J$ , l'expression des sections efficaces pour des neutrons "s" en voie d'entrée est :

-section efficace totale :

$$\sigma_t^J(E) = 4\pi g_J R_J^2 + 4\pi \bar{\lambda}^{-2} g_J \frac{\Gamma_n \Gamma + 4k R_J \Gamma_n (E_r - E)}{\Gamma^2 + 4(E_r - E)^2} \quad (\text{II.37})$$

avec

$\bar{\lambda} = 1/k$ , longueur d'onde du neutron incident.

$g_J$ , facteur statistique de spin.

$R_J$ , rayon effectif du noyau composé pour le spin  $J$ .

$\Gamma_n$ , largeur partielle de diffusion résonnante élastique de la résonance.

$\Gamma$ , largeur totale de la résonance.

Le premier terme à droite de l'équation (II.37) correspond à la diffusion potentielle élastique pour le spin  $J$ :

$$\sigma_p^J(E) = 4\pi g_J R_J^2 \quad (\text{II.38})$$

Le second terme de l'équation (II.37) est symétrique et représente le terme résonnant. Enfin, le troisième terme, asymétrique, est le terme d'interférence potentiel-résonnant.

-sections efficaces partielles :

$$\sigma_{(n,i)}^J(E) = 4\pi \bar{\lambda}^{-2} g_J \frac{\Gamma_n \Gamma_i}{\Gamma^2 + 4(E_0 - E)^2} \quad (\text{II.39})$$

avec  $\Gamma_i$ , largeur partielle associée au mode de désexcitation  $i$  du noyau composé.

Les valeurs des largeurs dépendent en fait de la résonance  $r$ . L'allure des sections efficaces en fonction de l'énergie est donc obtenue en faisant la somme sur toutes les résonances et sur tous les spins  $J$  des expressions définies ci-dessus. Par exemple, la section efficace de diffusion potentielle élastique totale sera obtenue en faisant la somme sur les différents spins  $J$ , soit dans le cas du neptunium-237 de rayon  $R$  :

$$\sigma_p(E) = 4\pi (g_{J=2} R_{J=2}^2 + g_{J=3} R_{J=3}^2) = 4\pi R^2 \quad (\text{II.40})$$

Le formalisme de Breit et Wigner ayant négligé les interférences entre les résonances, une erreur importante peut être commise si les résonances sont proches l'une de l'autre, la section efficace à une énergie donnée ne pouvant se réduire à la simple sommation des contributions de chaque résonance isolée.

### 2.3.9 Formalisme de Reich-Moore

L'importance des interférences dépend du nombre de voies de sortie, de leur nature et de l'espacement entre les différents niveaux. Dans notre cas (neutrons "s"), les voies de sortie après formation du noyau composé sont de trois types : la diffusion résonnante élastique, la capture radiative et la fission. La contribution des termes non-diagonaux de la matrice  $A^{-1}$  pour un spin  $J$  donné peut donc se développer sous la forme [64] :

$$\sum_c \sqrt{\Gamma_{\lambda c} \Gamma_{\mu c}} = \sqrt{\Gamma_{\lambda n} \Gamma_{\mu n}} + \sum_{\gamma} \sqrt{\Gamma_{\lambda \gamma} \Gamma_{\mu \gamma}} + \sum_f \sqrt{\Gamma_{\lambda f} \Gamma_{\mu f}} \text{ avec } (\lambda \neq \mu) \quad (\text{II.41})$$

avec

$n$ , la voie de diffusion résonnante élastique

$\gamma$ , une des multiples voies de sortie (transition gamma à partir de l'état d'excitation du noyau composé) pour la capture radiative.

$f$ , une des voies de sortie de fission.

Les amplitudes de largeur réduite  $\gamma_{\lambda c}$  sont, d'après la loi de Porter et Thomas [51] (voir page 79), distribuées selon une loi normale de valeur moyenne nulle. Par conséquent, il est raisonnable de penser que pour un grand nombre de voies de sorties :  $\sum_i \sqrt{\Gamma_{\lambda i} \Gamma_{\mu i}} \simeq 0$ . C'est le cas des voies de sorties  $\gamma$ , le nombre de niveaux du neptunium-238 (le noyau composé) entre son état excité et le fondamental étant très élevé. Par contre, le nombre de voies de sorties de fission étant au plus de 3 ou 4, on ne peut négliger l'influence de ces interférences.

L'approximation revenant à négliger la contribution non-diagonale des voies gamma et donc de ne considérer, dans notre cas, que les interférences entre voies de fission et la voie de diffusion est la base du formalisme de Reich-Moore [67].

Les éléments de la matrice  $A^{-1}$  s'écrivent alors, en séparant les termes uniquement diagonaux de la voie gamma des autres :

$$A_{\lambda\mu}^{-1} = \left( E_{\lambda} - E + \Delta_{\lambda\gamma} - \frac{i}{2} \Gamma_{\lambda\gamma} \right) \delta_{\lambda\mu} + \sum_{c \neq \gamma} (L_c - B_c) \gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'} \quad (\text{II.42})$$

Il est alors possible de définir une matrice-R réduite (car définie dans un espace où les voies gamma sont exclues) pour un spin  $J$  :

$$R_{cc'}^J = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda c} \gamma_{\lambda c'}}{E_{\lambda} - E + \Delta_{\lambda\gamma} - i\Gamma_{\lambda\gamma}/2} \text{ avec } (c, c' \notin \gamma) \quad (\text{II.43})$$

Une matrice de collision réduite toujours considérée unitaire est recalculée d'après cette matrice-R réduite.

Dans le cadre de notre étude, en négligeant la voie fission, la seule voie de sortie pour cette matrice réduite est la voie de diffusion élastique. A partir de la relation (II.27), en ne considérant que des neutrons "s" et en choisissant les conditions aux limites telles que  $B_c = S_c$ , l'expression de la matrice de collision  $U$  se met sous la forme :

$$U_{nn}^J = e^{-2ika_n} \left\{ \frac{1 + ika_n R_{nn}^J}{1 - ika_n R_{nn}^J} \right\} \quad (\text{II.44})$$

avec  $a_n = R$ , rayon du noyau composé pour un neutron en voie d'entrée et :

$$R_{nn}^J = \sum_{\lambda} \frac{\gamma_{\lambda n}^2}{E_{\lambda} - E - i\Gamma_{\lambda\gamma}/2} \quad (\text{II.45})$$

C'est cette matrice-R réduite à une voie pour des neutrons "s" qui est utilisée dans le programme d'analyse REFIT [68] que nous avons utilisé (voir chapitre V).

Les sections efficaces se déduisent alors directement des équations (II.24) à (II.26).

## 2.4 Propriétés statistiques des paramètres de résonances

Ainsi que nous venons de le voir, la théorie formelle de la matrice-R permet d'exprimer les sections efficaces de réaction en fonction des paramètres  $E_{\lambda}$  et  $\gamma_{\lambda c}$  des niveaux d'énergie du noyau composé :

-Dans le domaine d'énergie où les résonances sont séparées, les paramètres  $E_{\lambda}$  correspondent aux énergies des résonances.

-Les largeurs partielles du noyau composé sont reliées aux amplitudes de largeur réduite  $\gamma_{\lambda c}$  et au facteur de pénétrabilité  $P_c$  par la relation (II.32) :

$$\Gamma_{\lambda c} = \gamma_{\lambda c}^2 \cdot 2P_c$$

Soit, dans le cas des neutrons "s" ( $l = 0$  et  $c = n$ ), puisque  $P_n = k \cdot a_n$  :

$$\Gamma_{\lambda n}(E_{\lambda}) = 2 \cdot k(E_{\lambda}) \cdot a_n \cdot \gamma_{\lambda n}^2 \propto \gamma_{\lambda n}^2 \cdot \sqrt{E_{\lambda}} \quad (\text{II.46})$$

Afin d'obtenir un paramètre indépendant de l'énergie, la largeur neutronique partielle réduite  $\Gamma_{\lambda n}^0$  d'une résonance est introduite et s'exprime pour des neutrons "s" comme :

$$\Gamma_{\lambda n}^0 = \Gamma_{\lambda n}(E_{\lambda}) \sqrt{\frac{1}{E_{\lambda}}} \propto \gamma_{\lambda n}^2 \quad (\text{II.47})$$

et de manière plus générale, en notant  $P_l$  la valeur de  $P_n$  pour des neutrons de moment orbital  $l$  :

$$\Gamma_{\lambda n}^l = \frac{a_n}{P_l} \Gamma_{\lambda n}(E_\lambda) \sqrt{\frac{1}{E_\lambda}} \propto \gamma_{\lambda n}^2 \quad (\text{II.48})$$

Pour la largeur radiative, la pénétrabilité  $P_c$  est considérée comme variant lentement en fonction de l'énergie et donc constante sur de faibles gammes d'énergie. Pour une voie  $c$  (c'est à dire pour une transition gamma primaire), on obtient :

$$\Gamma_{\lambda c} \propto \gamma_{\lambda c}^2 \quad (c \neq n) \quad (\text{II.49})$$

Dans un noyau lourd tel que  $^{237}\text{Np}$ , le nombre de niveaux est très élevé et la description de la décroissance du noyau composé peut être menée dans le cadre de la théorie statistique des réactions nucléaires. Le comportement statistique de l'espacement entre les résonances et de chaque largeur partielle (neutronique, radiative, mais également fission) peut alors être étudié.

#### 2.4.1 *Espacement moyen et densité de niveaux*

L'espacement entre deux niveaux successifs correspond à la différence entre les énergies des deux résonances correspondantes.

L'espacement moyen observé  $\langle D \rangle$  des niveaux du noyau composé est défini comme le rapport :

$$\langle D \rangle = \frac{E_{\max} - E_{\min}}{N - 1} \quad (\text{II.50})$$

avec

$N$ , nombre de résonances.

$E_{\max}$ , énergie de la dernière résonance.

$E_{\min}$ , énergie de la première résonance.

Toutefois, l'espacement moyen est déterminé de préférence, surtout pour  $N$  faible, à l'aide d'une régression linéaire sur l'histogramme donnant le nombre cumulé  $N$  de résonances en fonction de l'énergie  $E$  dont un exemple est donné sur la figure 108.

L'équation de la droite ainsi obtenue n'est autre que :

$$N(E) = b + \frac{1}{\langle D \rangle} \cdot E \quad (\text{avec } b \text{ constante}) \quad (\text{II.51})$$

$\rho^J(E)$ , la densité de niveau de spin  $J$  à l'énergie  $E$  est définie comme :

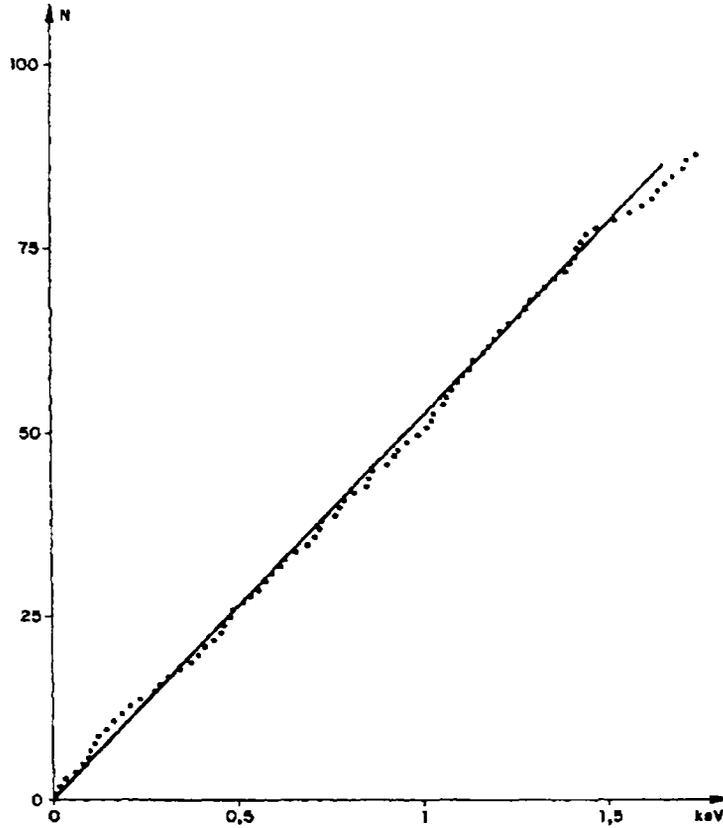


Fig.20 : Histogramme du nombre de résonance cumulé de  $^{238}\text{U}$  en fonction de l'énergie. La pente de la droite obtenue par ajustement correspond à  $\frac{1}{\langle D \rangle}$  [29].

$$\rho^J(E) = \frac{dN^J(E)}{dE} = \frac{1}{\langle D_E^J \rangle} \quad (\text{II.52})$$

avec

$N^J(E)$ , nombre de résonances de spin  $J$  à l'énergie  $E$ .

$\langle D_E^J \rangle$ , espacement moyen des résonances de spin  $J$  défini à l'énergie  $E$ .

Il existe plusieurs modèles théoriques donnant l'expression de la densité de niveau en fonction de l'énergie d'excitation des noyaux.  $\rho^J(E)$  est connue pour les niveaux proches du fondamental et sa détermination expérimentale dans des expériences de mesures de section efficace neutronique dans le domaine des résonances (soit pour une énergie d'excitation du noyau de plusieurs MeV) va permettre d'ajuster les différents paramètres des modèles théoriques. Développer les différentes modélisations théorique de la densité de niveau nous éloignerait du cadre de cette thèse et un point de départ pour étudier les approches les plus récentes peut être trouvé dans la référence [69].

Il est toutefois intéressant pour notre étude de noter que la dépendance du spin pour la densité de niveau a été déduite par Bethe [37] à partir du modèle du gaz de Fermi, puis affinée par Gilbert et Cameron [70] :

$$\rho^J \propto e^{-\frac{J^2}{2\sigma^2}} - e^{-\frac{(J+1)^2}{2\sigma^2}} \propto \sinh\left(\frac{J + \frac{1}{2}}{2\sigma^2}\right) \cdot e^{-\frac{(J+\frac{1}{2})^2}{2\sigma^2}} \quad (\text{II.53})$$

avec  $\sigma$ , facteur de coupure de spin dont la valeur moyenne est 4,5 pour les noyaux lourds tels que les actinides.

### 2.4.2 Distribution des espacements

Les espacements observés expérimentalement entre les résonances ne sont cependant pas répartis régulièrement sans être non plus distribués aléatoirement. Pour étudier cette distribution, la valeur moyenne  $\langle D \rangle$  n'est plus suffisante et il faut s'intéresser à chaque espacement  $D$ , ce qui signifie connaître l'ensemble des niveaux du noyau composé. L'hamiltonien du noyau n'étant pas connu, des hypothèses simplificatrices sont introduites sur la distribution des éléments de matrice le représentant.

Wigner a proposé de représenter l'hamiltonien du noyau par une matrice symétrique dont les éléments sont répartis au hasard [73]. Dans le cas très simplifié où la matrice est d'ordre 2, il a montré que cela revient à considérer la probabilité d'observer un niveau entre les énergies  $E_0 + D$  et  $E_0 + D + dD$  (avec  $E_0$ , l'énergie d'une résonance) non pas constante comme elle le serait dans le cas d'une distribution aléatoire des niveaux, mais proportionnelle à  $D$ , pour de faibles valeurs de celui-ci. En supposant que cette proportionnalité reste valable pour de grandes valeurs de  $D$ , la distribution des espacements pour une famille de résonances (c'est à dire pour des résonances de même spin et parité) s'exprime sous la forme :

$$P(x) \cdot dx = \frac{\pi}{2} \cdot x \cdot e^{-\frac{\pi}{4}x^2} \cdot dx \quad (\text{II.54})$$

avec  $x = \frac{D}{\langle D \rangle}$ , espacement réduit.

La valeur moyenne et la variance de cette distribution sont:

$$\langle x \rangle = 1 \quad (\text{II.55})$$

$$\text{var}(x) = \left(\frac{4}{\pi} - 1\right) \quad (\text{II.56})$$

D'où l'incertitude sur l'espacement moyen pour  $N$  résonances observées (en supposant que toutes les résonances sont vues) :

$$\frac{\Delta \langle D \rangle}{\langle D \rangle} = \sqrt{\frac{1}{N} \left( \frac{4}{\pi} - 1 \right)} \quad (\text{II.57})$$

ainsi que la valeur de l'espacement le plus probable :

$$D_m = \langle D \rangle \sqrt{\frac{2}{\pi}} \quad (\text{II.58})$$

L'expression (II.54) est connue sous le nom de loi de Wigner ou loi de répulsion de niveaux puisque la probabilité d'avoir des niveaux très proches est faible.

Toutefois, ceci n'est plus vrai s'il existe plusieurs familles de résonances. En effet, le spin et la parité des résonances peuvent avoir, dans ce cas, plusieurs valeurs distinctes et l'espacement moyen  $\langle D_{1+2} \rangle$  observé est en fait l'espacement pour un mélange de résonances appartenant à des familles différentes. Dans ce cas, l'expression de la distribution des espacements devient très complexe et ne s'annule plus en 0 : des résonances de famille différentes peuvent en effet se superposer.

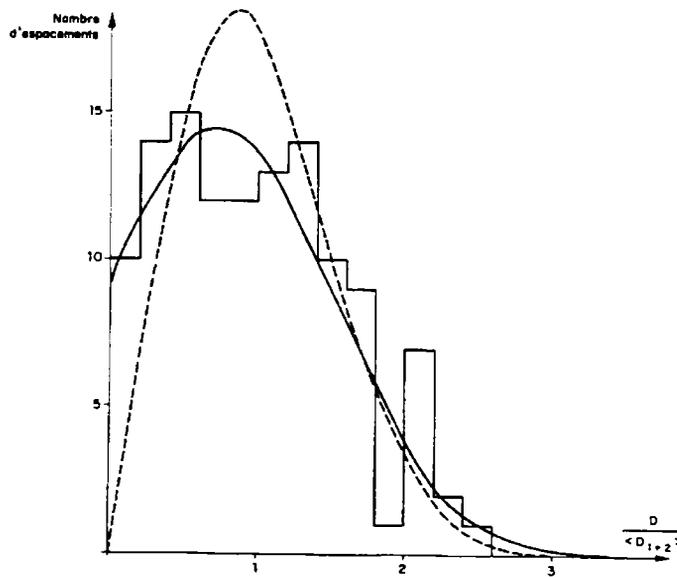


Fig.21 : Distribution de l'espacement réduit  $x = \frac{D}{\langle D_{1+2} \rangle}$  du  $^{239}\text{Pu}$  si on ne différencie pas les deux familles (coube en pointillé) et si on les distingue (courbe continue avec  $k = 3$ ) et comparaison avec les données expérimentales [29].

Dans le cas de neutrons "s" interagissant avec un noyau de spin  $I$  non-nul tel que le neptunium-237, il n'y a que deux familles (notée 1 et 2), une pour chaque spin ( $J = 2$  et  $J = 3$ ) et l'expression de la distribution des espacements s'écrit [29] :

$$P(x)dx = \frac{k}{(k+1)^3} \left[ \frac{\pi}{2} x e^{-\frac{\pi}{4} \frac{1}{(k+1)^2} x^2} \left( 1 - \operatorname{erf} \left( \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{k}{k+1} x \right) \right) + 2k(k+1) e^{-\frac{\pi}{4} \frac{(k^2+1)}{(k+1)^2} x^2} + \frac{\pi}{2} k^2 x e^{-\frac{\pi}{4} \frac{k^2}{(k+1)^2} x^2} \left( 1 - \operatorname{erf} \left( \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{1}{k+1} x \right) \right) \right] dx \quad (\text{II.59})$$

avec

$$\operatorname{erf}(z) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-z}^{+z} e^{-y^2} dy$$

$x = \frac{D}{\langle D_{1+2} \rangle}$ , espacement réduit.

$k = \frac{\langle D_1 \rangle}{\langle D_2 \rangle}$ , rapport des espacements  $\langle D_1 \rangle$  et  $\langle D_2 \rangle$  des deux familles de résonances 1 et 2.

$\langle D_{1+2} \rangle$  est l'espacement moyen correspondant au mélange :

$$\langle D_{1+2} \rangle = \left( \frac{1}{\langle D_1 \rangle} + \frac{1}{\langle D_2 \rangle} \right)^{-1}$$

La valeur de cette distribution pour  $x = 0$  est  $\frac{2k}{(k+1)^2}$  et n'est donc pas nulle.

L'allure de la distribution des espacements pour une seule et deux familles de résonances est représentée sur la figure 21.

### 2.4.3 Distribution des largeurs partielles de désexcitation

Les premières propositions de loi de distribution des largeurs partielles neutroniques réduites pour des neutrons "s" furent données en 1956 à partir des résultats de 14 noyaux alors disponibles [74]. Une analyse plus détaillée par la méthode du maximum de vraisemblance permit à C. E. Porter et R. G. Thomas [51] de déterminer que les amplitudes  $\gamma_{\lambda n}$  sont distribuées selon une gaussienne de valeur moyenne nulle et qu'une telle distribution doit résulter de la complexité des interactions dans un noyau composé lourd.

Dans ce cas, la distribution des largeurs neutroniques réduites autour de leur valeur moyenne suit une loi en  $\chi^2$  à 1 degrés de liberté, appelée loi de Porter et Thomas :

$$p(x) \cdot dx = \frac{1}{\sqrt{2\pi x}} \cdot e^{-\frac{x}{2}} \cdot dx \quad (\text{II.60})$$

$$\text{avec } x = \frac{\Gamma_{\lambda n}^l}{\langle \Gamma_{\lambda n}^l \rangle}$$

Cette loi doit être encore valable pour les autres amplitudes partielles, à condition de négliger les petites transitions finales, c'est à dire en considérant que la transition primaire emporte la quasi-totalité de l'énergie d'excitation.

Si le nombre de voies pour la diffusion élastique vaut 1, il n'en va pas de même pour la capture radiative ou la fission, et la largeur  $\Gamma_{\lambda c}$  observée n'est non pas la largeur d'une voie mais la largeur totale du mode de désexcitation  $c$ , c'est à dire la somme sur les différentes voies  $\alpha$  le constituant :

$$\Gamma_{\lambda c} = \sum_{\alpha=1}^{\nu} 2P_{\alpha} \cdot \gamma_{\lambda\alpha}^2 \quad (\text{II.61})$$

avec

$P_{\alpha}$ , facteur de pénétrabilité de la voie  $\alpha$ .  $P_{\alpha} = k \cdot a_{\alpha}$ , dans le cas de neutrons "s" ( $a_{\alpha}$  étant le rayon de la voie  $\alpha$ ).

$\nu$ , nombre de possibilité de désexcitation du noyau composé par le mode  $c$ .

Les hypothèses suivantes sont appliquées :

- $P_{\alpha}$  est constant dans le domaine d'énergie d'étude.

- $\langle \gamma_{\lambda\alpha} \rangle$  est constante pour tous les niveaux  $\lambda$  quelle que soit la voie de sortie  $\alpha$ .

-les corrélations entre les différentes voies  $\alpha$  peuvent être négligées.

Dans ce cas, les largeurs partielles sont distribuées selon une loi en  $\chi^2$  à  $\nu$  degrés de liberté (loi de Porter et Thomas généralisée) :

$$p(x, \nu) \cdot dx = \frac{\frac{\nu}{2}}{\Gamma(\frac{\nu}{2})} \left(\frac{\nu}{2}x\right)^{\frac{\nu}{2}-1} e^{-\frac{\nu}{2}x} \cdot dx \quad (\text{II.62})$$

avec

$\Gamma$  fonction factorielle et

$$x = \frac{\gamma_{\lambda c}^2}{\langle \gamma_{\lambda c}^2 \rangle} = \frac{\Gamma_{\lambda c}}{\langle \Gamma_{\lambda c} \rangle} (c \neq n) = \frac{\Gamma_{\lambda n}^l}{\langle \Gamma_{\lambda n}^l \rangle} \quad (\text{pour } \nu = 1) \quad (\text{II.63})$$

Les grandeurs caractéristiques de cette distribution sont :

$$\langle x \rangle = 1 \quad (\text{II.64})$$

$$\text{var}(x) = \frac{2}{\nu} \quad (\text{II.65})$$

La valeur la plus probable étant :

$$x_m = 1 - \frac{2}{\nu} \quad (\text{II.66})$$

Plus le nombre  $\nu$  de voies de sortie  $\alpha$  est grand et plus la dispersion autour de la valeur moyenne sera faible.

Ceci est particulièrement vrai pour le nombre de possibilités de désexcitation par rayonnement gamma (capture radiative). En effet, comme on peut le déduire de l'équation (II.61), la largeur radiative  $\Gamma_{\lambda\gamma}$  est en fait la somme des largeurs  $\Gamma_{\lambda\gamma f}$  associées aux transitions gamma primaires entre l'état  $\lambda$  et un état final  $f$  vérifiant chacune la loi de Porter et Thomas :

$$\Gamma_{\lambda\gamma} = \sum_f \Gamma_{\lambda\gamma f} \quad (\text{II.67})$$

Le nombre possible d'états finaux  $f$  étant très élevé dans le cas d'un noyau lourd tel que le neptunium, on s'attend donc à ce que :

$$\Gamma_{\lambda\gamma} \simeq \langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle \quad (\text{II.68})$$

Le nombre de niveaux d'énergie inférieure au premier niveau  $\mu$  au dessus de l'énergie de séparation du neutron est nettement supérieur à celui des niveaux compris entre  $\mu$  et  $\lambda$ .

De manière qualitative, la largeur radiative est donc attendue constante :

$$\langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle \simeq \langle \Gamma_{\mu\gamma} \rangle \simeq \text{constante} \quad (\text{II.69})$$

Ce point sera un peu plus détaillé dans la partie 2.4.5.

En réalité,  $P_\alpha$  peut varier selon les voies  $\alpha$ ,  $\langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle$  n'est pas tout à fait la même suivant le niveau et il peut exister des corrélations entre les voies  $\alpha$  ou encore entre les voies totales  $c$ . Par conséquent les valeurs  $\Gamma_{\lambda c}$  peuvent parfois ne pas coïncider avec les valeurs attendues par la distribution (II.62). Un formalisme matriciel plus complexe a été développé à cet effet par T.J. Krieger et C. E. Porter pour la fonction de distribution des largeurs de capture radiative [75].

Toutefois, la valeur moyenne  $\langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle$  ne variant que faiblement et les corrélations entre voies étant considérées peu nombreuses, la relation (II.68) est appliquée aux résonances dont la valeur de  $\Gamma_{\lambda\gamma}$  ne peut être déterminée expérimentalement.

Malgré le grand nombre de voies de sorties apparentes par fission, la distribution des largeurs partielles de fission suit une loi en  $\chi^2$  dont le degrés de liberté est en général inférieur à 4. Nous y reviendrons ultérieurement.

#### 2.4.4 *Largeur neutronique moyenne et fonction densité*

La largeur neutronique  $\Gamma_{\lambda n}$  variant comme la racine carrée de l'énergie du neutron incident (voir équation (II.48)), c'est plutôt la valeur moyenne sur les niveaux  $\lambda$  de la largeur neutronique réduite  $\Gamma_{\lambda n}^l$  qui est étudiée :

$$\langle \Gamma_{\lambda n}^l \rangle = \frac{1}{N} \sum_{E_{\min}}^{E_{\max}} \Gamma_{\lambda n}^l \quad (\text{II.70})$$

avec

$$\min \leq \lambda \leq \max$$

$N$ , nombre de résonances dont l'énergie est comprise entre  $E_{\min}$  et  $E_{\max}$ .

Pour  $N$ , suffisamment grand (sinon il faut tenir compte du facteur  $\frac{N-1}{N}$ ), la fonction densité  $S_l$  pour un moment orbital  $l$  est définie comme :

$$S_l = \frac{\langle g_l \cdot \Gamma_{\lambda n}^l \rangle}{\langle D_l \rangle} = \frac{1}{\Delta E} \sum_J \sum_{\lambda} g_{J,l} \cdot \Gamma_{\lambda n}^{l,J} \quad (\text{II.71})$$

avec

$\Delta E = E_{\max} - E_{\min}$ , plage d'étude en énergie.

$g_{J,l} = \frac{2J+1}{2(2l+1)(2I+1)}$ , facteur statistique de spin pour un neutron ( $s = \frac{1}{2}$ ) et pour  $l$  quelconque.

$\Gamma_{\lambda n}^{l,J}$ , largeur neutronique réduite pour une résonance de spin  $J$  et pour un moment orbital  $l$ .

Pour un  $l$  donné,  $S_l$  n'est autre que la pente de l'histogramme cumulé, sur la plage d'étude, des valeurs de la largeur neutronique réduite de chaque résonance multipliée par le facteur statistique de spin de la résonance. Dans le cadre du modèle optique,  $S_l$  est proportionnelle à la pénétrabilité du noyau pour des neutrons amenant un moment orbital  $l$ .

A partir de l'équation (II.57) et du fait que pour  $N$  résonances  $\frac{\Delta \langle \Gamma_{\lambda n}^l \rangle}{\langle \Gamma_{\lambda n}^l \rangle} = \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{N}}$  (équation (II.65) avec  $\nu = 1$ ), on obtient :

$$\frac{\Delta S_l}{S_l} = \sqrt{\left(\frac{4}{\pi} + 1\right) \frac{1}{N}} \quad (\text{II.72})$$

Aux énergies relativement faible où nous allons travailler et compte tenu des dimensions importante du noyau de  $^{237}\text{Np}$ , on ne pourra atteindre que les résonances d'onde "s" ( $l = 0$ ). Donc seule la valeur de  $S_0$  est considérée et si le spin est inclus dans la sommation sur  $\lambda$  :

$$S_0 = \frac{1}{\Delta E} \sum_{\lambda} g_J \Gamma_{\lambda n}^0 \quad (\text{II.73})$$

D'importants travaux ont été effectués dans le cadre du modèle optique pour prédire les valeurs de  $S_0$  en fonction du nombre de masse, à commencer par ceux de Feshbach, Porter et Weisskopf [47]. Une description du modèle optique dépassant le

cadre de ce travail, nous nous contenterons de la prédiction de l'ordre de grandeur de la fonction densité pour des neutrons "s" au voisinage de  $A = 240$  :

$$S_0 \sim 10^{-4} \quad (\text{II.74})$$

L'allure de la fonction densité  $S_0$  en fonction du nombre de nucléons est représentée sur la figure 22.

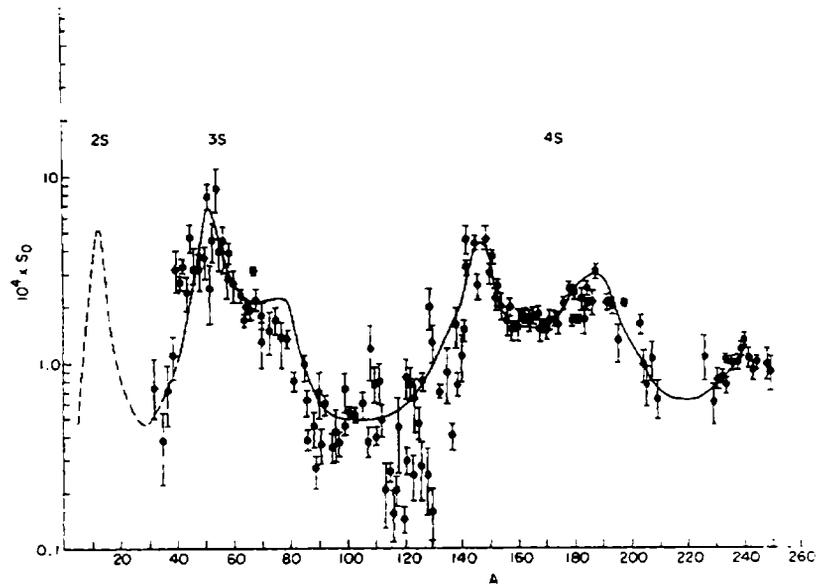


Fig.22 : Valeur de la fonction densité d'onde "s" en fonction du nombre de masse des noyaux et comparaison avec les prédictions du modèle optique [85].

#### *2.4.5 Variation de la largeur radiative moyenne en fonction de l'énergie et de la masse du noyau*

Il est maintenant reconnu que la largeur partielle radiative pour une transition individuelle (transition directe par rayonnement gamma entre un état initial  $\lambda$  et un état final  $f$ ) est en fait constituée de trois composantes s'ajoutant de manière quadratique : celle du modèle statistique, la contribution provenant des réactions semi-directes et celle issue des réactions directes. Nous nous limiterons ici uniquement au modèle statistique, les autres composantes étant considérées négligeables dans notre domaine d'étude.

Nous ne considèrerons ici que des ondes "s" et des transitions de type dipolaire électrique (E1), les transitions des autres types étant inférieures de plus de deux ordres de grandeurs pour des noyaux lourds.

Des modèles élaborés pour les transitions E1 ont été développés notamment par l'étude des résonances géantes observées par réactions photonucléaires. P. Axel [76] en déduit une expression pour le processus  $(n,\gamma)$  dans le domaine d'énergie proche de l'énergie de séparation du neutron. Entrer dans le détail de cette approche serait sortir du cadre de cette thèse et le lecteur intéressé est invité à consulter la référence [69] comme point de départ pour les études les plus récentes.

Des approches thermodynamiques avec l'aide du modèle en couche furent également tentées [77].

Dans toutes ces approches, pour un nombre de masse  $A$  donné, la dépendance énergétique de la largeur radiative totale moyenne s'écrit (plus de détails sur l'ensemble de ces expressions pouvant être trouvés dans la référence [78]) :

$$\langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle \propto \left( \frac{E^*}{a} \right)^X \quad (\text{II.75})$$

avec

$E^*$ , énergie d'excitation effective du noyau composé.

$a$ , paramètre de densité de niveaux dont la valeur est tabulée pour tous les noyaux.

$X$ , constante comprise selon les modèles entre 2 et 5.

Dans notre étude, l'énergie de neutrons étant négligeable devant l'énergie de séparation du neutron du noyau composé, il semble raisonnable de considérer  $E^*$  constante et donc également  $\langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle$  constante.

Dans le cas du neptunium-237 :

$$\langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle \simeq 40 \text{ meV} \quad (\text{II.76})$$

Aucune de ces théories ne parvient néanmoins à décrire parfaitement le comportement de  $\langle \Gamma_{\lambda\gamma} \rangle$  en fonction du nombre de masse, représenté figure 23 pour des neutrons "s".

#### 2.4.6 *Largeur de fission*

Dans ce travail, les largeurs de fission ne peuvent être déterminées expérimentalement. Toutefois, leurs valeurs sont utilisées comme paramètre constant dans l'analyse. Il paraît donc intéressant d'en donner une description rapide.

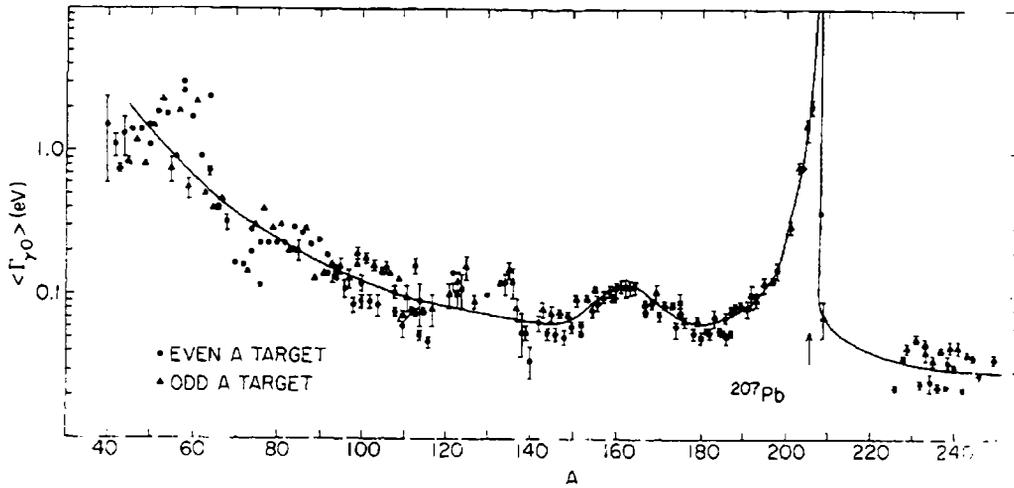


Fig.23 : Valeur de la largeur radiative moyenne pour des neutrons "s" en fonction du nombre de masse du noyau cible [85]. La courbe ne correspond qu'à un guide pour l'oeil et on notera le comportement singulier autour de  $A = 207$  (le plomb étant un noyau doublement magique) et de  $A = 164$ .

Les résultats expérimentaux montrent de fortes fluctuations de résonance à résonance de la largeur de fission, ce qui semble être en contradiction avec le grand nombre de voies de sorties apparentes par fission.

Bohr proposa en 1955 de redéfinir la notion de voie de sortie de fission [79]. Lors du processus de fission, il existe une étape importante dans laquelle l'énergie de déformation du noyau est maximale (point selle) et à partir de laquelle la fission du noyau va s'amorcer. La déformation emportant la plus grande partie de l'énergie du noyau, celui-ci se trouve donc dans un état peu excité. Les états quantiques disponibles à ce stade sont de ce fait peu nombreux et parmi eux se trouvent les états de transition vers la fission. Dans cette approche, le spectre des états de transition au point selle s'apparente aux spectres de déformations vibrationnelles et rotationnelles près de l'état fondamental. Les voies de sortie par fission peuvent donc être caractérisées par leur spin et parité. Aux faibles énergies où nous travaillons, seul un nombre limité de voies de fission sont excités.

La fission a donc principalement lieu si l'énergie d'excitation du noyau composé est supérieure au niveau de transition par fission. Dans ce cas, les résonances du noyau composé apparaissent dans les mesures de sections efficaces neutronique.

La pénétrabilité des barrières de fission est donnée par la formule de Hill et Wheeler [80] attribuant une forme parabolique idéalisée à la barrière en procédant par inversion d'un oscillateur harmonique à une dimension.

La formulation générale pour la largeur de fission pour un spin  $J$  et une parité  $\Pi$  s'écrit alors :

$$\langle \Gamma_f^{J^\pi} \rangle = \frac{\langle D^{J^\pi} \rangle}{2\pi} \sum_f \frac{1}{1 + e^{\frac{2\pi(E_f^{J^\pi} - E^*)}{\hbar\omega}}} \quad (\text{II.77})$$

avec

$\langle D^{J^\pi} \rangle$ , espacement des niveaux de même spin et de même parité.

$f$ , indice des différentes voies de fission

$E_f^{J^\pi}$ , hauteur de la barrière de fission, c'est à dire l'énergie de l'état de transition au point selle.

$E^*$ , énergie d'excitation effective du noyau composé.

Lors de la mesure de la section efficace de fission du neptunium-237 à Saclay en 1966, l'énergie  $E_f$  de la barrière de fission la plus basse était supposée légèrement supérieure (quelques centaines de keV) à l'énergie de séparation du neutron. La section efficace de fission attendue de ce fait extrêmement faible montra un comportement surprenant caractérisé par la présence de résonances d'amplitude anormalement grande et apparaissant par bouquets assez clairsemés entre lesquels la section efficace avait la valeur attendue pratiquement nulle ([81] et [82]). Un phénomène incompatible avec la description classique du processus de fission avait été mis pour la première fois en évidence et fut appelé section efficace de fission sous le seuil (car d'énergie inférieure à  $E_f$ ). Ce phénomène fut constaté par la suite par d'autres laboratoires et pour différents corps en particulier  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  et  $^{234}\text{U}$ .

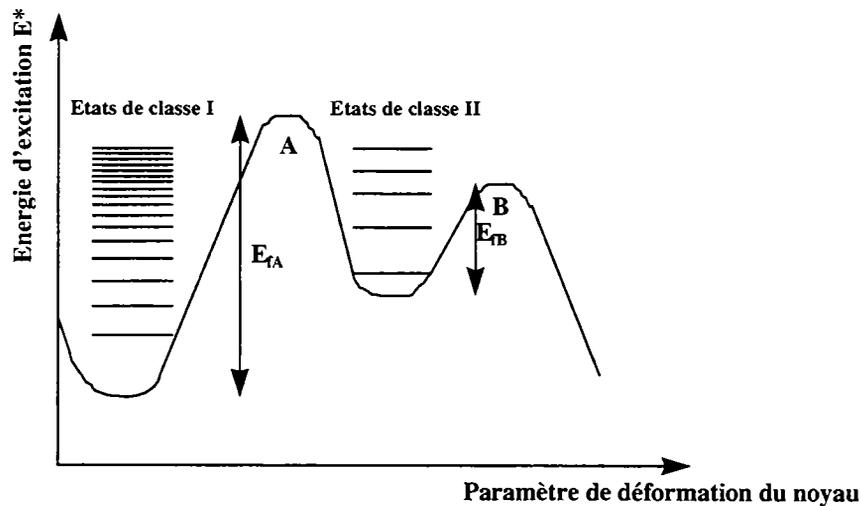


Fig.24 : Schéma d'une barrière de fission obtenue par correction d'effets de couches sur le modèle classique de la goutte liquide [64].

Lynn [30] et Weigmann [83] expliquèrent ce phénomène à partir des travaux de Strutinsky [84] sur le potentiel de déformation des noyaux lourds, montrant que les effets de couche du noyau pouvaient persister même à des déformations élevées. Ces effets engendrent une forme très différente pour la barrière de fission avec, dans le cas de  $^{237}\text{Np}$ , une structure à deux puits de potentiels séparés par deux barrières de fission représentée sur la figure 24.

Dans le premier puit de potentiel se trouvent les états excités du noyau composé à partir de l'état fondamental pour une faible valeur du paramètre de déformation : ils sont appelés états de classe I. Dans le deuxième puit de potentiel existe un ensemble d'états propres dits de classe II.

Sans entrer dans le détail de la théorie, les conclusions intéressantes pour notre cas sont les suivantes :

- pour une faible énergie d'excitation, la densité de niveaux de classe I est supérieure à la densité de niveaux de classe II.

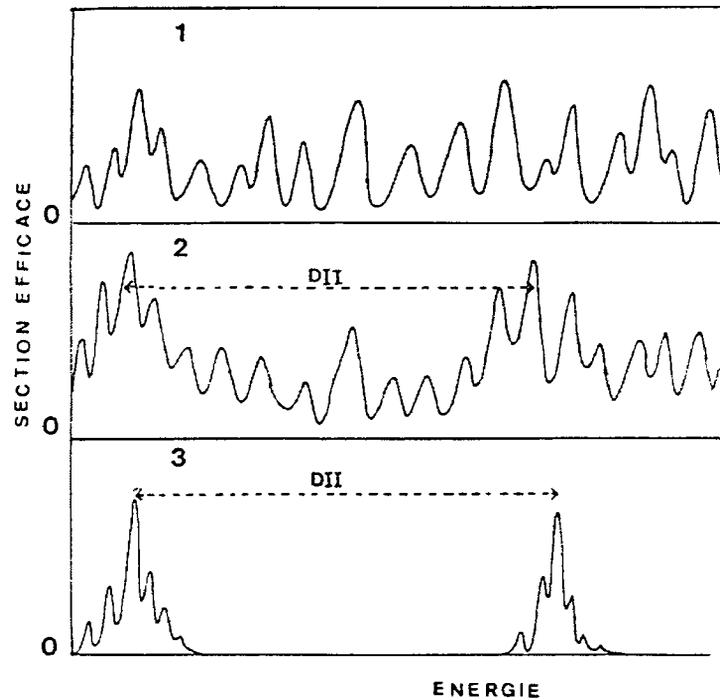


Fig.25 : Schéma des sections efficaces telles qu'elles doivent apparaître en présence d'une barrière de fission à deux maximums [64]. DII est l'espacement entre les niveaux de classe II. Sur la figure 1, l'effet de couplage états de classe I - états de classe II n'apparaît pas ( $E \gg E_f$ ). Sur la figure 2, le couplage a pour effet de moduler la section efficace de fission ( $E$  légèrement inférieur à  $E_f$ ). Sur la figure 3, les résonances (états de classe I) n'apparaissent qu'au voisinage immédiat des états de classe II ( $E \ll E_f$ ) : c'est le cas de  $^{237}\text{Np}$  dans notre plage d'énergie.

-il existe un couplage entre les niveaux de classes I et II qui correspondent aux valeurs propres de l'hamiltonien du système total. Ce couplage est maximal pour des niveaux de même spin et parité et ayant des énergies voisines. Ce couplage a pour effet d'augmenter la pénétrabilité de la barrière A pour les niveaux de classe I. La section efficace de fission a priori très faible pour des énergies comprises entre les niveaux de classe II se trouve de ce fait exacerbée au voisinage de l'énergie de ces niveaux surtout pour des résonances présentant même spin et parité que le niveau de classe II d'énergie proche. Selon le noyau et l'énergie des neutrons, ce couplage peut être plus ou moins important d'où des effets plus ou moins marqués sur la section efficace de fission comme l'illustre la figure 25.

-une conséquence importante à notre niveau est également l'existence d'une anti-corrélation entre les largeurs de fission et les largeurs neutroniques réduites, ce qui nécessite la prise en compte des valeurs des largeurs de fission dans notre étude notamment autour des énergies où l'influence des niveaux de classe II est sensible, soit pour des énergies de neutrons autour de 40, 119, 198, 231 eV, etc... [59].

L'expression de la valeur moyenne de fission est donc beaucoup plus complexe que ce que ne l'entendait la formule (II.77). Nous nous limiterons à la description qualitative précédente dans le cadre de cette thèse. Un point de départ pour une étude approfondie du sujet peut être trouvé dans la référence [85].

### 3 Effet Doppler

Dans la partie précédente, nous avons montré comment relier les paramètres de résonances aux sections efficaces. Toutefois, la section efficace ainsi obtenue ne correspond pas à la section efficace observée. En effet, le noyau cible a été considéré jusqu'ici immobile et libre dans le système du laboratoire. Or le noyau cible est toujours soumis à une agitation thermique (même à 0 K) et possède donc un mouvement propre (dans le système du laboratoire) qui peut de plus être influencé par des liaisons cristallines ou chimiques avec la structure l'environnant. L'énergie disponible dans le centre de masse va donc fluctuer, ce qui va se traduire par une dispersion de l'énergie de la réaction particulièrement visible au niveau des résonances.

Ce phénomène de déplacement relatif du noyau cible par rapport au neutron incident est appelé effet Doppler. Les différentes modélisations de l'effet Doppler peuvent se ramener à la convolution de la section par une fonction dépendant de l'énergie cinétique des neutrons et de la température : la fonction de transfert. Avant de décrire les différents modèles de l'effet Doppler, la fonction de transfert est introduite.

#### 3.1 Fonction de transfert

Revenons tout d'abord aux expressions des sections efficaces  $\sigma_{\text{nuc}}$  calculées dans le cadre de la théorie de la matrice-R. Ces sections efficaces sont fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé  $E^*$ . En prenant l'origine des énergies à l'énergie de séparation des neutrons  $S_n$ , on introduit l'énergie de la réaction  $E_x$ , définit comme :

$$E_x = E^* - S_n \quad (\text{II.78})$$

Lorsque le neutron interagit avec le noyau, une partie  $E'$  de l'énergie cinétique  $E$  du neutron est transférée en tant qu'énergie cinétique de recul du noyau et est donc perdue pour la réaction, d'où l'égalité suivante :

$$E_x = E - E' \quad (\text{II.79})$$

Pour relier les sections efficaces calculées  $\sigma_{\text{nuc}}(E_x)$  à la section efficace observée dans le système du laboratoire  $\sigma_{\text{obs}}(E)$  (ou section efficace effective), la fonction de transfert  $S(E, E', T)$  est introduite : elle correspond à la probabilité du transfert de l'énergie de recul  $E'$  au noyau pour un neutron incident d'énergie  $E$  et à une température  $T$  :

$$\sigma_{\text{obs}}(E) = \int_{-\infty}^E \sigma_{\text{nuc}}(E - E') \cdot S(E, E', T) \cdot dE' \quad (\text{II.80})$$

### 3.2 Modèle du gaz libre

Les premières approches de la description de cet effet ont été dans le cadre simple d'un noyau libre dans un gaz parfait et monoatomique. Ce premier modèle a de ce fait été appelé modèle du gaz libre.

Les premiers travaux pour calculer la section efficace observée pour une énergie de neutron et une température données furent ceux de Bethe [65] puis avec Placzek [38]. Toutefois, la formulation générale et sans approximation à l'aide d'une fonction de transfert est due à Solbrig [86].

#### 3.2.1 Calcul de la section efficace effective

L'énergie  $E_x$  disponible pour la réaction est en fait :

$$E_x = \frac{1}{2} \frac{mM}{m+M} \cdot v_{CM}^2 \quad (\text{II.81})$$

avec

$m$  et  $M$ , masses du neutron et du noyau cible.

$v_{CM}^2$ , vitesse relative entre le neutron et le noyau.

$$\vec{v}_{CM} = \vec{v} - \vec{u} \quad (\text{II.82})$$

avec

$\vec{v}$ , vitesse du neutron incident dans le référentiel du laboratoire :  $E = \frac{1}{2}mv^2$

$\vec{u}$ , vitesse du noyau dans le référentiel du laboratoire.

Or ce que nous mesurons est le taux de réaction  $N_R(E)$ , indépendant du référentiel considéré, ce qui nous amène, d'après l'équation (II.1), à l'égalité suivante :

$$v \cdot \sigma_{\text{obs}}(E) = v_{CM} \cdot \sigma_{\text{nuc}}(E_x) \quad (\text{II.83})$$

Dans le cas du modèle du gaz libre, la vitesse du noyau cible suit la distribution de Maxwell :

$$P(u) = \left( \frac{M}{2\pi k_B T} \right)^{\frac{3}{2}} e^{-\left( \frac{M}{2k_B T} u^2 \right)} \quad (\text{II.84})$$

avec

$k_B$ , constante de Boltzmann ( $= 8,617385 \cdot 10^{-5}$  eV/K [87]).

$M$ , masse du noyau cible.

$T$ , température du gaz.

L'équation (II.83) s'écrit alors :

$$v \cdot \sigma_{\text{obs}}(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} v_{CM} \cdot \sigma_{\text{nuc}}(E_x) \cdot P(u) du \quad (\text{II.85})$$

### 3.2.2 Décalage en énergie des résonances dû à la température

L'énergie transférée au noyau peut se mettre sous la forme :

$$E' = \frac{m}{m+M} \cdot E - \frac{m}{m+M} \cdot \frac{1}{2} Mu^2 + mvu_{\parallel} \quad (\text{II.86})$$

avec

$u_{\parallel}$ , composante de la vitesse du noyau parallèle.

$\frac{1}{2} Mu^2$ , énergie cinétique d'agitation thermique du noyau cible.

La valeur moyenne de  $u_{\parallel}$  étant nulle (la distribution de Maxwell est symétrique) et l'énergie cinétique moyenne d'un atome dans un gaz idéal à la température  $T$  valant  $\frac{3}{2} k_B T$ , l'équation précédente, moyennée sur toutes les vitesses du noyau, s'écrit :

$$E' = \frac{m}{m+M} \cdot E - \frac{m}{m+M} \cdot \frac{3}{2} k_B T \quad (\text{II.87})$$

Le premier terme de cette équation correspond à l'énergie de recul du noyau si celui-ci est au repos avant l'interaction. La seconde dépend de la température et l'énergie d'une résonance augmentera si la température diminue.

Des études sur ce sujet sont présentées dans la référence [92].

Dans le cas du neptunium, le décalage dû à la température attendu est d'environ  $0,5 \mu\text{eV} \cdot \text{K}^{-1}$ .

### 3.2.3 Fonction de transfert pour le modèle du gaz libre

A partir de l'équation (II.85), il est possible ([92]) de remonter à l'expression de la fonction de transfert :

$$S(E, E', T) = \frac{1}{\Delta \sqrt{\pi}} \left(1 + \frac{1}{A}\right)^{\frac{3}{2}} \sqrt{\frac{E-E'}{E}} \left[ \begin{array}{c} e^{-\frac{A}{k_B T} \left(\sqrt{E} - \sqrt{(E-E') \cdot \left(1 + \frac{1}{A}\right)}\right)^2} \\ - e^{-\frac{A}{k_B T} \left(\sqrt{E} + \sqrt{(E-E') \cdot \left(1 + \frac{1}{A}\right)}\right)^2} \end{array} \right] \quad (\text{II.88})$$

avec

$$A = \frac{M}{m} \quad (\text{II.89})$$

$$\Delta = 2\sqrt{\frac{\pi k_B T}{A} \cdot E} \quad (\text{II.90})$$

Cette relation est valable quelle que soit la forme de la section efficace  $\sigma_{\text{nuc}}(E_x)$ .

Dans notre cas,  $E > 0,3 \text{ eV}$ ,  $T < 300 \text{ K}$  et  $A = 237$ , soit :

$$\frac{A}{k_B T} \left( \sqrt{E} + \sqrt{(E - E') \cdot \left(1 + \frac{1}{A}\right)} \right)^2 \gg 1$$

La seconde exponentielle est donc parfaitement négligeable et la fonction de transfert devient :

$$S(E, E', T) = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{A}{\pi k_B T \cdot E}} \sqrt{1 - \frac{E'}{E}} \cdot e^{-\frac{4E'^2}{\Delta^2} \left(1 - \sqrt{\left(1 - \frac{E'}{E}\right) \left(1 + \frac{1}{A}\right)}\right)^2} \quad (\text{II.91})$$

Dans le domaine des résonances, l'agitation thermique du noyau cible est négligeable devant l'énergie du neutron incident donc, d'après l'équation (II.87) :

$$E' \simeq \frac{m}{m + M} E \ll E$$

L'expression se simplifie par développement limité de l'exposant de l'exponentielle et on obtient :

$$S(E, E', T) = \frac{1}{\Delta \sqrt{\pi}} \cdot e^{-\frac{(E' - \frac{E}{A})^2}{\Delta^2}} \quad (\text{II.92})$$

Cette expression de la fonction de transfert, revient à une convolution de la section efficace avec une gaussienne de largeur  $\Delta$ , appelée de ce fait largeur Doppler. En effet, l'équation (II.80) peut être également écrite sous la forme [91] :

$$\sigma_{\text{obs}}(E) = \int_0^{+\infty} \sigma_{\text{nuc}}(E') \cdot \frac{1}{\Delta \sqrt{\pi}} \cdot e^{-\frac{(E - E')^2}{\Delta^2}} \cdot dE' \quad (\text{II.93})$$

Dans la majorité des cas, les noyaux cibles ne sont pas dans une matière à l'état gazeuse mais sous forme solide dans laquelle chaque atome cible est lié aux autres atomes de cette matière par des liaisons cristallines. Le noyau cible bouge alors très peu comparativement à ce qui se passe dans un gaz. Pourtant la modélisation du gaz libre a pu rendre compte de manière assez fidèle de l'allure des sections efficaces observées à température ambiante, car en première approximation, c'est l'énergie

cinétique lors de la collision entre le neutron et le noyau qui importe et non le fait que le noyau soit libre ou lié. Toutefois l'élargissement prévu à 0 K est nul, alors qu'il y a tout de même une agitation thermique. L'étude d'un modèle cristallin apparaît donc nécessaire au moins à basses températures.

### 3.3 Modèles cristallins

On considèrera l'influence de la structure cristalline uniquement sur la section efficace d'absorption. En effet, d'après la figure 18, la section efficace de capture radiative est très supérieure à la section efficace de diffusion au niveau des résonances dont on veut extraire les paramètres et appliquer le modèle du gaz libre pour la diffusion apparaît de ce fait raisonnable.

Pour la section efficace de diffusion, une étude récente a montré que celle-ci peut se calculer de la même manière que pour la section efficace d'absorption [88].

#### 3.3.1 L'interaction neutron-noyau dans un cristal

Le neutron incident absorbé transfère une partie  $E'$  de son énergie cinétique  $E$  dans le mouvement du noyau. Le noyau étant ici dans une structure cristalline, cette énergie va être en fait transférée dans les degrés de liberté du cristal. Les vibrations de l'ensemble du cristal se traduisent par l'émission de phonons. La capture du neutron par le noyau va donc engendrer un passage entre un état d'excitation du cristal  $|\alpha\rangle$  d'énergie  $E_\alpha$  à l'état d'excitation  $|\beta\rangle$  d'énergie  $E_\beta$  avec :

$$E' = E_\beta - E_\alpha \quad (\text{II.94})$$

Le formalisme de la description des sections efficaces tenant compte des liaisons cristallines a été donné dès 1939 par Lamb [89]. Un résumé détaillé peut être trouvé dans les références [90] et [91].

En se replaçant dans le modèle du noyau composé, Lamb a divisé la réaction de capture radiative en trois états distincts :

$$|i\rangle \left\{ \begin{array}{l} \text{Etat initial} \\ \text{cristal} \\ \text{neutron incident} \\ \text{noyau cible} \end{array} \right. \left\{ \begin{array}{l} |\alpha_s\rangle \\ |\vec{p}\rangle \\ |A\rangle \end{array} \right. \quad |g\rangle \left\{ \begin{array}{l} \text{Etat intermédiaire} \\ \text{cristal} \\ \text{noyau composé} \end{array} \right. \left\{ \begin{array}{l} |n_s\rangle \\ |C\rangle \end{array} \right. \quad |f\rangle \left\{ \begin{array}{l} \text{Etat final} \\ \text{cristal} \\ \text{rayon gamma} \\ \text{noyau résiduel} \end{array} \right. \left\{ \begin{array}{l} |\beta_s\rangle \\ |\vec{k}\rangle \\ |B\rangle \end{array} \right.$$

avec

$|\alpha_s\rangle$ ,  $|n_s\rangle$  et  $|\beta_s\rangle$ , états du cristal durant l'interaction.

$\alpha_s$ ,  $n_s$  et  $\beta_s$ , nombre de phonons dans le mode de vibration  $s$ .

$\vec{p}$ , impulsion du neutron incident.

$A$ , noyau cible de nombre de masse  $A$ .

$C$ , noyau composé excité formé par la capture du neutron, soit de nombre de masse  $A + 1$ .

$B$  : le noyau composé se désexcite par l'émission d'un rayon gamma et se retrouve dans l'état  $B$ , son nombre de masse étant toujours  $A + 1$ . Seule l'émission du rayon gamma primaire est considérée.

$\vec{k}$ , vecteur d'onde du rayon gamma de désexcitation.

Lamb a considéré la formule de Breit et Wigner pour la section efficace de capture radiative dans le cas de neutrons "s" :

$$\sigma_{n,\gamma}(E) = \pi \bar{\lambda}^2 g_J \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{(E - E_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \quad (\text{II.95})$$

avec

$E$ , énergie du neutron incident.

$E_0$ , énergie de la résonance.

$\Gamma$ ,  $\Gamma_n$  et  $\Gamma_\gamma$ , respectivement largeur totale, largeur partielle neutronique et largeur partielle pour la résonance d'énergie  $E_0$ .

$g_J$ , facteur statistique de spin de la résonance.

A partir de cette formule, Lamb a considéré les approximations suivantes :

-le cristal forme un réseau de Bravais. C'est le cas pour  $\text{NpO}_2$  (dont la structure cristalline est constituée de trois réseaux cubiques faces centrées interpénétrées : structure fluorite) en considérant que la cellule élémentaire est constituée des trois noyaux.

-le noyau cible est dans son état fondamental avant et après l'interaction avec le neutron.

-les états du cristaux et du noyau sont indépendants, justifié par le fait que l'interaction nucléaire est de courte portée devant les dimensions cristallines.

-  $\vec{k}$  est indépendant de l'état final du cristal (énergie du gamma très supérieure à celle des vibrations du cristal).

-les largeurs partielles de réaction sont considérées indépendantes de l'état  $|n_s\rangle$  du cristal.

-le cristal est un système à  $3N$  oscillateurs ( $N$  dans chaque direction de l'espace) gouvernés par un potentiel harmonique, le potentiel réel d'un cristal étant parfaitement inconnu. Ce système peut être traité comme un système de  $3N$  oscillateurs harmoniques normaux et indépendants, chacun d'eux représentant un mode de vibration identifié par l'indice  $s$ . A chaque mode de vibration est associé une fréquence de vibration  $\omega_s$  (valeur propre de l'hamiltonien du cristal), un vecteur de polarisation  $\vec{e}_s(A)$  (fonction propre, dépendant du type de noyau  $A$  formant le cristal), un vecteur de propagation  $\vec{q}$  (le vecteur d'onde du phonon).

L'énergie de chaque état  $|\lambda\rangle$  ( $\lambda = \alpha, n$  ou  $\beta$ ) du cristal vaut alors :

$$E_\lambda = \sum_{s=1}^{3N} \hbar\omega_s \left( \lambda_s + \frac{1}{2} \right) \quad (\text{II.96})$$

avec

$\hbar\omega_s$ , énergie des phonons du mode de vibration  $s$ .

-l'état intermédiaire du cristal ne diffère de l'état initial que d'un phonon au plus :  
 $\alpha_s - 1 \leq n_s \leq \alpha_s + 1$

Ces approximations faites, Lamb a montré que la probabilité  $W(E)$  de réaction par capture radiative pour un neutron d'énergie  $E$  et pour un noyau dans une structure cristalline peut s'écrire :

$$W(E) = \frac{2\Gamma_n\Gamma_\gamma}{\Gamma} \operatorname{Re} \left[ \int_0^\infty e^{it(E-E_0+i\frac{\Gamma}{2})+g_C(t,E)} dt \right] \quad (\text{II.97})$$

où :

$$g_C(t, E) = \sum_s \frac{|\vec{p} \cdot \vec{e}_s(A)|^2}{2(M+m)\omega_s N} [(\bar{\alpha}_s + 1)e^{-it\omega_s} + \bar{\alpha}_s e^{it\omega_s} - 1 - 2\bar{\alpha}_s] \quad (\text{II.98})$$

avec

$\vec{p}$ , impulsion du neutron incident :  $E = \frac{p^2}{2m}$  avec  $m$ , masse du neutron.

$\vec{e}_s(A)$ , vecteur polarisation du noyau composé  $A$ .

$M, m$ , masses du noyau cible et du neutron incident.

$N$ , nombre de noyaux dans le cristal.

$\bar{\alpha}_s$ , nombre moyen de phonon dans l'état initial du cristal. Les phonons suivant la statistique de Bose-Einstein,  $\bar{\alpha}_s = (e^{\hbar\omega_s/k_B T} - 1)^{-1}$ .

$t$ , interprété usuellement comme le temps d'interaction.

La section efficace de capture radiative s'écrit alors :

$$\sigma_{n,\gamma}(E) = \pi\bar{\lambda}^2 g_J W(E) \quad (\text{II.99})$$

Cette formule de Lamb est la base actuelle de tous les calculs de l'effet Doppler produit par la vibration des noyaux dans une structure cristalline.

Lamb, puis Borgonovi et al. [93], ont relié par une fonction de transfert  $S_C(E, E', T)$ , de manière identique au modèle du gaz libre, les sections efficaces obtenues par tout formalisme aux sections efficaces observées dans le laboratoire à une température donnée :

$$\sigma_{\text{obs}}(E) = \int_{-\infty}^E \sigma_{\text{nuc}}(E - E') \cdot S_C(E, E', T) \cdot dE' \quad (\text{II.100})$$

avec

$E$ , énergie du neutron incident

$E'$ , énergie transférée au noyau.

La fonction de transfert s'exprime dans ce cas comme :

$$S_C(E, E', T) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{iE't} e^{g_C(t, E)} dt \quad (\text{II.101})$$

### 3.3.2 Spectre de fréquences pondéré

Toute l'information relative au cristal est en fait contenue dans la fonction  $g_C(t, E)$ . Si la structure cristalline est cubique (cas du  $\text{NpO}_2$  en ne prenant en compte que les atomes de neptunium), on peut montrer que cette fonction est indépendante de la direction du moment du neutron incident [93] et que :

$$g_C(t, E) = \frac{p^2}{2(m+M)} \sum_s \frac{|\vec{e}_s(C)|^2}{3N\hbar\omega_s} \left[ (\bar{\alpha}_s + 1) e^{-it\hbar\omega_s} + \bar{\alpha}_s e^{it\hbar\omega_s} - 1 - 2\bar{\alpha}_s \right] \quad (\text{II.102})$$

Cette fonction dépend du noyau composé  $C$ . Afin de tenir compte de cette dépendance, le spectre des vibrations du noyau (densité de probabilité des fréquences de vibration) pondéré par l'amplitude au carré des vecteurs de polarisation est introduit :

$$f_C(\hbar\omega) = \frac{1}{3N} \sum_s |\vec{e}_s(C)|^2 \delta(\hbar\omega - \hbar\omega_s) \quad (\text{II.103})$$

Notons dès à présent que dans le cas du dioxyde de neptunium, c'est le spectre de fréquence pondéré pour les vibrations des noyaux de neptunium dans le cristal  $\text{NpO}_2$  qu'il faut considérer, de même pour le spectre de fréquence de l'oxygène. Ce spectre de fréquence étant inconnu pour  $\text{NpO}_2$ , nous serons amené à utiliser un spectre de fréquence considéré similaire : celui du dioxyde d'uranium puisque structure cristalline et masse des noyaux sont très proches. Les spectres de fréquence du dioxyde d'uranium et de l'uranium pondéré dans le dioxyde d'uranium sont représentés sur la figure 26 [94].

La fonction  $g_C$  peut alors s'écrire sous la forme :

$$g_C(t, E) = R \int_0^{\hbar\omega_{\max}} \frac{f_C(\hbar\omega)}{\hbar\omega} \left[ \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \cdot (\cos(\hbar\omega \cdot t) - 1) - i \cdot \sin(\hbar\omega \cdot t) \right] d(\hbar\omega) \quad (\text{II.104})$$

avec

$\omega_{\max}$  fréquence de vibration maximale du spectre  $f_C(\hbar\omega)$ .

$R = \frac{m}{M+m} E$ , énergie de recul du noyau cible.

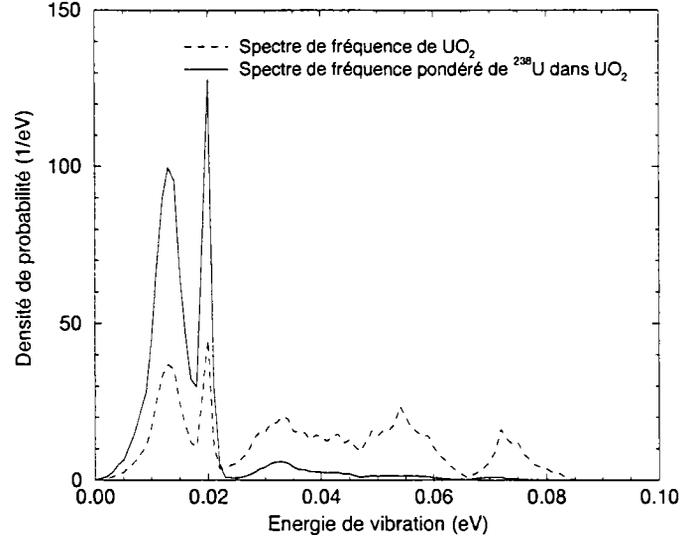


Fig.26 : Spectre de fréquence de  $\text{UO}_2$  d'uranium et de  $^{238}\text{U}$  pondéré dans  $\text{UO}_2$  en fonction de l'énergie de vibration  $\hbar\omega$  [96].

### 3.3.3 Cas limite du gaz libre

Dans des cristaux où les atomes sont faiblement liés entre eux, les constantes de force de rappel entre les noyaux du réseau sont petites et la fréquence  $\omega$  des oscillations de chaque atome autour de sa position initiale est faible.

Dans l'expression de la fonction  $g_C$ , il est alors possible de considérer le produit  $\hbar\omega \cdot t$  comme faible et d'effectuer un développement limité pour obtenir [95]:

$$g_C(t, E) = -R(it + \bar{\varepsilon}t^2) \quad (\text{II.105})$$

avec

$$\bar{\varepsilon} = \frac{1}{2} \int_0^{\hbar\omega_{\max}} f_C(\hbar\omega) \cdot \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \cdot \hbar\omega \cdot d(\hbar\omega) \quad (\text{II.106})$$

$\bar{\varepsilon}$  est l'énergie cinétique moyenne de vibration du noyau par degrés de liberté.

En utilisant l'expression (II.105) dans l'équation (II.101) avec  $A = \frac{M}{m} \gg 1$ , la forme asymptotique de la fonction de transfert devient alors :

$$S_C(E, E', T) = \frac{1}{\Delta_{eff} \sqrt{\pi}} e^{-\frac{(E' - \frac{E}{A})}{\Delta_{eff}^2}} \quad (\text{II.107})$$

et en posant

$$\bar{\varepsilon} = k_B \cdot T_{eff} \quad (\text{II.108})$$

on obtient :

$$\Delta_{eff} = 2\sqrt{\frac{\pi k_B T_{eff}}{A}} \cdot E \quad (\text{II.109})$$

Dans le cadre de cette approximation des faibles liaisons, l'expression de la fonction de transfert est semblable à celle obtenue dans l'équation (II.92) relative au modèle du gaz libre. La principale différence réside dans la température qui ici n'est plus la température thermodynamique  $T$ , mais une grandeur proportionnelle à l'énergie moyenne de vibration par degrés de liberté du cristal qui est appelée température effective  $T_{eff}$  et qui, quelle que soit la valeur de  $T$ , est supérieure à la température réelle :

$$T_{eff} \geq T \quad (\text{II.110})$$

Ce modèle est utilisé aujourd'hui dans les codes de calcul des sections efficaces.

Toutefois ce modèle est une approximation et Lamb a relié la condition de couplage faible aux paramètres des résonances. En effet, l'équation (II.97) peut s'écrire dans ce cas :

$$W(E) = \frac{2\Gamma_n \Gamma_\gamma}{\Gamma} \int_0^\infty \cos[(E - E_0 - R)t] \cdot \exp\left(-\frac{\Gamma}{2}t - R\bar{\epsilon}t^2\right) dt \quad (\text{II.111})$$

La condition de Lamb de couplage faible, c'est à dire pour que le modèle du gaz libre avec température effective soit applicable devient alors :

$$\Gamma + 2\sqrt{R\bar{\epsilon}} \gg \hbar\omega_{\max} \quad (\text{II.112})$$

Soit :

$$\Gamma + 2\sqrt{\frac{k_B T_{eff}}{A}} E \gg \hbar\omega_{\max} \quad (\text{II.113})$$

Afin d'avoir une condition forte, considérons  $\hbar\omega_{\max}$  comme étant égale à 10 fois la fréquence caractéristique du spectre de fréquence de  $\text{UO}_2$  :  $\hbar\omega_{\max} = 0,16$  eV.

Dans le cas du neptunium dans une structure cristalline  $\text{NpO}_2$  à 293 K, on utilise les valeurs suivantes :  $\Gamma \sim 40$  meV et  $T_{eff} = 308$  K (obtenu en calculant l'intégrale (II.106) avec le spectre de fréquence de l'uranium-238 pondéré dans l' $\text{UO}_2$ ).

La condition précédente devient alors :

$$E > 32 \text{ eV} \quad (\text{II.114})$$

A 15 K, avec  $T_{eff} = 99$  K, on obtient :

$$E > 100 \text{ eV} \quad (\text{II.115})$$

On s'attend donc à ce que les premières résonances du neptunium-237 sous forme de  $\text{NpO}_2$  soit mal décrite par le modèle du gaz libre avec température effective. La présence de grande résonances à basse énergie va donc nous permettre d'étudier l'effet Doppler et de vérifier si la formulation plus générale de Lamb, nécessaire dans ce cas, s'applique bien à nos données.

Au delà de quelques dizaines de eV, le modèle du gaz libre avec température effective devrait donner une représentation fidèle de l'élargissement Doppler.

### 3.3.4 Autres modèles

D'autres modèles ont été développés avant la théorie de Lamb et peuvent être considérés comme des cas limites de cette théorie, utilisant des spectres de fréquence simplifiés.

#### Modèle de Debye :

Ce modèle a été couramment utilisé. Le spectre de fréquence  $f(\omega)$  est considéré comme étant :

$$f(\omega) = 9N \left( \frac{\hbar}{k_B \theta_D} \right)^3 \cdot \omega^2 \quad (\text{II.116})$$

avec

$N$ , nombre de noyaux dans le cristal.

$\theta_D$ , température de Debye (pour l'uranium dans  $\text{UO}_2$  à 293 K, la valeur  $\theta_D = 300$  K est recommandée [97]).

Dans le cadre de ce modèle, la température effective peut être calculée par la formule suivante [89] :

$$T_{eff} = 24T \left( \frac{T}{\theta_D} \right)^3 \int_0^{\frac{\theta_D}{2T}} t^3 \coth(t) dt \quad (\text{II.117})$$

Dans un réacteur, le rapport  $\frac{T}{\theta_D}$  est en général inférieur à 3 et par développement limité sur l'équation précédente on obtient la formule suivante, couramment utilisée pour calculer la température effective :

$$T_{eff} = \frac{3}{8} \theta_D \coth \left( \frac{3 \theta_D}{8 T} \right) \quad (\text{II.118})$$

#### Modèle d'Einstein :

Dans un cristal d'Einstein, tous les noyaux sont supposés vibrer à la même fréquence  $\omega_0$  et le spectre de vibrations s'exprime alors :

$$f(\omega) = \delta(\omega - \omega_0) \quad (\text{II.119})$$

Plus de détails sur ce modèle sont donnés dans la référence [90].

# CHAPITRE III

## Dispositif expérimental

### 1 GELINA

#### *1.1 Généralités sur les sources de neutrons*

Il existe plusieurs types de sources de neutrons, décrites en détail dans les références [98] et [99]. Nous ne rappellerons donc ici que les grandes lignes.

Les sources de neutrons les plus simples sont des isotopes radioactifs tels que  $^{252}\text{Cf}$  produisant des neutrons par fission spontanée. Il est également possible d'utiliser les réactions  $(\alpha, n)$  ou  $(\gamma, n)$  en mélangeant des émetteurs  $\alpha$  ou  $\gamma$  avec un élément léger tel que le béryllium. Toutefois, le flux de neutrons émis reste faible. Des flux plus intenses, nécessaires pour les mesures de sections efficaces neutroniques, sont obtenus à l'aide de réacteurs nucléaires ou d'accélérateurs de particules.

Les réacteurs ont été largement utilisés par le passé, mais les accélérateurs de particules les ont supplantés en permettant d'obtenir des résolutions nettement supérieures. Les réacteurs restent néanmoins des outils de référence pour les mesures de sections efficaces dans le domaine thermique.

Pour produire des neutrons à partir d'accélérateurs, les particules chargées sont envoyées sur différents types d'élément :

- sur des éléments légers ou intermédiaires, les neutrons seront obtenus par réactions  $(p, n)$  ou  $(d, n)$ . Des accélérateurs de type Van de Graaff sont utilisés à cet effet, et permettent d'obtenir un flux de neutrons quasi monoénergétique, mais très intense, allant jusqu'à plusieurs dizaines de MeV.

- sur des éléments lourds, en envoyant un faisceau pulsé de particules chargées, les neutrons seront produits par évaporation, fission ou spallation. Le spectre obtenu est continu et couvre un large domaine d'énergie qui, à l'aide de modérateurs, peut

être étendu jusqu'au domaine thermique. Ce sont ces sources à spectre continu, dites "blanches", qui sont utilisées pour les mesures à haute résolution des sections efficaces neutroniques microscopiques [100].

## **1.2 La source de neutron pulsée GELINA**

Une de ces sources blanches de neutrons existe à Geel (Belgique), au sein de l'IRMM (Institute of Reference Materials and Measurements), un des Centres Communs de Recherche de la Commission Européenne. C'est auprès de cette source que les mesures des sections efficaces totale et de capture du neptunium-237 présentées dans ce travail ont toutes été réalisées. Le faisceau pulsé d'électrons de GELINA (Geel Electron LINear Accelerator) est envoyé sur une cible tournante d'uranium. Il en résulte une production de neutrons par bouffées successives. Les neutrons sont ensuite utilisés pour des mesures par la méthode du temps de vol. Cette installation est une des plus performantes pour les mesures de sections efficaces neutroniques différentielles en dessous de quelques MeV tant par la grande variété de longueurs de bases de vol disponibles que par l'excellente résolution au delà de quelques keV que lui procure l'épaisseur réduite des modérateurs et la très faible largeur d'impulsion du faisceau d'électrons.

### **1.2.1 L'accélérateur linéaire**

GELINA est un accélérateur linéaire d'électrons. Il a été construit en 1965 et fut maintes fois amélioré, notamment en 1976, 1984 et 1994. L'énergie maximale des électrons est de 150 MeV, la puissance du faisceau peut atteindre 14 kW à une énergie moyenne de 100 MeV et la fréquence des impulsions peut aller jusqu'à 800 Hz.

Les électrons sont produits avec une énergie initiale de 100 keV par un canon pulsé à électrons de type triode spécialement conçu pour délivrer des impulsions très courtes, de l'ordre de 10 ns. Les électrons passent ensuite par trois sections accélératrices. La première de ces sections, d'une longueur de 2 m, est à onde stationnaire de fréquence 3 GHz. Cette section a pour tâche principale de grouper les électrons en 30 micro-paquets de 10 ps, chacun étant séparé du suivant par une période de l'onde stationnaire (0,33 ns). Durant ce regroupement, les électrons sont également accélérés jusqu'à une énergie de 20 MeV, soit à une vitesse proche de celle de la lumière. Les deux autres sections accélératrices, longues de 6 m chacune, sont à ondes progressives et transmettent aux paquets d'électrons l'énergie électromagnétique qu'elles ont emmagasinée. La période de rechargement de cette énergie conditionne en bonne partie la fréquence de fonctionnement de l'accélérateur et vaut au minimum 1,1  $\mu$ s. Chaque micro-paquet d'électrons emmenant une

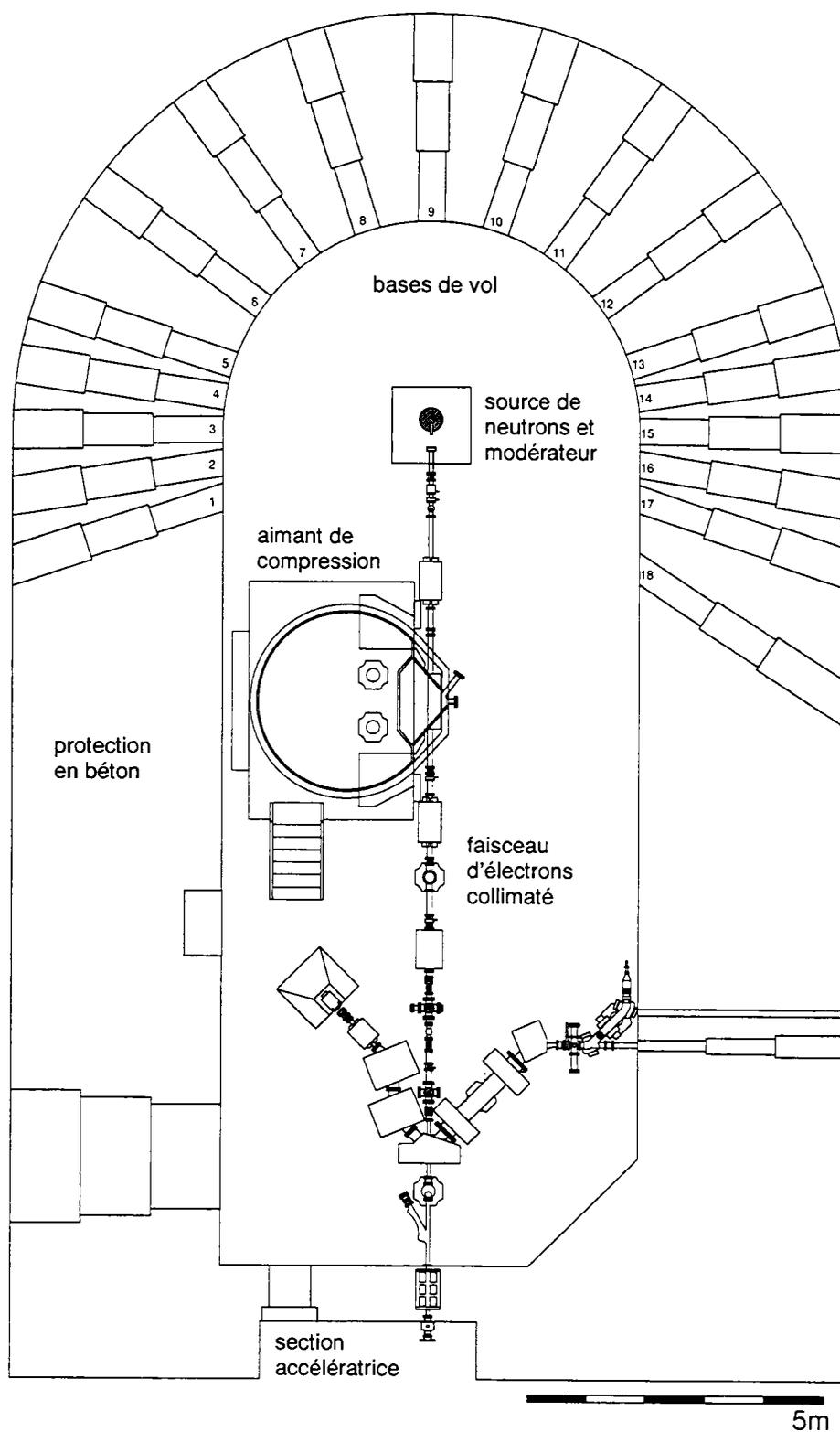


Fig.27 : Hall des cibles de GELINA

partie de l'énergie stockée dans les sections, l'énergie disponible pour le micro-paquet suivant est moindre. Aussi, l'énergie moyenne des électrons diminue-t-elle linéairement (au premier ordre) de 140 MeV pour le premier micro-paquet à environ 70 MeV pour le dernier, la largeur d'impulsion totale avoisinant toujours 10 ns. Le paquet d'électrons pénètre ensuite dans le hall des cibles représenté figure 27.

### 1.2.2 L'aimant de compression

A partir des caractéristiques de ce faisceau d'électrons, un système de compression magnétique unique en son genre a été installé à la sortie des sections accélératrices en 1984 [101]. GELINA peut fonctionner avec ou sans compression du faisceau d'électrons, car si celle-ci entraîne un gain notable sur la longueur de l'impulsion, elle provoque également une perte supplémentaire d'électrons qui se traduit par une diminution d'environ 25 % du flux moyen de neutrons.

Afin d'être compressé, le faisceau d'électrons passe à travers un aimant de déviation de  $360^\circ$  où ils ne font qu'un seul tour. Pour un champ magnétique donné de l'aimant, le rayon de la trajectoire de chaque électron dépend uniquement de sa quantité de mouvement et donc, puisqu'ils sont tous relativistes, de son énergie. La figure 28 illustre de manière très simplifiée le fonctionnement de l'aimant de compression.

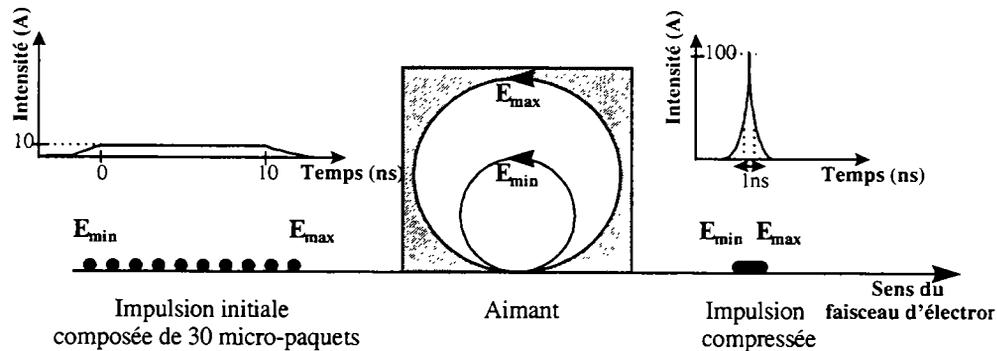


Fig.28 : Principe de l'aimant de compression du faisceau d'électrons de GELINA

Les électrons du premier micro-paquet, ayant la plus grande énergie, font le plus grand tour, ce qui leur prend environ 20 ns, tandis que ceux du dernier micro-paquet ne mettent que 10 ns à effectuer leur tour dans l'aimant. Les différents micro-paquets

d'électrons se trouvent ainsi regroupés à la sortie de l'aimant, la largeur totale à mi-hauteur de l'impulsion pouvant être réduite jusqu'à environ 1 ns.

### 1.2.3 Cible

Une fois l'aimant de compression traversé, le faisceau d'électrons passe dans un dernier quadripôle magnétique qui permet d'assurer sa focalisation puis traverse un collimateur avant de frapper la cible rotative [102], composée d'un mélange d'uranium appauvri et de 10 % de molybdène et dont une vue de coupe est représentée sur la figure 29. La cible étant tournante, l'énergie du faisceau d'électrons de 12 kW est dissipée sur toute sa surface. La cible est également refroidie par un flux de mercure.

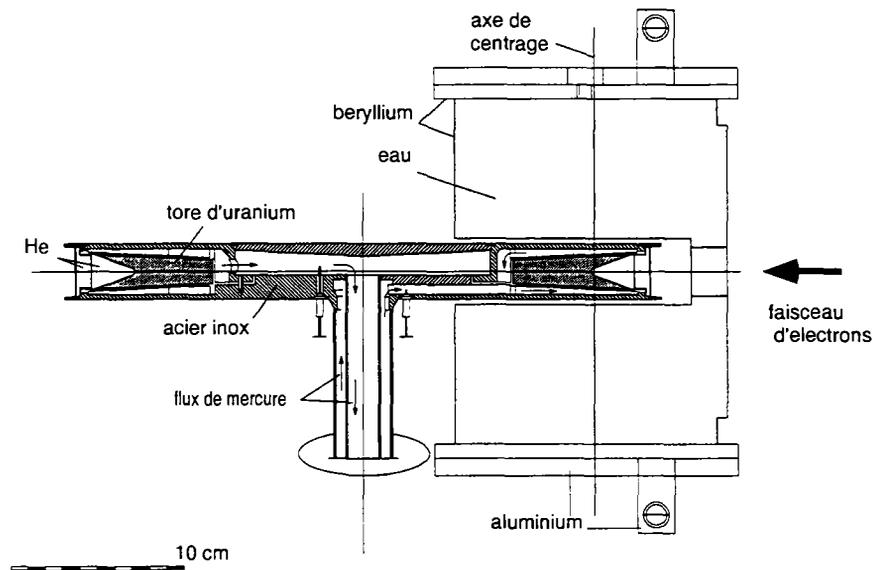


Fig.29 : Vue de coupe de la cible rotative d'uranium et des modérateurs de GELINA.

Lorsqu'ils arrivent sur la cible, les électrons produisent des rayons gamma de freinage ("Bremsstrahlung") qui vont produire des neutrons par réactions photo-nucléaires ( $\gamma, n$ ) et, dans une moindre mesure, par photo-fission ( $\gamma, f$ ). Le spectre en énergie des neutrons est centré autour de 1 à 2 MeV. Seule une faible proportion des neutrons possède une énergie inférieure à 100 keV qui est la plage utile pour nos mesures. Le nombre de neutrons de basse énergie doit donc être augmenté à l'aide de modérateurs.

### 1.2.4 Modérateurs

Le rôle des modérateurs est de ralentir les neutrons provenant de la cible d'uranium par diffusion élastique sur des noyaux légers. Les modérateurs utilisés lors de nos expériences sont constitués de deux boîtes de béryllium, de 4 cm de large et d'une dizaine de haut, remplies d'eau. Situés de part et d'autre du point d'impact entre le faisceau d'électrons et la cible, les modérateurs permettent d'obtenir un spectre de neutrons, représenté figure 30, dont la forme est une maxwellienne centrée sur le point thermique (0,025 eV) et possédant une queue approximativement en  $1/E$  dans le domaine épithermique [103].

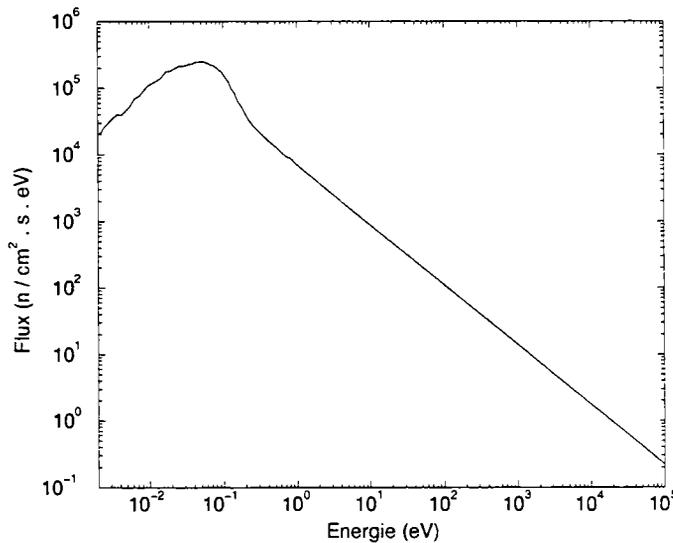


Fig.30 : Spectre de neutrons après modération à 12,85 m dans la base de vol 5 pour un fonctionnement de l'accélérateur à 800 Hz avec compression [103].

Dans nos mesures, les neutrons qui ne sont pas modérés (ceux émis dans le plan de la cible) sont diffusés par des écrans de cuivre et de plomb placés entre la cible et l'entrée des bases de vol. Par conséquent, seuls les neutrons issus des modérateurs atteindront les détecteurs. Les modérateurs sont donc, de cette manière, la véritable source d'émission des neutrons.

### 1.2.5 Les moniteurs

Deux détecteurs de neutrons (chambres à bore  $\text{BF}_3$ ), appelés  $M_1$  et  $M_2$  sur la figure 31, sont placés au dessus de la cible.  $M_1$  est pratiquement à la verticale du point d'impact entre le faisceau d'électrons et la cible alors que  $M_2$  tient une position plus latérale.

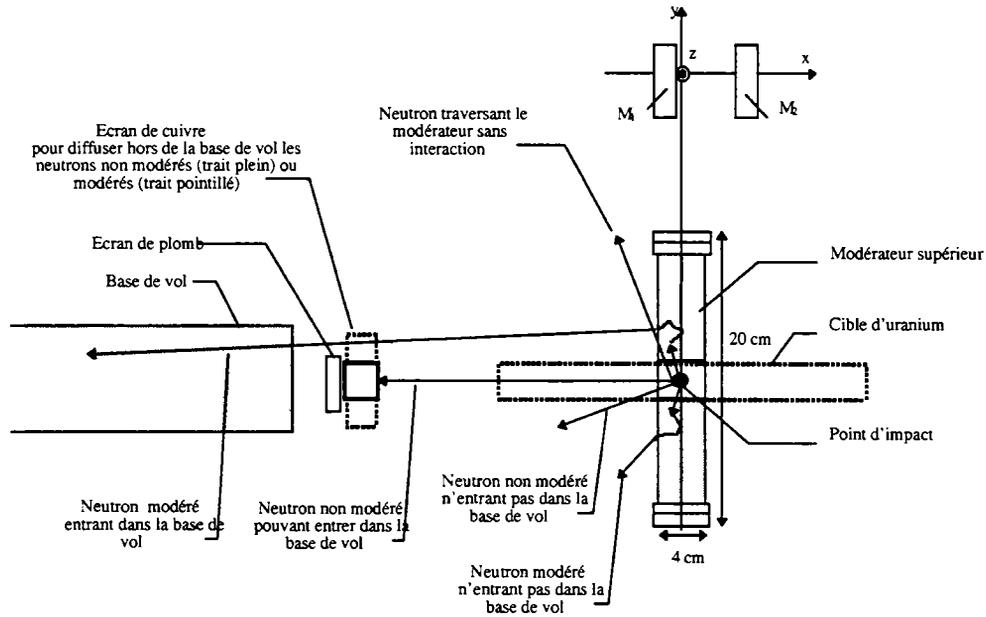


Fig.31 : Schéma de principe des différents parcours des neutrons et de la position des modérateurs dans le hall des cibles de GELINA

Ces détecteurs font office de moniteurs du faisceau de neutrons. En effet, l'information donnée par les moniteurs est une valeur intégrale en temps et en énergie du flux de neutrons.

Il est important de noter que le flux  $\varphi_{ref}$  vu par les moniteurs n'est pas le même flux que celui vu par les échantillons dont on veut mesurer les sections efficaces. En effet, les moniteurs sont placés derrière plusieurs centimètres de béton léger qui ralentissent les neutrons. Le domaine d'intégration en énergie est également différent puisque les fenêtres en énergie utilisées pour les détecteurs dans les bases de vol diffèrent de celles des moniteurs.

### 1.2.6 Les bases de vol

Le hall des cibles est, comme la figure 27 l'a montré, entouré par une épaisseur de 3,5 m de béton. L'enceinte présente 18 ouvertures occultables donnant sur différentes bases de vol. Les neutrons étant émis dans un angle solide de  $4\pi$ , seule une petite portion d'entre eux pénètrent dans les bases de vol.

Peu avant l'entrée de ces bases de vol, différents écrans peuvent être disposés entre la base de vol et la source (la cible d'uranium ou les modérateurs). Ces écrans, schématisés sur la figure 31, sont de deux types. Tout d'abord des écrans en cuivre qui diffusent les neutrons hors de la base de vol. Ils permettent donc de sélectionner la source des neutrons vue par la base de vol. En effet, si les écrans de cuivre masquent les modérateurs, les neutrons utilisés seront directement issus de la cible d'uranium et leur énergie moyenne sera de quelques MeV. Si les écrans masquent au contraire la cible d'uranium, seuls les neutrons modérés pourront pénétrer dans la base de vol. Des écrans de plomb sont parfois également placés entre la base de vol et la cible d'uranium afin d'atténuer l'intense rayonnement gamma émis lors de l'interaction du paquet d'électrons avec la cible d'uranium.

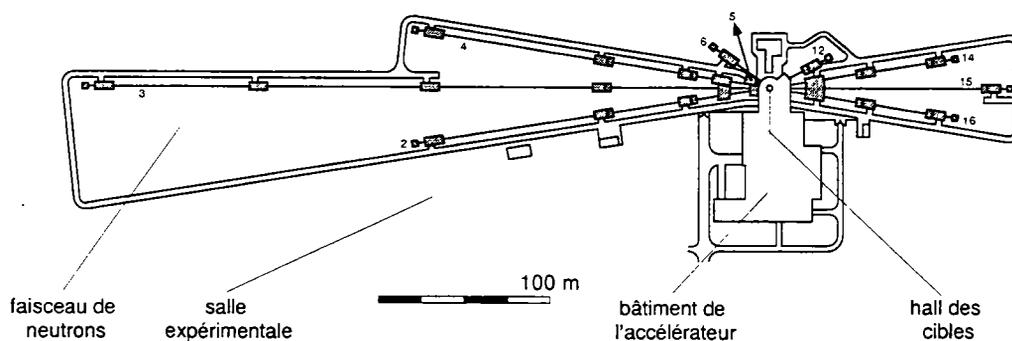


Fig.32 : Schéma des différentes bases de vol de GELINA

Les bases de vol sont constituées de tubes d'aluminium sous vide primaire contenant différents collimateurs en plomb, cuivre et paraffine borée (le bore 10 possédant une grande section efficace de capture pour les neutrons thermiques). Les bases de vol se prolongent à l'extérieur du hall des cibles et donnent sur diverses salles expérimentales placées à des distances pouvant aller jusqu'à 400 m. C'est dans ces salles que sont placés les échantillons à mesurer ainsi que l'ensemble de l'appareillage de détection et de premier traitement des signaux. La figure 32 montre les différentes bases de vol et leurs salles expérimentales. Pour les mesures de transmission, nous avons utilisé les bases de vol 2 et 4, alors que la base 15 fut dédiée aux expériences de capture.

## 2 Temps de vol et résolution

### 2.1 Méthode du temps de vol

#### 2.1.1 Principe

Pour mesurer des spectres de neutrons sur une certaine gamme d'énergie, la technique du temps de vol est couramment utilisée. Le principe est très simple puisqu'il s'agit de mesurer le temps mis par le neutron pour parcourir la distance entre la source et le lieu de détection.

La relation entre le temps de vol  $t$  mis par un neutron, de masse  $m$ , pour parcourir une distance  $L$  et son énergie cinétique  $E$  est :

$$E = mc^2 \left( \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}} - 1 \right) \text{ avec } \beta = \frac{v}{c} = \frac{L}{ct} \quad (\text{III.1})$$

avec

$v$  vitesse du neutron

$c$  vitesse de la lumière

Pour des énergies cinétiques inférieures à quelques keV, comme dans le cas de nos mesures, les neutrons ne sont pas relativistes et l'équation (III.1) se simplifie en :

$$E = \frac{1}{2}m \left( \frac{L}{t} \right)^2 \quad (\text{III.2})$$

En utilisant les valeurs précises données dans la référence [104], à savoir :

-vitesse de la lumière :  $c = 299.792458 \text{ m}/\mu\text{s}$

-masse du neutron :  $mc^2 = 939.56563 \text{ MeV}$

on obtient, avec  $E$  en eV,  $L$  en m et  $t$  en  $\mu\text{s}$  :

$$E = 5227,039 \cdot \left( \frac{L}{t} \right)^2 = \left( 72,29826 \cdot \frac{L}{t} \right)^2 \quad (\text{III.3})$$

#### 2.1.2 Mesure du temps de vol

Pour mesurer un temps, il faut un instant de référence. Pour chaque impulsion du faisceau d'électrons, un signal (le Pretrigger) émis lors de l'accélération des électrons réinitialise toute l'acquisition. L'acquisition se déclenchera à l'instant  $T_0$  (correspondant à l'instant 0 pour le système d'acquisition) où lui est envoyé un signal, appelé  $T_0$ , délivré par GELINA juste avant que le faisceau d'électrons atteigne la

cible. Les neutrons, créés peu après, parcourent la distance de vol  $L$  et sont détectés à des temps  $T_n$ . La valeur  $T_n - T_0$  est attribuée à un canal par le codeur en temps et est appelée temps de vol.

Toutefois, on ne connaît pas exactement l'instant de création des neutrons, postérieur à  $T_0$ .

On utilise pour cela l'intense rayonnement gamma de "Bremstrahlung", appelé flash gamma, créé lors de l'interaction entre le faisceau d'électrons et la cible d'uranium. Les différents écrans placés entre la cible et le(s) détecteur(s) atténuent mais n'arrêtent pas le flash gamma détecté à l'instant  $t_0$  (à ne pas confondre avec le  $T_0$ ). Détecté à une distance  $L$  de la source, l'instant réel de création du flash gamma et donc des neutrons est  $t_0 - T_\gamma$  où  $T_\gamma$  est le temps mis par la lumière pour parcourir la distance  $L$ .

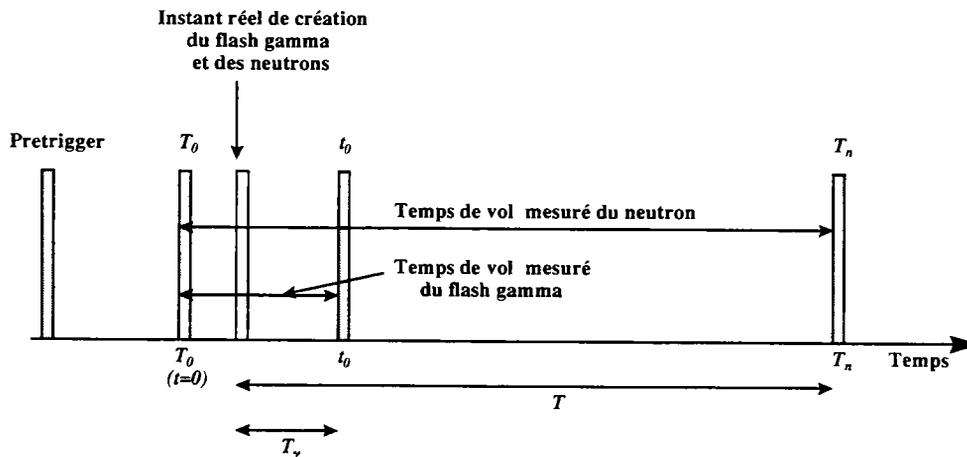


Fig.33 : Succession des signaux intervenant dans la mesure du temps de vol des neutrons à GELINA.

La réelle valeur du temps de vol d'un neutron est donc :

$$T = (T_n - T_0) - (t_0 - T_0) + T_\gamma = T_n - t_0 + \frac{L}{c} \quad (\text{III.4})$$

avec, comme indiqué sur la figure 33,

$(T_n - T_0)$ , temps de vol mesuré du neutron.

$(t_0 - T_0)$ , temps de vol mesuré du flash gamma.

$T_n$ , instant de détection du neutron ou de la réaction associée au neutron.

$T_0$ , instant de sortie des électrons de l'accélérateur.

$t_0$ , instant de détection du flash gamma.

$T_\gamma = \frac{L}{c}$ , temps de parcours du flash gamma entre sa création et sa détection.

$L$ , distance de vol.

$c$ , vitesse de la lumière.

Cependant, les valeurs du temps de vol et de la distance sont soumises à des incertitudes d'origines diverses comme nous allons le voir dans le paragraphe suivant.

## 2.2 La résolution en énergie

Les équations (III.2) et (III.3) montrent que, indépendamment de l'effet Doppler, la résolution en énergie des mesures en temps de vol est affectée par toute incertitude expérimentale relative à la longueur de la base de vol ou à la mesure du temps de vol. L'incertitude relative sur l'énergie est déduite facilement de l'équation (III.3) :

$$\frac{\Delta E}{E} = 2 \sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)^2} \quad (\text{III.5})$$

soit, en utilisant les unités précédentes pour le temps (en  $\mu\text{s}$ ) et l'énergie (en eV) :

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{2}{L} \cdot \sqrt{\frac{E}{5227.039} \cdot \Delta t^2 + \Delta L^2} \quad (\text{III.6})$$

Pour étudier de manière précise l'effet Doppler et obtenir des paramètres de résonances les plus exacts possibles, il est nécessaire de bien connaître cette résolution afin de pouvoir en donner une représentation fiable dans le programme d'analyse REFIT [68] qui a été utilisé dans le cadre de ce travail. Dans REFIT, les fonctions représentant les différents phénomènes dégradant la résolution sont convoluées numériquement afin d'obtenir la forme de la résolution  $R(E)$  pour une énergie de neutron donnée.

Les différents spectres neutroniques (transmission et taux de capture, dans notre cas) sont affectés par la résolution expérimentale. Le spectre obtenu est en fait le résultat de la convolution de la grandeur que l'on cherche à déterminer par la résolution expérimentale.

$$A_{\text{exp}}(E) = \int_0^{+\infty} A_{\text{reel}}(E') \cdot R(E, E') \cdot dE' \quad (\text{III.7})$$

avec

$E$ , énergie cinétique des neutrons.

$A_{\text{exp}}(E)$ , spectre neutronique mesuré.

$A_{\text{reel}}(E)$ , spectre neutronique réel, c'est à dire non affecté par la résolution expérimentale..

$R(E)$ , résolution expérimentale, produit de convolution de ses différentes contributions :  $R(E) = R_i(E) * R_j(E) * \dots$  avec  $R_i(E)$ , contribution à la

résolution expérimentale du phénomène  $i$ .

Rappelons que l'effet Doppler n'est pas contenu dans cette résolution expérimentale et qu'il correspond à une convolution de la section efficace avec une fonction proche d'une gaussienne (dans le modèle simplifié du gaz libre) et non de la transmission ou du taux de capture.

Nous allons maintenant décrire les processus affectant la résolution expérimentale. Pour chacun d'eux, nous donnerons l'allure de la résolution qui en résulte dans la modélisation par REFIT pour une expérience de transmission à 50 m et pour quelques énergies de notre plage d'étude.

### 2.2.1 La largeur d'impulsion du faisceau d'électrons

La durée de la bouffée de neutrons, pour une énergie donnée, est directement corrélée à la largeur d'impulsion du faisceau d'électrons. Elle engendre donc une incertitude quant à l'instant exact du temps d'émission des neutrons. La compression du faisceau d'électrons revêt ici toute son importance.

Tableau 3 : Equivalence en distance pour plusieurs énergies de la largeur à mi-hauteur de la résolution (1,5 ns dans le cas d'un faisceau compressé et 15 ns sinon) due à la largeur d'impulsion du faisceau d'électrons, dans le cas d'une longueur de vol de 49,34 m.

Energie (eV)	Largeur à mi-hauteur pour la résolution (cm)	
	Faisceau compressé (1,5 ns)	non compressé (15 ns)
1	0,002	0,02
10	0,007	0,07
100	0,021	0,21
500	0,046	0,46
1000	0,066	0,66

Nous avons utilisé deux largeurs d'impulsion dans nos mesures : 1,5 ns (faisceau compressé) et 15 ns (faisceau non compressé). Dans REFIT, la forme du faisceau d'électrons est décrite par un trapèze. La résolution aura donc une forme trapézoïdale dont la largeur à mi-hauteur sera de 1,5 ns et 15 ns respectivement (voir figure 34).

La largeur de la résolution due à la durée de l'impulsion est retranscrite en incertitude sur la distance de vol des neutrons pour plusieurs énergies de notre plage d'étude dans le tableau 3.

Comme nous le verrons dans ce qui suit, pour notre gamme d'énergie (en dessous de 1 keV) et dans le cas de nos expériences, la largeur du faisceau joue très peu sur la résolution totale.

### 2.2.2 La cible

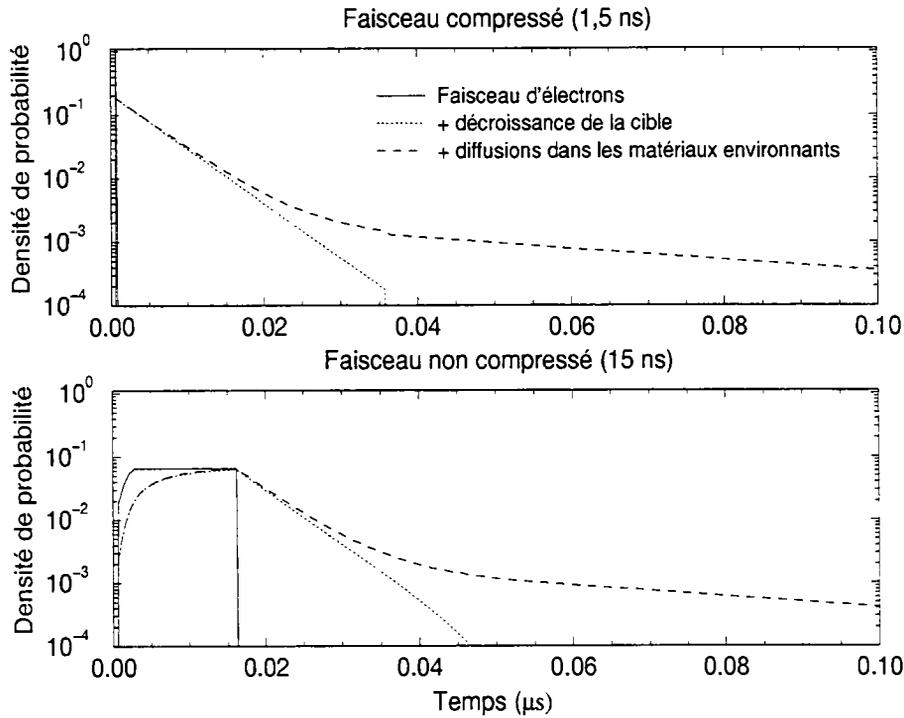


Fig.34 : Forme, donnée par REFIT, de la résolution due à la largeur d'impulsion du faisceau d'électron et à la cible dans le cas d'un faisceau compressé (1,5 ns de largeur d'impulsion) ou non (15 ns).

Les neutrons rapides produits par la cible peuvent y subir plusieurs diffusions avant d'être effectivement émis vers les modérateurs. Dans REFIT, la distribution résultante est modélisée par une décroissance exponentielle de 3,5 ns. Une partie des neutrons arrivant dans les modérateurs peut provenir de diffusions non plus dans la cible mais dans les matériaux environnants. Dans REFIT, cette dernière composante a été ajustée sur des données du nickel-60 à 2,25 keV et est composée de la somme de deux décroissances exponentielles de 25 ns et 88 ns [106]. La forme de la résolution due au faisceau d'électrons et à la cible est montrée sur la figure 34 pour le cas d'un faisceau compressé ou non.

La largeur à mi-hauteur de la résolution passe dans ce cas à 3,6 ns pour un faisceau d'électrons compressé (effet notable) et 15,5 ns dans le cas contraire. L'influence de la cible reste cependant très faible devant celle des modérateurs pour des énergies inférieures à quelques centaines d'électron-volts.

### 2.2.3 Les modérateurs

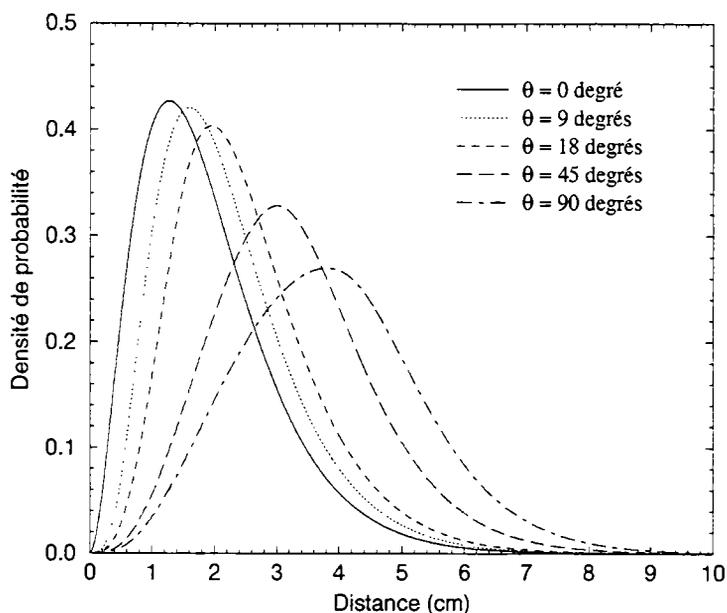


Fig.35 : Forme de la résolution due aux modérateurs donnée par REFIT pour différents angles par rapport à la normale à la surface des modérateurs en fonction de la distance de vol équivalente. Cet angle est de  $9^\circ$  dans les expériences de transmission et est nul pour la capture. La forme de cette résolution est trouvée indépendante de l'énergie des neutrons.

Les neutrons subissent en général plusieurs diffusions dans les modérateurs. Pour une vitesse donnée du neutron à la sortie du modérateur, ce phénomène introduit une dispersion sur l'instant exact d'émission des neutrons, due à l'histoire différente de chaque neutron lors de la modération. Par commodité, cette distribution temporelle est souvent transformée en distribution de la distance de vol des neutrons selon la relation  $d = v.t$  où  $v$  est la vitesse du neutron à la sortie des modérateurs. L'allure de cette distribution a été calculée pour la première fois par Groenewold and Groendijk [105], pour une source ponctuelle dans le cas d'un modérateur de hauteur infinie, composé d'hydrogène et possédant un libre parcours moyen  $\lambda$  constant. Après intégration sur tout l'espace en considérant l'énergie finale des neutrons comme nettement inférieure à leur énergie lors de leur production, la forme de cette résolution est donnée par une fonction  $\chi^2$  à six degrés de liberté :

$$f(d) = \frac{1}{2\lambda} \left( \frac{d}{\lambda} \right)^2 e^{-\frac{d}{\lambda}} \quad (\text{III.8})$$

Cette fonction de résolution pour les modérateurs, exprimée en distance équivalente, est indépendante de l'énergie des neutrons. En dessous de 13 keV, la valeur du libre parcours moyen de l'eau vaut 7,4 mm [107].

A cela, il convient d'ajouter l'angle entre la base de vol et la normale à la surface des modérateurs. Cet angle va modifier l'épaisseur de modérateur "vue" par la base de vol et introduire ainsi une nouvelle dispersion sur la distance de parcours des neutrons, comme le montre la figure 35. C'est pourquoi, comme il a été possible de le constater sur la figure 27, la plupart des pistes de vol sont orientées à des angles proches de 0° par rapport à la normale à la surface du modérateur afin de minimiser l'épaisseur apparente des modérateurs.

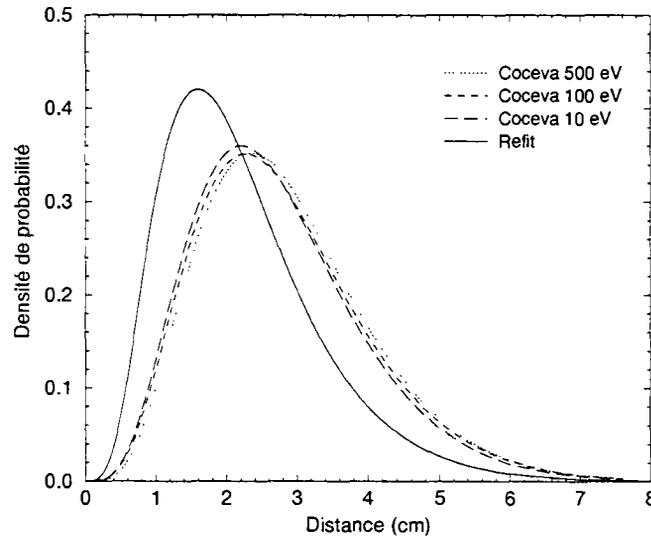


Fig.36 : Comparaison entre la simulation de Cocева [110] pour la résolution, due à l'ensemble cible-modérateurs et celle utilisée dans REFIT pour un angle de 9° par rapport à la surface des modérateurs.

REFIT simule la distribution créée par les modérateurs en convoluant l'équation (III.8), où le libre parcours moyen est ajusté en fonction de l'énergie pour tenir compte de la dimension finie des modérateurs, avec une distribution en temps  $g(t)$  décrivant l'élargissement dû à l'angle  $\theta$  ( $\theta > 0$ ) entre la base de vol et la normale des modérateurs où  $g(t)$  vaut [108]:

$$g(t) = \sqrt{\left(\frac{1}{2}mR\frac{\tan\theta}{\sqrt{E}}\right)^2 - t^2} \quad (\text{III.9})$$

avec

$m$ , masse du neutron.

$R$ , rayon de la collimation par laquelle sont vus les modérateurs.

$E$ , énergie cinétique des neutrons à la sortie des modérateurs.

A un angle donné, le paramètre crucial dans la modélisation de cette résolution est la valeur du libre parcours moyen. Elle a été ajustée sur des résonances de capture du nickel-60 entre 1 et 300 keV par Moxon [109]. Le libre parcours moyen entré par l'utilisateur (5,83 mm) est celui de l'hydrogène et est recalculé par REFIT pour l'eau en tenant compte d'une probabilité de fuite [108].

Du fait des multiples approximations contenues dans l'équation (III.8), des simulations par calcul de Monte Carlo ont également été entreprises selon la méthode décrite dans la référence [107]. Il en résulte que la résolution de l'ensemble cible-modérateurs de GELINA, pour une base de vol située à un angle de  $9^\circ$  (cas de nos installations pour les expériences de transmission), se traduit par une distribution de la distance qui ne varie que très peu en fonction de l'énergie des neutrons et suit sensiblement une loi en  $\chi^2$  à 10 degrés de liberté [110].

Sur la figure 36 sont comparées les résolutions simulées par Monte-Carlo (pour des énergies de 10 eV, 100 eV et 500 eV) par Coceva [110] et celle utilisée par REFIT. Dans les deux cas, ces résolutions tiennent compte également des diffusions dans la cible, mais la simulation de Coceva donne une distribution plus large que celle de REFIT (2,2 cm de largeur à mi-hauteur contre 2,7 cm déterminés par Coceva). C'est pourtant la description de REFIT que nous utilisons, car elle a été obtenue par un ajustement sur des données expérimentales.

La différence observée sur la valeur moyenne n'a pas d'incidence notable sur la valeur même de la résolution mais donne une erreur systématique sur la distance de vol exacte et donc sur l'énergie des neutrons.

#### 2.2.4 *Le détecteur*

Cette contribution intervient uniquement dans le cas des expériences de transmission où le détecteur est placé dans le faisceau de neutrons. En effet, en fonction des matériaux le composant, de son épaisseur et de son angle par rapport à la direction des neutrons, le détecteur va également donner lieu à des diffusions multiples. Ces différentes sources d'incertitudes sur la distance réelle parcourue par les neutrons se traduisent par un nouvel élargissement de la résolution en énergie. La réponse en temps, variable d'un type de détecteur à l'autre, intervient également.

La somme des différentes contributions provenant du détecteur dans nos expériences de transmission à 50 m donne une résolution dont la modélisation par REFIT est donnée pour plusieurs énergies en fonction de la distance de vol

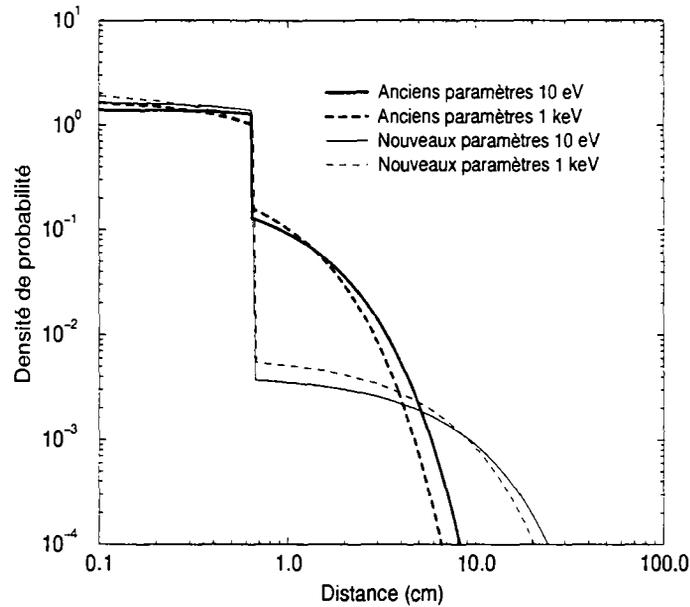


Fig.37 : Allure de la résolution (exprimée en distance équivalente et calculée par REFIT) due à un détecteur au verre au lithium NE912 de 6,35 mm d'épaisseur placé dans le faisceau de neutrons à 50 m de la cible d'uranium pour des neutrons de 10 eV et de 1 keV. Cette allure de la résolution est comparée pour l'ancienne et la nouvelle (proposée dans ce travail) paramétrisation de la queue provenant des diffusions multiples dans le détecteur et son environnement.

équivalente  $d$  sur la figure 37. Plus de détails sur cette modélisation sont donnés dans la référence [68].

Cette résolution est décomposable en deux parties. La première correspond aux neutrons détectés après une seule collision dans le détecteur. La deuxième est une queue décroissante correspondant aux neutrons subissant plusieurs collisions avant d'être détectés. Pour des raisons qui seront exposées en détails dans les deux chapitres suivants, une modification de la paramétrisation de cette queue est proposée dans ce travail, visible sur la figure 37. Cette paramétrisation est néanmoins très approximative (comme l'explique Moxon dans la référence [68]) et n'est que l'expression d'une lacune à ce niveau qui ne peut être résolue que par une étude expérimentale de la résolution des détecteurs et de leur environnement. Dans la suite de ce chapitre nous ne considérerons que la résolution du détecteur avec les anciens paramètres.

Afin de limiter les diffusions multiples, ce n'est pas seulement l'épaisseur mais également le volume du détecteur qu'il faut chercher à minimiser. Toutefois, un compromis est nécessaire entre épaisseur du détecteur et efficacité de détection.

### 2.2.5 Le codage en temps

Les canaux de base des codeurs en temps utilisés dans nos mesures de temps de vol possèdent une largeur comprise entre 0,5 ns et 4 ns. Un regroupement des canaux de base est effectué afin d'obtenir une largeur de canal expérimentale adaptée à chaque zone d'énergie. La largeur de ces canaux obtenus par regroupement introduit une dispersion sur le temps de vol modélisable par une porte en temps dont la largeur est celle du canal. Elle dépend donc du choix de l'expérimentateur. La largeur des canaux adoptée dans la plupart des cas pour nos expériences est donnée dans le tableau 4 pour quelques énergies de la plage d'étude. Une description plus complète est donnée dans l'annexe C.

Tableau 4 : Largeur utilisée des canaux en temps de vol en fonction de l'énergie des neutrons

Energie (eV)	Largeur du canal (ns)	$\Delta L$ résolution (cm)
1	512	0,71
10	128	0,56
100	32	0,44
500	8	0,25
1000	4	0,17

### 2.2.6 Dispersion due à l'électronique

L'instabilité de l'électronique induit une incertitude quant au comptage exact dans chaque canal ou au niveau du détecteur. Dans toutes nos expériences, nous avons négligé ce phénomène, mais il est possible de l'introduire dans REFIT sous la forme d'une gaussienne traduisant l'hypothèse d'un processus aléatoire.

### 2.2.7 Bilan

D'après les paragraphes précédents, il est possible de regrouper les processus agissant sur la résolution en quatre groupes :

- l'ensemble faisceau-cible
- le modérateur
- le détecteur
- la largeur des canaux

L'ensemble de ces contributions est ce que nous appelons la résolution expérimentale.

Sur la figure 38 sont représentées, pour quelques énergies de notre plage d'étude, la résolution expérimentale (et ses quatre composantes) des mesures de transmission

Tableau 5 : Largeur à mi-hauteur de la fonction de résolution expérimentale et de ses diverses composantes (avec leur part respective) pour l'expérience de transmission à 50 m avec faisceau d'électrons non comprimé.

Largeur à mi-hauteur de la résolution (ns)					
E (eV)	Modérateur	Détecteur	Cible (15 ns)	Canaux	Expérimentale
1000	59	15	15,5	4	67 (2,93 cm)
500	83	20	15,5	8	92 (2,85 cm)
100	184	46	15,5	32	202 (2,79 cm)
10	582	147	15,5	128	624 (2,73 cm)
1	1886	190	15,5	512	1996 (2,76 cm)

à 50 m avec un faisceau d'électrons de 15 ns de largeur d'impulsion. La composante due aux modérateurs se révèle être le paramètre le plus important comme le montre le tableau 5 où sont comparées les largeurs à mi-hauteur des différentes composantes de la résolution et leur part relative à la largeur de la résolution totale. La somme quadratique des différentes largeurs n'est pas égale à 100 %, car les résolutions ne sont pas des gaussiennes.

On voit dans ce tableau que la largeur à mi-hauteur de la résolution expérimentale est à peu près constante, en distance équivalente, sur toute notre gamme d'énergie. Il apparaît également que la part du modérateur diminue quand l'énergie augmente. Ceci s'explique par la réduction du temps de ralentissement des neutrons dans les modérateurs (ils y subissent moins de diffusions). Après les modérateurs, c'est le détecteur qui intervient, en moyenne, de la façon la plus importante dans la largeur de la résolution. La contribution de la largeur des canaux intervient principalement, pour nos configurations, en dessous de 100 eV. Quant à l'ensemble largeur du faisceau d'électrons et décroissance de la cible, sa contribution augmente avec l'énergie des neutrons, même si, dans le cas d'un faisceau comprimé, la largeur à mi-hauteur n'est que de 3,6 ns, soit 4 fois plus faible. Dans notre gamme d'énergie, elle intervient donc assez peu mais devient une contribution prépondérante pour des expériences à plus hautes énergies. En effet, la largeur du faisceau d'électrons et le temps de diffusion des neutrons produits par la cible (énergie  $\sim 1$  MeV) dans celle-ci reste constante quelle que soit l'énergie des neutrons détectés.

Toutefois, ce n'est pas uniquement la largeur à mi-hauteur qui importe pour la fonction de résolution mais également la forme de cette dernière et notamment la présence de queues décroissantes étalant la résolution sur des temps élevés. A ce niveau, le rôle de la cible est notable dès une centaine d'électron-volts (voir figure 38) et la présence d'une autre queue provenant de la diffusion des neutrons dans l'environnement du détecteur est envisagée dans le chapitre suivant.

L'influence de la résolution sur une résonance à 10 eV et 1 keV est visible sur la figure 39 dans le cadre d'une expérience de transmission sur la base 4. La présence de la queue décroissante sur des temps élevés pour une résonance d'énergie

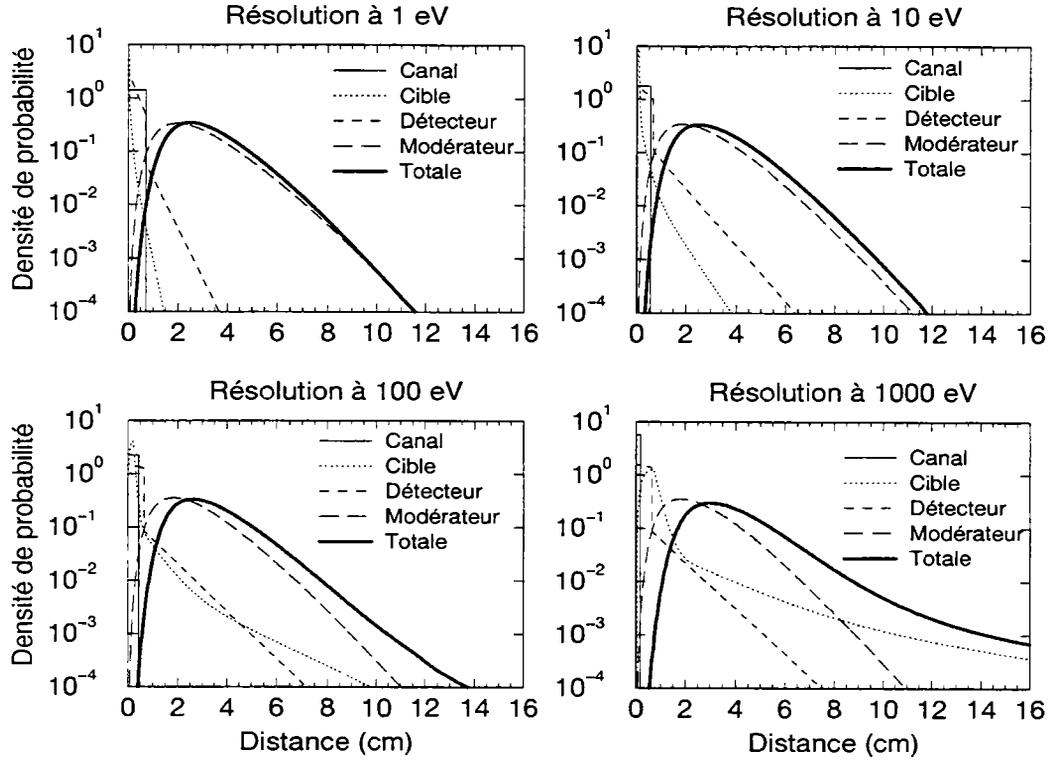


Fig.38 : Allure de la résolution expérimentale, exprimée en distance de vol équivalente, et de ses principales composantes pour différentes énergies de la plage d'étude. La résolution du détecteur est celle utilisant l'ancienne paramétrisation pour la diffusion multiple.

égale à 1 keV est particulièrement visible. L'élargissement Doppler a également été représenté sur cette figure pour une température de 290 K : à 10 eV, l'élargissement Doppler prédomine nettement sur la résolution expérimentale, alors qu'à 1 keV les largeurs à mi-hauteur entre la résolution expérimentale et l'élargissement Doppler sont comparables. Rappelons que l'effet Doppler se traduit par la convolution de la section efficace avec, dans le cas du modèle du gaz libre, une gaussienne dont la largeur est fonction de la température (voir équation (II.107)) :

$$\sigma_{\text{obs}}(E) = \int_{-\infty}^E \sigma_{\text{nuc}}(E - E') \cdot \frac{1}{\Delta_{\text{eff}} \sqrt{\pi}} e^{-\frac{(E' - \frac{E}{A})^2}{\Delta_{\text{eff}}^2}} \cdot dE' \quad (\text{III.10})$$

avec  $\Delta_{\text{eff}}$ , largeur Doppler effective valant :

$$\Delta_{\text{eff}} = 2 \sqrt{\frac{\pi k_B T_{\text{eff}}}{A} \cdot E} \quad (\text{III.11})$$

$T_{\text{eff}}$  étant la température effective.

D'après l'équation (III.6), la qualité de cette résolution s'améliore avec la longueur de vol. Cependant, le flux de neutrons dépend directement de l'angle solide relatif

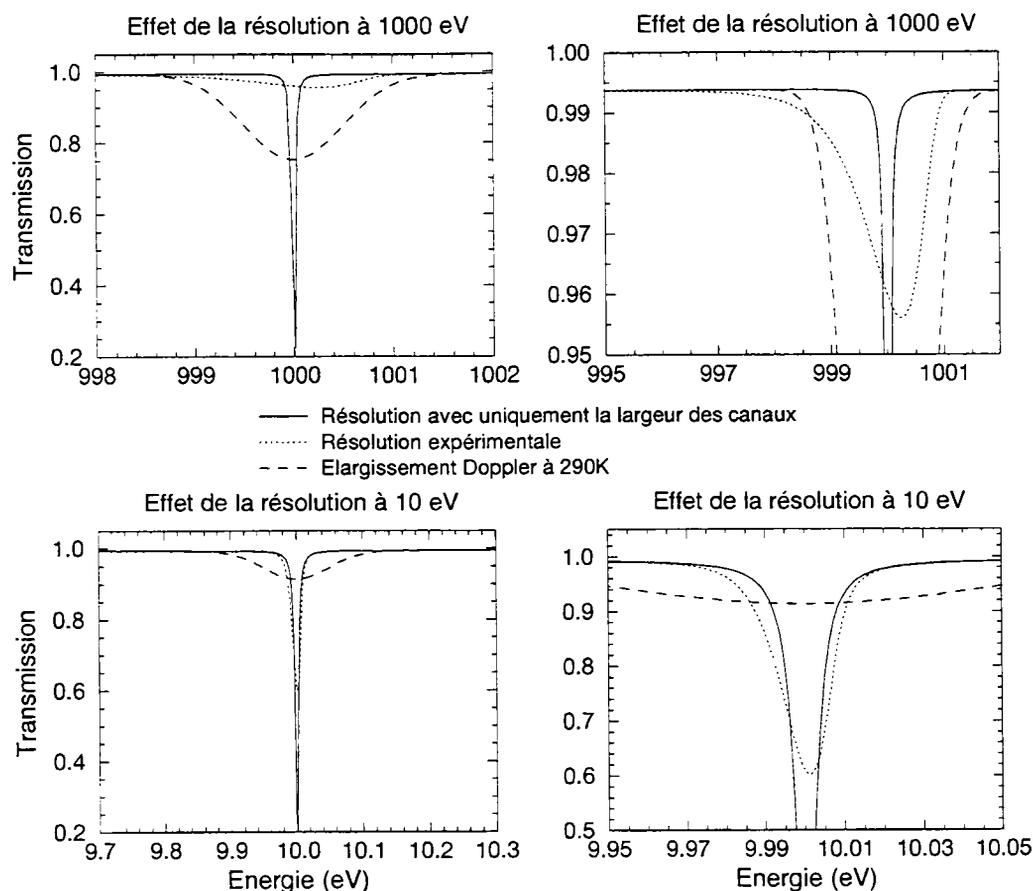


Fig.39 : Calcul par REFIT de l'élargissement de deux résonances typiques du neptunium (largeur totale de 40 meV) d'énergie 10 eV et 1 keV : par la résolution due à la largeur des canaux, par la résolution expérimentale uniquement et par l'effet Doppler uniquement. Cas d'une expérience de transmission menée à 50 m sur la base 4.

à la source. Il diminue donc en fonction de la distance selon le rapport  $1/L^2$ . De manière approchée, le flux pour une énergie  $E$  des neutrons (dans le domaine épithermique et pour un fonctionnement de GELINA à 800 Hz en mode compressé) et à une distance  $L$  de la source est donné par l'expression [103] :

$$\Phi \simeq \frac{1,2 \cdot 10^6}{L^2 \cdot E^{0.92}} \text{ en n / (cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{eV)} \quad (\text{III.12})$$

Un compromis doit donc être fait entre intensité du flux de neutrons, c'est à dire la durée de la mesure, et résolution en énergie.

### 3 Caractéristiques communes des expériences

#### 3.1 Bases de vol

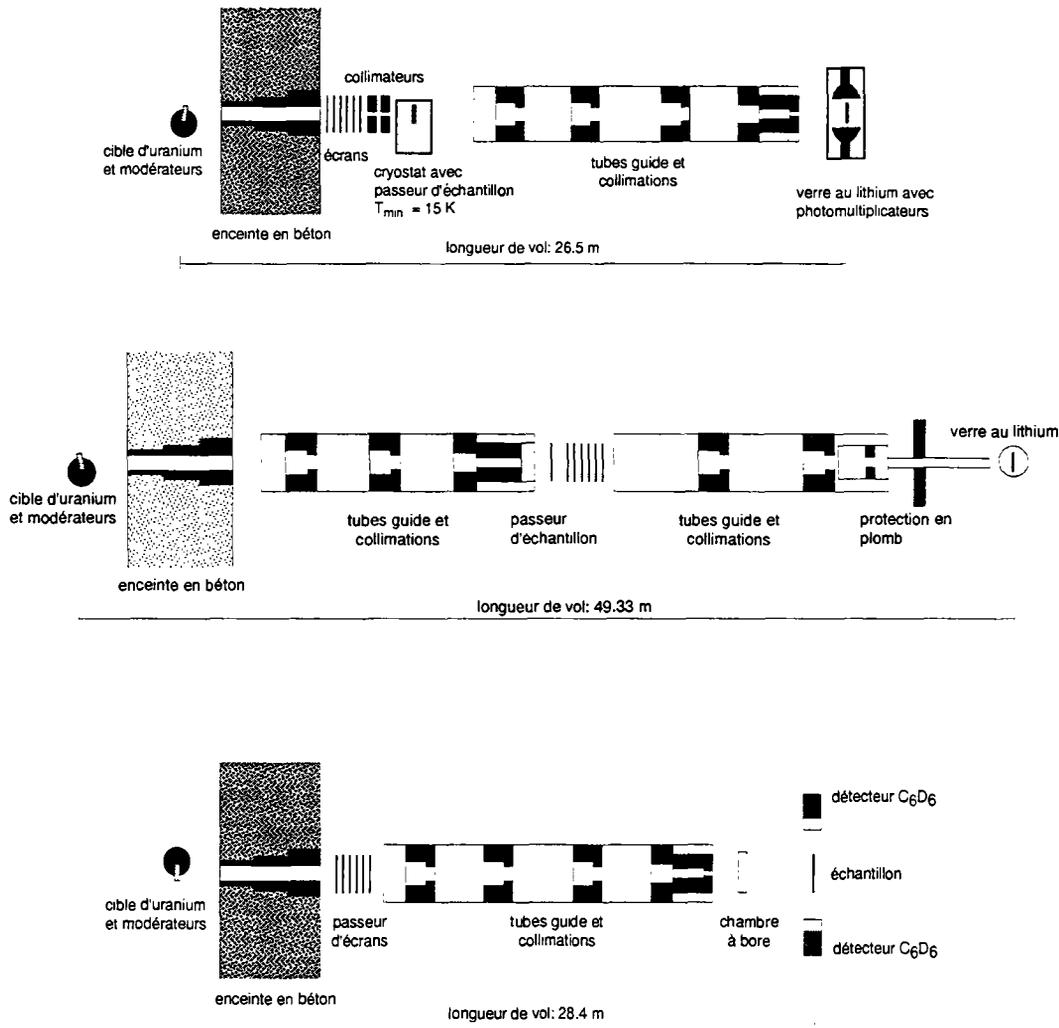


Fig.40 : Schéma des bases de vol utilisées lors de nos expériences avec de haut en bas les bases 2 et 4 utilisées pour les mesures de transmission et la base 15 dédiée aux mesures de capture.

#### 3.1.1 Caractéristiques générales

Les expériences de transmission ont été effectuées sur les bases 2 et 4 à une distance de 26,45 m et 49,34 m respectivement, alors que les mesures de capture furent menées sur la base 15 à une distance de vol de 28,4 m.

Afin de minimiser l'erreur sur la longueur de la base de vol, celle-ci est déterminée en mesurant un échantillon d'uranium-238 dont certaines résonances sont des standards en énergie [85]. La valeur ainsi obtenue pour la base 4 est de  $49,338 \pm 0,010$  m. Pour les autres bases, la longueur de vol a été ajustée en fonction de l'énergie des résonances obtenues sur la base 4.

Les angles des bases 2 et 4 par rapport au plan normal à la surface du modérateur sont identiques en valeur absolue et valent  $9^\circ$ . Pour la base 15, cet angle est nul.

### ***3.1.2 Description des bases de vol de transmission***

(schémas 1 et 2 de la figure 40)

Lorsqu'ils arrivent dans la base de vol, les neutrons passent d'abord à travers différents collimateurs en plomb, en cuivre et à base de composés de bore. Ces collimateurs sont disposés dans l'enceinte en béton entourant le hall des cibles mais également dans les tubes guide du faisceau de neutrons. Dans ces derniers, un vide primaire a été réalisé afin de limiter la diffusion des neutrons avec les particules de l'air.

Les neutrons traversent ensuite différents écrans : des filtres anti-recouvrement, placés juste avant l'échantillon pour éviter le mélange de neutrons appartenant à des bouffées différentes, puis des écrans permettant de déterminer le bruit de fond et enfin des écrans en plomb, situés après l'échantillon, atténuant le rayonnement gamma auquel le détecteur est également sensible. L'échantillon (ainsi que les écrans de bruit de fond pour la base 4) est placé sur un support mobile automatisé, appelé "passeur d'échantillons", qui permet de l'introduire ou de l'oter du faisceau de neutrons. Sur la base 2, le passeur d'échantillon est doté d'un cryostat à azote liquide permettant de refroidir l'échantillon jusqu'à des températures de 15 K. Le rôle des différents écrans est décrit plus en détail dans les paragraphes suivants.

Les neutrons ayant traversé l'ensemble de ces écrans poursuivent ensuite leur vol dans des tubes guides identiques au précédent puis atteignent un détecteur de neutrons (scintillateur en verre au lithium).

### ***3.1.3 Description de la base de vol de capture***

(schéma 3 de la figure 40)

Cette base de vol diffère des deux précédentes. Les écrans de bruit de fond sont ici placés loin de l'échantillon (car les détecteurs sont autour de l'échantillon et sont très sensibles aux rayons gamma), juste à la sortie de l'enceinte du hall des cibles. Néanmoins, la particularité de cette base est essentiellement due au dispositif de détection. A la sortie du tube guide, les neutrons traversent d'abord une chambre à bore qui donnera une mesure du flux neutronique, puis atteignent l'échantillon. Le

rayonnement gamma de desexcitation des noyaux de l'échantillon avec lesquels les neutrons ont interagi va être détecté par deux scintillateurs liquides placés de part et d'autre de l'échantillon et orthogonalement à la direction du faisceau.

### 3.2 Fonctionnement de l'accélérateur linéaire

Nous avons utilisé deux modes de fonctionnement du LINAC (accélérateur linéaire d'électrons) car la plage d'énergie à couvrir s'étend de 0,1 eV à 2 keV. Or l'énergie minimale que l'on peut mesurer correspond à un temps de vol égal à la période entre deux impulsions de GELINA. Pour une fréquence de 800 Hz, cela correspond à 1250  $\mu$ s. Pour chaque base, l'énergie minimale correspondante est donnée dans le tableau 6, en utilisant l'équation (III.3).

Ces énergies minimales obtenues à 800 Hz étant trop élevées, nous avons découpé chaque mesure en deux parties : une mesure à basse énergie, couvrant la région de 0,1 eV à quelques dizaines d'électron-volts, effectuée à une fréquence de 100 Hz (voir tableau 6 pour les énergies minimales correspondantes) et une autre mesure pour les énergies supérieures. Il y eut donc pour nos expériences, entre février 1997 et mars 1999, deux modes de fonctionnement de GELINA dont les caractéristiques sont données dans le tableau 7.

Tableau 6 : Energies minimales pour chaque base utilisée selon la fréquence de fonctionnement de GELINA

Base	Distance	Energie minimale à 800 Hz	Energie minimale à 100 Hz
2	26,5 m	2,35 eV	0,04 eV
4	49,3 m	8,13 eV	0,13 eV
15	28,4 m	2,70 eV	0,04 eV

Tableau 7 : Paramètres de fonctionnement de l'accélérateur linéaire de Geel durant nos expériences

Largeur d'impulsion (ns)	Fréquence (Hz)	Courant crête (A)	Courant moyen ( $\mu$ A)	Puissance moyenne (kW)	Débit moyen de neutrons (n/s)
15	100	12	12	12	$4 \cdot 10^{12}$
1,5	800	$\sim 100$	70	7	$2,5 \cdot 10^{13}$

### 3.3 Filtre anti-recouvrement

Afin d'éviter que les bouffées de neutrons se recouvrent, c'est à dire que les neutrons lents de l'impulsion précédente ne viennent se mélanger aux neutrons rapides de l'impulsion en cours, un filtre anti-recouvrement est placé en permanence

dans le faisceau de neutrons. Un tel filtre, s'il était parfait, serait en terme d'électronique un filtre passe-haut (évidemment un passe-bande serait encore mieux) : il arrêterait les neutrons d'énergie plus basse que celles considérées dans nos mesures et laisserait passer tous les autres neutrons sans les perturber. Un tel filtre n'existe malheureusement pas.

Pour les mesures à basse énergie (100 Hz), nous avons utilisé un filtre de cadmium. Ce corps présente une section efficace très importante en dessous de 0,3 eV et très faible à plus haute énergie comme le montre la figure 41. Ce serait un filtre parfait s'il n'avait pas des résonances à partir de quelques dizaines d'électron-volts qui perturbent les mesures. Son utilisation a donc été limitée à la plage 0,3-50 eV. Bien sûr, entre les résonances se trouvent des zones non perturbées que nous avons également utilisées, mais uniquement en tant qu'information complémentaire afin de ne pas introduire d'erreurs dues à des flux et bruits de fond anormalement déformés.

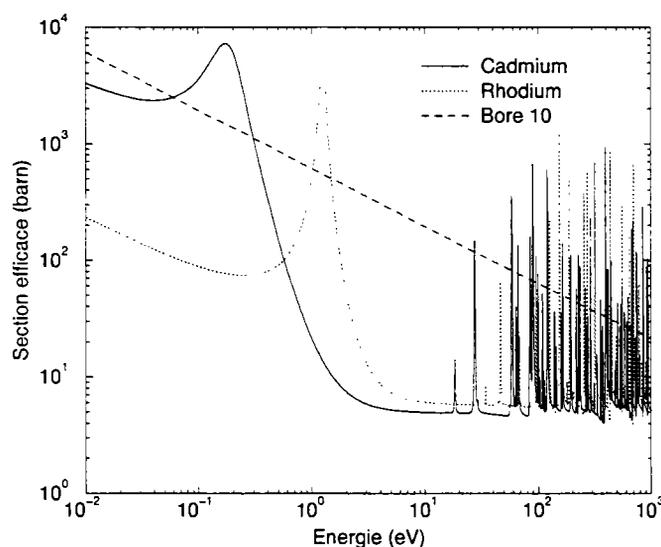


Fig.41 : Sections efficaces totales calculées par NJOY [55] à 300 K du cadmium naturel, du rhodium naturel et du bore-10.

Sur la base 2, afin d'avoir un flux très élevé à basse énergie en travaillant à 800 Hz, il a été possible d'adjoindre au cadmium un filtre de rhodium permettant d'avoir une importante section efficace jusqu'à 1,8 eV (voir figure 42). Il y aura donc un mélange des neutrons compris entre 1,8 eV et 2,5 eV (énergie des neutrons mettant une période de l'accélérateur pour atteindre le détecteur dans cette configuration) avec les neutrons de la bouffée suivante. Toutefois, un rapide calcul montre qu'à

26,5 m et pour une fréquence de 800 Hz, ce mélange des neutrons n'intervient que pour des énergies supérieures à 1,5 keV, soit en dehors de notre plage d'étude. C'est le grand nombre de résonances du cadmium et du rhodium au delà de quelques dizaines d'électron-volts qui va restreindre cette plage d'étude.

Tableau 8 : Filtres anti-recouvrement pour toutes les configurations utilisées durant nos expériences

Base	Fréq. (Hz)	Epaisseur filtres (at/barn)
2	100	Cd : $2,17 \cdot 10^{-3}$
	800	$^{10}\text{B}$ : $2,15 \cdot 10^{-2}$
	800	Cd : $3,2 \cdot 10^{-2}$ Rh : $5,3 \cdot 10^{-2}$
4	100	Cd : $5,0 \cdot 10^{-3}$
	800	$^{10}\text{B}$ : $2,4 \cdot 10^{-2}$ ( $4,1 \cdot 10^{-2}$ )
15	100	Cd : $2,3 \cdot 10^{-3}$
	800	$^{10}\text{B}$ : $2,56 \cdot 10^{-2}$

Pour étendre la plage d'énergie jusqu'à quelques keV, il fallait trouver un filtre présentant à basse énergie (en dessous de 3 à 8 eV, d'après le tableau 6) une grande section efficace et une très faible section efficace, dénuée de résonances, au delà de 40 eV. Seule l'utilisation du bore-10 pouvait répondre, en grande partie, à de telles exigences. Cet élément ne possède pas de résonances dans notre plage d'étude et présente une section efficace pouvant être décrite par l'équation suivante :

$$\sigma_{^{10}\text{B}} = \frac{607}{\sqrt{E}} + 2.23 \quad (\text{III.13})$$

Malheureusement, aux plus hautes énergies, si la section efficace du bore-10 est moins élevée, elle n'est toutefois pas négligeable comme dans le cas du cadmium. Pour que cet élément remplisse efficacement son rôle de filtre anti-recouvrement (en ne laissant passer qu'une proportion inférieure à 0,5 % des neutrons de la bouffée précédente en dessous de 2 keV), l'épaisseur de bore-10 à utiliser est de  $2,4 \cdot 10^{-2}$  at/barn soit une transmission de seulement 10 % à 50 eV, 20 % à 100 eV et 45 % à 500 eV. L'utilisation du bore va donc très fortement diminuer le flux de neutrons dans la zone d'étude.

Les sections efficaces totales à 300 K des différents éléments intervenant dans les filtres anti-recouvrement sont représentées sur la figure 41. Elles ont été obtenues par le code NJOY [55] à partir des données de ENDF/B-VI [56].

Les épaisseurs utilisées dans nos expériences sont données dans le tableau 8.

La figure 42 montre la transmission des différents filtres, c'est à dire la probabilité pour un neutron de réussir à les traverser sans interaction. La transmission, notée  $T$ , et la section efficace totale  $\sigma$  sont reliées par la relation (voir partie 4) :

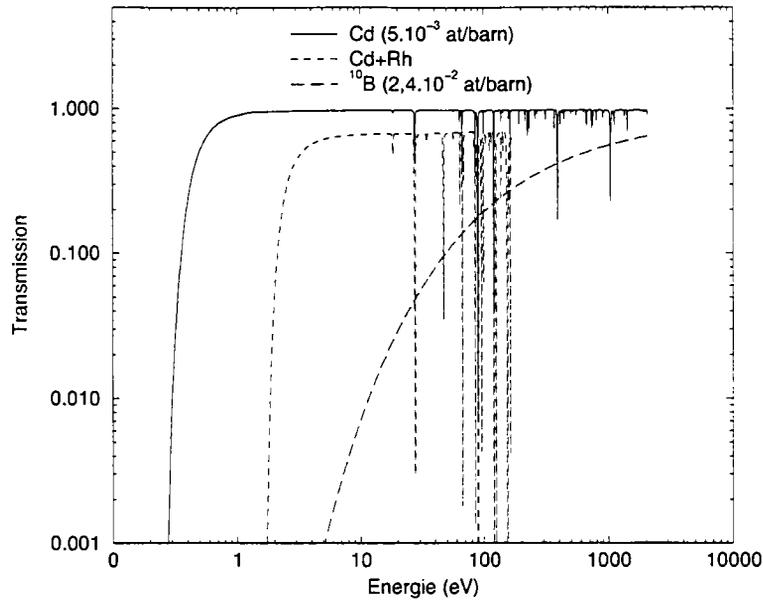


Fig.42 : Transmission des différents filtres anti-recouvrement utilisés dans nos expériences.

$$T = e^{-n\sigma} \quad (\text{III.14})$$

où  $n$  est l'épaisseur du filtre exprimée en nombre d'atomes par barn.

### 3.4 Les écrans de bruit de fond

L'origine du bruit de fond sera étudiée plus en détail dans le chapitre suivant, seule une introduction très sommaire est donnée ici.

Le bruit de fond se traduit par un signal qui s'additionne aux évènements utiles dans nos spectres de neutrons en temps de vol. Pour un taux de comptage  $N$ , dans un canal donné, il faut donc réussir à séparer la partie correspondant au signal que l'on cherche à mesurer (notée  $s$ ) du bruit de fond  $b$ .

Le bruit de fond dépend du signal lui-même et de l'instant de la mesure (à ne pas confondre avec le temps de vol du neutron).

On a donc avec  $E$ , énergie cinétique des neutrons et  $t$ , l'instant où le signal est enregistré :

$$N(E, t) = s(E, t) + b(E, t) \quad (\text{III.15})$$

L'idéal est de pouvoir déterminer le bruit de fond sur toute la gamme d'énergie de la mesure et en même temps que le signal, sans pour autant perturber celui-ci.

Pour cela, la technique la plus couramment utilisée dans les mesures de transmission ou de capture est la méthode dite des résonances noires. On met dans le faisceau de neutrons des éléments possédant de grandes résonances à des énergies données.

Tableau 9 : Ecrans de bruits de fond utilisés dans nos expériences, avec l'énergie des résonances noires, l'épaisseur minimale nécessaire pour obtenir une transmission de  $10^{-4}$  sur plusieurs canaux et l'épaisseur effectivement utilisée. Notons également l'utilisation d'écrans comportant des éléments indésirables tels que Soufre et Fluor.

Elément	E (eV)	Epaisseur calculée (at/barn)	Epaisseur utilisée (at/barn)
Au	4,85	$6 \cdot 10^{-4}$	$5,4 \cdot 10^{-4}$
Ag	5,2	$8 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$
Pt	11,9 19,7-67,4	$3,5 \cdot 10^{-3}$ $1 \cdot 10^{-2}$	$6 \cdot 10^{-3}$
W	18,8	$3,5 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-4}$
Mo	44,9	$6 \cdot 10^{-3}$	$3,9 \cdot 10^{-3}$ à $2,8 \cdot 10^{-2}$
Ge	102	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-2}$
Co	132	$1 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-3}$ à $4,5 \cdot 10^{-3}$
Mn	336	$3 \cdot 10^{-3}$	$7,6 \cdot 10^{-3}$ (S : $3 \cdot 10^{-2}$ )
Bi	800 2310	$1,5 \cdot 10^{-2}$ $4,3 \cdot 10^{-2}$	$2,1 \cdot 10^{-2}$ et $2,8 \cdot 10^{-2}$
Na	2850	$2,8 \cdot 10^{-2}$	$3,2 \cdot 10^{-2}$ (F : $3,2 \cdot 10^{-2}$ )

Pour des écrans d'épaisseur suffisante, la transmission sera pratiquement nulle (se référer à l'équation (III.14) avec  $n\sigma$  devenant grand), c'est à dire qu'aucun neutron (ou presque) d'énergie égale à celle de ces résonances n'arrive à traverser les écrans. Le signal mesuré à ces énergies sera donc le bruit de fond. En combinant différents éléments, il est possible d'obtenir un jeu de résonances noires bien réparties dans nos spectres en temps de vol donnant ainsi plusieurs points de bruit de fond qui reliés entre eux, donneront l'allure du bruit de fond en fonction du temps de vol des neutrons (et donc de leur énergie). La présence de nouveaux corps dans le faisceau de neutrons va toutefois perturber le spectre de neutrons au niveau des résonances de ces corps et le signal est définitivement perdu au niveau des résonances noires. Enfin, une épaisseur trop importante pour un écran va souvent diminuer le flux de neutrons de manière inacceptable du fait de la section efficace totale de l'élément le constituant. Donc seuls les éléments ayant de grandes résonances peuvent faire office d'écrans de bruit de fond.

Pour les mesures de transmission, nous avons laissé ces écrans en permanence dans le faisceau de neutrons. Le choix des écrans de bruit de fond est dans ce cas crucial, car ils doivent présenter le moins de résonances possibles autres que

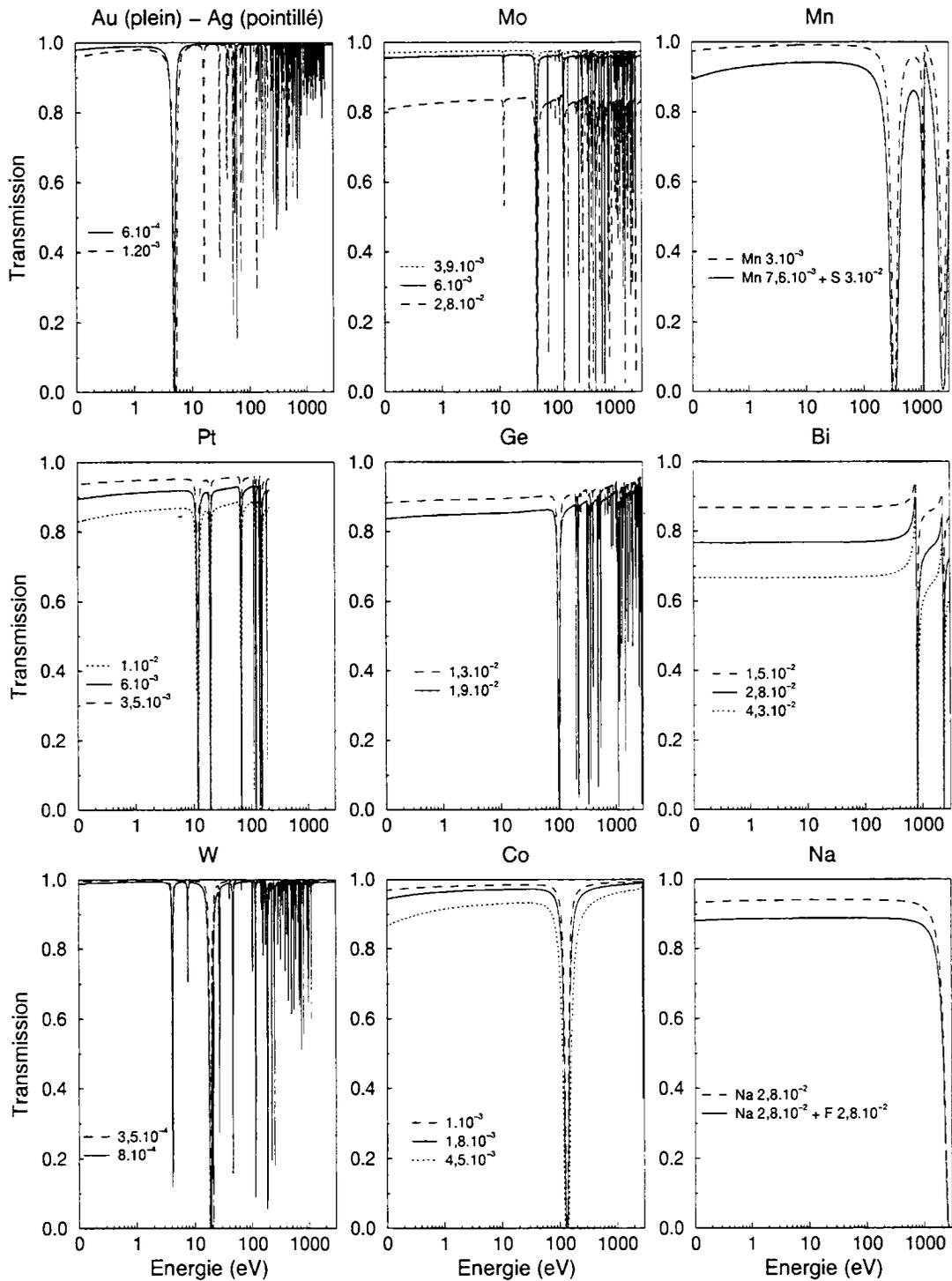


Fig.43 : Transmission des différents écrans de bruit de fond utilisés. Les épaisseurs sont exprimées en atomes par barn.

les résonances noires désirées. Afin de couvrir l'ensemble de la gamme d'énergie, différentes combinaisons d'écrans ont été alternativement utilisées pour une même expérience.

Dans le cas des expériences de capture, seul un écran a été laissé en permanence dans le faisceau de neutrons. Une mesure avec tous les écrans de bruit de fond est effectuée à intervalles réguliers durant l'expérience pour déterminer la forme du bruit de fond. Celle-ci étant supposée constante, le niveau du bruit de fond sera réajusté sur la résonance noire de l'écran permanent.

En simulant par REFIT la transmission de différents écrans de bruit de fond à partir des paramètres de résonances tabulés dans les évaluations, l'épaisseur et le type d'élément nécessaires à chacune de nos expériences a été déterminée en exigeant que chaque résonance noire ait une transmission inférieure à  $10^{-4}$  sur plusieurs canaux. La simulation est nécessaire pour pouvoir calculer l'épaisseur de ces écrans de bruit de fond car elle permet de tenir en compte dans le calcul de la transmission de l'influence de l'effet Doppler et de la résolution expérimentale. Dans le tableau 9 est donné l'ensemble des écrans de bruit de fond utilisés, l'énergie des résonances noires de chacun des éléments, l'épaisseur calculée pour que cette résonance soit noire selon nos critères et l'épaisseur effectivement utilisée dans nos expériences.

La transmission des différents écrans, en fonction des épaisseurs données dans le tableau 9, est donnée sur la figure 43.

### ***3.5 L'échantillon***

Il convient ici de distinguer les expériences de transmission et de capture. En effet, pour la transmission, l'épaisseur de l'échantillon n'intervient que sur la valeur du flux de neutrons. Quelle que soit l'épaisseur de l'échantillon, si une seule ou plusieurs diffusions ont lieu, le résultat est le même : le neutron n'a qu'une probabilité extrêmement faible d'être détecté (voir partie 4).

Par contre, il en va différemment dans les expériences de capture. En effet, tous les neutrons peuvent subir une réaction de capture radiative dans l'échantillon, même après plusieurs diffusions : c'est le phénomène de diffusion multiples. Entre deux résonances, la section efficace de capture est pratiquement nulle et les neutrons dont l'énergie est située entre deux résonances sont donc principalement diffusés. A chaque diffusion, l'énergie d'un tel neutron diminue et peut ainsi atteindre celle d'une résonance : le neutron est alors capturé. Toutefois, la masse atomique du neptunium étant élevée, l'énergie perdue lors des diffusions est faible. Ce sont donc les neutrons dont l'énergie initiale est immédiatement supérieure à celle d'une résonance qui auront la plus grande probabilité d'être capturés. Mais le rayonnement gamma est toujours détecté au même moment car le temps qu'ont perdu les neutrons lors des diffusions est négligeable devant leur temps de vol. Ces neutrons sont donc détectés

comme s'ils avaient toujours leur énergie initiale (avant diffusions). Toutefois étant capturés, cela va se traduire par une augmentation fictive de la section efficace de capture de l'échantillon pour ces énergies.

On observe ainsi, sur la partie des résonances située à plus haute énergie, l'apparition d'une protubérance due à la diffusion multiple qui augmente avec l'épaisseur de l'échantillon. Des échantillons minces sont donc, de ce point de vue, préférables pour ce type d'expérience.

REFIT tient compte de la diffusion multiple et offre même la possibilité de l'ajuster sur les données expérimentales. Sur la figure 44 est représentée la déformation de la section efficace de capture radiative observée due aux diffusions multiples dans les échantillons de neptunium de  $0,02 \text{ g/cm}^2$  et  $1 \text{ g/cm}^2$  d'épaisseur utilisés dans nos expériences de capture : cet effet reste faible pour l'échantillon le plus mince, mais déforme de façon notable le taux de capture pour notre échantillon le plus épais.

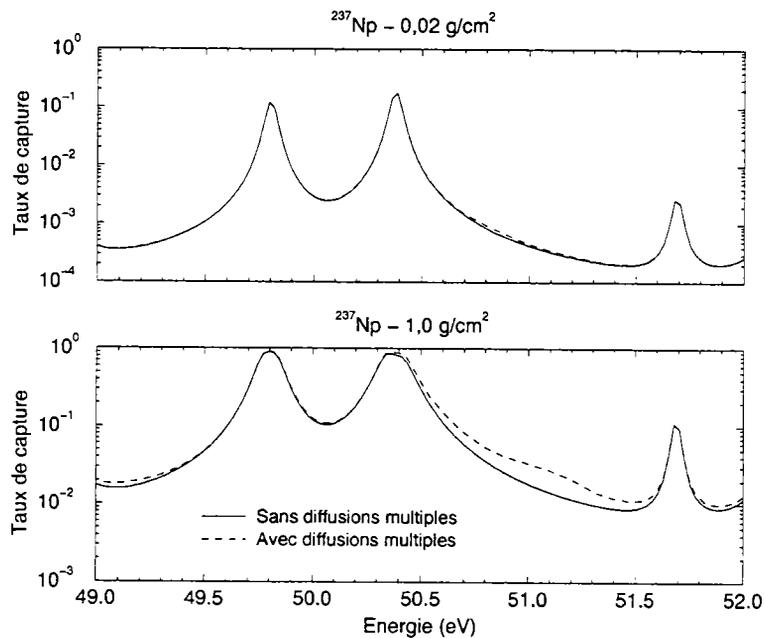


Fig.44 : Effet des diffusions multiples sur le taux de capture radiative (probabilité pour un neutron d'avoir une réaction de capture radiative dans l'échantillon), dans le cas des deux échantillons utilisés dans nos expériences de capture.

La description des échantillons utilisés durant nos expériences est présentée dans le tableau 10.

Tableau 10 : Description des différents échantillons de neptunium utilisés durant nos expériences ainsi que des températures utilisées.

	Base	Epaisseur (g/cm <sup>2</sup> )	Diamètre (cm)	Type	T (K)
Transmission	2	0,5	5,5	NpO <sub>2</sub>	15, 50, 290
		1	5,5	NpO <sub>2</sub>	15, 50, 290
		1 + 2	5,5 / 5	NpO <sub>2</sub>	290
	4	2	5	NpO <sub>2</sub>	290
Capture	15	0,02	8	Al 90% - Np 10%	290
		1	8	NpO <sub>2</sub>	290

### 3.6 Valeur du flux

Une valeur approchée du flux de neutrons disponible durant nos expériences peut se calculer à partir de l'équation (III.12) pour le fonctionnement à 800 Hz et en se normalisant sur le débit moyen de neutrons du tableau 7 pour le flux à 100 Hz.

Ce flux  $\Phi_E(E)$  représente le nombre de neutrons traversant, par seconde, une surface de 1 cm<sup>2</sup> pour un intervalle d'énergie de 1 eV. Nos mesures étant en temps de vol, avec des canaux ayant des largeurs en temps définies, il est plus réaliste de représenter le flux (noté alors  $\Phi_t(E)$ ) comme le nombre de neutrons traversant, par seconde, une surface de 1 cm<sup>2</sup> pour un intervalle de temps de vol donné (1  $\mu$ s). L'équation (III.12) s'écrit alors :

$$\Phi_t(E) = \Phi_E(E) \cdot \frac{dE}{dt} \simeq \frac{3,32 \cdot 10^4}{L^3} \cdot E^{0,58} \text{ en neutrons / (cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \mu\text{s)} \quad (\text{III.16})$$

Les flux ainsi calculés ne tiennent pas compte des différents filtres et écrans mis dans le faisceau de neutrons. Afin d'avoir une représentation plus réaliste, le flux doit être multiplié par la transmission de l'ensemble des éléments se trouvant dans le faisceau. Les écrans de bruit de fond apportent surtout une perturbation du flux par leurs résonances, diminuant le flux entre leurs résonances au maximum d'un facteur 2. Aussi, pour comparer les différents flux disponibles lors de nos expériences, avons-nous juste multiplié le flux par la transmission des filtres anti-recouvrements. Les flux obtenus pour nos différentes configurations de fonctionnement de l'accélérateur et de filtres anti-recouvrement sont représentés pour les bases 2 et 4 sur la figure 45. Les configurations relatives à la base 15 utilisée en capture (donnant des résultats légèrement inférieurs à ceux de la base 2) ainsi que les nombreuses résonances du cadmium et du rhodium (voir figure 42) ne sont pas représentées afin de ne pas surcharger la figure.

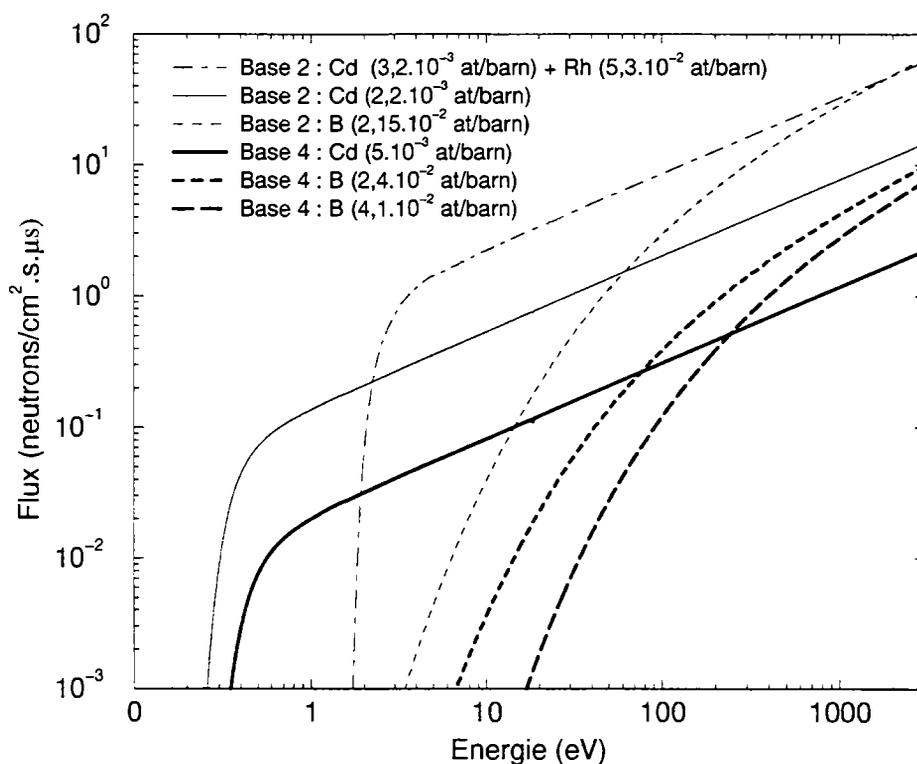


Fig.45 : Comparaison des flux de neutrons disponibles durant nos expériences sur les bases 2 et 4 en fonction des filtres anti-recouvrement utilisés et du régime de fonctionnement de l'accélérateur (100 Hz avec les filtres de cadmium, 800 Hz avec bore et cadmium-rhodium).

### 3.7 Résolution et largeur Doppler

Le neptunium-237, noyau lourd impair-pair, possède un espacement moyen des résonances très faible valant 0,52 eV. Pour pouvoir séparer les résonances les unes des autres, il convient de maintenir la largeur expérimentale des résonances en dessous de cette valeur.

En dehors de l'augmentation naturelle de la largeur totale des résonances avec l'énergie (augmentation toutefois très faible dans notre gamme d'énergie), deux phénomènes contribuent à l'élargissement des résonances : la résolution expérimentale et l'effet Doppler. Sur le premier graphique de la figure 46 sont tracés, en fonction de l'énergie, la largeur à mi-hauteur de la fonction de résolution expérimentale et celle de la gaussienne de l'élargissement Doppler.

La largeur à mi-hauteur de la résolution est calculée par REFIT, à partir des paramètres entrés par l'utilisateur, pour chaque intervalle d'énergie spécifié. Si la largeur des canaux est correctement choisie (de manière à rester négligeable devant

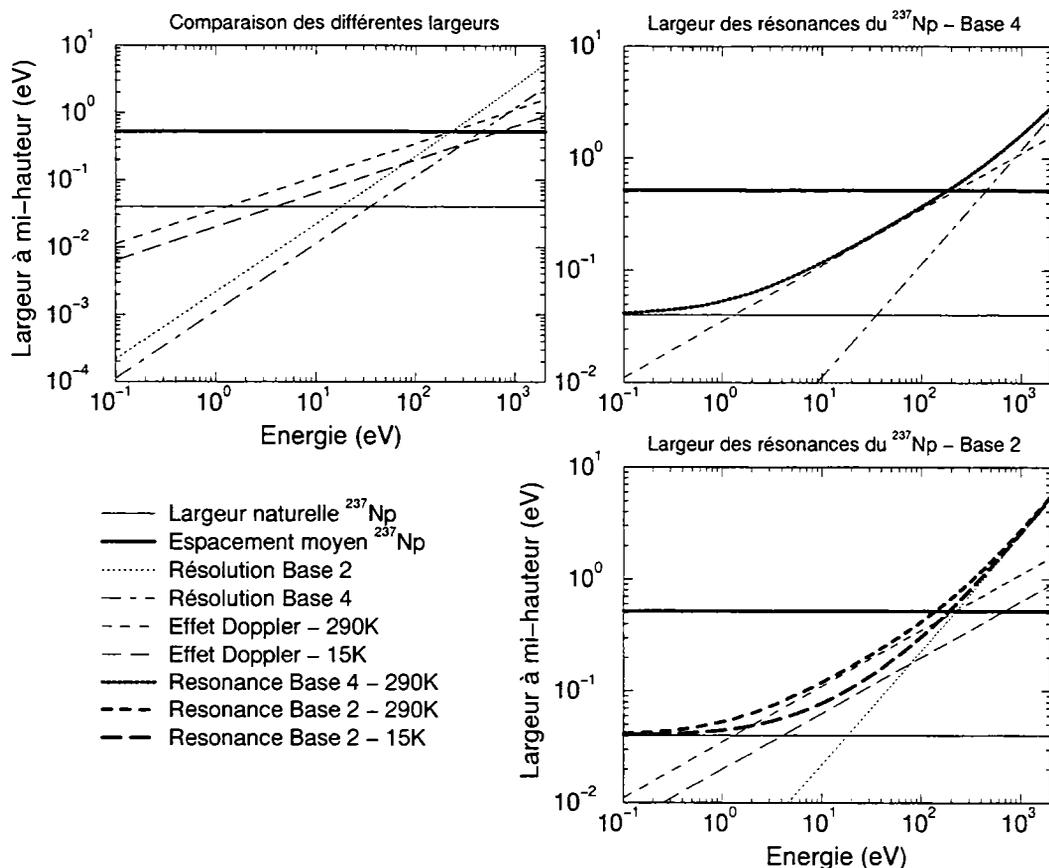


Fig.46 : Largueur à mi-hauteur des différents processus d'élargissement des résonances (résolution, effet Doppler selon la température) et évolution de la largeur des résonances en fonction de l'énergie.

les autres contributions à la fonction de résolution), le comportement de la largeur à mi-hauteur de la résolution expérimentale ( $FWHM$ ) en fonction de l'énergie  $E$  peut être approché, à partir des résolutions calculées à l'aide de REFIT, par une équation de la forme :

$$FWHM = A \cdot E + B \cdot E^{\frac{3}{2}} \quad (\text{III.17})$$

où  $A$  et  $B$  valent respectivement :

$$\text{-base 2 (26,5 m) : } A = 2,17 \cdot 10^{-3}, B = 1,05 \cdot 10^{-5} \text{ eV}^{-\frac{1}{2}}$$

$$\text{-base 4 (49,34 m) : } A = 1,12 \cdot 10^{-3}, B = 1,82 \cdot 10^{-6} \text{ eV}^{-\frac{1}{2}}$$

Pour l'effet Doppler, nous ne considérons ici que le modèle du gaz libre avec une température effective calculée à partir du spectre de fréquence du dioxyde d'uranium (voir chapitre II).

La largeur à mi-hauteur d'une gaussienne est donnée par l'expression  $\sqrt{8 \ln 2} \cdot \sigma$ .

En se référant aux équations (III.10) et (III.11), on peut en déduire que dans le cas de la modélisation du gaz libre pour l'effet Doppler, il faut considérer l'équivalence  $\sigma = \Delta_{eff}/\sqrt{2}$

On obtient donc pour  $\sigma_D$ , la largeur à mi-hauteur de la gaussienne représentant l'élargissement Doppler, l'expression suivante :

$$\sigma_D = \sqrt{4 \ln 2} \cdot \Delta_{eff} = \sqrt{\frac{16 \ln 2 \cdot k_B T_{eff} E}{A}} \quad (\text{III.18})$$

$A$  étant ici le nombre de masse du noyau, supposé très grand devant 1.

Les températures utilisées dans nos mesures furent 290 K (toutes les bases), 50 K et 15 K (base 2 uniquement). Les températures effectives  $T_{eff}$  correspondantes sont 304 K, 105 K et 99 K.

Sur les deux autres graphiques de la figure 46, chacun dédié à une base de vol spécifique, est tracée l'évolution de la largeur à mi-hauteur d'une résonance du neptunium-237 en fonction de son énergie. En considérant, en première approximation, que la forme naturelle de la résonance, l'élargissement Doppler et la fonction de résolution expérimentale peuvent être assimilées à des gaussiennes, la largeur totale à mi-hauteur de la résonance est alors obtenue par la somme quadratique de leur trois largeurs à mi-hauteur.

L'élargissement Doppler est pratiquement le même à 15 K ou 50 K (températures effectives très proches : 99 K et 105 K). Aussi n'avons-nous représenté sur la figure 46 que les largeurs correspondant à 290 K et 15 K pour l'effet Doppler.

Nous n'avons pas différencié sur cette figure les différents modes de fonctionnement utilisés pour l'accélérateur car le changement apporté sur la résolution expérimentale est des plus négligeables. De même, les résolutions des bases 2 et 15 étant comparables, nous n'avons représenté qu'une seule d'entre elles.

La résolution expérimentale est la principale origine de l'élargissement des résonances pour les plus hautes énergies de notre plage d'étude, alors qu'à plus basse énergie c'est l'effet Doppler qui prédomine. C'est pourquoi nous avons utilisé la base 2 non seulement pour étudier l'effet Doppler mais également pour obtenir une meilleure résolution à basse énergie. En effet, même si la longueur de vol est plus courte, la présence d'un cryostat permet des mesures à basse température. La largeur Doppler ainsi réduite, la séparation des résonances se trouve grandement améliorée comme l'illustre la figure 47.

### ***3.8 Largeur des canaux expérimentaux***

La largeur des canaux expérimentaux est définie à partir de celle des canaux des codeurs en temps. Un regroupement des canaux des codeurs est effectué afin

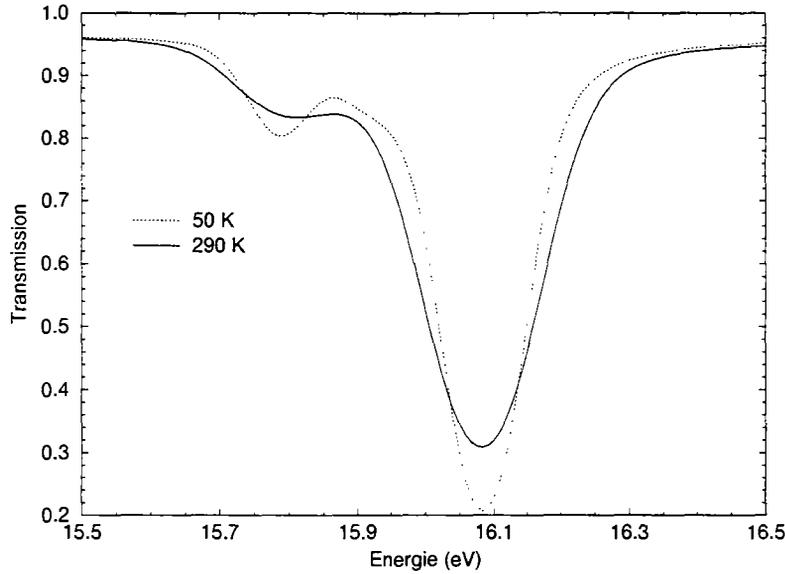


Fig.47 : Courbes ajustées par REFIT sur la transmission expérimentale mesurée sur la base 2 (26,45 m) pour un échantillon de 1 g/cm<sup>2</sup> porté à deux températures différentes : 50 K et 290 K. La diminution de l'élargissement Doppler à 50 K permet d'obtenir une meilleure séparation des résonances avec, dans ce cas précis, l'apparition d'une résonance à 15,9 eV difficilement discernable à température ambiante.

d'obtenir une largeur adaptée des canaux selon la valeur du temps de vol. La fonction de regroupement de ces canaux en fonction du numéro de canal est appelée accordéon :

$$\Delta t(N_{\text{canal}}) = k(N_{\text{canal}}) \cdot \Delta t_{\text{codeur}} \quad (\text{III.19})$$

avec

$N_{\text{canal}}$ , numéro de canal expérimental considéré.

$\Delta t_{\text{codeur}}$ , largeur des canaux du codeur.

$\Delta t(N_{\text{canal}})$ , largeur du canal numéro  $N_{\text{canal}}$ .

$k(N_{\text{canal}})$ , fonction de regroupement des canaux ou accordéon.

Afin que les paramètres de résonance soient correctement déterminés, il convient que la largeur à mi-hauteur de chaque résonance soit décrite sur au moins une dizaine de canaux. Or la résolution totale est toujours supérieure à la résolution expérimentale. Une méthode pour déterminer la largeur des canaux est alors de considérer qu'elle doit être au moins 10 fois inférieure à la largeur à mi-hauteur de la résolution expérimentale. Les valeurs approchées de celle-ci pour les bases 2, 4 et 15 (la base 15 a une résolution très proche de celle de la base 2) peuvent être calculées en utilisant l'équation (III.17) avec les paramètres  $A$  et  $B$  correspondants.

Pour obtenir la largeur des canaux  $\Delta t$ , il suffit alors de calculer l'équivalent en temps de vol de la largeur de la résolution et de diviser le résultat par 10, ce qui donne en fonction de l'énergie  $E$  des neutrons et de la distance de vol  $L$  :

$$\Delta t = 3,61 \cdot L \cdot \left( \frac{A}{\sqrt{E}} + B \right) (\mu s) \quad (\text{III.20})$$

Soit pour toutes les bases, en négligeant la contribution de B dans l'équation (III.20) (qui correspond à environ 1 ns) :

$$\Delta t \simeq \frac{0,2}{\sqrt{E}} (\mu s) \quad (\text{III.21})$$

Tableau 11 : Comparaison entre les largeurs utilisées et calculées des canaux en temps de vol en fonction de l'énergie des neutrons. Les valeurs calculées correspondent à un dixième de la largeur à mi-hauteur de la résolution expérimentale. En dessous de 20 eV sont également données la largeur calculée (pour les bases de vol 2 et 4) équivalente à 4 meV, soit un dixième de la largeur naturelle des résonances du neptunium.

Energie (eV)	Largeur du canal (ns)	$\Delta t$ calculé (ns)
1	512	200 , $\leq 4000$ (26,5m), $\leq 7400$ (49,3m)
10	128	63, $\leq 126$ (26,5 m), $\leq 234$ (49,3 m)
100	32	20
500	8	9
1000	4	6

En se référant à la figure 46, il est clair que la largeur des canaux est bien trop sous-estimée en dessous de quelques dizaines d'électron-volts. Il est dans ce cas possible de prendre une valeur supérieure, dont la valeur doit toutefois être inférieure à au moins un dixième de la largeur naturelle des résonances soit 4 meV dans le cas du neptunium.

En dessous de 20 eV, on veillera donc à ce que :

$$\frac{0,2}{\sqrt{E}} \leq \Delta t \leq 0,15 \cdot \frac{L}{E^{\frac{3}{2}}} \quad (\text{III.22})$$

Le tableau 11 compare ces résultats avec la largeur des canaux utilisés.

## 4 Transmission

### 4.1 Principe

Le principe de la transmission est simple. L'échantillon à mesurer est placé dans le faisceau de neutrons ainsi qu'un détecteur de neutrons, plusieurs dizaines de mètres plus loin. Si le neutron subit une réaction dans l'échantillon, il sera soit absorbé soit diffusé. La diffusion peut être considérée isotrope, du fait des faibles énergies auxquelles nous travaillons (en dessous de quelques keV).

La quantité de neutrons diffusés détectée est proportionnelle à l'angle solide suivant lequel le détecteur voit l'échantillon. La valeur la plus grande de cet angle solide est obtenue pour la base 2 : l'échantillon est un disque de rayon  $R_S$  (environ 25 mm pour les deux bases), le détecteur un disque de rayon  $R_D$  (55 mm) placé à une distance  $d$  (15 m pour la base 2, 25 m pour la base 4) de l'échantillon.

L'angle solide  $\Omega$  s'obtient, puisque  $R_D$  et  $R_S$  sont très inférieurs à  $d$ , par l'équation suivante [113] :

$$\frac{\Omega}{4\pi} = \left(\frac{R_D}{2d}\right)^2 \leq 4 \cdot 10^{-6} \quad (\text{III.23})$$

Donc seule une proportion négligeable des neutrons diffusés atteindra le détecteur. Ainsi, on peut considérer que le détecteur ne voit que les neutrons n'ayant pas réagi dans l'échantillon. La valeur du flux transmis par une épaisseur donnée d'un élément est donc d'autant plus grande que la section efficace totale de cet élément est faible. Dans une expérience de transmission, les résonances vont donc apparaître sous forme de dépressions dans le spectre de neutrons.

### 4.2 Transmission et section efficace

#### 4.2.1 Calcul de la transmission

La transmission est directement reliée à la section efficace totale de l'élément à étudier.

Considérons un échantillon constitué d'un seul isotope  $A$  placé dans le faisceau de neutrons. Soient  $n_n$  et  $n_A$  respectivement le nombre de neutrons d'énergie  $E$  et d'atomes  $A$  par unité de volume et  $v_n$  la vitesse relative des neutrons par rapport aux atomes de l'échantillon. Dans ce cas l'expression du nombre d'interactions par unité de volume et de temps est donnée par :

$$I(E) = n_A \cdot \sigma_t(E) \cdot n_n(E) \cdot v_n \quad (\text{III.24})$$

où  $\sigma_t(E)$  est la section efficace totale microscopique.

Or le flux de neutrons pour une énergie donnée  $E$  n'est autre que :

$$\varphi(E) = n_n(E) \cdot v_n$$

d'où :

$$I(E) = n_A \cdot \sigma_t(E) \cdot \varphi(E) \quad (\text{III.25})$$

Pour un échantillon d'aire unité et d'épaisseur  $dx$ , la variation du flux de neutrons est due au nombre d'interactions dans cette épaisseur :

$$d\varphi(E) = -I(E) dx = -n_A \cdot \sigma_t(E) \cdot \varphi(E) dx \quad (\text{III.26})$$

Soit  $n$ , le nombre d'atomes par unité de surface, on a alors :  $dn = n_A \cdot dx$

L'équation (III.26) s'écrit alors :

$$\frac{d\varphi(E)}{\varphi(E)} = -\sigma_t(E) \cdot dn \quad (\text{III.27})$$

La transmission  $T(E)$  de l'échantillon est le rapport entre le flux de neutrons transmis à la sortie de l'échantillon  $\varphi_2(E)$  et le flux incident (avant l'échantillon)  $\varphi_1(E)$ , comme indiqué sur la figure 48.

La transmission est reliée à la section efficace totale par l'expression suivante, déduite directement de l'intégration de l'équation (III.27) :

$$T(E) = \frac{\varphi_2(E)}{\varphi_1(E)} = e^{-n\sigma_t(E)} \quad (\text{III.28})$$

#### 4.2.2 Dépendance temporelle du flux de neutrons

Le flux de neutrons dépend de nombreux paramètres variant au cours du temps tels qu'intensité de la machine ou encore caractéristiques du faisceau d'électrons (voir chapitre IV). Le flux est donc également fonction du temps. Dans ce chapitre, le faisceau de neutrons sera supposé uniforme sur toute la surface des échantillons et des détecteurs.

Soient  $\varphi_1(E, t)$  et  $\varphi_2(E, t)$  les flux incidents et transmis instantanés à l'instant  $t$  (représentés figure 48). La transmission instantanée est indépendante du temps et s'écrit :

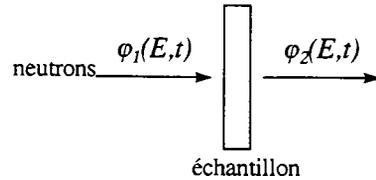


Fig.48 : Transmission à l'instant  $t$  du faisceau de neutrons à travers l'échantillon.

$$T(E) = \frac{\varphi_2(E,t)}{\varphi_1(E,t)} = e^{-n\sigma_t(E)} \quad (\text{III.29})$$

### 4.3 Mesure de la transmission

$\varphi_2(E,t)$  est mesuré en mettant l'échantillon dans le faisceau et  $\varphi_1(E,t)$  en ôtant l'échantillon de ce faisceau. Notons dès à présent que les deux flux ne sont donc pas mesurés au même moment.

Les neutrons sont détectés à l'aide de scintillateurs dédiés à leur détection (les verres au lithium) et les moniteurs donnent une information intégrale du flux.

#### 4.3.1 Détection des neutrons

##### Principe :

Les neutrons ne peuvent être détectés que de manière indirecte. Dans nos expériences de transmission, un neutron sera en effet détecté au travers de l'émission de particules chargées ou de photons issus d'une réaction nucléaire entre ce neutron et le milieu qu'il traverse.

Deux types de détecteurs sont utilisés pour mesurer le flux de neutrons : les moniteurs, détecteurs gazeux ( $\text{BF}_3$ ) introduits dans la partie 1.2, et les détecteurs utilisés pour la transmission, des scintillateurs en verre au lithium de type NE912.

Dans les deux cas, la réaction nucléaire entrant en jeu est  $(n,\alpha)$ . C'est une réaction fortement exothermique, l'énergie  $Q$  libérée par la réaction étant de plusieurs MeV. Les particules chargées produites par la réaction auront une énergie cinétique égale à la somme de  $Q$  et de l'énergie cinétique des neutrons. Aux faibles énergies des neutrons avec lesquelles nous travaillons, l'énergie cinétique des particules chargées sera indifférenciable et égale à  $Q$ . Les détecteurs utilisés dans la détection des neutrons ne permettent pas de mesurer l'énergie de ceux-ci qui est obtenue dans notre cas par la méthode de temps de vol.

Chacun de ces détecteurs est couplé à un photomultiplicateur. Dans le cas des verres au lithium, deux informations sont émises pour chaque évènement :

l'instant de détection (qui servira à déterminer le temps de vol) et l'amplitude du signal (proportionnelle à  $Q$ ) utilisée pour sélectionner les événements dans la chaîne électronique.

Les détecteurs utilisés dans nos expériences sont étudiés plus en détail dans l'annexe A.

Valeur donnée par les moniteurs :

Ces détecteurs donnent une valeur du flux intégrée en temps et en énergie. Le bruit de fond peut être négligé et si le flux de neutrons est considéré uniforme au niveau d'un moniteur alors le taux de comptage  $N$  du détecteur est [113] :

$$N = \iint_{\Delta E, \Delta t} \varphi_{ref}(E, t) \cdot \varepsilon_{BF_3}(E) \cdot dE \cdot dt \quad (III.30)$$

avec

$E$ , énergie cinétique des neutrons.

$t$ , instant de la mesure.

$\Delta E$ , domaine d'intégration en énergie imposé par une fenêtre.

$\Delta t$ , durée de la mesure.

$\varepsilon_{BF_3}(E)$ , efficacité totale des moniteurs (définie et décrite dans l'annexe A).

$\varphi_{ref}(E, t)$ , flux de neutrons d'énergie  $E$  vu à l'instant  $t$  par le moniteur (voir page 107).

Information donnée par les scintillateurs NE912 :

Ces détecteurs donnent la valeur intégrée du flux sur la durée de la mesure en fonction de l'énergie des neutrons.

$$\begin{aligned} \Phi_1(E) &= \int_{\Delta t_1} \varepsilon(E) \cdot \varphi_1(E, t) \cdot dt \\ \Phi_2(E) &= \int_{\Delta t_2} \varepsilon(E) \cdot \varphi_2(E, t) \cdot dt \end{aligned} \quad (III.31)$$

avec

$\varepsilon(E)$ , efficacité totale du détecteur.

$\varphi_1(E, t)$ , valeur à l'instant  $t$  du flux incident de neutrons d'énergie  $E$ .

$\varphi_2(E, t)$ , valeur à l'instant  $t$  du flux sortant de neutrons d'énergie  $E$ .

$\Delta t_1$ , durée de la mesure du flux incident.

$\Delta t_2$ , durée de la mesure du flux sortant.

Il faut toutefois ajouter à la réponse de ces détecteurs à une énergie donnée, la valeur du bruit de fond pour cette énergie. En effet, au flux instantané s'ajoute un bruit de fond  $b(E, t)$  qui est la réponse du détecteur à une combinaison inconnue des neutrons, rayons gamma ou diverses particules chargées dépendant principalement

du flux du neutrons à cet instant. Les bruits de fond mesurés  $B_1(E)$  et  $B_2(E)$  (respectivement associés à  $\Phi_1(E)$  et  $\Phi_2(E)$ ) sont donc différents et valent :

$$\begin{aligned} B_1(E) &= \int_{\Delta t_1} b_1(E, t) \cdot dt \\ B_2(E) &= \int_{\Delta t_2} b_2(E, t) \cdot dt \end{aligned} \quad (\text{III.32})$$

avec

$b_1(E, t)$ , bruit de fond enregistré par le détecteur pour le flux  $\varphi_1(E, t)$ .

$b_2(E, t)$ , bruit de fond enregistré par le détecteur pour le flux  $\varphi_2(E, t)$ .

$\Delta t_1$ , durée de la mesure du flux incident.

$\Delta t_2$ , durée de la mesure du flux sortant.

Les comptages  $S_1(E)$  et  $S_2(E)$  du détecteur à une énergie  $E$  des neutrons pour des flux respectifs  $\varphi_1(E, t)$  et  $\varphi_2(E, t)$  sont donc, pour une durée de mesure respective de  $\Delta t_1$  et  $\Delta t_2$  :

$$\begin{aligned} S_1(E) &= \Phi_1(E) + B_1(E) \\ S_2(E) &= \Phi_2(E) + B_2(E) \end{aligned} \quad (\text{III.33})$$

### 4.3.2 Cycle de mesure

Ce que nous mesurons n'est pas le flux instantané à l'instant  $t$ , mais la valeur intégrée sur la durée de la mesure de ce flux multipliée par l'efficacité du détecteur à laquelle s'ajoute un bruit de fond.

L'idéal serait de mesurer  $\varphi_1(E, t)$  et  $\varphi_2(E, t)$  en même temps, mais cela nécessiterait deux détecteurs, la présence d'un détecteur avant l'échantillon modifierait le flux et la distance de détection serait différente. Le choix s'est donc plutôt porté sur l'utilisation d'un seul détecteur et une mesure des flux à deux instants différents,  $\varphi_1(E, t)$  étant obtenu en otant tout simplement l'échantillon du faisceau.

Mais  $\varphi_1(E, t)$  et  $\varphi_2(E, t)$  n'étant pas mesurés au même moment, les variations du flux de neutrons en fonction du temps peuvent introduire des erreurs systématiques sur nos résultats. Pour limiter ce phénomène, on entreprend une mesure alternée des flux incidents et transmis.

Pour une durée  $\Delta t_{in}$  on met l'échantillon dans le faisceau de neutrons (position qu'on appellera désormais IN), puis celui-ci est oté pour une durée  $\Delta t_{out}$  (position OUT), puis l'échantillon est réintroduit dans le faisceau pour une nouvelle durée  $\Delta t_{in}$ , et ainsi de suite comme le schématise la figure 49.

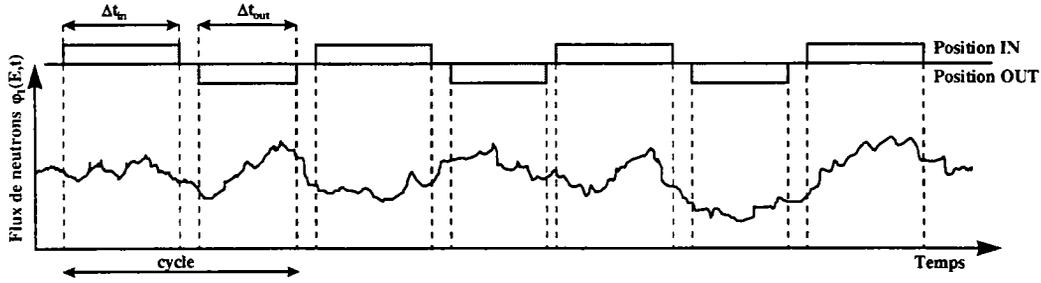


Fig.49 : Schéma de principe de la succession des mesures dans le cas d'une expérience de transmission alternant échantillon dans et hors du faisceau (positions IN et OUT respectivement) afin de minimiser l'impact des variations du flux de neutrons.

### 4.3.3 Détermination de la transmission

Dans la pratique, on arrête la mesure lorsque le nombre d'évènements détectés dans le verre au lithium atteint une valeur définie. La durée de la mesure de chaque cycle varie donc selon le choix de l'expérimentateur ( $\Delta t_{in} \neq \Delta t_{out}$ ), mais également en fonction de la valeur du flux incident ( $\Delta t_{in}$  n'est pas constant d'un cycle à l'autre).

Dans ces conditions, la transmission est le rapport entre le flux transmis intégré sur l'ensemble des  $\Delta t_{in}$  et le flux incident intégré sur l'ensemble des  $\Delta t_{out}$ , le tout multiplié par un facteur de normalisation. D'après ce qui précède, ce dernier n'est autre que le rapport entre le flux incident intégré sur les  $\Delta t_{out}$  et ce même flux incident intégré sur les  $\Delta t_{in}$ . Si les variations du flux peuvent être considérées, sur la somme des cycles, indépendantes de l'énergie (voir chapitre IV pour plus de détails à ce sujet), alors ce facteur de normalisation est une constante, notée  $K$ , et la transmission s'écrit :

$$T(E) = K \frac{\Phi_2(E)}{\Phi_1(E)} = K \frac{\int_{\Delta t_2} \varphi_2(E, t) dt}{\int_{\Delta t_1} \varphi_1(E, t) dt} \quad (\text{III.34})$$

avec :

$$\Delta t_1 = \sum \Delta t_{out}$$

$$\Delta t_2 = \sum \Delta t_{in}$$

et  $K$  valant :

$$K \equiv K(E) = \frac{\int_{\Delta t_1} \varphi_1(E, t) dt}{\int_{\Delta t_2} \varphi_1(E, t) dt} \quad (\text{III.35})$$

Comme nous l'avons déjà mentionné,  $\int_{\Delta t_2} \varphi_1(E, t) dt$  ne peut être mesurée dans une expérience de transmission. Aussi, est-ce à ce niveau que nous allons utiliser l'information donnée par les moniteurs (détecteurs  $\text{BF}_3$ ). En faisant le rapport entre le nombre de coups enregistrés dans les moniteurs durant  $\Delta t_1$  et  $\Delta t_2$ , on obtient le rapport du flux intégré en temps et en énergie sur ces périodes. Si les variations du

flux  $\varphi_{ref}(E, t)$  vu par les moniteurs peuvent être considérées comme indépendantes de l'énergie, alors ce rapport n'est autre que le facteur de normalisation  $K$  :

$$K = \frac{\iint_{\Delta E, \Delta t_1} \varphi_{ref}(E, t) \cdot \varepsilon_{BF_3}(E) \cdot dE \cdot dt}{\iint_{\Delta E, \Delta t_2} \varphi_{ref}(E, t) \cdot \varepsilon_{BF_3}(E) \cdot dE \cdot dt} = \frac{N_1}{N_2} \quad (\text{III.36})$$

avec

$N_1$  somme des nombres de coups enregistrés dans le moniteur pour toutes les positions IN.

$N_2$  somme des nombres de coups enregistrés dans le moniteur pour toutes les positions OUT.

$\varepsilon_{BF_3}(E)$ , efficacité totale des moniteurs.

Pour obtenir la transmission à partir des informations données par les détecteurs, on utilise les équations (III.33) et (III.36) :

$$T(E) = K \frac{\Phi_2(E)}{\Phi_1(E)} = \frac{N_1}{N_2} \cdot \frac{S_2(E) - B_2(E)}{S_1(E) - B_1(E)} \quad (\text{III.37})$$

La transmission expérimentale en dessous de 2 keV de l'échantillon NS97048 (décrit ci-dessous) obtenue sur la base 4 est représentée sur la figure 50.

#### 4.4 Les échantillons

Les trois échantillons utilisés en transmission sont composés de poudre de dioxyde neptunium ( $\text{NpO}_2$ ) compressée. Une description complète des échantillons est donnée dans l'annexe B.

Dans deux des échantillons (SP96094 et SP96095, dont l'épaisseur en neptunium est respectivement de 0,2 g/cm<sup>2</sup> et 1 g/cm<sup>2</sup>), le dioxyde de neptunium est mélangé avec du soufre (voir annexe B) et l'ensemble est contenu dans une boîte en cuivre de 55 mm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur.

L'échantillon le plus épais (NS97048 contenant 2 g/cm<sup>2</sup> de neptunium) est inséré dans une boîte en aluminium de 50 mm de diamètre et de 0,5 mm d'épaisseur.

Des boîtes vides identiques à celles contenant l'élément à mesurer (appelée SP96111 pour la base 2 et Dummy pour la base 4) sont placées dans le faisceau lors des mesures sans échantillons (position OUT). Pour des conditions expérimentales identiques, les seules différences observées entre positions IN et OUT (telles que définies dans le paragraphe précédent) seront ainsi dues à l'élément dont on cherche à déterminer la transmission.

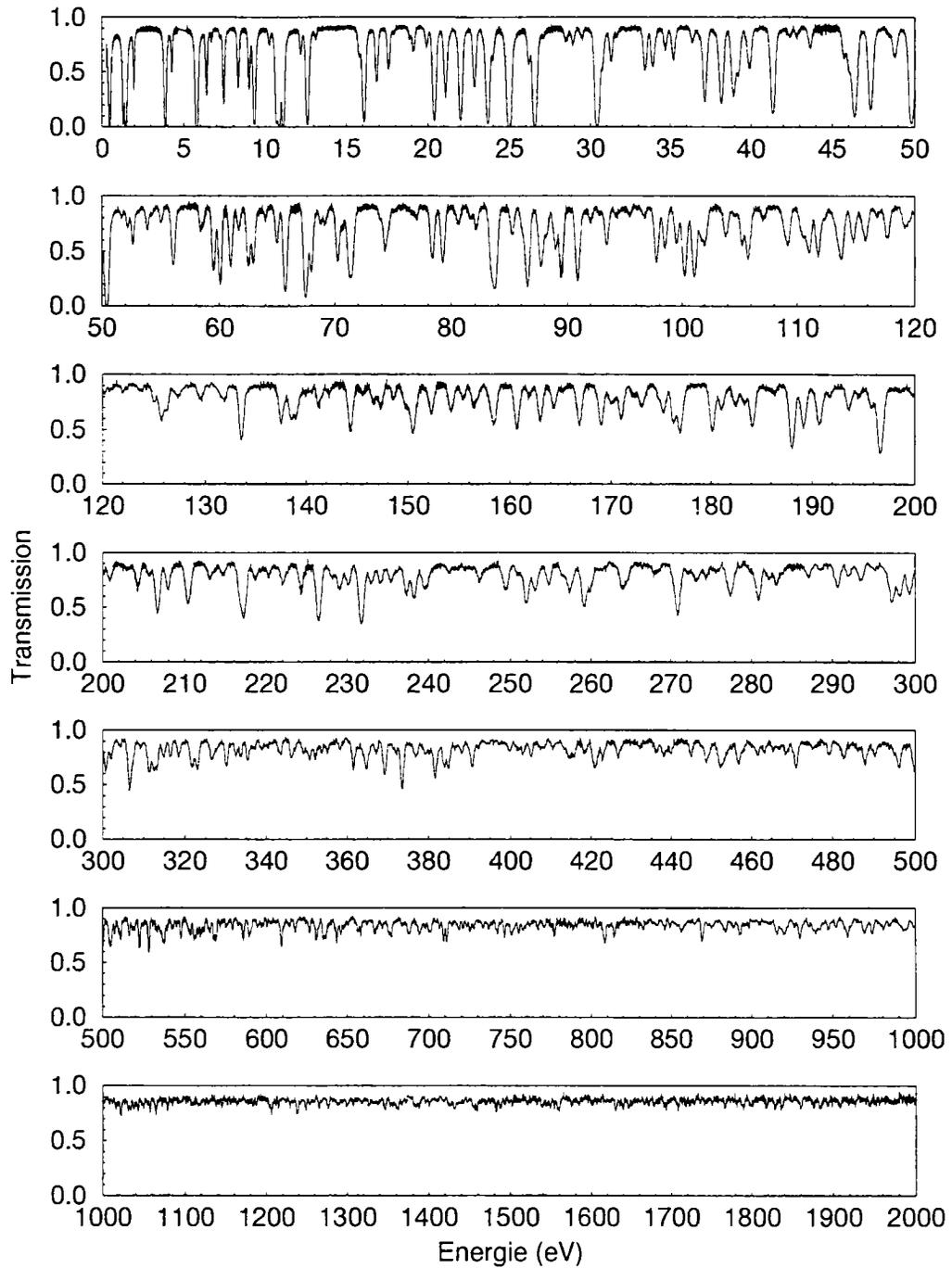


Fig.50 : Transmission expérimentale entre 0,3 eV et 2 keV obtenue par combinaison des expériences Fevrier98 et Juin98.

## 4.5 Les expériences

Les expériences de transmission sont au nombre de 6, appelées par le nom de leur date de déroulement : Février97, Juin97, Octobre97, Janvier98, Février98 et Juin98. Certaines de ces expériences sont divisées en plusieurs mesures dans des conditions de température ou de configuration d'écrans de bruit de fond différentes. Le panorama des différentes mesures est résumé dans le tableau 12.

Tableau 12 : Liste des différentes expériences de transmission avec les caractéristiques de chaque mesure : nom de l'expérience, base utilisée, fréquence de fonctionnement de GELINA, température des échantillons, écrans présents dans le faisceau de neutrons et temps d'acquisition utile (après traitement des données) de chacune de mesures pour chaque échantillon. L'épaisseur de neptunium de chacun des échantillons est : SP96095 1 g/cm<sup>2</sup>, SP96094 0,2 g/cm<sup>2</sup>, NS97048 2 g/cm<sup>2</sup> et SP96111 ainsi que Dummy ne contiennent pas de neptunium.

<i>Nom</i>	<i>Base</i>	<i>Echantillon</i>	<i>F (Hz)</i>	<i>T (K)</i>	<i>Ecrans</i>	<i>Temps (h)</i>
Février97	2 (26,5 m)	SP96095/SP96094/SP96111	100	15	Co-Mo-Pt-Au-Cd	28 / 24 / 11
				50	Co-Mo-Pt-Au-Cd	38 / 31 / 14
				290	Co-Mo-Pt-Au-Cd	30 / 24 / 11
Juin97	2	SP96095/SP96094/SP96111 SP96095/SP96111	800	15	Mn-Co-B	38 / 36 / 23
					Mn-Ge-B	112 / 50
Octobre97	4 (49,3 m)	NS97048/Dummy	800	290	Na-Bi-Co-B	71 / 69
					Na-Mn-Mo-B	79 / 70
					Na-Mn-Co-B	76 / 68
Janvier98	2	NS97048+SP96095/SP96111	800	290	Rh-Cd	35 / 24
Février98	4	NS97048/Dummy	100	290	Na-Co-Mo-Au-Cd	124 / 93
Juin98	4	NS97048/Dummy	800	290	Na-Bi-Co-B	38 / 33
					Na-Mn-Co-B	28 / 22
					Na-Mn-Co-Mo-B	29 / 24
					Na-Mn-Ge-B	30 / 25

Une description plus complète de chaque expérience est donnée dans l'annexe C.

## 4.6 Electronique

### 4.6.1 Situation

Pour les deux bases, le dispositif électronique peut être décomposé en deux parties.

-La première correspond à l'électronique associée aux détecteurs et photomultiplicateurs dont le rôle est un premier traitement et mise en forme des signaux. Toute cette partie se situe dans la salle de mesure sur la base de vol.

-La seconde partie est dédiée au codage de ces signaux avec différents processus de contrôle et se trouve dans la salle d'acquisition à proximité du système d'acquisition.

L'ensemble de l'électronique est en standard NIM.

#### **4.6.2 Description générale**

Deux signaux, dont l'amplitude des impulsions est reliée à l'énergie de réaction ( $n, \alpha$ ) dans le détecteur, sont récupérés à la sortie de chaque photomultiplicateur.

-Un signal rapide provenant de l'anode qui est transformé en signal logique dans un discriminateur à fraction constante (DFC) : c'est le signal temps  $T_n$  si on utilise les notations de l'équation (III.4). Après d'autres traitements, ce signal est envoyé vers un codeur en temps (FTD pour Fast Time Digitizer) développé à l'IRMM et capable de coder un signal sur 25 bits avec une largeur de canal minimale de 0,5 ns [122]. Le FTD, réinitialisé à chaque impulsion du faisceau d'électrons par un signal appelé Pretrigger ( $Pt$ ), code la valeur du temps de vol correspondant à la différence entre  $T_n$  et le temps d'arrivée du signal  $T_0$  délivré par l'accélérateur et déclanchant le FTD.

-Un signal lent issu de l'une des dernières dynodes : c'est le signal d'amplitude utilisé uniquement sur la base de vol 4. Après avoir été amplifié celui-ci est envoyé dans un codeur analogique-digital (ADC) où la valeur de l'amplitude est transformée en numéro de canal ainsi que dans un stabilisateur.

Un schéma simplifié de l'électronique de la base 4, emprunté à la référence [10] est présenté sur la figure 51. Notons que les signaux à l'entrée des échelles de comptage sont donnés à titre indicatif. Une description plus détaillée de l'électronique se trouve dans l'annexe D.

#### **4.7 Acquisition**

Le système d'acquisition est constitué de deux ordinateurs de type PC équipé du logiciel d'acquisition commercial FAST [123] optimisé à l'IRMM.

Les signaux codés par le FTD et l'ADC sont d'abord envoyés dans un buffer, pour un traitement plus rapide des informations, puis au système d'acquisition qui traite les informations événement par événement. Les données sont alors sommées sous forme d'histogrammes donnant, en fonction de l'accordéon choisi, le nombre de coups pour chaque canal de temps de vol ou d'amplitude.

La durée d'une mesure en position IN ou OUT, qu'on appellera séquence, est déterminée par le nombre d'événements codés dont la valeur maximale est fixée par

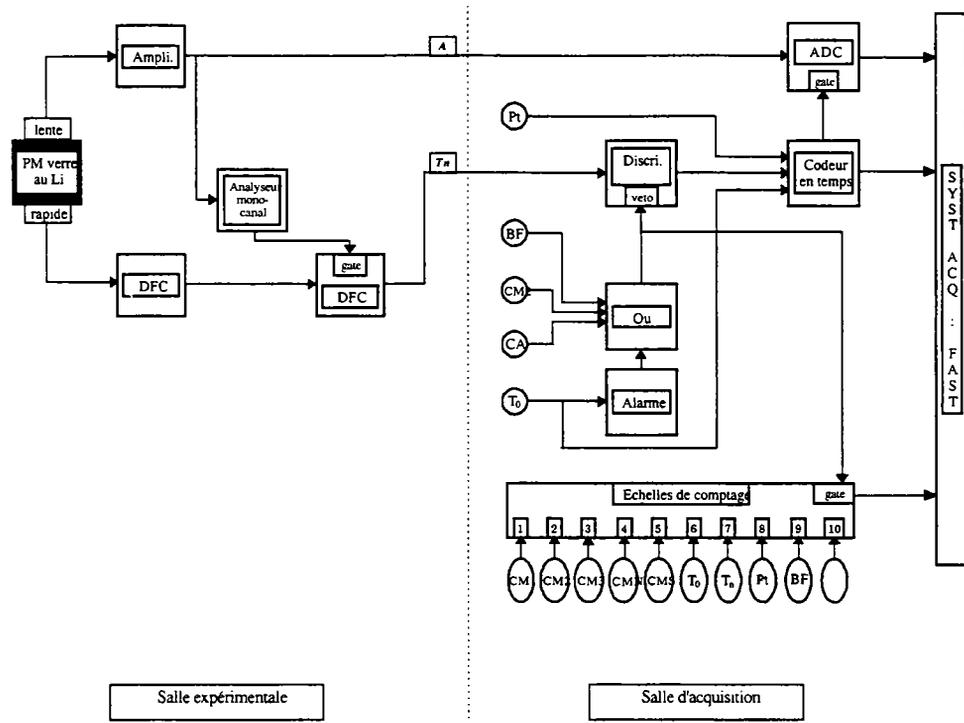


Fig.51 : Schéma simplifié du dispositif électronique d'une expérience de transmission sur la base 4 [10].

l'utilisateur. Lorsque cette valeur est atteinte, l'acquisition enregistre sur le disque dur et réinitialise les différents histogrammes et les valeurs de chaque échelle de comptage.

L'acquisition contrôle également automatiquement le déplacement du passeur d'échantillons (et des écrans de bruit de fond sur la base 4) à la fin de chaque séquence selon la programmation entrée par l'utilisateur.

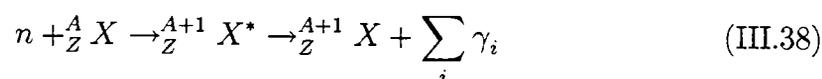
Enfin, sur la base 4, l'acquisition effectue une vérification de la stabilité du flux entre les séquences IN et OUT en contrôlant le rapport entre le nombre d'évènements dans les moniteurs durant ces séquences. Si ce rapport n'est pas dans une fenêtre de 5 % autour d'une valeur prédéfinie, alors le cycle entier (les deux séquences IN et OUT) est rejeté. Sur les plusieurs centaines de cycles enregistrés sur la base 4, seuls deux cycles ont été ainsi rejetés, leur distribution étant représentée sur la figure 74.

## 5 Capture

### 5.1 Principe

La réaction de capture radiative neutronique est décrite dans le chapitre II. Le neutron est absorbé par le noyau cible. Le noyau composé ainsi formé est dans un état excité et peut regagner son état fondamental en émettant un ou, plus généralement, plusieurs rayons gamma qu'on appelle cascade gamma de désexcitation.

La réaction de capture radiative s'écrit :



avec

$n$ , neutron incident.

${}^A_Z X$ , noyau cible (échantillon).

${}^{A+1}_Z X^*$ , noyau composé dans un état excité.

${}^{A+1}_Z X$ , noyau final dans son état fondamental (identique au noyau composé).

$\sum_i \gamma_i$ , cascade gamma de désexcitation du noyau composé.

La section efficace de capture du noyau cible est proportionnelle à la probabilité que le neutron incident subisse la réaction décrite précédemment et est donc directement reliée à la probabilité d'émission d'une cascade de rayonnements gamma.

Une expérience de capture se décompose en une mesure du flux de neutrons juste avant l'échantillon, pour connaître le nombre de neutrons incidents, et une mesure des rayonnements gamma provenant de l'échantillon pour remonter au nombre de cascades gamma, c'est à dire au nombre de réactions de capture radiative.

D'une manière très simplifiée, le taux de capture (qui est le rapport du nombre de captures radiatives sur le nombre de neutrons) permet d'obtenir la section efficace de capture radiative macroscopique de l'échantillon. Contrairement à la transmission, les résonances apparaissent ici sous forme de pics, puisque plus la section efficace de capture est importante plus le nombre de cascades gamma est élevé.

## 5.2 Taux de capture et section efficace

### 5.2.1 Nombre de captures

Considérons un échantillon constitué d'un seul isotope  $A$  placé dans le faisceau de neutron. D'une manière identique à la transmission (voir l'obtention de l'équation (III.25)), l'expression du nombre de réactions de capture radiative par unité de volume et de temps est donnée par :

$$I_c(E, t) = n_A \cdot \sigma_{(n,\gamma)}(E) \cdot \varphi(E, t) \quad (\text{III.39})$$

avec

$E$ , énergie cinétique des neutrons.

$n_A$ , nombre d'atomes de l'isotope  $A$  par unité de volume.

$\sigma_{(n,\gamma)}(E)$ , section efficace de capture radiative.

$t$ , instant de la mesure.

Pour un échantillon d'aire unité et d'épaisseur  $dx$ , la variation  $dC(E)$  du nombre de captures radiatives est :

$$dC(E, t) = I_c(E, t) dx = n_A \cdot \sigma_{(n,\gamma)}(E) \cdot \varphi(E, t) \cdot dx \quad (\text{III.40})$$

La variation  $d\varphi(E, t)$  du flux de neutrons dans l'échantillon est toujours vérifiée par l'équation (III.26). Aussi l'équation (III.40) devient-elle :

$$dC(E, t) = -\frac{\sigma_{(n,\gamma)}(E)}{\sigma_t(E)} \cdot d\varphi(E, t) \quad (\text{III.41})$$

avec  $\sigma_t(E)$ , section efficace totale.

Le nombre de captures radiatives est donc :

$$C(E, t) = \frac{\sigma_{(n,\gamma)}(E)}{\sigma_t(E)} \cdot (\varphi_1(E, t) - \varphi_2(E, t)) \quad (\text{III.42})$$

avec

$\varphi_1(E, t)$  et  $\varphi_2(E, t)$ , flux incident et à la sortie de l'échantillon comme spécifié sur la figure 48.

Toutefois, les neutrons peuvent être diffusés plusieurs fois avant d'être capturés. Il convient donc d'introduire pour chaque élément  $A$  un facteur correctif  $\mu_A(n, E)$ , dépendant de l'épaisseur  $n$  de l'échantillon et de l'énergie cinétique des neutrons. En utilisant de plus l'équation (III.28), on obtient :

$$C(E, t) = \mu_A(n, E) \cdot \frac{\sigma_{(n,\gamma)}(E)}{\sigma_t(E)} \cdot \varphi_1(E, t) \cdot (1 - T(E)) \quad (\text{III.43})$$

avec  $T(E) = e^{-n\sigma_t(E)}$ , transmission de l'échantillon indépendante de l'instant de la mesure.

### 5.2.2 Taux de capture

Le taux de capture  $Y(E)$  (Capture Yield en anglais) est le rapport entre le nombre de cascades gamma émises (nombre de captures radiatives) et le flux incident :

$$Y(E) = \mu_A(n, E) \cdot \frac{\sigma_{(n,\gamma)}(E)}{\sigma_t(E)} \cdot (1 - T(E)) \quad (\text{III.44})$$

Dans le cas d'un échantillon très mince, les diffusions multiples peuvent être négligées ( $\mu_A(n, E) = 1$ ) et  $n\sigma_t(E)$  devenant petit, il est possible d'effectuer un développement au premier ordre de l'exponentielle dans l'équation (III.28). Le taux de capture peut alors s'écrire comme :

$$Y(E) = n \cdot \sigma_{(n,\gamma)}(E) \quad (\text{III.45})$$

### 5.3 Mesure du taux de capture

Le taux de capture est obtenu à l'aide de deux mesures simultanées : celle du flux de neutrons incident et celle des rayonnements gamma de désexcitation du noyau composé. Le dispositif de détection est schématisé sur la figure 52.

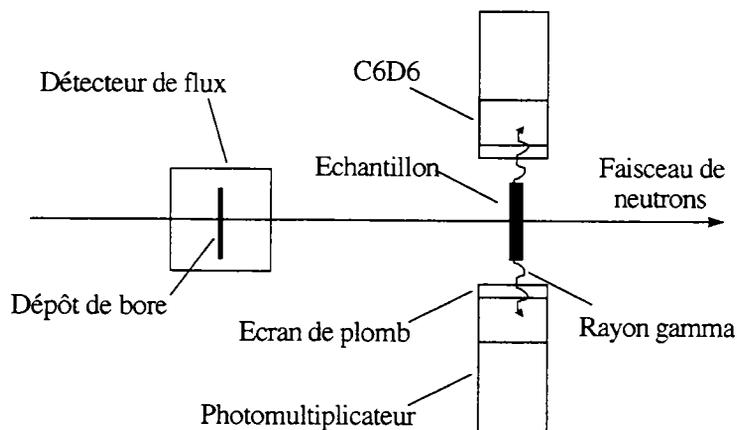


Fig.52 : Schéma simplifié du dispositif de détection dans les mesures de capture du  $^{237}\text{Np}$ .

### 5.3.1 Mesure du flux de neutrons

Le principe est le même que celui exposé pour la transmission : les neutrons réagissent d'abord dans le milieu du détecteur par une réaction  $(n,\alpha)$  et les particules chargées ainsi créées sont détectées.

Le détecteur est par contre placé dans le faisceau de neutrons juste avant la cible. Il est donc primordial que ce détecteur modifie le moins possible le flux et une chambre à ionisation avec dépôt solide de bore-10 (chambre à bore) a été utilisée. Pour plus de détails sur ce détecteur se référer à l'annexe A.

Le comptage  $N_F(E)$  enregistré par ce détecteur pour une énergie  $E$  des neutrons s'écrit :

$$N_F(E) = \varepsilon_B(E) \cdot \Phi(E) \quad (\text{III.46})$$

avec

$$\Phi(E) = \int_{\Delta t} \varphi_1(E, t) \cdot dt \quad (\text{III.47})$$

$\varepsilon_B(E)$ , efficacité totale de la chambre à ionisation.

$\varphi_1(E, t)$ , flux incident à l'instant  $t$ .

$\Delta t$ , durée de la mesure.

$\Phi(E)$ , flux incident intégré sur le temps de la mesure.

L'efficacité de la chambre à ionisation à bore-10 peut s'écrire sous la forme (voir annexe A pour plus de détails) :

$$\varepsilon_B(E) \simeq n_{10B} \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10B}(E) \quad (\text{III.48})$$

avec

$n_{10B}$ , épaisseur en at/barn de bore-10.

$\sigma_{(n,\alpha)}^{10B}(E)$ , section efficace de réaction  $(n,\alpha)$  du bore-10.

De plus, à ce signal s'ajoute un bruit de fond  $B_F(E)$ .

Le signal mesuré par le détecteur de flux est donc :

$$N_F(E) = n_{10B} \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10B}(E) \cdot \Phi(E) + B_F(E) \quad (\text{III.49})$$

### 5.3.2 Mesure des rayonnements gamma

Ce point est la difficulté majeure des mesures de capture. En effet, le but est de remonter au nombre de cascades gamma émises, c'est à dire au nombre d'évènements de capture radiative. Or, pour un même niveau d'excitation du noyau composé, une cascade peut se traduire par l'émission d'un nombre variable de rayonnements gamma d'énergies diverses. Comment détecter tous les évènements de capture radiative avec la même efficacité ?

### Détecteur à absorption totale :

Une première possibilité est de mesurer la totalité des rayonnements gamma de la cascade. L'énergie  $E^*$  des niveaux excités du noyau composé est, pour nos plages d'étude (en dessous de quelques keV), très proche de  $E_s$ , l'énergie de séparation du neutron pour le noyau composé valant plusieurs MeV.

$$E^* = \sum_i E_{\gamma_i} = E_n + E_s \sim E_s \quad (\text{III.50})$$

avec

$E_{\gamma_i}$ , énergie du  $i$ ème rayonnement gamma de la cascade.

$E_n$ , énergie cinétique du neutron capturé.

Si tous les rayonnements gamma de la cascade sont détectés, alors la somme de leurs énergies sera distribuée autour de  $E_s$ , permettant ainsi l'identification d'une telle cascade. De tels systèmes de détection nécessitent une couverture sur un angle solide de  $4\pi$  autour de l'échantillon et un volume suffisant pour détecter des rayons gamma dont l'énergie peut atteindre plusieurs MeV (par exemple décroissance vers l'état fondamental en un seul rayonnement gamma). Ils doivent de plus être rapides et posséder une bonne granularité pour limiter les empilements. Ces points peuvent être résolus par des détecteurs  $4\pi$  tels que des sphères composées de détecteurs BaF<sub>2</sub>, mais demandent un investissement important. Toutefois, le principal handicap de tels systèmes est dans leur grande sensibilité aux neutrons diffusés.

### Détecteur à énergie totale :

Afin d'obtenir une sensibilité moindre au bruit de fond, des systèmes de petite taille couvrant uniquement une faible partie de l'angle solide sont utilisés.

Le problème est que tous les rayonnements gamma ne sont pas détectés et une partie des cascades ne pourra être identifiée. Il est toutefois possible d'obtenir une efficacité constante de détection des cascades gamma à partir de la détection d'un rayonnement gamma  $\gamma$  d'énergie  $E_\gamma$ . Il suffit, en effet, que l'efficacité  $\varepsilon(E_\gamma)$  de détection de ce rayonnement gamma soit proportionnelle à  $E_\gamma$ , quelle que soit cette énergie.

$$\varepsilon(E_\gamma) = k \cdot E_\gamma \quad (\text{III.51})$$

avec  $k$ , constante.

Dans ce cas, l'efficacité de détection  $\varepsilon$  d'une cascade gamma, somme des efficacités  $\varepsilon(E_{\gamma_i})$  de détection de chaque rayonnement gamma  $\gamma_i$  composant la cascade, est proportionnelle à l'énergie d'excitation du noyau composé et peut être considérée constante sur notre gamme d'énergie :

$$\varepsilon = \sum_i \varepsilon(E_{\gamma_i}) = k \cdot \sum_i E_{\gamma_i} = k \cdot E^* \quad (\text{III.52})$$

Ainsi, en sommant tous les évènements détectés sur le temps de mesure, chaque cascade gamma issue d'un même état excité sera reconstituée avec la même efficacité.

La condition exprimée par l'équation (III.51) peut être vérifiée par le détecteur lui-même tels que les détecteurs de type Moxon-Rae [124]. Cependant ces derniers ont une efficacité très faible (de l'ordre de 2 %) qui perd sa proportionnalité avec l'énergie pour des rayonnements gamma d'énergie inférieure à 1 MeV [54].

Pour nos expériences, nous avons choisi d'assurer cette condition par une méthode mathématique de pondération de l'amplitude du signal [125], qui sera étudiée dans le chapitre suivant et qui est appliquée aux petits scintillateurs liquides que nous avons utilisés.

#### Dispositif utilisé :

Nous avons disposé de part et d'autre de l'échantillon deux scintillateurs liquides non hydrogénés (car ainsi peu sensibles aux neutrons) de type NE230 appelés par la suite  $C_6D_6$  (benzène deutéré), nom de leur liquide scintillant. Chaque détecteur est couplé à un photomultiplicateur qui délivre deux informations pour un évènement : l'instant de la détection (signal temps), qui correspond à l'instant d'arrivée du neutron sur l'échantillon car le temps mis par les rayons gamma pour atteindre les détecteurs peut être négligé devant le temps de vol des neutrons, et le signal amplitude.

Plus de détails sur ce détecteur sont donnés dans l'annexe A.

#### Information donnée par les $C_6D_6$ :

Lorsqu'un neutron d'énergie  $E$  est capturé, il y a une probabilité  $P_i(E)$  pour qu'un rayon gamma  $\gamma_i$  d'énergie  $E_{\gamma_i}$  soit émis dans la cascade. Il est détecté avec une efficacité  $\varepsilon(E_{\gamma_i})$  par l'ensemble des deux détecteurs. L'efficacité de détection d'un évènement de capture radiative  $\varepsilon_{cap}(E)$  est donc :

$$\varepsilon_{cap}(E) = \sum_i P_i(E) \cdot \varepsilon(E_{\gamma_i}) \quad (\text{III.53})$$

L'efficacité  $\varepsilon(E_{\gamma_i})$  peut s'exprimer comme :

$$\varepsilon(E_{\gamma_i}) = \int_0^{+\infty} D(E_{\gamma_i}) \cdot S(I, E_{\gamma_i}) \cdot dI = \int_0^{+\infty} R(I, E_{\gamma_i}) \cdot dI \quad (\text{III.54})$$

avec

$D(E_{\gamma_i})$ , probabilité pour un rayonnement gamma d'énergie  $E_{\gamma_i}$  d'interagir dans un des détecteurs (fonction de l'angle solide de couverture des détecteurs et de la nature des détecteurs).

$S(I, E_{\gamma_i})$ , probabilité que le signal amplitude provenant de la détection de

ce rayon gamma donne une amplitude  $I$ .

$R(I, E_{\gamma_i})$ , réponse amplitude du détecteur pour un rayonnement gamma d'énergie  $E_{\gamma_i}$ .

Le signal amplitude  $A(I, E)$  délivré par le détecteur pour un évènement de capture radiative correspond à la somme sur l'ensemble de la cascade des réponses amplitude de chaque rayon gamma :

$$A(I, E) = \sum_i P_i(E) \cdot R(I, E_{\gamma_i}) \quad (\text{III.55})$$

Soit

$$\varepsilon_{cap}(E) = \int_0^{+\infty} A(I, E) \cdot dI \quad (\text{III.56})$$

Le nombre d'évènements (signal temps)  $N_\gamma$  détectés lors d'une mesure en fonction de l'énergie  $E$  n'est autre que :

$$N_\gamma(E) = \varepsilon_{cap}(E) \cdot Y(E) \cdot \Phi_n(E) \quad (\text{III.57})$$

avec

$\varepsilon_{cap}(E)$ , efficacité de détection des détecteurs  $C_6D_6$  pour un évènement de capture radiative impliquant un neutron d'énergie  $E$ .

$Y(E)$ , taux de capture.

$\Phi_n(E)$ , flux de neutrons au niveau de l'échantillon intégré sur le temps de mesure.

Notons que  $N_\gamma(E)$  ainsi défini n'est pas le nombre d'évènements de capture radiative. Pour ce faire, la réponse amplitude sera utilisée avec la fonction de pondération pour corriger l'efficacité des détecteurs afin de la rendre proportionnelle à l'énergie d'excitation du noyau composé comme nous l'avons spécifié dans l'équation (III.52) (voir chapitre suivant pour plus de détails).

#### Ecrans de plomb et bruit de fond :

Une autre difficulté est la forte radioactivité gamma naturelle du neptunium engendrant un important bruit de fond constant sur les détecteurs. Toutefois, l'énergie des rayons gamma issu de la radioactivité de l'échantillon est pour le neptunium inférieure à 600 keV, mais avec de nombreux empilements. Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit, des écrans de plomb (9 mm d'épaisseur) ont été disposés à l'entrée des détecteurs. L'intrusion de ces écrans de plomb dans la géométrie du système de détection a cependant des inconvénients :

-les rayons gamma provenant de la désexcitation du noyau composé peuvent également être absorbés ou perdre une partie de leur énergie. L'efficacité des

détecteurs se voit ainsi artificiellement modifiée et l'utilisation de la fonction de pondération devient plus incertaine.

-l'absorption de rayonnements gamma dans le plomb va créer des électrons et des positons qui vont être détectés par les  $C_6D_6$ . De même, l'épaisseur de plomb ayant été limitée en raison du point précédent, une partie non négligeable des rayons gamma provenant de la radioactivité naturelle est également détectée. Le bruit de fond ne peut donc être évité et peut ainsi créer des empilements avec les rayonnements gamma des cascades de désexcitation du noyau composé, limitant à nouveau l'utilisation de la fonction de pondération.

Il convient dans tous les cas d'ajouter un bruit de fond  $B_\gamma(E)$ , étudié plus en détail dans le chapitre suivant, au signal :

$$N_\gamma(E) = \varepsilon_{cap}(E) \cdot Y(E) \cdot \Phi_n(E) + B_\gamma(E) \quad (\text{III.58})$$

$N_\gamma(E)$  est représenté pour pratiquement toute notre plage d'énergie sur la figure 53.

### 5.3.3 *Obtention du taux de capture*

Le taux de capture expérimental  $Y(E)$  s'obtient à partir des équations (III.49) et (III.58). Le flux  $\Phi_n(E)$ , au niveau de l'échantillon, est relié au flux  $\Phi(E)$  arrivant sur la cathode du détecteur de flux par la transmission  $T_d(E)$  des différents éléments présents entre la cathode et l'échantillon, soit d'après la référence [121] 60  $\mu\text{m}$  d'aluminium, 5,5 cm de mélange gazeux argon (90 %) - méthane (10 %) et environ 70 cm d'air :

$$\Phi_n(E) = T_d(E) \cdot \Phi(E) \quad (\text{III.59})$$

L'allure de cette transmission et de ces trois composantes, calculée à l'aide du programme NJOY à une température de 300 K en utilisant les évaluations ENDBF-VI, est représentée sur la figure 54.

Dans notre plage d'étude, entre 0,1 et 2000 eV, la valeur de cette transmission est principalement due à l'air mais sa variation n'excède pas 0,5 %, ce qui est largement inférieur aux autres erreurs (telles que celles introduites par la détermination du bruit de fond ou de la fonction de pondération). Cette transmission est donc considérée constante et les deux flux sont alors proportionnels :

$$\Phi(E) = a \cdot \Phi_n(E) \quad (\text{III.60})$$

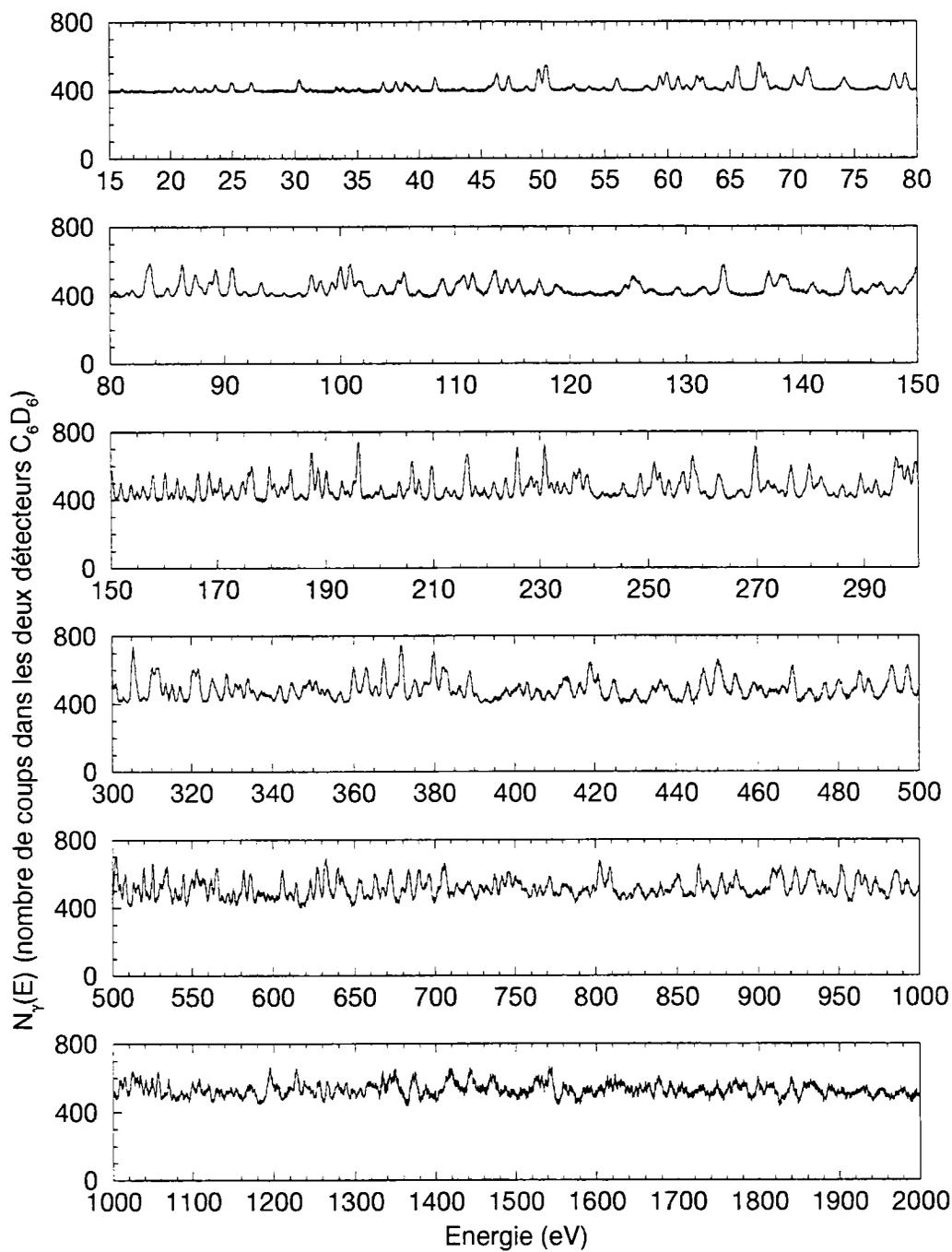


Fig.53 : Spectre  $N_\gamma(E)$ , nombre d'événements enregistrés dans les détecteurs  $C_6D_6$ , entre 15 eV et 2 keV pour l'expérience CapNovembre98. Le bruit de fond apparaît constant (à environ 400), car il est dominé par la radioactivité naturelle du  $^{237}Np$ .

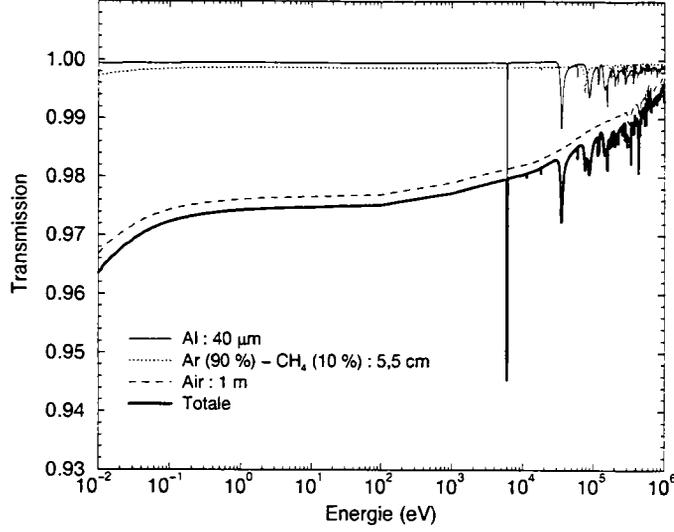


Fig.54 : Transmission des éléments situés entre la cathode du détecteur de flux et l'échantillon dans les expériences de capture. Les trois contributions à cette transmission sont l'épaisseur d'aluminium due à l'anode et à la fenêtre de sortie du détecteur, le gaz contenu dans la deuxième moitié du détecteur de flux et l'épaisseur d'air (prise ici égale à 50 cm) entre ce détecteur et l'échantillon. Cette dernière contribution est la plus importante. Cette transmission a été calculée à 300 K par NJOY à partir des données de la base ENDBF-VI.

avec  $a$ , constante.

Le taux de capture expérimental obtenu s'exprime, avec les approximations précédentes, comme :

$$Y(E) = \frac{N_\gamma(E) - B_\gamma(E)}{\varepsilon_{cap}(E) \cdot \Phi_n(E)} = \frac{a \cdot n_{10B} \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10B}(E)}{\varepsilon_{cap}(E)} \cdot \frac{N_\gamma(E) - B_\gamma(E)}{N_F(E) - B_F(E)} \quad (\text{III.61})$$

### 5.3.4 Cycle de mesure

Contrairement à la transmission, il n'y a pas de cycle bien défini puisque  $N_\gamma(E)$  et  $N_F(E)$  sont mesurés en même temps.

Toutefois, dans nos expériences, différentes mesures sont alternées :

- mesure du signal :  $N_\gamma(E)$  et  $N_F(E)$  sans aucun écran de bruit de fond hormi, dans notre cas, le sodium dont la résonance à 2,8 keV est utilisée comme résonance noire permanente. Dans la dernière de nos expériences (CapNovembre98), une mesure du signal avec juste la boîte en aluminium est entreprise afin d'obtenir une mesure du bruit de fond gamma.

-mesure de bruit de fond :  $N_{\gamma}(E)$  et  $N_F(E)$  avec la totalité des écrans de bruit de fond. Les points de bruit de fond sont obtenus dans les deux spectres (flux et gamma) et permettent donc de déterminer une forme du bruit de fond qui est alors appliquée sur les spectres obtenus sans les écrans en se normalisant sur la résonance noire du sodium. Cette méthode de détermination du bruit de fond avec une seule résonance noire permanente repose sur l'hypothèse de l'invariance de la forme du bruit de fond dans les deux configurations. L'étude du bruit de fond est détaillée dans le chapitre suivant.

-mesure de la normalisation : un échantillon en argent présentant une résonance saturée à 5,2 eV est utilisé pour déterminer la normalisation à apporter au taux de capture. La technique de normalisation est expliquée dans le chapitre suivant.

## 5.4 *Echantillons*

Deux échantillons différents, dont une description complète est donnée dans l'annexe B, ont été utilisés dans les expériences de capture.

L'échantillon le plus mince (SP94065) a une épaisseur de 0,02 g/cm<sup>2</sup>. Il est sous forme d'une fine feuille de 80 mm de diamètre composée d'un alliage constitué de 90 % (en masse) d'aluminium et de 10 % de neptunium-237. Le tout est scellé dans une boîte en aluminium de 10 cm de diamètre.

L'échantillon plus épais (NS98052) possède une épaisseur d'environ 1 g/cm<sup>2</sup>. Il est constitué de poudre de dioxyde de neptunium compressée et contenue dans une boîte en aluminium de 0,5 mm d'épaisseur de paroi et de 80,5 mm de diamètre interne. Cette boîte est scellée par de la résine epoxy. Une boîte vide en aluminium identique à la précédente a été utilisée pour étudier le bruit de fond gamma engendré dans les C<sub>6</sub>D<sub>6</sub> par l'aluminium.

## 5.5 *Les expériences*

Les expériences de capture sont au nombre de 3, appelées également par le nom de leur date de déroulement : CapFévrier97, CapFévrier98 et CapNovembre98.

Le panorama des différentes mesures est résumé dans le tableau 13.

Une description plus complète de chaque expérience est donnée dans l'annexe C.

Tableau 13 : Liste des différentes expériences de capture avec les caractéristiques de chaque mesure : nom de l'expérience, base utilisée, type d'échantillon (Ag correspond à une mesure de normalisation), fréquence de fonctionnement de GELINA, température des échantillons, présence ou non d'écrans de bruit de fond et le temps d'acquisition utile (après traitement des données) de chacune de mesures pour chaque échantillon.

<i>Nom</i>	<i>Base</i>	<i>Echantillon</i>	<i>F (Hz)</i>	<i>T (K)</i>	<i>Ecrans</i>	<i>Temps utile (h)</i>
CapFévrier97	15	SP94065 Ag	100	290	Sans / Avec Sans	88 / 45
CapFévrier98	15	SP94065	100	290	Sans / Avec	97 / 62
CapNovembre98	15	NS98052 Ag	800	290	Sans / Avec Sans	75 / 38

## 5.6 *Electronique*

### 5.6.1 *Situation*

De la même manière qu'en transmission, le dispositif électronique peut être séparé en deux parties géographiques.

Dans la salle expérimentale, se trouve l'électronique associée à chacun des deux ensembles  $C_6D_6$ -photomultiplicateurs et au détecteur de flux. Les signaux subissent une première mise en forme avant d'être envoyés dans la salle d'acquisition où le traitement de l'information a effectivement lieu.

### 5.6.2 *Signaux issus des $C_6D_6$*

Les deux détecteurs sont appelés Est (E) et Ouest (W) du fait de leur localisation par rapport à l'axe du faisceau de neutrons.

Deux signaux proviennent de chaque photomultiplicateur :

-le signal rapide (TE ou TW) provenant des anodes est utilisé pour la mesure du temps de vol. Il est d'abord transformé en signal logique dans un discriminateur rapide avant d'être envoyé dans le codeur en temps (FTD).

-chaque signal lent, soit l'amplitude AE ou AW, est amplifié dans la salle d'acquisition avant d'être envoyé dans un codeur analogique-digital (ADC).

### 5.6.3 *Signaux issus du détecteur de flux*

Le détecteur de flux fournit un seul signal qui est amplifié puis traité par deux chaînes différentes.

L'information temps de ce signal (TF) est créée dans un discriminateur à fraction rapide puis envoyée dans le FTD.

Le signal originel est amplifié. Ce signal d'amplitude du détecteur de flux (AF) est ensuite envoyé dans la salle d'acquisition vers un ADC.

#### **5.6.4 Formation du $T_n$**

Trois informations de temps de vol sont envoyées au FTD : TE, TW et TF. Ces signaux sont dupliqués. Ils sont d'une part envoyés dans une porte OU, et d'autre part individuellement sur des entrées du FTD appelées Routing Bit. La partie la plus délicate réside dans la mise en coïncidence de l'ensemble de ces signaux.

Le signal issu de la porte OU est le  $T_n$  dont la valeur est soustraite, comme dans le cas de la transmission, à celle du  $T_0$  pour déterminer le temps de vol. A cette valeur codée du temps de vol est associée une valeur créée par les Routing Bits qui permet au système d'acquisition d'identifier le type d'évènement (son origine et s'il est en coïncidence ou non). Cette identification est indispensable du fait de l'importance des coïncidences fortuites engendrées par le bruit de fond.

#### **5.6.5 Schéma**

Le schéma simplifié de l'électronique, avec des échelles de comptage données à titre indicatif, est emprunté à la référence [10]. Les signaux codés sortant des ADC et du FTD sont ensuite envoyés dans un multiplexeur (MPX) puis au système d'acquisition.

### **5.7 Le système d'acquisition**

Le système d'acquisition a été développé entièrement à l'IRMM et porte le nom de MP pour MultiParametric Analysis [131] et est décrit de manière plus approfondie dans la référence [10].

Les différentes informations relatives à un même évènement arrivent au système d'acquisition par le multiplexeur sous forme de plusieurs signaux codés. MP les combine en un seul évènement multiparamétrique (contenant donc une signature de l'évènement, son temps de vol et l'amplitude de chacun des trois détecteurs) qui est ensuite transmis à un ordinateur de type VAX/VMS.

Le VAX opère un premier traitement de ces évènements en les triant selon l'origine de l'évènement (détecteur de flux,  $C_6D_6$  Est ou  $C_6D_6$  Ouest). Il permet également une visualisation de divers histogrammes pour le contrôle en ligne de l'acquisition. Enfin, les résultats sont sauvegardés dans un fichier contenant la liste complète de tous les évènements, le programme source et l'exécutable portable sous environnement UNIX, les caractéristiques de l'expérience utilisées (telles que l'accordéon, la longueur de vol, le retard initial, etc...) et les valeurs des échelles. La

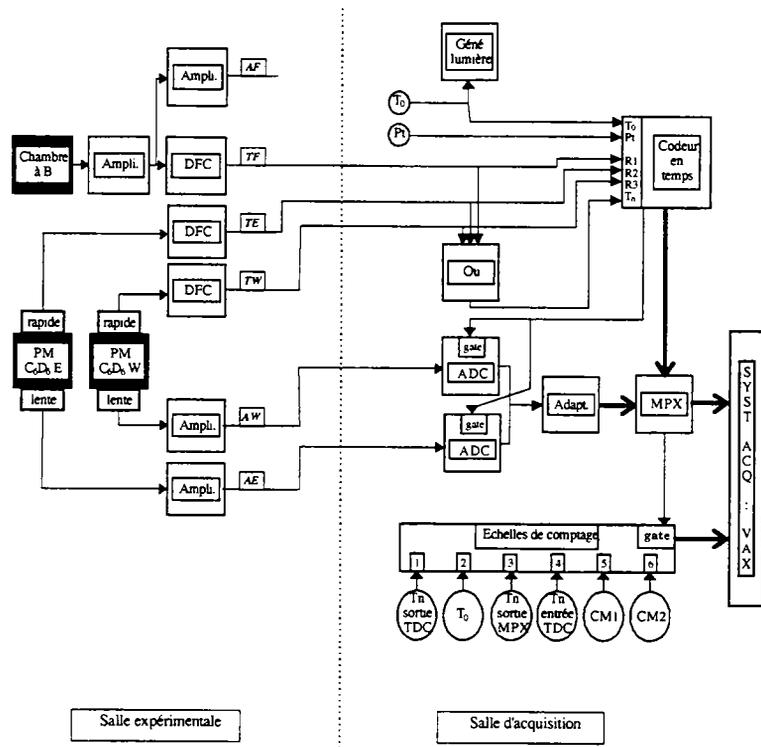


Fig.55 : Schéma simplifié du dispositif électronique utilisé pour les expériences de capture [10].

sauvegarde est effectuée de manière cyclique, la durée d'un cycle étant définie par la taille d'un buffer imposant un nombre d'évènements constant et permettant ainsi le contrôle de l'évolution des différentes informations au cours du temps.

Un grand avantage de ces fichiers et que du fait de leur contenu, ils peuvent être réutilisés, sous n'importe quel environnement UNIX, par les programmes MP offrant ainsi la possibilité de modifier les paramètres utilisés lors de l'acquisition comme la valeur des seuils par exemple, et de rejouer la liste des évènements cycle par cycle. Il est alors possible d'écarter d'éventuels cycles anormaux, d'étudier l'évolution de différentes grandeur cycle par cycle et de choisir les valeurs des seuils sur les spectres d'amplitude des détecteurs donnant le meilleur rapport signal sur bruit.

# CHAPITRE IV

## Réduction des données

Les données obtenues par les différents systèmes d'acquisition vont être réduites, c'est à dire corrigées de divers effets expérimentaux et combinées avant d'être analysées par le programme d'analyse REFIT.

Ces données brutes se présentent sous forme d'histogrammes à une dimension, de spectres bidimensionnels (temps-amplitude pour les  $C_6D_6$ ) ou sous forme de constantes correspondant aux différentes échelles de comptage.

Dans le cadre de ce travail, la réduction des données a été entreprise à l'aide un ensemble de programmes développé à l'IRMM et appelé AGS (Analysis of Geel Spectra) [132][133].

Chaque programme de AGS est affecté à une tâche spécifique. Une des hypothèses de départ de ces programmes est de considérer qu'il n'existe aucune corrélation entre les différents canaux d'un même spectre de données brutes provenant du système d'acquisition. Par contre, AGS calculera, tout au long de la réduction des données, une matrice de covariance entre ces canaux en tenant compte de la propagation des incertitudes statistiques et des incertitudes liées aux paramètres utilisés lors de l'ensemble des opérations mathématiques effectuées sur les différents spectres. Cette matrice ne peut être utilisée par le programme d'analyse REFIT, mais peut l'être dans SAMMY [134]. Une description plus détaillée de AGS peut être trouvée dans la référence [10].

### 1 Réduction des données de transmission

Le schéma des différentes étapes de la réduction des données est le suivant :

- importation des différents spectres de temps de vol dans AGS.
- correction de temps de mort de chacun des spectres.
- conversion des spectres, transformant les nombres de coups par canal en nombres de coups par nano-seconde en fonction de l'accordéon.

-création des spectres  $S_2(E)$  et  $S_1(E)$  (échantillon dans ou hors du faisceau de neutron) par sommation des différents spectres partiels.

-détermination des bruits de fond  $B_1(E)$  et  $B_2(E)$ .

-soustraction de ces bruits de fond : on obtient ainsi les spectres  $(S_1(E) - B_1(E))$  et  $(S_2(E) - B_2(E))$ .

-rapport des deux spectres précédents :

$$\frac{S_2(E) - B_2(E)}{S_1(E) - B_1(E)}$$

-multiplication du spectre obtenu par le facteur de normalisation  $K$  afin d'obtenir le spectre de transmission en fonction du temps de vol des neutrons :

$$T = K \cdot \frac{S_2(E) - B_2(E)}{S_1(E) - B_1(E)}$$

Nous allons maintenant décrire les principales étapes de la réduction des données.

## 1.1 Correction de temps mort

Une fois les spectres de temps de vol importés dans l'environnement de AGS, le premier traitement des données est la correction de temps mort. En effet, lorsqu'un évènement est détecté, l'acquisition est bloquée durant le temps nécessaire au traitement de cet évènement, ce temps étant appelé temps mort. Tout évènement ayant lieu durant ce temps sera donc perdu et il convient de corriger les spectres de temps de vol de ces pertes.

### 1.1.1 Origine et mesure du temps mort

Chaque constituant de la chaîne d'acquisition, détecteur compris, a son propre temps mort, la principale source de temps mort provenant de l'électronique et plus particulièrement du FTD. Une complication importante vient de la légère fluctuation du temps mort de l'ordre de 300 ns venant du transfert des données entre le FTD et le système d'acquisition.

Pour contourner cette difficulté, un composant électronique ayant un temps mort supérieur de plus de 300 ns à celui du FTD est utilisé sur la base 4. Le temps mort du système est alors déterminé par ce composant. Sur la base 2, c'est la valeur moyenne du temps mort qui est considérée.

Lors de l'acquisition, en même temps que la valeur du temps de vol, le temps séparant chaque évènement du précédent est enregistré dans un spectre appelé spectre de temps mort. En effet, à partir du moment où des évènements apparaissent dans ce spectre, c'est que le temps séparant les évènements est supérieur au temps mort du système d'acquisition. De tels spectres sont représentés sur la figure 56 pour

les expériences Janvier98 (effectuée sur la base de vol 2) et Fevrier98 (base de vol 4), plus de détails sur ces expériences étant donnés dans l'annexe C. Dans le deuxième cas, le temps mort étant fixé par un élément électronique, il se détermine facilement à partir du seuil abrupt apparaissant dans le spectre de temps mort et vaut  $2,1 \mu\text{s}$ . Dans le cas de la base 2, le temps mort est plus faible mais sa détermination est plus délicate du fait d'une pente nettement moins marquée. Nous considérerons néanmoins le temps mort également constant en prenant le temps moyen sur cette pente. Une erreur maximale de 150 ns (soit d'environ 9 %) sur le temps mort peut alors être commise.

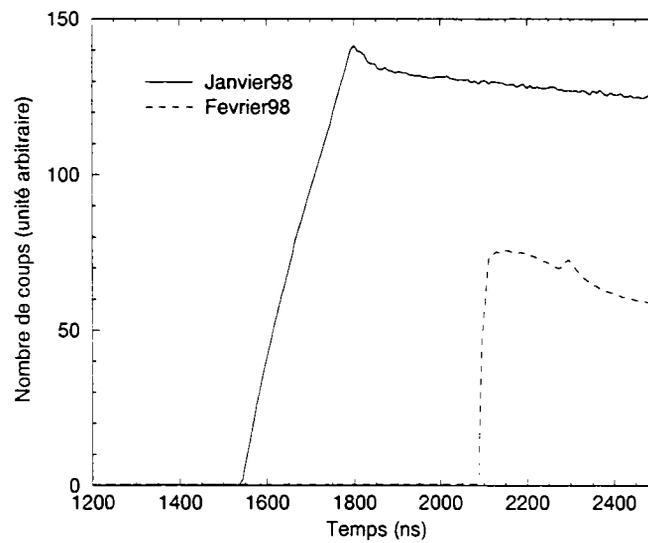


Fig.56 : Spectres de temps mort (c'est à dire le nombre d'évènements enregistrés en fonction de la différence en temps séparant deux évènements consécutifs) pour l'expérience Janvier98 (base 2) et Fevrier98 (base 4, avec valeur du temps mort fixée).

### 1.1.2 Correction de temps mort

La valeur du temps mort  $\tau$  est déterminée et supposée constante. Le temps mort sera considéré non extensible (ou encore non-paralysant) c'est à dire que lorsqu'un évènement arrive dans un temps inférieur à  $\tau$  après un évènement traité, il n'est tout simplement pas vu [135].

Les spectres de temps de vol sont composés de canaux  $i$  de largeur  $\Delta t(i)$  et ayant un nombre  $N(i)$  d'évènements détectés pour un nombre d'impulsions total  $T_0$  délivré par l'accélérateur.

Pour chaque évènement attribué à un canal donné, tous les canaux suivants contenus dans une plage en temps de largeur  $\tau$  ne sont pas disponibles pour cette impulsion de l'accélérateur. Le nombre d'impulsions  $I(i)$  qu'a réellement vu un canal  $i$  est donc :

$$I(i) = T_0 - \sum_{k=j+1}^{i-1} N(k) - C \quad (\text{IV.1})$$

avec

$i$ , numéro du canal considéré.

$j$ , numéro du premier canal contribuant au temps mort sur le canal  $i$ .

$C$  : contribution du premier et dernier canal. AGS prend comme référence le temps de vol  $t_{i\frac{1}{2}}$  correspondant au milieu du canal  $i$ . La moitié du canal  $i$  est donc source de temps mort. De même, seule une portion du canal  $j$  correspond à des temps de vol supérieurs à  $t_{i\frac{1}{2}} - \tau$  et contribue de ce fait au temps mort du canal  $i$  (figure 57).

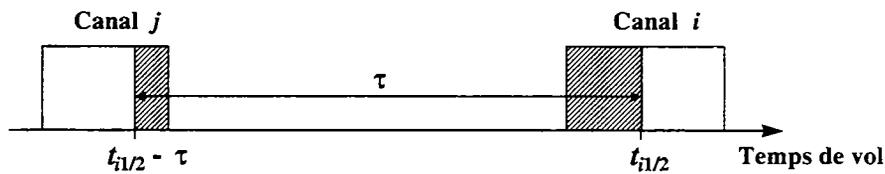


Fig.57 : Référence en temps de vol prise par AGS pour la correction de temps mort. La partie hachurée correspond à la partie des canaux initial et final contribuant au temps mort.

Pour un temps mort  $\tau$  donné,  $N(i)$  est donc le produit entre le nombre réel d'évènements  $N_{\text{vrai}}(i)$  pouvant survenir dans ce canal et la probabilité que celui-ci puisse enregistrer un évènement :

$$N(i) = N_{\text{vrai}}(i) \cdot \frac{I(i)}{T_0} \quad (\text{IV.2})$$

Pour remonter au nombre réel d'évènements, il convient donc de multiplier  $N(i)$  par un facteur de correction de temps mort  $f_\tau$  valant :

$$f_{\tau}(i) = \left( 1 - \frac{\sum_{k=j+1}^{i-1} N(k) - C}{T_0} \right)^{-1} \quad (\text{IV.3})$$

Ce facteur de correction de temps mort est représenté, pour les deux expériences Janvier98 et Février98, en fonction du temps de vol sur la figure 58. La correction de temps mort ne dépasse pas 10 % pour la base 2 dans notre gamme d'énergie. Puisque l'incertitude sur la valeur du temps mort est d'environ 9 %, l'erreur introduite sur le taux de comptage des expériences effectuées sur cette base de vol par la correction de temps mort reste donc, hormis à haute énergie, inférieure à 1 %.

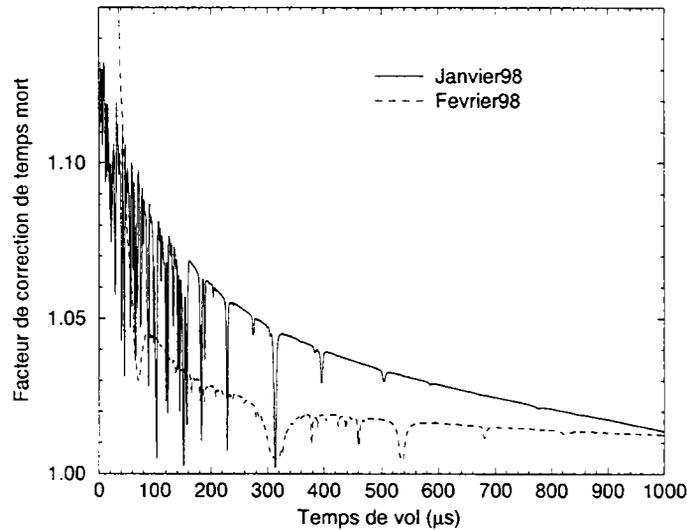


Fig.58 : Allure du facteur de correction de temps mort en fonction du temps de vol des neutrons pour les spectres OUT des expériences Janvier98 (base 2 - 26,45 m - flux de neutron important) et Février98 (base 4 - 49,34 m - flux de neutron plus faible). De par sa définition, l'allure de ce spectre dépend du spectre de temps de vol sur lequel est effectué la correction, d'où l'apparition des résonances.

La correction de temps de mort pour un canal donné dépend des canaux précédents. Elle ne peut donc avoir lieu correctement pour des temps de vol inférieurs au temps mort (si l'origine des temps est pris au premier canal de l'accordéon). Cela signifie que les 2 ou 3 premières micro-secondes de notre plage en temps de vol ne peuvent être corrigées correctement du temps mort, ce qui n'est

pas gênant dans nos expériences car elles correspondent à des énergies en dehors de notre domaine d'étude (voir annexe C).

## 1.2 Détermination du bruit de fond

La précision des mesures de transmission est principalement limitée par l'importance du bruit de fond et la qualité de sa détermination. En effet, dans les mesures de sections efficaces neutroniques par temps de vol, la limitation du niveau de bruit de fond est une partie des plus délicates de l'expérience. De plus, sa détermination précise lors de la réduction des données est toujours au centre de nombreuses discussions. Aussi une description détaillée de la détermination du bruit de fond va être introduite ici, une rapide présentation de la méthode des résonances noires ayant par ailleurs été donnée dans la partie 3.4 du chapitre III.

### 1.2.1 Origine du bruit de fond

Le bruit de fond correspond à des signaux enregistrés par le détecteur qui ne sont pas des événements utiles. En transmission, les scintillateurs en verre au lithium utilisés pour détecter les neutrons sont également très sensibles aux rayons gamma et aux particules chargées.

Le bruit de fond  $b$  est souvent décomposé en deux parties :

- une constante  $c$ , invariable durant toute la durée de l'expérience.
- une composante  $s$  dépendant de l'instant  $t'$  de la mesure et variable en fonction de l'énergie  $E$  des neutrons (correspondant à un temps de vol  $t$ ) :

$$b(t, t') = c + s(t, t') \quad (\text{IV.4})$$

Pour une expérience menée sur un temps  $\Delta t'$ , le bruit de fond intégré  $B(t)$  s'exprime alors [136] :

$$B(t) = C + S(t) \quad (\text{IV.5})$$

avec

$C$ , partie du bruit de fond constante en fonction du temps de vol de neutrons.

$S(t)$ , partie du bruit de fond variable en fonction du temps de vol des neutrons.

Chacune de ces composantes possède plusieurs origines [137] que nous allons répertorier.

### Composante constante $C$ :

Cette partie du bruit de fond peut provenir de l'extérieur du détecteur ou du détecteur lui-même.

En effet, tout rayonnement d'origine naturelle (tels que les rayons cosmiques) ou issu de l'environnement du détecteur (lumière artificielle, radioactivité naturelle des éléments de cet environnement, etc..) apporte un signal supplémentaire et constant sur l'ensemble du spectre de temps de vol.

De plus, les scintillateurs en verre au lithium possèdent en leur sein du thorium en faible quantité. La radioactivité naturelle de cet élément contribue également à cette partie du bruit de fond.

Enfin, il convient également d'ajouter le bruit de fond électronique, provenant en grande partie des photomultiplicateurs.

### Composante $S$ dépendant du signal :

Cette notion de bruit de fond est étroitement liée à la résolution expérimentale, les mêmes effets pouvant être souvent soit traités comme un bruit de fond soit comme une composante de la résolution. Une distinction peut être opérée en ne considérant dans le bruit de fond que les rayons gamma, toute contribution des neutrons étant traitée dans la résolution : nous y reviendrons par la suite. Pour le moment, nous considérons que le bruit de fond peut être composé de rayons gamma et de neutrons.

#### *-Bruit de fond ayant pour origine la cible d'uranium et son environnement :*

Un grand nombre de rayons gamma de très haute énergie (rayonnement de freinage) est créé lors de l'interaction du faisceau d'électrons avec la cible d'uranium. Des neutrons sont ensuite créés par réaction  $(\gamma, n)$  ou  $(\gamma, f)$ . Ces neutrons peuvent à leur tour interagir avec la cible d'uranium et les matériaux l'entourant. La diffusion des neutrons est traitée dans la résolution expérimentale (voir partie 2.2 du chapitre III), mais d'autres réactions peuvent avoir lieu : la création de rayons gamma ou de neutrons par réactions  $(n, \gamma)$  ou  $(n, f)$ . Cet ensemble peut être décrit par plusieurs décroissances exponentielles dont le temps de demi-vie s'étend de quelques nano-secondes à plusieurs années. Dans ce dernier cas, cette contribution peut être considérée constante sur tout le spectre de temps de vol.

Les rayons gamma ainsi produits sont atténués par les différents éléments présents dans le faisceau de neutrons (tels que les écrans de bruit de fond, les filtres anti-recouvrement, l'échantillon ou encore une partie du détecteur). Les neutrons sont affectés par la transmission de ces différents écrans. Cette contribution dépend également de l'instant de la mesure car elle est fonction des caractéristiques du faisceau d'électrons.

#### *-Bruit de fond ayant pour origine les modérateurs :*

Une importante source de rayonnements gamma contribuant au bruit de fond provient de la capture des neutrons thermiques par les atomes d'hydrogène des modérateurs (ainsi que des matériaux situés autour de ces modérateurs). L'énergie

de ces rayons gamma étant comprise entre 1 et 2,2 MeV, l'amplitude du signal correspondant à leur détection peut se mélanger avec le bas du pic de réaction  $(n,\alpha)$  du détecteur.

Des calculs tenant compte de la dimension des modérateurs de GELINA et des sections efficaces de réaction montrent que la composante principale de cette source de rayonnement gamma peut être modélisée par une décroissance exponentielle ayant une demi-vie d'environ  $27 \mu\text{s}$ , correspondant à la demi-vie des neutrons thermiques dans le modérateur. D'autres queues exponentielles de plusieurs centaines de microsecondes ont également été observées expérimentalement [137].

Les rayons gamma ainsi produits sont atténués, comme dans le cas de ceux provenant de la cible, par les différents éléments présents dans le faisceau de neutrons.

*-Bruit de fond provenant des collimateurs et des tubes de vol :*

Une autre source de rayonnements gamma est la capture de neutrons dans les différents collimateurs et dans les tubes de la base de vol. Cette composante est très difficile à déterminer et Moxon propose de la considérer sous la forme  $A \cdot t^c$  avec  $A$  et  $c$  constante [137]. Une autre difficulté vient du fait que ces rayons gamma ou les neutrons leur ayant donné naissance peuvent avoir traversé ou non les différents écrans présents dans le faisceau de neutrons.

De même, la diffusion de neutrons dans les bases de vol et les collimateurs et atteignant tout de même le détecteur peut être envisagée.

Une collimation soigneusement étudiée permet de limiter fortement ces contributions au bruit de fond.

*-Bruit de fond dépendant du signal provenant du détecteur et de son environnement :*

Une contribution au bruit de fond peut provenir des neutrons issus de l'impulsion précédente de GELINA. L'utilisation de filtres anti-recouvrement rend cette source de bruit de fond négligeable dans nos plages d'étude.

Les neutrons diffusés dans le détecteur ou dans les matériaux l'entourant peuvent réagir à nouveau dans le détecteur et donc être détectés avec un temps de retard. Un peu plus loin dans cet exposé, nous considérerons cette contribution comme un effet de résolution. Le programme REFIT [68] utilisé pour l'analyse tient compte de cette résolution, même si une modification des paramètres de cette composante semblerait indiquée.

Les neutrons diffusés peuvent également être capturés dans les éléments composant le détecteur et son environnement. Les rayons gamma ainsi produits sont alors susceptibles d'interagir dans le détecteur.

### 1.2.2 Méthode de détermination usuelle du bruit de fond

La méthode de détermination du bruit de fond utilisée est celle des résonances noires que nous avons déjà introduite précédemment. Différents écrans sont placés dans le faisceau de neutrons, d'épaisseur suffisante pour qu'une ou plusieurs résonances des éléments les constituant aient une transmission pratiquement nulle (inférieure à  $10^{-4}$  d'après nos critères) sur plusieurs canaux de temps de vol au niveau de leur pic. Cette transmission "nulle" ayant été calculée en tenant compte de la résolution, si celle-ci est parfaitement connue alors les événements enregistrés au pic de la résonance correspondent uniquement au bruit de fond. Dans nos expériences, ces écrans ont été laissés en permanence dans le faisceau de neutrons afin d'obtenir des points de bruit de fond dans chacune de nos mesures.

Le point faible de cette technique réside toutefois dans la nécessité d'utiliser une formule d'interpolation entre les différents points, c'est à dire entre les résonances noires, où n'existe aucune information sur la forme du bruit de fond.

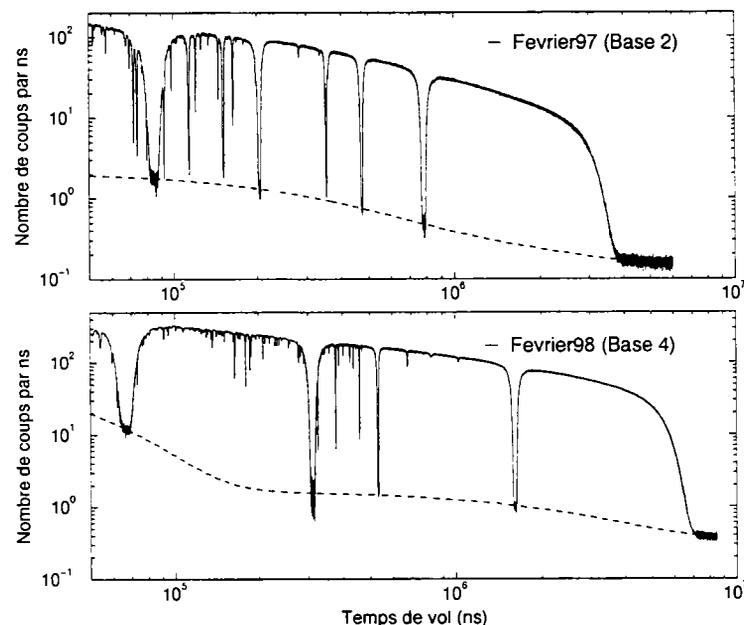


Fig.59 : Spectres en temps de vol des séquences OUT des expériences Fevrier97 (base de vol 2) et Fevrier98 (base 4) et allure du bruit de fond déterminé sur chacun d'eux par l'équation  $B(t) = a_1 + a_2 \cdot e^{-a_3 t} + a_4 \cdot e^{-a_5 t}$ .

Dans nos expériences, les différents points de bruit de fond sont reliés entre eux à l'aide d'une fonction phénoménologique, somme d'une constante et de deux décroissances exponentielles :

$$B(t) = a_1 + a_2 \cdot e^{-a_3 t} + a_4 \cdot e^{-a_5 t} \quad (\text{IV.6})$$

avec

$a_i$ , constante dont la valeur est ajustée par un sous-programme d'AGS sur les points de bruit de fond mesurés grâce à la méthode des résonances noires.

$a_1$ , peut être interprétée en partie comme la constante  $C$  de l'équation (IV.5).

Le bruit de fond ainsi déterminé est représenté sur la figure 59 avec le spectre de temps de vol correspondant pour les expériences Fevrier97 (base 2 - 100 Hz) et Fevrier98 (base 4 - 100 Hz).

Une première constatation, sur laquelle nous reviendrons, est que le rapport signal sur bruit est deux fois plus faible sur la base 2 que sur la base 4. Dans les deux cas, la formule donnée par l'équation (IV.6) permet de relier entre eux de manière satisfaisante le bas des différentes résonances noires.

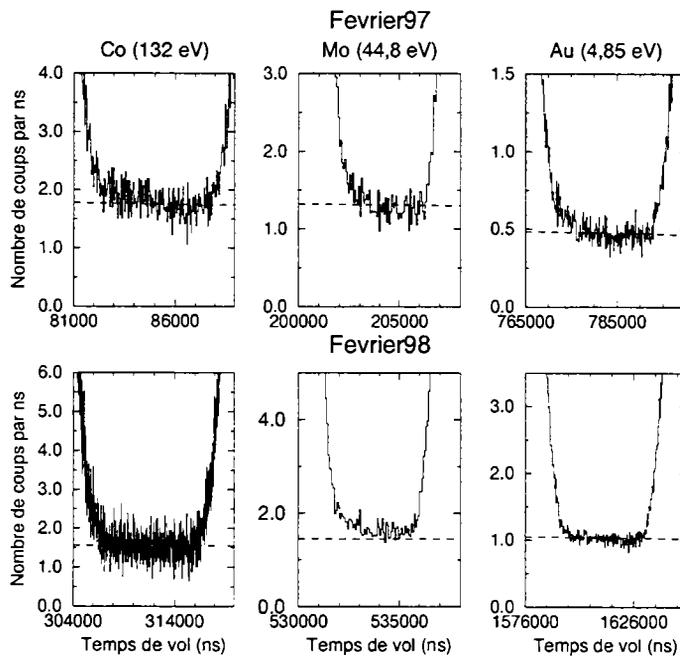


Fig.60 : Comparaison de la forme du bas des résonances noires provenant des mêmes écrans de bruit de fond utilisés en transmission sur la base 2 pour l'expérience Fevrier97 (figures du haut) et sur la base 4 pour l'expérience Fevrier98 (figures du bas). Les échelles en abscisses et en ordonnées ont été choisies afin de représenter une fenêtre comparable pour le bas de chaque résonance. Le bruit de fond est représenté en pointillé.

Toutefois, en regardant de plus près les points de bruit de fond au niveau des résonances noires, une décroissance plus accentuée que celle donnée par l'équation (IV.6) est visible sur la base 2. Comme le montre la figure 60 où les mêmes résonances noires sont représentées sur une échelle équivalente, ce phénomène semble nettement plus limité dans le cas de la base 4 : il n'apparaît pas au niveau de la large résonance noire du cobalt ni au niveau de la résonance noire de l'or à basse énergie (4,85 eV), mais reste néanmoins visible pour des résonances noires étroites telles que la résonance à 44,8 eV du molybdène ou les résonances pratiquement noires de l'échantillon épais de neptunium-237 au delà de 20 eV (voir figure 68).

Une autre observation peut être faite sur l'expérience Janvier98 effectuée sur la base 2 et où le nombre de résonances noires est plus élevé. Pour cette expérience, non seulement l'équation utilisée pour décrire le bruit de fond ne peut reproduire la forme de celui-ci au niveau des résonances noires, mais elle est de plus incapable de relier tous les points de bruit de fond entre eux dont notamment la résonance noire à 25 eV de  $^{237}\text{Np}$  (à cette épaisseur de  $3 \text{ g/cm}^2$ ) comme l'illustre la figure 61.

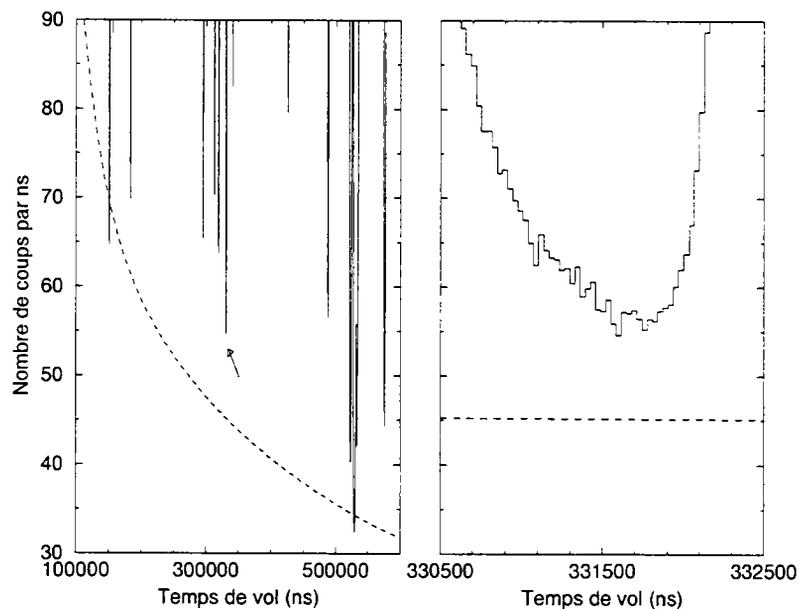


Fig.61 : Allure du bruit de fond (en pointillé) déterminé par l'équation  $B(t) = a_1 + a_2 \cdot e^{-a_3 t} + a_4 \cdot e^{-a_5 t}$  pour l'expérience Janvier98. La flèche indique la résonance à 25 eV du neptunium, noire à cette épaisseur de  $3 \text{ g/cm}^2$ , dont l'agrandissement sur la figure de droite montre une forte déformation asymétrique. Le bruit de fond ainsi déterminé est incapable d'atteindre et de reproduire la forme du bas de cette résonance ainsi que celle de toutes les résonances noires ou pratiquement noires apparaissant dans le spectre de temps de vol.

Cette détermination phénoménologique du bruit de fond, couramment employée, semble donc présenter des limites d'utilisation, au moins pour les expériences entreprises sur la base 2.

### 1.2.3 Composantes du bruit de fond : étude de Moxon [138]

Dans la détermination précédente, l'origine physique du bruit de fond a été perdue, les différentes sources mentionnées plus haut se mélangeant a priori les unes aux autres.

Pour n'étudier que la contribution des rayons gamma provenant de la source (cible d'uranium et modérateurs), Moxon a utilisé un filtre de polyéthylène de 6 cm d'épaisseur dont la transmission pour les neutrons est de l'ordre de  $10^{-3}$  alors qu'elle est d'environ 0,3 pour les rayons gamma. Le spectre de temps de vol mesuré par le détecteur en verre au lithium est alors principalement la contribution au bruit de fond des rayons gamma provenant de la source. Moxon a montré que ce signal était ajustable à l'aide de l'équation (IV.6) [138]. Une source importante du bruit de fond semble donc bien être les rayons gamma issus de la cible d'uranium ou des modérateurs.

Comme nous l'avons déjà spécifié, cette contribution n'est pas à même d'expliquer la forme du bas des résonances noires, notamment sur la base 2. Pour expliquer cette différence, Moxon fait intervenir les neutrons diffusés par le détecteur et son environnement. Firk et Melkonian [136] considèrent même la partie  $S(t)$  du bruit de fond comme provenant uniquement des neutrons diffusés, ce qui semble être démenti (pour les expériences de transmission à l'IRMM) par l'étude de Moxon avec le filtre de polyéthylène.

Un neutron de temps de vol  $\tau$  ( $< t$ ) diffuse dans le détecteur et son environnement et est finalement détecté comme ayant un temps de vol  $t$ . Si le bruit de fond est mesuré par la méthode des résonances noires au temps de vol  $t$ , aucun neutron dont le temps de vol réel est  $t$  ne peut être détecté. Par contre, au bruit de fond réel au temps de vol  $t$  s'ajoute le nombre d'évènements provenant de la détection de neutrons de temps de vol inférieur et ayant diffusé dans le détecteur et son environnement.

Ainsi, le signal  $N_B(t)$  enregistré au bas des résonances noires n'est pas le bruit de fond  $B(t)$ , mais la somme :

$$N_B(t) = B(t) + \int_0^t \Phi(\tau) \cdot P(t, \tau) \cdot d\tau \quad (\text{IV.7})$$

avec

$\Phi(\tau)$ , flux de neutrons ayant un temps de vol réel  $\tau$ .

$P(t, \tau)$ , probabilité pour un neutron de temps de vol réel  $\tau$  d'être diffusé de manière à être détecté comme ayant un temps de vol  $t$  (c'est à dire que

ce neutron a perdu un temps  $t - \tau$  par diffusions).

#### Discussion à propos de l'intégrale de l'équation précédente :

Puisque cette intégrale correspond à une détection de neutrons, nous proposons plutôt de la considérer comme une composante de la résolution expérimentale.

En effet, la résolution expérimentale ainsi que l'effet Doppler se traduisent par une probabilité pour un neutron d'énergie  $E$  d'être détecté comme ayant une énergie  $E'$  différente de  $E$ , soit comme ayant un temps de vol  $t$  différent de son temps de vol réel  $\tau$ .

Pour le choix de l'épaisseur des écrans de bruit de fond, des simulations ont été menées afin de s'assurer que malgré la résolution expérimentale et l'effet Doppler, la transmission des résonances noires est inférieure à  $10^{-4}$  sur plusieurs canaux. Toutefois, ces simulations ne peuvent expliquer cette forme dans le bas des résonances noires ou pratiquement noires et une mauvaise paramétrisation de la résolution expérimentale pourrait en être la cause.

Nous reviendrons plus tard sur cette distinction entre la résolution, à laquelle toute détection de neutrons est rattachée, et le bruit de fond qui n'est de ce fait constitué que de rayons gamma.

#### Point de vue de Moxon et bruit de fond structuré :

Moxon propose d'intégrer dans le bruit de fond les neutrons diffusés dans le détecteur et son environnement. Pour lui, il s'agit de la composante la plus importante après celle des rayons gamma provenant des captures de neutrons dans les modérateurs. Il obtient alors une expression du bruit de fond équivalente à :

$$B(t) = a_1 + a_2 \cdot e^{-a_3 t} + a_4 \cdot e^{-a_5 t} + a_6 \int_0^t \Phi(\tau) \cdot e^{-\lambda(t-\tau)} \cdot d\tau$$

avec

$a_i$ , constante ( $a_6$  est lié à la fraction de neutrons diffusés par le détecteur).

$\lambda$ , constante de décroissance des neutrons diffusés et retournant dans le détecteur.

$\Phi(\tau)$ , flux incident qui est considéré comme égal au spectre de temps de vol (bruit de fond compris) divisé par l'efficacité du détecteur (prise ici égale à 1).

Une telle équation donne lieu à une forme du bruit de fond présentant une image dégradée par la queue exponentielle et légèrement décalée en temps par rapport au spectre de temps de vol. La figure 62 est le résultat obtenu par Moxon en utilisant cette modélisation.

L'existence et l'amplitude d'un tel bruit de fond structuré sur la base 2 et même sur la base 4 fait encore l'objet de nombreuses discussions.

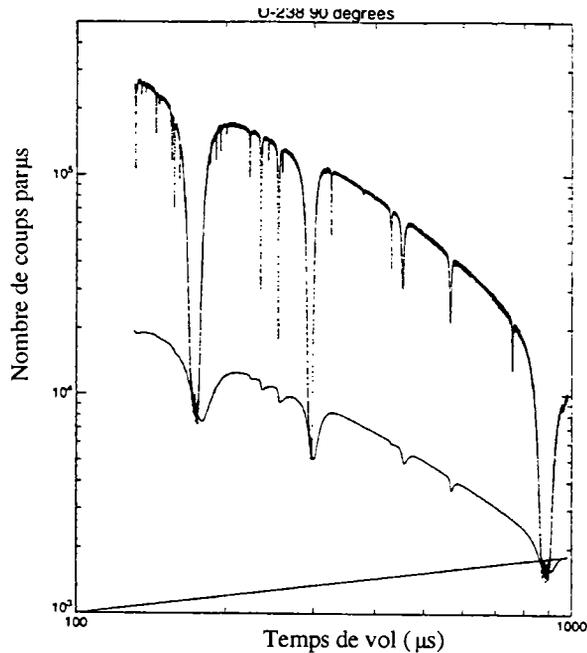


Fig.62 : Allure du bruit de fond déterminé par la méthode de Moxon pour une expérience de transmission de  $^{238}\text{U}$  sur la base 2 [138].

Dans la suite, le point de vue développé sera celui de l'auteur de ce travail. A partir de maintenant, nous allons considérer que le bruit de fond n'est constitué que de rayons gamma et que toute détection de neutrons est à traiter par la résolution. Un bon nombre d'hypothèses qui vont être formulées dans cette approche nécessite des confirmations que seules des études expérimentales sont à même d'amener. Par exemple, nous ne tenons nullement compte, dans la résolution, de la possibilité de détecter des neutrons diffusés en provenance des autres bases de vol.

#### 1.2.4 Détermination expérimentale du bruit de fond

La différence de comportement du bruit de fond observé sur les deux bases peut provenir de la manière dont sont sélectionnés les évènements.

Sur la base 4, seuls sont considérés les évènements en temps de vol dont l'amplitude est comprise dans une fenêtre encadrant le pic de réaction  $(n,\alpha)$  du détecteur (voir annexe A). De ce fait, seules les réactions induites par des neutrons ou des rayons gamma de haute énergie, dont l'interaction dans le scintillateur en verre a donné naissance à des électrons de plusieurs MeV d'énergie (comprise dans la fenêtre en amplitude de réaction  $(n,\alpha)$ ) sont à même d'être enregistrées dans les spectres de temps de vol.

moins à l'aide de calculs par une méthode de Monte Carlo [126] afin d'avoir une première estimation de l'erreur introduite à ce niveau.

## ***2.2 Correction de temps mort***

La méthode de correction du temps mort est identique à celle de la transmission. La valeur du temps mort n'est toutefois pas enregistrée en ligne mais mesurée lors de l'acquisition pour chaque chaîne : détecteur de flux, détecteur  $C_6D_6$  Est et détecteur  $C_6D_6$  Ouest.

Le temps mort du système vaut environ  $6 \mu s$  avec les ADC et  $5 \mu s$  sans ceux-ci.

## ***2.3 Détermination du bruit de fond***

### ***2.3.1 Méthode générale***

Les points de bruit de fond en capture sont également déterminés par la méthode des résonances noires. Toutefois, contrairement à nos expériences de transmission, seul un écran de bruit de fond est laissé en permanence dans le faisceau. Les mesures du bruit de fond, avec tous les écrans dans le faisceau, sont effectuées à intervalles réguliers. Ainsi, il existe un ensemble de mesures destiné à la détermination de la forme du bruit de fond et un autre ensemble de mesures où le bruit de fond est simplement renormalisé, sa forme étant supposée constante.

Le fait de ne pas utiliser plusieurs résonances noires permanentes dans les mesures amène une incertitude supplémentaire sur le bruit de fond si celui-ci possède une forme "lisse", c'est à dire déterminée par l'équation (IV.6). Par contre, si le bruit de fond présente un comportement reflétant l'allure du flux de neutrons entre les points de bruit de fond, la présence de résonances noires dans le flux de neutrons peut être considérée comme perturbatrice et rendre plus délicate encore la détermination exacte du bruit de fond.

### ***2.3.2 Bruit de fond sur le détecteur de flux***

Ce détecteur, placé dans le faisceau de neutrons, est une chambre à ionisation très peu sensible aux rayons gamma, seule la production d'électrons au niveau de la cathode par les rayons gamma de très haute énergie du flash gamma pouvant a priori donner naissance à un signal.

Si le bruit de fond est constitué principalement de rayons gamma comme nous l'avons supposé en transmission, cela signifie que nous devrions espérer un bruit de fond nul sur ce détecteur.

Pourtant le niveau du bas des résonances noires est comparativement supérieur à celui des scintillateurs en verre au lithium utilisés en transmission.

Leprêtre a supposé que le bruit de fond est dû à une queue décroissante de neutrons en provenance de la salle des cibles. En ajustant son amplitude et son temps de décroissance (environ 50  $\mu$ s), il a ainsi pu joindre le bas des résonances noires entre eux (cette modélisation est présentée dans la référence [10]).

La résolution de ce détecteur, dont le temps de réponse est de l'ordre de 100 ns, est toutefois très mal connue. Aussi, l'origine et la nature exacte du bruit de fond sur ce détecteur restent-elle à déterminer, ce qui est de plus motivé par l'observation de la présence d'une bosse dans le bruit de fond (constitué également de neutrons) autour de 4 eV [10].

A défaut d'une meilleure représentation, le bruit de fond a été ajusté jusqu'à présent sur le bas des résonances supposées noires (une étude de la résolution de ce détecteur pouvant réfuter cette hypothèse) par une équation phénoménologique telle que :

$$B(t) = a_1 + a_2 \cdot t^{a_3} \text{ ou } B(t) = a_1 + a_2 \cdot e^{-a_3 t} + a_4 \cdot e^{-a_5 t} \quad (\text{IV.20})$$

### 2.3.3 Bruit de fond dans les détecteurs $C_6D_6$

La principale source de bruit de fond sur ces détecteurs vient de la forte radioactivité naturelle du neptunium, le rapport signal sur bruit étant bien souvent inférieur à 50 % (malgré la présence d'écrans de plomb de 9 mm d'épaisseur) comme l'illustre la figure 53. Ce bruit de fond est a priori constant sur tout le spectre de temps de vol.

Les détecteurs de type  $C_6D_6$  sont particulièrement sensibles aux rayons gamma et aux particules chargées mais leur section efficace de capture neutronique est très faible. Par conséquent, les neutrons diffusés interagissent peu dans les détecteurs. De plus, ces détecteurs ne sont pas placés directement dans le faisceau de neutrons.

Aussi, outre la radioactivité naturelle de l'échantillon, le bruit de fond sur ces détecteurs provient-il :

- des rayons gamma issus de la source et diffusé par effet Compton dans l'environnement des détecteurs. Cette contribution au bruit de fond doit pouvoir être décrite (comme en transmission) par l'équation (IV.6).

- des rayons gamma issus des neutrons diffusés et capturés dans l'environnement des détecteurs. Une forme structurée de cette partie du bruit de fond semble donc probable. Les rayons gamma pouvant provenir de neutrons ayant diffusés et été capturés soit avant, soit après avoir traversé l'échantillon, le problème apparaît plus complexe qu'en transmission. Enfin, s'il existe une queue de neutrons en provenance de la salle des cibles, son influence est susceptible d'intervenir également à ce niveau.

moins à l'aide de calculs par une méthode de Monte Carlo [126] afin d'avoir une première estimation de l'erreur introduite à ce niveau.

## ***2.2 Correction de temps mort***

La méthode de correction du temps mort est identique à celle de la transmission. La valeur du temps mort n'est toutefois pas enregistrée en ligne mais mesurée lors de l'acquisition pour chaque chaîne : détecteur de flux, détecteur  $C_6D_6$  Est et détecteur  $C_6D_6$  Ouest.

Le temps mort du système vaut environ  $6 \mu s$  avec les ADC et  $5 \mu s$  sans ceux-ci.

## ***2.3 Détermination du bruit de fond***

### ***2.3.1 Méthode générale***

Les points de bruit de fond en capture sont également déterminés par la méthode des résonances noires. Toutefois, contrairement à nos expériences de transmission, seul un écran de bruit de fond est laissé en permanence dans le faisceau. Les mesures du bruit de fond, avec tous les écrans dans le faisceau, sont effectuées à intervalles réguliers. Ainsi, il existe un ensemble de mesures destiné à la détermination de la forme du bruit de fond et un autre ensemble de mesures où le bruit de fond est simplement renormalisé, sa forme étant supposée constante.

Le fait de ne pas utiliser plusieurs résonances noires permanentes dans les mesures amène une incertitude supplémentaire sur le bruit de fond si celui-ci possède une forme "lisse", c'est à dire déterminée par l'équation (IV.6). Par contre, si le bruit de fond présente un comportement reflétant l'allure du flux de neutrons entre les points de bruit de fond, la présence de résonances noires dans le flux de neutrons peut être considérée comme perturbatrice et rendre plus délicate encore la détermination exacte du bruit de fond.

### ***2.3.2 Bruit de fond sur le détecteur de flux***

Ce détecteur, placé dans le faisceau de neutrons, est une chambre à ionisation très peu sensible aux rayons gamma, seule la production d'électrons au niveau de la cathode par les rayons gamma de très haute énergie du flash gamma pouvant a priori donner naissance à un signal.

Si le bruit de fond est constitué principalement de rayons gamma comme nous l'avons supposé en transmission, cela signifie que nous devrions espérer un bruit de fond nul sur ce détecteur.

Pourtant le niveau du bas des résonances noires est comparativement supérieur à celui des scintillateurs en verre au lithium utilisés en transmission.

Leprêtre a supposé que le bruit de fond est dû à une queue décroissante de neutrons en provenance de la salle des cibles. En ajustant son amplitude et son temps de décroissance (environ 50  $\mu$ s), il a ainsi pu joindre le bas des résonances noires entre eux (cette modélisation est présentée dans la référence [10]).

La résolution de ce détecteur, dont le temps de réponse est de l'ordre de 100 ns, est toutefois très mal connue. Aussi, l'origine et la nature exacte du bruit de fond sur ce détecteur restent-elle à déterminer, ce qui est de plus motivé par l'observation de la présence d'une bosse dans le bruit de fond (constitué également de neutrons) autour de 4 eV [10].

A défaut d'une meilleure représentation, le bruit de fond a été ajusté jusqu'à présent sur le bas des résonances supposées noires (une étude de la résolution de ce détecteur pouvant réfuter cette hypothèse) par une équation phénoménologique telle que :

$$B(t) = a_1 + a_2 \cdot t^{a_3} \text{ ou } B(t) = a_1 + a_2 \cdot e^{-a_3 t} + a_4 \cdot e^{-a_5 t} \quad (\text{IV.20})$$

### 2.3.3 *Bruit de fond dans les détecteurs $C_6D_6$*

La principale source de bruit de fond sur ces détecteurs vient de la forte radioactivité naturelle du neptunium, le rapport signal sur bruit étant bien souvent inférieur à 50 % (malgré la présence d'écrans de plomb de 9 mm d'épaisseur) comme l'illustre la figure 53. Ce bruit de fond est a priori constant sur tout le spectre de temps de vol.

Les détecteurs de type  $C_6D_6$  sont particulièrement sensibles aux rayons gamma et aux particules chargées mais leur section efficace de capture neutronique est très faible. Par conséquent, les neutrons diffusés interagissent peu dans les détecteurs. De plus, ces détecteurs ne sont pas placés directement dans le faisceau de neutrons.

Aussi, outre la radioactivité naturelle de l'échantillon, le bruit de fond sur ces détecteurs provient-il :

- des rayons gamma issus de la source et diffusé par effet Compton dans l'environnement des détecteurs. Cette contribution au bruit de fond doit pouvoir être décrite (comme en transmission) par l'équation (IV.6).

- des rayons gamma issus des neutrons diffusés et capturés dans l'environnement des détecteurs. Une forme structurée de cette partie du bruit de fond semble donc probable. Les rayons gamma pouvant provenir de neutrons ayant diffusés et été capturés soit avant, soit après avoir traversé l'échantillon, le problème apparaît plus complexe qu'en transmission. Enfin, s'il existe une queue de neutrons en provenance de la salle des cibles, son influence est susceptible d'intervenir également à ce niveau.

-des rayonnements gamma de la radioactivité ambiante ou des rayonnements cosmiques.

-du bruit de fond électronique, pratiquement éliminé par le seuil en amplitude sur les détecteurs.

L'importance relative des différentes contributions du bruit de fond reste à déterminer, notamment à propos d'une partie structurée du bruit de fond venant de la capture des neutrons dans l'environnement des détecteurs qui remettrait en cause la validité de l'utilisation de l'équation (IV.6). Dans les expériences de neptunium, le bruit étant très largement dominé par la radioactivité naturelle, la vérification de ces hypothèses semble a priori compromises.

## 2.4 Méthode de normalisation

D'après l'équation (III.61), le taux de capture expérimental après correction par la fonction poids s'écrit :

$$Y(E) = \frac{N_{cap}(E) - B_{cap}(E)}{\varepsilon \cdot \Phi_n(E)} = \frac{a \cdot n_{10B} \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10B}(E)}{k \cdot E^*} \cdot \frac{N_{cap}(E) - B_{cap}(E)}{N_F(E) - B_F(E)} \quad (IV.21)$$

avec

$N_{cap}(E)$  et  $B_{cap}(E)$ , nombres d'évènements de capture et de bruit de fond détectés obtenus par correction des spectres de temps de vol avec la fonction de pondération.

$\varepsilon$ , efficacité de détection d'un évènement de capture.

En utilisant la notation  $S_i(E) = N_i(E) - B_i(E)$  pour le spectre de temps de vol corrigé de son bruit de fond, l'équation précédente devient :

$$Y(E) = K(E) \cdot \frac{S_{cap}(E)}{S_F(E)} \quad (IV.22)$$

avec

$$K(E) = \frac{a \cdot n_{10B} \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10B}(E)}{k \cdot E^*}, \text{ fonction de normalisation.}$$

$E^*$  étant considérée constante dans notre domaine d'étude, la partie dépendante de l'énergie de la fonction de normalisation est la section efficace de réaction  $(n,\alpha)$  du bore-10. Celle-ci peut être calculée à l'aide de programmes tels que NJOY [55].

Il reste à déterminer la constante de normalisation  $\frac{a \cdot n_{10B}}{k \cdot E^*}$ .

### 2.4.1 Normalisation sur des paramètres de résonance connus

Une méthode consiste à considérer des résonances dont les paramètres sont bien connus. Par exemple, on peut utiliser les paramètres déterminés en transmission

pour certaines résonances et ajuster la constante de normalisation du taux de capture, ce qui revient à perdre l'indépendance entre les deux types d'expériences.

### 2.4.2 Normalisation sur une résonance saturée

Cette méthode utilise des corps possédant de grandes résonances isolées et dont les paramètres sont connus avec précision telles que la première résonance de l'or (4,85 eV) ou de l'argent (5,2 eV) [141].

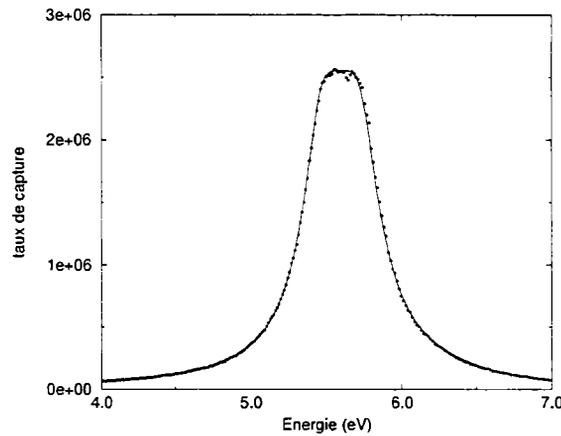


Fig.75 : Taux de capture mesuré (en unité arbitraire) en fonction de l'énergie pour la première résonance de  $^{99}\text{Tc}$ , celle-ci étant saturée [10].

En choisissant une épaisseur suffisante pour que la transmission au pic de cette résonance soit pratiquement nulle, tous les neutrons d'énergie correspondante vont interagir dans la cible. Le taux de capture va donc présenter un effet de saturation se traduisant par l'apparition d'un plateau au sommet de la résonance appelée de ce fait résonance saturée et dont un exemple pour  $^{99}\text{Tc}$ , extrait de la référence [10], est donné sur la figure 75.

Au sommet d'une résonance saturée d'énergie  $E_0$  d'un corps  $A$  (qui sera noté par la suite en exposant pour spécifier que les grandeurs considérées se rapportent à ce corps), le taux de capture s'écrit, d'après l'équation (III.44) :

$$Y^A(E_0) = \mu_A(n_A, E_0) \cdot \frac{\sigma_{(n,\gamma)}^A(E_0)}{\sigma_t^A(E_0)} \quad (\text{IV.23})$$

Une expérience avec un échantillon d'or, dont la première résonance est saturée, a été effectuée au milieu de nos mesures et donc d'après l'équation (IV.22) :

$$Y^A(E_0) = \frac{a \cdot n_{10B} \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10B}(E_0)}{k \cdot E^{*A}} \cdot \frac{S_{cap}^A(E_0)}{S_F^A(E_0)} \quad (IV.24)$$

Soit en combinant les deux équations précédentes :

$$\frac{a \cdot n_{10B}}{k \cdot E^*} = \frac{S_F^A(E_0)}{S_{cap}^A(E_0)} \cdot \frac{E^{*A}}{E^*} \cdot \frac{\mu_A(n_A, E_0)}{\sigma_{(n,\alpha)}^{10B}(E_0)} \cdot \frac{\sigma_{(n,\gamma)}^A(E_0)}{\sigma_t^A(E_0)} \quad (IV.25)$$

La principale difficulté réside alors dans la détermination du coefficient de diffusion multiple  $\mu_A(n_A, E_0)$  et de sa précision.

Une hypothèse implicite de cette méthode consiste à considérer que la réponse en amplitude associée au neptunium ou un autre corps tels que l'or ou l'argent peut être pondérée de manière identique. Là encore, l'utilisation de la fonction poids est une source d'incertitude.

Cet inconvénient disparaît si l'échantillon mesuré présente lui même une résonance saturée à l'énergie  $E_0$  (ce qui n'est le cas pour aucun des échantillons de neptunium utilisés en capture) et l'équation précédente se simplifie en :

$$\frac{a \cdot n_{10B}}{k \cdot E^*} = \frac{S_F(E_0)}{S_{cap}(E_0)} \cdot \frac{\mu(n, E_0)}{\sigma_{(n,\alpha)}^{10B}(E_0)} \cdot \frac{\sigma_{(n,\gamma)}(E_0)}{\sigma_t(E_0)} \quad (IV.26)$$

## 2.5 Incertitudes sur les expériences de capture

Il apparaît, à la suite des considérations précédentes que l'expérience de capture possède de nombreuses sources d'incertitude.

Différents tests, autorisés par le système d'acquisition de l'installation de capture, ont pu montrer, dans des expériences précédentes, l'évolution dans le temps de certaines grandeurs telles que le rapport entre les nombres d'évènements enregistrés par chacun des deux détecteurs  $C_6D_6$ . Ces variations ont été attribuées à des variations des caractéristiques de fonctionnement de GELINA. Ces variations n'ont pas été observées dans nos expériences, mais du fait de l'importance du rapport signal sur bruit, il est difficile de tirer des conclusions à ce niveau.

Toutefois, il semble que l'incertitude la plus importante réside dans l'utilisation d'une fonction de pondération par les amplitudes incertaine. En effet, celle-ci affecte directement le nombre d'évènements des spectres de temps de vol ainsi que la méthode de détermination de la normalisation par résonance saturée.

De plus, dans le cas d'éléments fortement radioactifs tels que le neptunium, le niveau du bruit de fond est important et il n'est pas évident que l'identification de petites résonances (un des atouts majeurs d'une expérience de capture) soit plus aisée que dans nos expériences de transmission, qui possèdent en outre les avantages d'une distance de vol plus grande ou de pouvoir travailler à basses températures.

Pour ces diverses raisons, de l'avis de l'auteur, la détermination des paramètres de résonances de  $^{237}\text{Np}$  à partir de nos expériences de capture semble délicate. En se normalisant sur plusieurs résonances déterminées en transmission, leur intérêt peut néanmoins résider dans la confirmation de l'existence de certaines résonances et de l'ordre de grandeur de leur paramètres, notamment pour les très grandes résonances où les incertitudes sur la résolution ou le bruit de fond amènent une imprécision conséquente en transmission.

Dans le cadre de ce travail, seules les données issues des expériences de transmission seront analysées et présentées dans le chapitre suivant.

# CHAPITRE V

## Analyse et résultats

Cette partie s'attachera uniquement à présenter l'analyse et les résultats des expériences de transmission. Pour les raisons exposées à la fin du chapitre précédent, les expériences de capture n'amènent que peu d'informations supplémentaires. Néanmoins, les valeurs issues des expériences de capture devront être intégrées et comparées aux résultats des expériences de transmission avant toute publication de paramètres de résonance définitifs.

### 1 Le programme d'analyse REFIT

#### 1.1 *Les méthodes d'analyse*

##### 1.1.1 *Analyse de surface*

Cette méthode d'extraction des paramètres de résonance a été historiquement la première. Elle n'est plus utilisée de nos jours car elle présente plusieurs défauts dont, en particulier, le fait de ne plus être applicable dès qu'il y a un fort recouvrement entre les résonances. Toutefois, elle permet de comprendre simplement quels sont les paramètres les plus sensibles et déterminés avec la plus grande précision dans les méthodes d'analyse de forme actuelles.

L'analyse de surface en transmission consiste à déterminer la surface comprise entre la courbe expérimentale de transmission et la valeur unité correspondant à la partie hachurée de la figure 76.

L'aire ainsi déterminée est donc :

$$A = \int_0^{+\infty} (1 - e^{-n\sigma t}) dE \quad (\text{V.1})$$

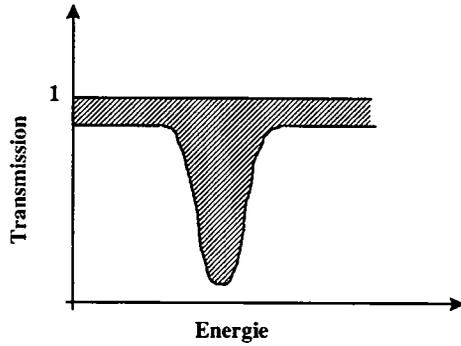


Fig.76 : Aire considérée, en hachuré, dans l'analyse de surface totale d'une résonance en transmission.

avec

$n$ , épaisseur de l'échantillon en atomes/barn.

$\sigma_t$ , section efficace totale (barn).

$E$ , énergie (eV).

En négligeant la section efficace de diffusion potentielle élastique et en utilisant le formalisme de Breit et Wigner,  $A$  s'exprime très simplement dans deux cas [29] :

•  $n\sigma_t \ll 1$  (échantillon mince ou petite résonance) :

$$A = 2\pi^2 \bar{\lambda}^2 n g \Gamma_n \quad (\text{V.2})$$

avec

$g$ , facteur statistique de spin.

$\Gamma_n$ , largeur partielle neutronique.

•  $n\sigma_t \gg 1$  (résonance noire) :

$$A = \pi \bar{\lambda} \sqrt{n g \Gamma_n \Gamma} \quad (\text{V.3})$$

avec  $\Gamma$ , largeur totale.

De manière qualitative, on peut donc conclure que la transmission permet de déterminer la valeur  $g\Gamma_n$  de chaque résonance, cette valeur étant proportionnelle à l'aire de la résonance (si  $n\sigma_t \ll 1$ ). Pour le  $^{237}\text{Np}$ , plus une résonance est grande et plus son aire dépend de la largeur totale  $\Gamma \simeq \Gamma_\gamma$  (car  $\Gamma_\gamma \gg \Gamma_n \gg \Gamma_f$  dans la majorité des cas).

Dans l'analyse des expériences de transmission, il est donc attendu de pouvoir extraire la valeur de l'énergie et de  $g\Gamma_n$  pour chaque résonance et la valeur de  $\Gamma_\gamma$  pour les plus grandes d'entre elles.

### 1.1.2 Analyse de forme

Le meilleur moyen d'extraire des paramètres de résonance d'un spectre de transmission est l'analyse de forme. Pour ce faire, une transmission est calculée ponctuellement, sur le domaine d'énergie choisi, à partir de valeurs initiales des paramètres de résonance (dédites par exemple d'une analyse rapide de surface). Celles-ci sont ensuite ajustées par des méthodes itératives de type moindres carrés, afin que cette transmission calculée reproduise le plus fidèlement possible la transmission déterminée expérimentalement. Plus de détails sur cette méthode appliquée aux spectres de temps de vol neutroniques peuvent être trouvés dans la référence [142].

Dans ce type d'expériences, l'observable est la transmission  $T$ . Le spectre de transmission est constitué de points correspondant à la valeur de cette transmission pour des énergies  $E_k$ , avec  $k$  variant de 1 à  $N$  (le nombre de canaux). Dans la suite on notera :

$$T_k^{\text{exp}} \equiv T^{\text{exp}}(E_k) \quad (\text{V.4})$$

où  $T_k^{\text{exp}}$  est la valeur expérimentale de la transmission, avec un écart-type  $\sigma_k$ , à l'énergie  $E_k$ .

À cette énergie  $E_k$  donnée, un modèle mathématique permet de calculer la valeur de la transmission  $T^{\text{cal}}(E_k)$  en fonction de plusieurs paramètres  $x_i$  tels que le rayon de diffusion  $R$ , les énergies  $E_i$  des résonances, leurs largeurs partielles  $\Gamma_{n_i}$ ,  $\Gamma_{\gamma_i}$  et  $\Gamma_{f_i}$  (voir partie suivante pour plus de détails) :

Soit :

$$T^{\text{cal}}(E_k) = T_k^{\text{cal}}(x_1, x_2, \dots, x_M) = T_k^{\text{cal}}(\vec{x}) \equiv T_k^{\text{cal}} \quad (\text{V.5})$$

avec

$M$ , nombre de paramètres.

$\vec{x}$ , vecteur des paramètres.

La transmission calculée dépend de la modélisation de la section efficace, de l'élargissement Doppler et de la résolution expérimentale.

## 1.2 Calcul de la transmission par REFIT

Le programme d'analyse REFIT [68] cherche à minimiser la somme des carrés des résiduels  $r(E_k)$ , définie comme :

$$\sum_k (r(E_k))^2 = \sum_k \left( \frac{T_k^{cal} - T_k^{exp}}{\sigma_k} \right)^2 \quad (\text{V.6})$$

Les différentes étapes du calcul de  $T_k^{cal}$  vont maintenant être décrites.

### 1.2.1 Formalisme des sections efficaces

Pour calculer les sections efficaces, REFIT utilise le formalisme de Reich-Moore avec une matrice-R réduite à une voie définie dans l'équation (II.45).

Dans ce cas, et pour des neutrons apportant un moment orbital nul (ondes "s"), la section efficace totale se déduit de l'équation (II.24) :

$$\sigma_t = \frac{2\pi}{k_c^2} \sum_{J=|I-\frac{1}{2}|}^{I+\frac{1}{2}} g_J (1 - \text{Re} U_{nn}^J) \quad (\text{V.7})$$

avec

$U_{nn}^J$ , matrice de collision définie par l'équation (II.44).

### 1.2.2 Effet Doppler

Une fois calculée, la section efficace totale est ensuite élargie par effet Doppler selon le modèle du gaz libre avec une température effective (équation (III.10)) :

$$\sigma_{t,\theta}(E) = \int_{-\infty}^E \sigma_t(E - E') \cdot S(E, E', \theta) \cdot dE' \quad (\text{V.8})$$

avec

$\sigma_{t,\theta}(E)$ , section efficace totale observée pour des neutrons d'énergie  $E$  et un échantillon à la température  $\theta$ .

$\sigma_t(E)$ , section efficace totale calculée d'après le formalisme de Reich-Moore.

$S(E, E', \theta)$ , fonction de transfert.

REFIT utilise principalement le modèle du gaz libre sans approximation, c'est à dire en considérant la pleine analogie entre le cas limite du modèle cristallin et le gaz libre. Dans ce cas, la fonction de transfert  $S(E, E', \theta)$  est celle donnée par l'équation (II.88).

### 1.2.3 Construction de la transmission

Un échantillon peut être constitué de plusieurs éléments. Dans notre cas, il s'agit de dioxyde de neptunium (en transmission) : il y aura donc  $^{237}\text{Np}$  et de l'oxygène mais également quelques impuretés.

REFIT fait alors la somme des sections efficaces de chaque élément pondérées par leur épaisseur respective pour créer la transmission :

$$T(E) = \exp\left(-\sum_i n_i \sigma_{t,\theta}^i(E)\right) \quad (\text{V.9})$$

avec

$i$ , indice représentant l'élément  $i$  contenu dans l'échantillon.

$\sigma_{t,\theta}^i(E)$ , section efficace totale observée (en barns) pour des neutrons d'énergie  $E$  et un élément  $i$  à la température  $\theta$ .

$n_i$ , épaisseur de l'élément  $i$  dans l'échantillon (en atomes / barn)

La valeur ainsi obtenue est ensuite convoluée avec la fonction de résolution expérimentale  $R(E)$ , décrite dans le chapitre III.

La transmission calculée par REFIT et qui est ajustée sur les points expérimentaux est donc :

$$T^{cal}(E) = \int_0^{+\infty} T(E') \cdot R(E, E') \cdot dE' \quad (\text{V.10})$$

Pour un seul élément, cette transmission peut s'écrire comme :

$$T^{cal}(E) = R(E) * e^{-n\sigma_t(E)*D(E,\theta)} \quad (\text{V.11})$$

avec

$*$ , produit de convolution.

$n$ , épaisseur de l'échantillon en atomes/barn.

$D$ , fonction d'élargissement Doppler se déduisant de la fonction de transfert :

$$\sigma_{t,\theta}(E) = \int_0^{+\infty} \sigma_t(E') \cdot D(E, E', \theta) \cdot dE' \quad (\text{V.12})$$

$R$ , fonction de résolution.

## 2 Remarques préliminaires sur les résultats

En analysant les résultats obtenus sur chaque base de vol et sur chaque échantillon, plusieurs incompatibilités sont apparues.

### 2.1 Erreurs de normalisation sur la base de vol 2

#### 2.1.1 Mise en évidence d'un effet systématique

Dans une première approche, outre les paramètres de résonance, le coefficient de normalisation  $C$  a été ajusté afin de minimiser :

$$\sum_k \left[ \frac{C \cdot T_k^{cal} - T_k^{exp}}{\sigma_k} \right]^2 \quad (V.13)$$

Si la constante de normalisation  $K$  a été correctement déterminée lors de la réduction des données (voir partie 4 du chapitre IV), alors la valeur de  $C$  doit être cohérente avec 1, dans l'écart-type de  $K$ .

Pour toutes les expériences menées sur la base 2, quel que soit l'échantillon considéré, la valeur ajustée de  $C$  est distribuée autour de 0,97 (avec un écart type inférieur à 0,1), ce qui nous amène à considérer la présence d'une erreur systématique à ce niveau.

#### 2.1.2 Origine et correction

Il existe deux supports, constitués de cuivre, pour les échantillons de la base 2. L'un d'eux est utilisé pour les échantillons dont on veut déterminer la transmission et sur l'autre est placé le dummy, c'est à dire la boîte vide mise dans le faisceau de neutrons lors des séquences OUT. Ces supports ont la forme d'un creuset dans lequel viennent s'insérer les échantillons ou le dummy. Par conséquent une partie de ces supports est dans le faisceau de neutrons comme le représente la figure 77.

Or la géométrie des deux supports est différente et en contrôlant l'épaisseur (environ 2 mm) de chacun d'eux, il est apparu que le support du dummy est plus épais de  $0,46 \pm 0,06$  mm.

Ce problème a été corrigé en divisant les spectres de transmission par la valeur calculée par REFIT, dans les mêmes conditions expérimentales, de la transmission de cette épaisseur de cuivre. Après cette correction, la valeur de  $C$  est distribuée autour de 1,01, ce qui est encore trop éloigné de la valeur attendue.

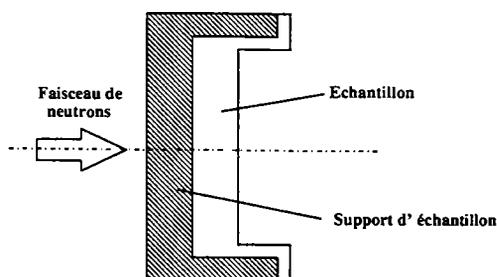


Fig.77 : Schéma simplifié de l'échantillon sur son support dans les expériences de transmission.

### 2.1.3 Causes possibles de l'écart résiduel

Plusieurs raisons peuvent expliquer l'écart restant :

- une mauvaise détermination de la résolution expérimentale. Celle-ci est en effet suspectée de posséder au moins une queue décroissante supplémentaire (voir chapitre IV) mais ne pas la considérer amène une légère sous-estimation de la constante de normalisation : sa prise en compte accentue donc l'écart.

- une mauvaise détermination de la différence d'épaisseur des supports, ce que plusieurs mesures indépendantes tendent à démentir.

- une différence de composition des deux supports : mais des mesures ont été faites, uniquement avec les supports dans le faisceau de neutrons et aucune résonance autre que celle du cuivre n'a pu être observée en dessous de 100 keV.

- une différence d'épaisseur au niveau des boîtes contenant les échantillons : il semblerait en effet qu'il existe un écart systématique d'environ 1 % sur la normalisation entre le dummy et les échantillons puisque celui-ci disparaît si on construit la transmission de l'échantillon SP96095 en utilisant SP96094 à la place du Dummy. Cette différence serait alors due à une valeur erronée de l'épaisseur de cuivre ou de soufre contenue dans le Dummy. Cette hypothèse reste néanmoins à vérifier.

### 2.1.4 Conclusions

La détermination exacte de la normalisation des expériences menées sur la base 2 semble donc délicate, d'autant plus que la section efficace d'éléments tels que le cuivre n'est pas constante avec l'énergie. Aussi, le coefficient de normalisation  $C$  a-t-il été ajusté sur toutes les expériences menées sur la base 2, rendant impossible la détermination du rayon de diffusion à partir de ces expériences.

Celui-ci sera extrait des données issues de la base de vol 4, où la constante de normalisation a été déterminée avec une plus grande précision et où aucun indice ne permet de suspecter des effets systématiques notables à ce niveau.

## 2.2 Incertitudes sur l'épaisseur des échantillons

### 2.2.1 Observations

En comparant les résultats obtenus avec les différents échantillons, un écart systématique de l'ordre de 3 % existe, quelle que soit l'expérience et l'énergie considérée, entre les valeurs de la largeur partielle neutronique obtenues sur l'échantillon NS97048 utilisé sur la base 4 et celles obtenues sur l'échantillon SP96095 utilisé uniquement sur la base 2. Un écart semble également exister entre les échantillons SP96094 et SP96095, augmentant encore la différence des résultats entre SP96094 et NS97048.

### 2.2.2 Origine possible de l'écart

L'explication la plus probable est une erreur dans l'épaisseur de neptunium dans l'échantillon. En effet, en transmission et pour un échantillon mince, l'aire des résonances est proportionnelle à  $ng\Gamma_n$ . Toute erreur sur l'épaisseur  $n$  (en atomes/barn) de  $^{237}\text{Np}$  se traduit par une erreur équivalente (et constante quelle que soit l'énergie de la résonance) sur  $\Gamma_n$ . Une erreur d'environ 3 % sur l'épaisseur de neptunium dans un des échantillons est donc suspectée.

Il y a deux possibilités pouvant expliquer cette erreur :

- soit la quantité de neptunium diffère effectivement de 3 % dans l'échantillon.
- soit l'échantillon n'est pas homogène, l'épaisseur de neptunium n'étant pas constante sur toute la surface de l'échantillon.

### 2.2.3 Epaisseur des échantillons

Les échantillons sont décrits en détail dans l'annexe B et seuls certains aspects sont rappelés ici.

-Echantillons SP96094 et SP96095 :

SP96094 contient 5,3 g de  $\text{NpO}_2$  et 37,4 g de soufre, SP96095 26,5g de  $\text{NpO}_2$  et 33,65 g de soufre.

Ces échantillons sont issus du même lot de neptunium, mais il n'existe pas d'analyse de leur composition exacte. Aucune résonance autres que celles du neptunium-237 n'étant visible, cet échantillon est considéré pur par défaut.

-Echantillon NS97048 :

Cet échantillon est constitué de 44,4 g de  $\text{NpO}_2$ .

Une analyse de la composition de cet échantillon a été entreprise ne révélant que d'infimes traces d'impuretés et  $\frac{m_{\text{Np}}}{m_{\text{total}}} = 87,9 \pm 0,9 \%$ .

Toutefois, des résonances du thorium-232 sont observées dans les spectres de temps de vol. La quantité de  $^{232}\text{Th}$  estimée à partir de ces résonances étant plus de 1000 fois supérieure (0,44 %) à celle donnée par l'analyse de la composition de l'échantillon, les résultats de cette analyse ont été mis en doute.

Une nouvelle analyse de la composition de l'échantillon NS97048 a donc été entreprise et a donné les résultats suivants :

$$\frac{m_{\text{Np}}}{m_{\text{totale}}} = 87,27 \pm 0,48 \%, \quad \frac{m_{\text{Th}}}{m_{\text{totale}}} = 0,48 \pm 0,10 \%$$

Ce résultat confirme l'existence de thorium en quantité proche de celle estimée, mais n'est pas à même d'expliquer la différence de 3 % entre les deux échantillons NS97048 et SP96095.

#### 2.2.4 Homogénéité des échantillons

-L'homogénéité des échantillons SP96094 et SP96095 n'a pas été vérifiée.

-Un test d'homogénéité de l'échantillon NS97048 a été effectué avant la nouvelle analyse de la composition de celui-ci.

Pour cela, cet échantillon a été placé immédiatement derrière un bloc de plomb de 10 cm percé d'un trou de 1 mm de diamètre. Seuls les rayons gamma émis à travers cet orifice sont capables d'atteindre un détecteur au germanium placé à deux mètres dans l'axe de ce trou comme l'indique la figure 78.

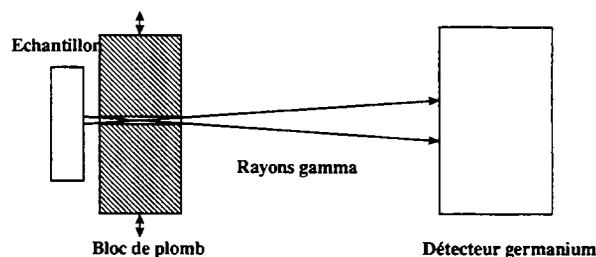


Fig.78 : Schéma du dispositif expérimental utilisé pour vérifier l'homogénéité de l'échantillon.

La durée de la mesure est suffisante pour que l'incertitude sur l'intégrale du nombre de coups enregistrés dans les pics correspondant aux rayons gamma de la radioactivité naturelle de  $^{237}\text{Np}$  soit inférieure à 1 %. En déplaçant le bloc de plomb percé le long de deux diamètres orthogonaux de l'échantillon, aucune variation sensible n'a été observée sur le nombre de rayons gamma, tendant à prouver l'homogénéité de cet échantillon.

### **2.2.5 Conclusions**

Les valeurs obtenues pour  $\Gamma_n$  à partir de l'échantillon SP96095 semblent plus en accord avec les résultats de Paya ou d'Auchampaugh (en dessous de 50 eV).

Néanmoins, les épaisseurs de  $^{237}\text{Np}$  dans les échantillons SP96094 et SP96095 ont été ajustées sur la section efficace obtenue avec l'échantillon NS97048, le seul dont la composition soit parfaitement connue et pour lequel l'homogénéité ne semble pas être sujette à caution.

Les épaisseurs de  $^{237}\text{Np}$  dans les échantillons SP96094 et SP96095 ont ainsi été reconsidérées, en augmentant leur épaisseur respective de 3 %.

Toutefois, tant que la différence avec les résultats provenant des échantillons utilisés sur la base 2 ne sera pas comprise (problème de composition, d'homogénéité des échantillons ou de bruit de fond / résolution ?), la possibilité d'une erreur systématique de 3 % sur l'épaisseur des échantillons est à considérer dans nos résultats.

## **2.3 Incertitude sur la forme du bruit de fond et la résolution**

### **2.3.1 Estimation de l'impact d'un bruit de fond structuré**

Dans le chapitre précédent, une étude a montré que la forme du bruit de fond gamma utilisée sur la base 2 a de fortes chances de mal reproduire la réalité, ce bruit de fond présentant des structures dont l'origine est attribuée principalement à la capture de neutrons diffusés dans l'environnement du détecteur.

L'effet sur les paramètres de résonance est difficile à quantifier, du fait de l'absence d'informations sur la forme réelle du bruit de fond sur cette base.

Ajuster les paramètres de la résolution en espérant obtenir une description réaliste de l'effet de ces rayons gamma nous est apparu un peu trop incertain étant donné l'état de nos connaissances sur la diffusion des neutrons dans l'environnement du détecteur.

Nous avons préféré utiliser le spectre de temps de vol des signaux de basses amplitudes enregistré sur la base 4 pour l'expérience Fevrier98 et représenté sur la figure 67. En effet, d'après les hypothèses émises dans la partie 1.2 du chapitre IV, une partie de ces événements est susceptible de contribuer au bruit de fond, au moins sur la base 2.

Considérons alors que le spectre des signaux de basse amplitude de la base 4 donne une représentation approchée de ce que pourrait être la forme du bruit de fond de la base 2 pour des conditions similaires. Ce spectre des basses amplitudes

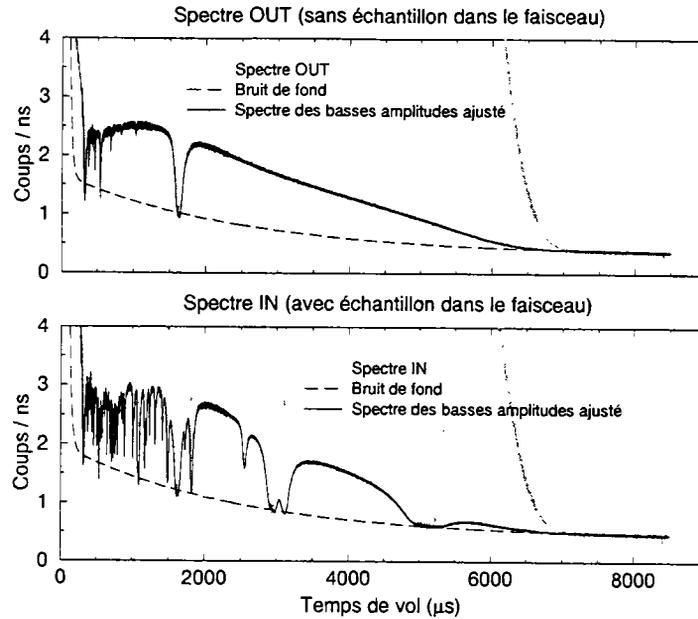


Fig.79 : Comparaison, sur les deux spectres de temps de vol utilisés en transmission pour l'expérience Fevrier98, entre le bruit de fond supposé réel et un bruit de fond fictif correspondant au spectre de temps de vol des signaux de basse amplitude ajusté sur les points de bruit de fond. Ce bruit de fond fictif se veut être une simulation du bruit de fond pouvant affecter les expériences sur la base de vol 2.

est ensuite ajusté sur les points de bruit de fond du spectre de temps de vol utilisé pour la détermination de la transmission, c'est à dire dont l'amplitude des signaux est comprise dans la fenêtre placée autour du pic de réaction  $(n, \alpha)$ . On détermine ainsi, sur les deux spectres de temps de vol de l'expérience Fevrier98, un bruit de fond fictif, représenté sur la figure 79.

En effectuant l'analyse de la transmission obtenue en utilisant ce bruit de fond fictif, l'effet de la déformation engendrée sur les résonances, supposé similaire à celui affectant les expériences de la base 2, va ainsi pouvoir être estimé.

Sur la figure 80 sont représentés en fonction de l'énergie, pour un échantillon de résonances, les rapports entre les largeurs partielles déterminées en utilisant le bruit de fond fictif et celles obtenues par la méthode classique.

Les observations suivantes peuvent être faites :

-à l'exception des toutes premières résonances où l'effet est plus faible, il y a une variation sensible de la largeur neutronique pouvant atteindre 4 à 5 % pour les résonances pratiquement noires (d'énergies 5.8, 25 et 50 eV). Toutefois, pour les autres résonances, l'effet apparaît en moyenne de l'ordre de 1% et inférieur dans la plupart des cas à l'incertitude issue de l'ajustement par REFIT (les petites résonances n'étant pas représentées sur cette figure).

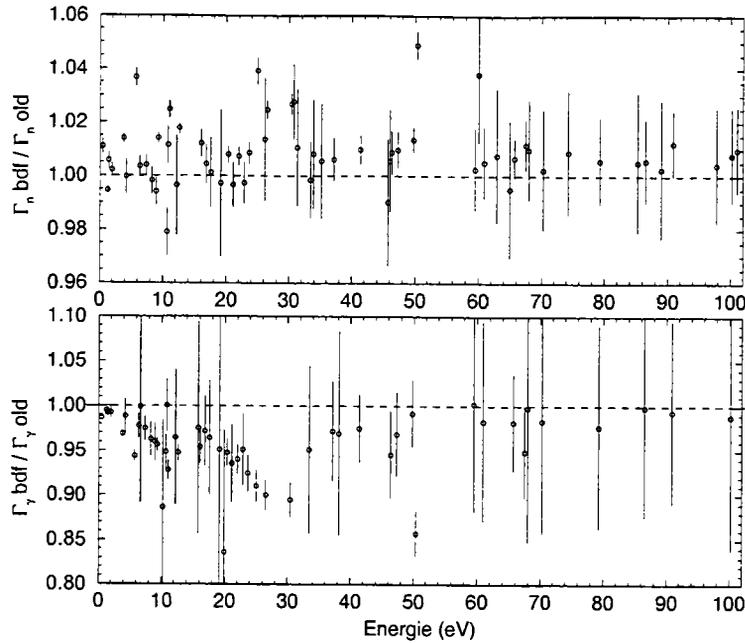


Fig.80 : Evolution du rapport entre les largeurs partielles déterminées avec un bruit de fond structuré fictif (indice bdf) cette même largeur partielle déterminée pour un bruit de fond classique (indice old). Les incertitudes sont obtenues uniquement à partir de celles résultant de l'ajustement par REFIT.

-une diminution progressive de la largeur radiative est observée jusqu'à 30 eV où la différence atteint 10 %. La présence d'un tel effet est plus discutable au delà de 30 eV, notamment du fait de l'incertitude sur les largeurs radiatives.

Ces conclusions sont à relativiser, car cette procédure revient à appliquer une correction sur un spectre où le bruit de fond gamma est a priori correctement déterminé. De plus, rien ne prouve que la forme du bruit de fond fictif soit représentative du bruit de fond affectant la base 2, notamment au niveau de l'amplitude des structures entre les résonances. Enfin, le bruit de fond de l'expérience Février98 est très faible (de l'ordre de 1 %) et il est raisonnable de penser que cet effet doit être accru pour les expériences menées sur la base 2 où le bruit de fond est plus important.

D'après cette étude de sensibilité, la valeur de la largeur neutronique des résonances dont la transmission n'est pas trop faible pourrait être analysée sur les expériences ayant eu lieu sur la base 2. Toutefois, dans ce travail, nous avons préféré n'extraire les largeurs partielles que des expériences menées sur la base 4. Seule l'information sur l'énergie des résonances est considérée pour la base 2.

### 2.3.2 Effet d'une nouvelle paramétrisation de la résolution expérimentale

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, la paramétrisation de la résolution expérimentale semble devoir être modifiée, principalement au niveau de la détection de neutrons diffusés dans le détecteur et dans son environnement. Cette composante de la résolution, dépendant du détecteur lui-même et de l'ensemble des matériaux disposés autour de lui, est donc spécifique à chaque installation.

Une nouvelle paramétrisation de cette composante a été envisagée pour le dispositif de détection de la base 4 (voir page 183). Les paramètres de résonances obtenus avec cette résolution sont alors comparés à ceux obtenus avec la résolution initiale en faisant le rapport des largeurs neutroniques et radiatives. L'évolution de ces rapports en fonction de l'énergie, pour un échantillon de résonances, est représenté sur la figure 81.

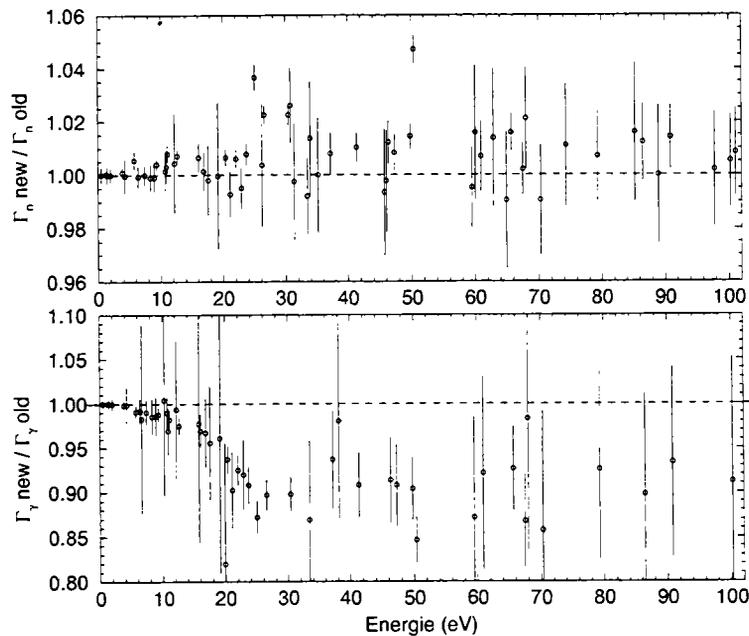


Fig.81 : Comparaison des paramètres obtenus selon le choix de la résolution. Les largeurs partielles indicée "new" sont celles obtenues par REFIT avec la nouvelle paramétrisation de la résolution pour la queue des diffusions dans et autour du détecteur. L'indice "old" correspond à celles déterminées avec la paramétrisation initiale.

Le comportement général de la variation des largeurs partielles est similaire à celui observé sur la figure 80, ce qui n'est pas étonnant si l'on considère que la composante

structurée du bruit de fond aurait pour origine principale les rayons gamma créés par la capture des neutrons diffusés dans l'environnement du détecteur.

En dessous de 10 eV, la résolution expérimentale est insignifiante devant l'élargissement Doppler et aucune différence notable n'est de ce fait observée dans cet intervalle d'énergie.

Au delà, l'effet sur la valeur de la largeur neutronique  $\Gamma_n$  reste faible, limité à une variation de l'ordre de 1 %, excepté pour les résonances pratiquement noires (variation d'environ 4 % pour les résonances à 25 et 50 eV) où l'ancienne résolution donne une mauvaise représentation de la forme du bas de la résonance.

Dans ce travail, il est considéré que la valeur de  $\Gamma_n$  obtenue avec la nouvelle résolution, même si elle est imparfaite, est plus représentative de la réalité. En effet, la modification de la résolution du détecteur apportée se traduit surtout pour la résolution totale par l'apparition d'une longue queue décroissante de plusieurs centaines de ns (voir figure 69). Même si l'amplitude de la queue est mal décrite pour les temps faibles comme nous le soupçonnons, cet effet devrait être atténué par la prépondérance à ce niveau de la composante de la résolution due aux modérateurs comme le montre la figure 38.

Cependant, la largeur radiative est très affectée par le choix de la résolution, remettant peut être en cause l'optimisme précédent. En effet, l'écart entre les valeurs de  $\Gamma_\gamma$  augmente avec l'énergie pour se stabiliser à partir de 30 eV autour de 10 % au delà de quelques dizaines d'électron-Volts. Les deux largeurs partielles étant corrélées, le choix de la résolution va donc les affecter toutes deux de manière non-négligeable.

Pour vérifier le degré de validité de l'utilisation de la nouvelle résolution, l'évolution de  $\Gamma_\gamma$  peut être utilisée. En effet, les largeurs radiatives sont attendues distribuées selon une loi gaussienne avec un faible écart-type (voir page 79). Les valeurs de  $\Gamma_\gamma$  ne doivent donc fluctuer que très faiblement autour de leur moyenne  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$ , constante sur toute notre gamme d'énergie.

La valeur de  $\Gamma_\gamma$  en fonction de l'énergie de quelques résonances (celles pour lesquelles  $\frac{\Delta\Gamma_\gamma}{\Gamma_\gamma} < 15 \%$ ), dans le cas des deux résolutions expérimentales, est représentée sur la figure 82.

La dispersion assez élevée des points en dessous de 10 eV, compte tenu de leur incertitude, est principalement due à l'effet Doppler ainsi que cela sera expliqué dans la partie 4.2.

A la lumière de la figure 82, il apparaît que la nouvelle résolution amène une sous-estimation apparente de la largeur radiative de l'ordre de 5 à 10 %, entre 20 et 60 eV, pouvant amener à réfuter sa validité. Toutefois, elle permet de corriger de manière significative la largeur radiative trop élevée de certaines résonances (principalement celles qui sont pratiquement noires) et une surestimation apparente de la largeur radiative au delà de 60 eV avec l'ancienne résolution (même si dans ce

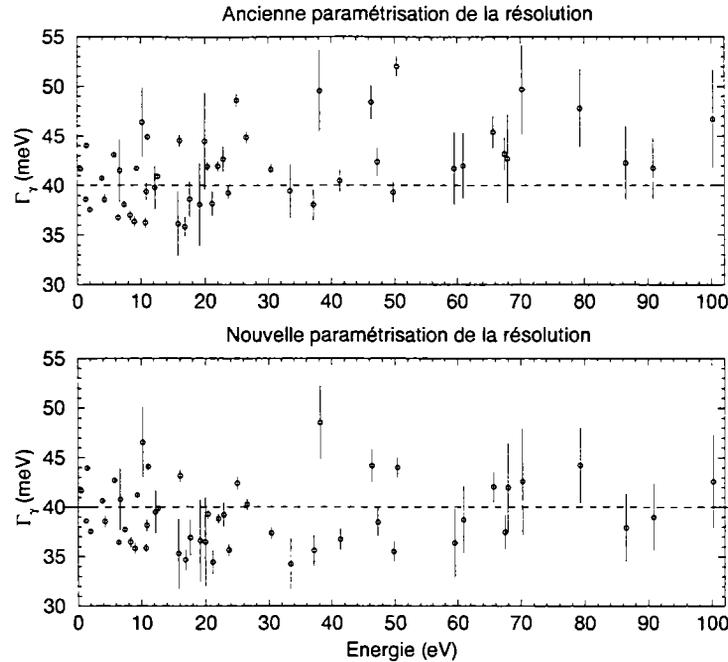


Fig.82 : Largeur radiative des résonances pour lesquelles  $\frac{\Delta\Gamma_\gamma}{\Gamma_\gamma} < 15 \%$  (avec  $\Delta\Gamma_\gamma$  : incertitude provenant de l'ajustement par REFIT uniquement) en fonction de l'énergie et selon la paramétrisation de la résolution pour la queue des diffusions multiples des neutrons dans le détecteur et son environnement.

cas, l'hypothèse d'un mélange de résonances peut être avancé). La paramétrisation proposée semble donc très approximative et une étude des caractéristiques de la queue de la résolution en fonction de l'énergie apparaît nécessaire.

Dans ce travail, nous avons néanmoins fait le choix d'analyser les données avec notre nouvelle paramétrisation pour la résolution, car elle offre l'avantage de donner une valeur de la largeur neutronique pour les grandes résonances plus fiable, étant en meilleur accord (comparativement aux résonances d'énergie voisines) avec celle obtenue sur la base 2 avec l'échantillon le plus mince. Ce point de vue est d'autant plus important que, pour les raisons développées précédemment, nous n'utilisons que les expériences menées sur la base 4, c'est à dire avec l'échantillon le plus épais. Pour tenir compte de l'incertitude sur la résolution, la différence entre les paramètres obtenus avec la nouvelle et l'ancienne paramétrisation de la résolution expérimentale sera ajoutée quadratiquement à l'incertitude sur ces paramètres.

Les doutes sur la résolution sont l'une des raisons pour lesquelles la détermination de la largeur radiative moyenne ne sera faite qu'en dessous de 15 eV, où la variation engendrée sur la largeur radiative par le choix de la résolution n'excède pas 2 %, l'élargissement Doppler étant l'effet nettement dominant à ces basses énergies.

## 3 Résultats

### 3.1 Le rayon de diffusion

#### 3.1.1 Ajustement de la valeur du rayon

D'après les conclusions de la partie 2, la valeur du rayon de diffusion est ajustée uniquement sur l'expérience Fevrier98, ayant eu lieu sur la base de vol 4 avec l'échantillon NS97048.

REFIT détermine la section efficace de diffusion potentielle en ajustant la valeur du rayon effectif  $R_J$  pour chaque spin  $J$ , le rayon de diffusion  $R$  étant relié à ces rayons  $R_J$  par l'équation (II.40) :

$$\sigma_p(E) = 4\pi (g_{J=2}R_{J=2}^2 + g_{J=3}R_{J=3}^2) = 4\pi R^2$$

avec

$\sigma_p(E)$ , section de diffusion potentielle élastique du noyau.

$g_J$ , facteur statistique de spin :  $g_{J=2} = \frac{5}{12}$  et  $g_{J=3} = \frac{7}{12}$ .

Le rayon de diffusion associé à chaque spin est également déterminé par la forme de la transmission entre les résonances où interviennent les termes d'interférences entre ces résonances. Une représentation de l'influence du rayon à ce niveau peut être trouvée dans le terme d'interférence potentiel-résonnant de la formule de Breit et Wigner pour la section efficace totale (équation (II.37)). La modélisation de l'effet Doppler n'étant pas correcte en dessous de 10 eV (voir partie 4), la détermination du rayon du noyau a été entreprise entre 12 et 35 eV tout en ajustant les paramètres des résonances comprises dans cet intervalle d'énergie.

Les valeurs issues de l'ajustement par REFIT sont :

$$R_{J=2} = 11,05 \pm 0,28 \text{ fm} \quad (\text{V.14})$$

$$R_{J=3} = 9,15 \pm 0,25 \text{ fm} \quad (\text{V.15})$$

Soit :

$$R = \sqrt{g_{J=2}R_{J=2}^2 + g_{J=3}R_{J=3}^2} = 9,99 \pm 0,26 \text{ fm} \quad (\text{V.16})$$

#### 3.1.2 Incertitudes sur la valeur du rayon

A l'incertitude sur le rayon résultant de l'ajustement par REFIT s'ajoutent quadratiquement d'autres sources d'erreurs :

-l'incertitude sur le coefficient de normalisation  $K$  de l'expérience Février98 :

La distribution des  $K_i$  (coefficient de normalisation déterminé sur un cycle) est représentée sur la figure 74. L'incertitude sur un point étant pratiquement égale à l'écart-type de la distribution, l'incertitude sur  $K$  est calculée par l'équation (IV.16), en ne considérant aucun effet systématique :

$$K = 0,7419 \pm 0,0004 \quad (\text{V.17})$$

soit :

$$\sigma_K = 4 \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.18})$$

A cette valeur certainement sous-estimée du fait de la présence d'effets systématiques, l'incertitude provenant de la zone choisie pour l'ajustement du rayon va être ajoutée. En effet, la valeur du rayon ayant été fixée, le coefficient de normalisation est ajusté sur différentes zones en énergie du spectre de temps de vol entre 0 et 100 eV. La distribution obtenue est représentée sur la figure 83.

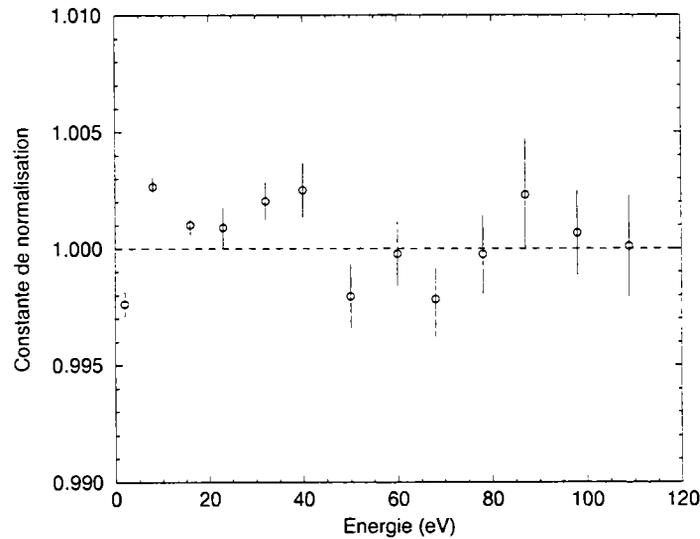


Fig.83 : Variation de la constante de normalisation ajustée par REFIT entre 0 et 100 eV

Par extension, l'incertitude sur le coefficient de normalisation est alors considéré, d'après cette figure, comme étant :

$$\sigma_K = 1,5 \cdot 10^{-3} \quad (\text{V.19})$$

Or, selon l'équation (III.37), l'incertitude  $\Delta T$  propagée par  $\sigma_K$  sur la transmission  $T$  est :

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{\sigma_K}{K} \quad (\text{V.20})$$

Entre 2 résonances consécutives très éloignées, la section efficace totale peut être confondue avec la section efficace de diffusion potentielle élastique et dans ce cas, en négligeant la contribution de l'oxygène :

$$T = e^{-4\pi n R^2} \quad (\text{V.21})$$

$$\frac{\Delta T}{T} = 8\pi n R \cdot \Delta R \quad (\text{V.22})$$

avec

$n$ , épaisseur de  $^{237}\text{Np}$  en atomes/barn

$R^2$  étant exprimé en barn, l'unité de  $R$  est  $10^{-14}$  m.

Soit :

$$\Delta R = \frac{\sigma_K}{8\pi n R K} = 0,15 \text{ fm} \quad (\text{V.23})$$

-incertitude relative à l'épaisseur de neptunium :

L'incertitude sur l'épaisseur de  $^{237}\text{Np}$  est, d'après l'analyse de l'échantillon NS97048 :

$$\frac{\Delta n}{n} = \frac{0,48}{87,27} = 5,5 \cdot 10^{-3} \quad (\text{V.24})$$

L'erreur systématique possible de 3 % sur l'épaisseur de l'échantillon n'est pas considérée ici.

De l'équation (V.21), il vient :

$$n = \frac{1}{4\pi R^2} \ln \frac{1}{T} \quad (\text{V.25})$$

soit :

$$\Delta R = \frac{R}{2} \frac{\Delta n}{n} = 0,03 \text{ fm} \quad (\text{V.26})$$

-incertitude sur la section efficace et l'épaisseur de l'oxygène :

Du fait de la très faible quantité de thorium, les incertitudes sur le rayon apportées par cet élément sont négligées. Par contre, l'oxygène est en quantité importante et la valeur de sa section efficace potentielle  $\sigma_p^O$  peut être considérée constante sur notre plage d'énergie.

La valeur de celle-ci donnée par les évaluations ENDF/B-VI ou JEF2.2 est égale à 3,89 barns, alors que dans JENDL3.2 elle vaut 3,78 barns.

Aussi, dans ce travail, considérons nous :

$$\sigma_p^O = 3,89 \pm 0,11 \text{ b} \quad (\text{V.27})$$

L'épaisseur  $n_O$  d'oxygène dans l'échantillon est, d'après la valeur donnée dans l'annexe B :

$$n_O = (10,4 \pm 0,4) \cdot 10^{-3} \text{ atomes/barn} \quad (\text{V.28})$$

L'incertitude sur la section efficace de diffusion potentielle de l'oxygène va se traduire par une incertitude équivalente sur la section efficace de diffusion potentielle de  $^{237}\text{Np}$  selon la relation :

$$\Delta(n \cdot \sigma_p) = \Delta(n_O \cdot \sigma_p^O) \quad (\text{V.29})$$

avec

$n$ , épaisseur de neptunium ( $5,034 \cdot 10^{-3}$  at/barns).

$\sigma_p = 4\pi R^2$ , section efficace de diffusion potentielle élastique de  $^{237}\text{Np}$ .

$n_O$ , épaisseur d'oxygène en atomes par barn.

$\sigma_p^O$ , section efficace de diffusion potentielle élastique de l'oxygène.

L'incertitude propagée sur le rayon de diffusion du neptunium est alors :

$$\Delta R = \frac{1}{8\pi n R} \cdot \sqrt{(\sigma_p^O \cdot \Delta n_O)^2 + (n_O \cdot \Delta \sigma_p^O)^2} = 0,15 \text{ fm} \quad (\text{V.30})$$

avec

$\Delta n_O$ , incertitude sur l'épaisseur d'oxygène ( $0,4 \cdot 10^{-3}$  atomes/barn).

$\Delta \sigma_p^O$ , incertitude sur la section efficace de diffusion potentielle élastique de l'oxygène (0,11 barn).

Notons que l'épaisseur d'oxygène est actuellement déterminée par une mesure du taux d'oxydation de l'échantillon, réalisée par le laboratoire Paul Scherrer Institut (PSI).

-incertitude sur le niveau de bruit de fond :

Une incertitude sur la valeur de la transmission est le niveau de bruit de fond déterminé par la méthode des résonances noires. Sur l'expérience Février98, le bruit de fond est ajusté à l'aide de l'équation (IV.6). Une erreur possible de l'ordre de 5 % est observée sur le niveau exact du bruit de fond. Cette incertitude sur le niveau exact du bruit de fond se traduit par une incertitude  $\Delta T$  de  $1,5 \cdot 10^{-3}$  sur la transmission (voir page 229).

D'après l'équation (V.21), l'incertitude propagée sur le rayon  $R$  est donc :

$$\Delta R = \frac{1}{8\pi n R} \frac{\Delta T}{e^{-n \cdot \sigma_p - n_o \cdot \sigma_p^o}} = 0,13 \text{ fm} \quad (\text{V.31})$$

-incertitude provenant du choix de la résolution :

Le rayon a également été ajusté avec l'ancienne résolution et la valeur obtenue est de 0,12 fm inférieure. Cette différence est considérée comme une incertitude supplémentaire sur le rayon de diffusion :

$$\Delta R = 0,12 \text{ fm} \quad (\text{V.32})$$

### 3.1.3 Valeur du rayon

Les deux principales sources d'incertitude pour la détermination du rayon sont donc celles issues de l'ajustement sur les données et provenant de l'oxygène contenu dans l'échantillon.

La valeur du rayon de  $^{237}\text{Np}$  déterminée par ce travail est :

$$R = 9,99 \pm 0,38 \text{ fm} \quad (\text{V.33})$$

Cette valeur du rayon est ensuite fixée pour toute l'analyse des expériences de transmission.

## 3.2 Domaine thermique

Les paramètres décrivant le domaine d'énergie thermique de  $^{237}\text{Np}$  ont également été ajustés sur l'expérience Fevrier98.

### 3.2.1 Point thermique

Nos mesures ne nous permettent pas d'avoir accès à des énergies inférieures à 0,32 eV. La valeur au point thermique (0,0253 eV) a été déterminée plusieurs fois dans le passé. A cette énergie, les neutrons ont une vitesse de 2200 m/s et cette vitesse est utilisée comme norme dans les tables de sections efficaces pour les calculs de réacteurs.

Dans notre analyse, la valeur de 164,6 barns pour la valeur de la section efficace de capture au point thermique donnée par le fichier d'évaluation de JENDL3.2 a été utilisée comme point expérimental pour ajuster les paramètres des deux premières résonances négatives. Le choix de cette valeur sera développé dans la partie 6.

### 3.2.2 Résonances négatives

Les résonances négatives sont les résonances dont l'énergie est inférieure à l'énergie de séparation du neutron du noyau. Leur influence dans nos mesures se traduit par le comportement de la section efficace dans le domaine thermique dominé par les termes d'interférence de ces résonances avec les premières résonances neutroniques.

Le programme REFIT nécessite plusieurs résonances de part et d'autre du domaine d'analyse afin d'ajuster correctement la valeur du rayon de diffusion. Dix résonances négatives ont donc été définies en utilisant les paramètres moyens donnés dans la référence [85], soit :

-espacement moyen entre les résonances négatives : 0,5 eV. Leur énergie est donc prise à -0,5 eV, -1 eV, -1,5 eV, ..., -5 eV.

-largeur radiative des résonances :  $\Gamma_\gamma = 40$  meV

-largeur neutronique : elle est déduite pour chaque résonance de la largeur neutronique réduite de la première résonance  $\Gamma_n^0 = 69$  meV. La largeur neutronique de chaque résonance négative est donc fixée à :

$$\Gamma_n = 69 \cdot \sqrt{|E|} \text{ meV}$$

-les résonances de  $^{237}\text{Np}$  pouvant posséder deux spins différents ( $J = 2$  ou  $3$ ), le spin des résonances a été alterné, en commençant arbitrairement par 2.

L'énergie et la largeur neutronique des deux premières résonances négatives (une pour chaque spin) ont été ajustées en même temps que les paramètres de résonance des premières résonances (en dessous de 5 eV). L'énergie obtenue pour ces deux résonances n'ayant pas de signification physique, elle est ensuite fixée et un nouvel ajustement des largeurs neutroniques est entrepris.

L'erreur sur la largeur neutronique de ces résonances est traitée de la même manière que l'erreur sur les largeurs partielles des résonances neutroniques (voir page 228) et les résultats sont présentés avec les paramètres de résonance dans l'annexe F.

### 3.3 Les résonances

Les paramètres de résonances présentés dans ce travail sont ceux provenant des expériences Février98 (entre 0,3 et 120 eV), Octobre97 et Juin98 (entre 40 eV et 500 eV), c'est à dire celles provenant de la base 4. Toutefois, dans certains cas mentionnés ci-dessous, les expériences de la base 2 seront utilisées.

### 3.3.1 Identification des résonances

#### Identification de l'élément :

La première résonance de l'oxygène étant à 440 keV, si l'échantillon est pur, seules les résonances de  $^{237}\text{Np}$  doivent apparaître dans le spectre de transmission de l'échantillon.

La plupart des impuretés sont en quantité négligeable. Ce n'est pas le cas de  $^{232}\text{Th}$ , dont les grandes résonances apparaissent nettement et se mélangent à celles du neptunium dans l'échantillon NS97048.

Les grandes résonances du thorium sont heureusement connues jusqu'à plusieurs keV [85] et seule leur énergie est ajustée pour reproduire nos données.

#### Domaine d'analyse :

Dans le cadre de ce travail, les résonances ont été analysées jusqu'à 500 eV. Le nombre de résonances identifiées est de 565.

#### Identification des multiplets :

L'identification des niveaux est en premier lieu visuelle. Toutefois, dès quelques électron-Volts dans le cas de  $^{237}\text{Np}$ , les résonances peuvent se superposer les unes aux autres, créant ainsi des doublets voire des mélanges de plus de deux résonances.

Les expériences de transmission à basse température menées sur la base de vol 2 offrent une bien meilleure séparation des résonances en dessous de 100 eV et sont donc utilisées pour extraire les paramètres des résonances indiscernables à température ambiante, malgré la part plus importante des erreurs systématiques inhérentes à cette base et à l'utilisation du modèle du gaz libre pour décrire l'élargissement Doppler aux basses températures.

Néanmoins, même à basse température et énergie, des mélanges de résonances ne peuvent être identifiés visuellement, comme celui à 17,9 eV représenté figure 84.

Une discrimination par la valeur ajustée de la largeur radiative est opérée à ce niveau : celle-ci étant attendue autour de 40 meV, une valeur de  $\Gamma_\gamma$  de l'ordre de 80 meV est considérée comme la preuve de l'existence d'un doublet, une valeur encore supérieure étant l'indice d'un mélange d'au moins trois résonances. Dans le cas d'un mélange entre une petite et grande résonance, la valeur de la largeur radiative est alors comprise entre 40 et 80 meV. Le choix est alors purement subjectif et peut être de plus faussé par une mauvaise détermination de la résolution expérimentale.

Notre critère de sélection a été de considérer ainsi toute résonance dont la largeur radiative est supérieure à 60 meV (et dont l'incertitude la situe à plus de deux écarts-types de 40 meV) en tenant compte des valeurs obtenues sur différentes expériences. Cette méthode est applicable pour des résonances isolées et pour lesquelles la largeur à mi-hauteur de l'élargissement Doppler ou de la résolution expérimentale n'est pas trop grande devant celle de la résonance. Au delà de 100 eV, cela semble délicat.

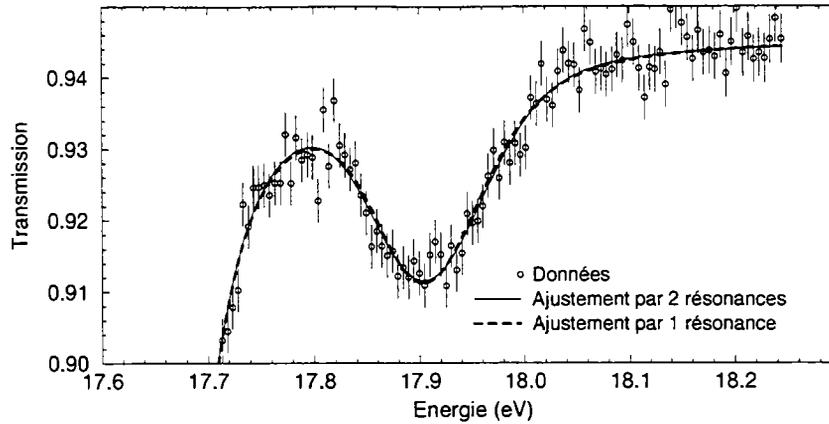


Fig.84 : Transmission autour de 17,9 eV à une température de 20 K (expérience Juin99). Cette structure a été identifiée comme mélange de deux résonances grâce à la sélection sur la largeur radiative, ce que l'identification visuelle ne permet pas. La ligne continue est l'ajustement par REFIT.

En ne considérant qu'une seule résonance à 17,9 eV, la valeur obtenue pour  $\Gamma_\gamma$  sur l'expérience Février98 est de  $92 \pm 22$  meV, tendant à prouver l'existence d'un doublet déjà mentionné par Auchampaugh et al. [61].

#### Identification des petites résonances :

Une autre difficulté réside dans la détermination des petites résonances. Certaines résonances sont en effet difficilement discernables des fluctuations statistiques. Pour les petites résonances isolées, l'expérience Janvier98, avec une épaisseur de neptunium de  $3 \text{ g/cm}^2$  et une statistique importante en dessous de quelques centaines de eV, fait office d'arbitre. Menée à 290 K avec une épaisseur importante, elle n'est toutefois pas idéale pour les petites résonances se trouvant dans le flanc de plus grandes résonances et ce sont les expériences entreprises à basses température qui sont alors préférées, du fait de leur meilleure résolution expérimentale.

### **3.3.2 Paramètres ajustés**

#### Energie et largeur neutronique :

Les paramètres ajustés pour chaque résonance sont l'énergie  $E$  et la largeur neutronique  $\Gamma_n$ .

La distance de vol et l'origine des temps de vol des expériences menées sur la base 2 ont été ajustés sur les énergies de résonances étalons du neptunium obtenues par l'analyse de la transmission mesurée sur la base 4. En dessous de 200 eV, dès que le recouvrement entre résonances voisines devient important, l'énergie de celles-ci est déterminée par les expériences Février97, Juin97 ou Juin99, toutes trois menées à

basse température, puis fixée dans les expériences Octobre97, Fevrier98 et Juin98 où la valeur de la largeur neutronique est extraite.

#### Largeur radiative :

En dessous de 15 eV, la largeur radiative  $\Gamma_\gamma$  est ajustée à chaque fois que possible.

Lorsque l'incertitude de la largeur radiative donnée par REFIT est trop importante, comme dans le cas de petites résonances ou de mélanges de résonances, la valeur moyenne de la largeur radiative  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$  est attribuée. La largeur radiative moyenne est également appliquée, sans distinction à toutes les résonances au delà de 15 eV.

#### Largeur de fission :

La largeur de fission  $\Gamma_f$  de  $^{237}\text{Np}$  ne peut être ajustée dans une expérience de transmission. Il convient donc d'utiliser les valeurs déterminées dans les expériences précédentes telles que celles de Plattard et al. [60], d'Auchampaugh et al. [61] ou Borzakov et al. [62].

Si le programme d'analyse REFIT peut utiliser les largeurs de fission comme paramètre d'entrée fixe, la version utilisée dans le cadre de ce travail a montré des disfonctionnements à ce niveau et la largeur de fission a dû être considérée comme nulle.

Cette considération n'est pas a priori très gênante, du fait de la faible valeur moyenne de  $\Gamma_f$ . En effet, l'ajustement par REFIT de la transmission permet d'obtenir les valeurs de  $\Gamma$  et  $g\Gamma_n$ , avec  $\Gamma = \Gamma_\gamma + \Gamma_n + \Gamma_f$ . REFIT calcule la largeur radiative en faisant simplement la différence  $\Gamma_\gamma = \Gamma - \Gamma_n$ .

Dans notre cas, ce n'est donc pas la largeur radiative que donne REFIT mais la somme  $\Gamma_\gamma + \Gamma_f$ . Il suffit donc, en faisant abstraction de toute corrélation possible entre largeur neutronique et largeur de fission, de soustraire la valeur  $\Gamma_f$  à  $\Gamma_\gamma$  pour tenir compte des largeurs de fission de  $^{237}\text{Np}$ .

Dans la grande majorité des cas,  $\Gamma_\gamma$  a été fixée en prenant comme valeur  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$ . A l'exception de quelques résonances (niveaux de classe II pour la fission),  $\Gamma_\gamma \gg \Gamma_f$  et cette approche semble donc raisonnable. Toutefois dans le cas de résonances ayant des largeurs de fission importantes (de l'ordre du meV), il convient de l'additionner à la valeur imposée à la largeur radiative.

La meilleure solution reste cependant de pouvoir utiliser la largeur de fission en tant que paramètre fixe dans l'ajustement par REFIT.

#### Moment orbital des résonances :

Dans l'analyse, toutes les résonances sont considérées initialement comme correspondant à des neutrons de moment orbital  $l = 0$ .

En effet, à partir des équations (II.48) et (II.71), on peut montrer que :

$$\frac{\langle \Gamma_n \rangle_{l=1}}{\langle \Gamma_n \rangle_{l=0}} = \frac{3P_1(E) \cdot D_1 \cdot S_1}{P_0(E) \cdot D_0 \cdot S_0} \quad (\text{V.34})$$

avec

$\langle \Gamma_n \rangle_l$ , largeur neutronique moyenne pour des neutrons de moment orbital  $l$ .  
 $D_l$  et  $S_l$ , espacement moyen et fonction densité pour des neutrons de moment orbital  $l$ .

$P_l(E)$ , facteur de pénétrabilité pour des neutrons de moment orbital  $l$  valant [144] :

$$P_0(E) = kR \quad (\text{V.35})$$

$$P_1(E) = \frac{k^3 R^3}{1 + k^2 R^2} \quad (\text{V.36})$$

En considérant la dépendance en spin de la densité de niveau proportionnelle à  $(2J + 1)$ , on peut montrer que dans le cas du neptunium avec  $I = \frac{5}{2}$  ( $l = 0 : J = 2$  ou  $3$ ,  $l = 1 : J = 1, 2, 3$  ou  $4$ ) on obtient :

$$D_1 = \frac{D_0}{2} \quad (\text{V.37})$$

De plus, d'après les références [85] ou [58] :

$$S_1 \simeq 2S_0 \quad (\text{V.38})$$

L'équation (V.34) devient alors, avec le nombre d'onde du neutron incident valant  $k = \frac{\sqrt{E}}{455,2 \cdot 10^{-12}} \text{ cm}^{-1}$  :

$$\frac{\langle \Gamma_n \rangle_{l=1}}{\langle \Gamma_n \rangle_{l=0}} = \frac{3k^2 R^2}{1 + k^2 R^2} \simeq 1,5 \cdot 10^{-6} \cdot E \quad (\text{pour } E < 1 \text{ keV}) \quad (\text{V.39})$$

soit

$$\langle \Gamma_n \rangle_{l=1} \sim 10^{-5} \cdot \langle \Gamma_n \rangle_{l=0} \quad \text{pour } E \sim 10 \text{ eV}$$

$$\langle \Gamma_n \rangle_{l=1} \sim 10^{-4} \cdot \langle \Gamma_n \rangle_{l=0} \quad \text{pour } E \sim 100 \text{ eV}$$

$$\langle \Gamma_n \rangle_{l=1} \sim 10^{-3} \cdot \langle \Gamma_n \rangle_{l=0} \quad \text{pour } E \sim 1000 \text{ eV}$$

D'après la loi de Porter et Thomas, donnée par l'équation (II.60), la probabilité d'avoir une valeur de  $\Gamma_n > 10 \langle \Gamma_n \rangle$  n'est que de  $10^{-4}$ . Par conséquent, les ondes p sont attendues inférieures d'au moins deux à trois ordres de grandeurs par rapport aux ondes "s" et si la différence s'atténue avec l'énergie, la dégradation de la résolution rend leur détection plus difficile. Il semble donc peu probable d'observer des résonances d'onde "p" ( $l = 1$ ) dans notre plage d'énergie.

Pour vérifier cette assertion, le programme ESTIMA [145] a été utilisé. Celui-ci compare, en fonction de l'énergie, l'écart entre la largeur neutronique de chaque résonance et la largeur neutronique moyenne d'onde "s" et attribue ainsi une probabilité au moment orbital associé à ces résonances de valoir  $l = 1$ .

Aucune des résonances identifiées dans ce travail n'a pu être certifiée comme étant d'onde "p" et il est donc tout à fait raisonnable de considérer le moment orbital comme nul dans notre analyse.

#### Spin des résonances :

La valeur du spin des résonances ne peut être déterminée par une expérience de transmission dans le cas de  $^{237}\text{Np}$ . Il faut pour cela étudier, par exemple, les spectres de rayons gamma de désexcitation par des méthodes telles que celles présentées dans la référence [103].

Le spin d'une majeure partie des résonances de  $^{237}\text{Np}$  en dessous de 100 eV a été déterminé par Keyworth et al. [146] et a été assigné à nos mesures. Auchampaugh a également déterminé le spin des résonances [61], en gardant les résultats de Keyworth pour les résonances communes. Nous avons donc également utilisé ses valeurs.

### ***3.3.3 Détermination de l'incertitude sur les paramètres de résonance***

A la barre d'erreur statistique donnée par REFIT sur chaque paramètre ajusté doivent être ajoutées d'autres sources d'incertitudes.

#### Incertitude sur la largeur de fission :

Cette incertitude est simplement ajoutée quadratiquement à l'incertitude sur la largeur radiative, en négligeant toute corrélation.

#### Incertitude sur la largeur radiative moyenne :

La largeur radiative de la majorité des résonances, surtout au delà de quelques dizaines de eV, a été fixée à 40 meV, valeur de la largeur radiative moyenne.

Or celle-ci, comme nous le verrons dans la partie 4.2, vaut :  $\langle \Gamma_\gamma \rangle = 40 \pm 2$  meV.

Afin de tenir compte de cette incertitude, l'analyse des résonances est à nouveau effectuée en fixant la largeur radiative des résonances à  $\langle \Gamma_\gamma \rangle = 42$  et  $\langle \Gamma_\gamma \rangle = 38$  meV.

La moitié de l'écart, entre ces deux nouveaux ajustements, sur l'énergie et la largeur neutronique de chacune des résonances est alors considéré comme l'incertitude propagée sur ces paramètres et est noté  $\Delta E_\gamma$  et  $\Delta \Gamma_{n\gamma}$ .

#### Incertitude sur la résolution :

La nouvelle paramétrisation de la résolution expérimentale (avec une longue queue décroissante) a été utilisée. Toutefois, comme nous l'avons spécifié précédemment, la paramétrisation exacte reste à déterminer. Pour estimer l'erreur commise à ce niveau, les paramètres de résonance sont également extraits avec l'ancienne résolution et la différence observée est considérée comme l'incertitude engendrée par la résolution notée  $\Delta E_q$ ,  $\Delta \Gamma_{nq}$  et  $\Delta \Gamma_{\gamma q}$ .

Comme nous l'avons vu précédemment, l'influence de la résolution est très faible en dessous de 15 eV et il paraît assez probable que nous sous-estimons l'erreur dans cet intervalle d'énergie. Pour tenir compte d'une éventuelle mauvaise description de la résolution (queue décroissante très longue ou présence d'un bruit de fond

légèrement structuré), nous allons déterminer les paramètres de résonance en dessous de 20 eV à partir de la transmission obtenue avec le bruit de fond structuré fictif de la figure 79. L'écart sur les paramètres de résonance remplace alors, en dessous de 20 eV,  $\Delta E_q$ ,  $\Delta\Gamma_{nq}$  et  $\Delta\Gamma_{\gamma q}$ .

Incertitude provenant du niveau du bruit de fond :

Comme spécifié dans le chapitre IV, le bruit de fond a été déterminé à l'aide de la méthode des résonances noires (laissées en permanence dans le faisceau de neutrons). En observant la qualité de l'ajustement du bruit de fond au niveau des résonances noires, il est possible d'attribuer qualitativement une incertitude  $\Delta B$  (5 %, dans la plupart des cas) sur la valeur du bruit de fond.

Cette erreur est supposée constante entre deux résonances noires et non corrélée pour les deux spectres de temps de vol (avec et sans échantillon dans le faisceau de neutrons). L'incertitude sur le niveau réel du 0 de la transmission est alors considérée comme :

$$\Delta T^0 = \frac{\sqrt{2} \cdot \Delta B}{N - B} \quad (\text{V.40})$$

avec

$N$ , nombre de coups, dans le spectre de temps de vol, de part et d'autre de la résonance noire (valeur estimée du nombre de coups qu'il y aurait à cette énergie en l'absence de la résonance)

$B$ , nombre de coups au bas de la résonance noire, soit le nombre de coups de bruit de fond.

$\Delta B$ , incertitude estimée dans la détermination de  $B$  (dépend à la fois des points de bruit de fond et de l'ajustement effectué pour soustraire le bruit de fond lors de la réduction des données).

$\Delta T^0$ , incertitude sur le niveau réel du bas de la transmission, c'est à dire sur la valeur du 0 de la transmission.

Pour l'expérience Février98, par exemple, la valeur de  $\Delta T^0$  a été prise égale à 0,0015 entre 0 et 120 eV.

Dans REFIT, il est possible de modifier le paramètre  $T^0$  (mis à 0 en temps normal) pour tenir compte d'effets relatifs au bruit de fond. Deux nouveaux ajustement sont alors entrepris avec  $T^0 = \Delta T^0$  et  $T^0 = -\Delta T^0$ , tout en laissant libre la constante de normalisation afin de tenir compte de la dépendance du rayon dans ces manipulations.

La moitié de la différence obtenue sur les paramètres est alors considérée comme l'incertitude issue de la détermination du bruit de fond et est notée pour chacun des trois paramètres de résonances :  $\Delta E_B$ ,  $\Delta\Gamma_{nB}$  et  $\Delta\Gamma_{\gamma B}$ .

Si cette source d'incertitude est négligeable pour les petites résonances, très peu sensibles au bruit de fond, elle représente par contre la contribution la plus importante pour les résonances dont la transmission au pic est proche de 0.

Incertitude provenant du rayon de diffusion :

Pour tenir compte de l'incertitude sur la valeur du rayon, la valeur minimale et maximale de celui-ci sont imposées au programme d'analyse. L'incertitude considérée sur le rayon à ce niveau est uniquement celle issue de l'ajustement par REFIT :  $9,99 \pm 0,26$  fm.

La différence obtenue sur les paramètres est directement considérée comme étant l'incertitude venant du choix de la valeur du rayon de diffusion. Les incertitudes résultant sur chacun des paramètres sont notées  $\Delta E_R$ ,  $\Delta \Gamma_{nR}$  et  $\Delta \Gamma_{\gamma R}$ .

Incertitude sur la distance de vol :

La longueur de la base de vol de la base 4 a été déterminée lors des expériences sur  $^{99}\text{Tc}$  en 1995-1996 [147] en mesurant à cette occasion la transmission d'un filtre de  $^{238}\text{U}$ , dont l'énergie des premières résonances fait office de référence. La précision avec laquelle l'énergie de ces résonances est connue est très bonne et l'incertitude sur la distance de vol  $L = 49,3322$  m de la base 4 vaut ainsi  $\Delta L = 8$  mm.

De l'équation (III.2), il vient directement :

$$\Delta E = \frac{2E}{L} \cdot \Delta L \quad (\text{V.41})$$

$$\text{soit } \frac{\Delta E}{E} \simeq 0,032 \% \quad (\text{V.42})$$

avec  $\Delta E$ , incertitude sur l'énergie  $E$  provenant de l'incertitude sur la distance de vol.

L'impact de cette incertitude sur les autres paramètres de résonance peut être estimé en variant la distance de vol de  $\Delta L$  dans REFIT. La différence observée sur chaque paramètre de résonance est alors considérée comme l'incertitude provenant de la distance de vol. Cette incertitude, faible devant les autres contributions, n'a pas été considérée pour les largeurs partielles dans le cadre de ce travail.

Incertitude sur l'énergie :

Dans le cas où les résonances se superposent les unes aux autres, leur énergie est déterminée par l'expérience offrant la meilleure résolution. En dessous de 100 à 200 eV, l'énergie de telles résonances est fixée à la valeur déterminée par les expériences menées à basse température sur la base de vol 2. Une incertitude sur cette énergie est également attribuée par la comparaison entre les différentes expériences à basses températures et l'incertitude résultant de l'ajustement par REFIT.

Sur les expériences Octobre97, Février98 et Juin98 dont sont issus les résultats présentés dans ce travail, les valeurs minimale et maximale de ces énergies sont fixées

afin d'obtenir une estimation de l'incertitude réelle sur les autres paramètres, notée  $\Delta E_E$ ,  $\Delta \Gamma_{nE}$  et  $\Delta \Gamma_{\gamma E}$ .

Incertitude totale et erreurs systématiques :

L'incertitude totale (avec l'indice  $T$ ) sur chacun des paramètres de résonance  $X$  est alors considérée comme étant la somme quadratique de chacune des incertitudes précédentes (celles-ci étant supposées indépendantes), soit :

$$\Delta X_T^2 = \Delta X_\gamma^2 + \Delta X_B^2 + \Delta X_q^2 + \Delta X_R^2 + \Delta X_E^2 \quad (\text{V.43})$$

Il faut aussi tenir compte d'une éventuelle erreur systématique de 3 % sur l'épaisseur de  $^{237}\text{Np}$  et du fait que bon nombre des incertitudes présentées ci-dessus sont estimées plutôt que déterminées.

### 3.3.4 Matrice de covariance

D'après les considérations précédentes, il paraît évident que les paramètres de résonances sont corrélés entre eux. Ceci est vrai pour les paramètres d'une même résonance mais cette corrélation existe également entre le rayon du noyau et entre les paramètres de résonances différentes. Cette dernière corrélation est nettement plus importante lorsque l'énergie des résonances est proche et lorsqu'elles ont le même spin.

En fixant un des paramètres dans l'ajustement, cette corrélation est supprimée et c'est pourquoi, dans l'estimation de l'incertitude totale, on a cherché à la restaurer en effectuant plusieurs ajustements avec diverses valeurs pour la largeur radiative ou l'énergie.

Toutefois, dans l'utilisation ultérieure des paramètres de résonance dans des fichiers d'évaluation ou de codes de calculs de sections efficaces, comment tenir compte de variations apportées à tel ou tel paramètre sans avoir à réanalyser l'ensemble des expériences ?

Il importe donc dans ce type de travail de ne pas fournir seulement la valeur du paramètre et de son incertitude mais au moins également les éléments non-diagonaux principaux de la matrice de covariance entre les différents paramètres.

REFIT ne permet cependant pas d'importer les matrices de covariances calculées par les programmes AGS utilisés lors de la réduction des données.

De plus, les matrices de covariance entre les paramètres calculées par REFIT sont sous forme de plusieurs dizaines de lignes et colonnes difficiles à présenter.

Enfin, plusieurs paramètres étant fixés lors de l'analyse, cette matrice de covariance est incomplète.

Aussi, dans ce travail, nous contenterons-nous de la liste des paramètres de résonance avec uniquement leur incertitude statistique et totale respective.

### 3.3.5 Liste des paramètres de résonance

Les différents paramètres de résonance entre 0 et 500 eV sont donnés avec leurs incertitudes dans l'annexe F.

## 3.4 Distribution et valeur moyenne des paramètres

Nous avons déjà mentionné qu'un des principaux intérêts de la description des sections efficaces à l'aide de paramètres de résonance est de pouvoir déterminer des valeurs statistiques telles que les espacements moyens, les largeurs partielles moyennes et les fonctions densité. Ces valeurs vont en effet permettre de déterminer la valeur moyenne des sections efficaces et de simuler les fluctuations de ces sections efficaces dans le domaine des résonances non résolues.

### 3.4.1 Espacement moyen

Le nombre cumulé  $N$  de résonances en fonction de l'énergie (nombre de résonances d'énergie inférieure à l'énergie considérée) est représenté sur la figure 85.

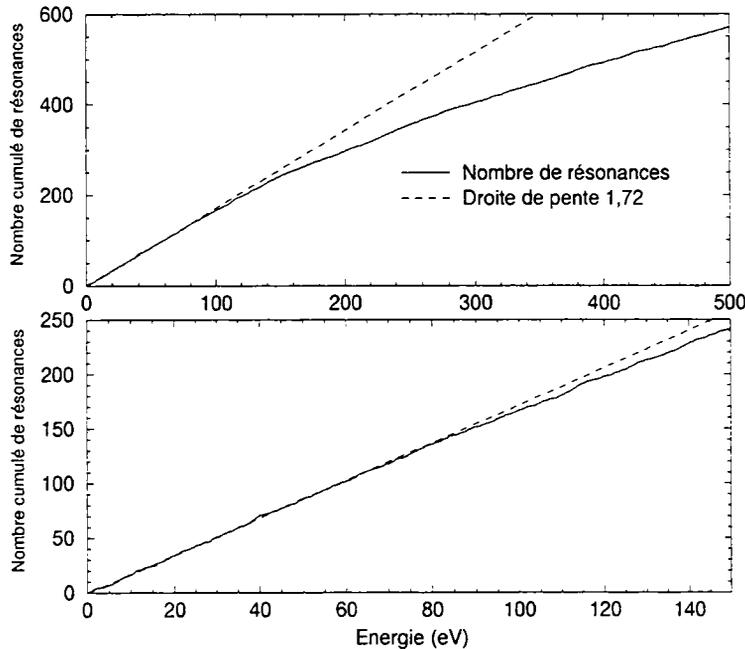


Fig.85 : Nombre cumulé des résonances identifiées en fonction de l'énergie et comparaison avec la droite ajustée sur les valeurs en dessous de 65 eV.

Si tous les niveaux sont identifiés alors, selon l'équation (II.51), l'inverse de la pente de cet histogramme donne l'espacement moyen de niveau  $\langle D_{1+2} \rangle$ , relatif au mélange des résonances de spin  $J = 2$  et  $J = 3$  de  $^{237}\text{Np}$ .

Entre 0 et 65 eV et pratiquement jusqu'à 90 eV,  $N$  varie linéairement avec l'énergie mais, au delà, la pente de l'histogramme diminue progressivement (l'espacement augmente). Il y a donc une perte sensible de niveaux pour des énergies supérieures à 90 eV, imputable à la détérioration de la résolution, amenant les résonances à se recouvrir de manière plus importante.

La densité de niveaux  $\langle D_{1+2} \rangle$  est donc déterminée par la pente de l'histogramme en dessous de 65 eV où 111 résonances ont été identifiées. L'incertitude sur la valeur de  $\langle D_{1+2} \rangle$  étant déterminée par l'équation (II.57), on obtient :

$$\langle D_{1+2} \rangle = 0,58 \pm 0,03 \text{ eV} \quad (\text{V.44})$$

Afin de tenir compte de résonances non identifiées, le programme ESTIMA [145] a été utilisé entre 0 et 90 eV, où 151 résonances ont été observées expérimentalement. A partir de la loi de distribution de Porter et Thomas sur la largeur neutronique réduite, ce programme estime le nombre de résonances attendu dans un intervalle d'énergie donné. Il se base pour cela sur la distribution des largeurs neutroniques réduites dont la valeur est supérieure à un seuil défini par l'utilisateur (voir page 236 pour plus de détails). En dessous de 90 eV, le nombre de résonances  $N_e$  estimé est :

$$N_e = 155 \pm 2 \quad (\text{V.45})$$

Cette valeur est très proche du nombre de résonances identifié expérimentalement, confirmant que pratiquement toutes les résonances d'onde "s" ont été vues en dessous de 90 eV. L'espacement moyen déduit de cette valeur correspond à celui déterminé précédemment :

$$\langle D_{1+2} \rangle_e = 0,58 \pm 0,03 \text{ eV} \quad (\text{V.46})$$

Notons, à ce niveau, qu'Auchampaugh et al. ont identifié 159 résonances dans cette gamme d'énergie. Nous ne pouvons confirmer l'existence de ces 8 résonances supplémentaires, mais cela ne signifie pas que nous rejetons l'éventualité de leur existence pour autant. Certaines de ces résonances ont cependant des chances d'être d'onde "p": en utilisant ESTIMA, nous avons vérifié qu'au moins 3 à 4 d'entre elles ont de grandes chances d'être d'onde "p" (3,05 eV, de manière pratiquement certaine, 57,40 eV, 72,30 eV et 75,65 eV ). De ce fait, à partir des valeurs d'Auchampaugh et al., ESTIMA donne un nombre de résonances d'onde "s" d'énergie inférieure à

90 eV égal à 156 : le nombre estimé à 155 à partir de nos données, nous semble donc raisonnable. Notons toutefois qu'en utilisant ESTIMA nous obtenons une valeur tenant principalement compte de la présence de petits niveaux, mais nous ne pouvons prétendre avoir identifié correctement tous les multiplets. Par conséquent, un nombre de niveaux encore supérieur est assez probable.

En dessous de 90 eV, le spin a été attribué expérimentalement ou assigné pour la plupart des résonances par les références [146], [61] ou [58] : pour les résonances identifiées dans ce travail cela revient à 69 résonances de spin 2 et 82 de spin 3.

Toutefois, il existe un désaccord sur l'assignement du spin de la première résonance. De plus, le spin des nouvelles résonances (identifiées pour la première fois dans ce travail ou attendues par ESTIMA) est inconnu.

De ce fait  $71 \pm 3$  résonances seront considérées de spin  $J = 2$  et  $85 \pm 3$  de spin  $J = 3$ . Les valeurs des espacements moyens associé à chaque spin sont alors :

$$\langle D^{J=2} \rangle = 1,29 \pm 0,10 \text{ eV} \quad (\text{V.47})$$

$$\langle D^{J=3} \rangle = 1,07 \pm 0,07 \text{ eV} \quad (\text{V.48})$$

avec  $\langle D^J \rangle$ , espacement moyen pour les résonances de spin  $J$ .

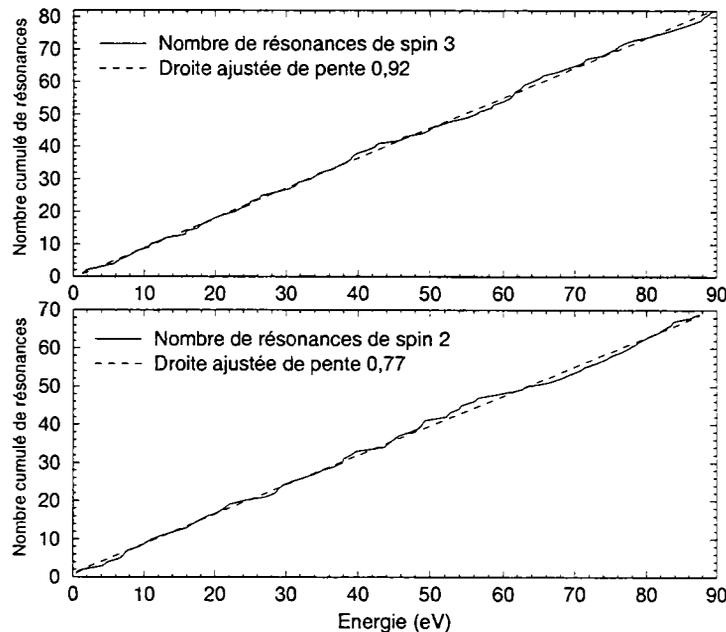


Fig.86 : Nombre cumulé de résonances pour chaque spin et ajustement par une droite dont la pente correspond à la densité de niveaux.

La valeur de la densité de niveaux  $\rho$  relative au mélange des états de spin et celle des densités  $\rho^{J=2}$  et  $\rho^{J=3}$  pour un spin donné valent donc respectivement, d'après l'équation (II.52) :

$$\rho = \frac{1}{\langle D_{1+2} \rangle} = 1,72 \pm 0,09 \text{ eV}^{-1} \quad (\text{V.49})$$

$$\rho^{J=2} = \frac{1}{\langle D^{J=2} \rangle} = 0,78 \pm 0,06 \text{ eV}^{-1} \quad (\text{V.50})$$

$$\rho^{J=3} = \frac{1}{\langle D^{J=3} \rangle} = 0,93 \pm 0,06 \text{ eV}^{-1} \quad (\text{V.51})$$

Soit :

$$\frac{\rho^{J=2}}{\rho^{J=3}} = 0,84 \pm 0,08 \quad (\text{V.52})$$

La valeur de ce rapport est en parfait accord avec 0,83, celle attendue selon l'équation (II.53) avec  $\sigma = 4, 5$ .

Le nombre cumulé de résonances pour chaque spin, représenté sur la figure 86, est apparemment linéaire entre 0 et 90 eV. On peut vérifier que les valeurs des densités de niveaux extraites de l'ajustement des histogrammes précédents par une droite ( $\rho^{J=2} = 0,77$  et  $\rho^{J=3} = 0,92$ ) sont en accord avec les valeurs déterminées ci-dessus.

### 3.4.2 *Distribution des espacements*

La distribution expérimentale des espacements pour l'ensemble des résonances et pour chacune des deux familles est comparée à la loi de Wigner correspondante sur la figure 87.

Entre 0 et 90 eV, la distribution des espacements pour le mélange de spin est en bon accord avec la courbe théorique définie par l'équation (II.59) avec  $k = \frac{\langle D^{J=3} \rangle}{\langle D^{J=2} \rangle} = 0,83$ . Toutefois, le nombre d'espacements inférieurs à 0,1 eV est très faible comparé aux prévisions théoriques. Des niveaux très proches l'un de l'autre semblent donc ne pas avoir été correctement séparés et en ajoutant 4 espacements supplémentaires (le nombre de résonances supplémentaires donné par ESTIMA) inférieurs à 0,1 eV, l'accord s'améliore. Entre 90 et 500 eV, un manque très net de petits espacements est visible et se traduit par une augmentation artificielle des grands espacements.

Dans les espacements associés à une seule famille de résonances, il semble qu'il y ait un nombre anormal d'espacements de l'ordre de 3 eV pour  $J = 2$ .

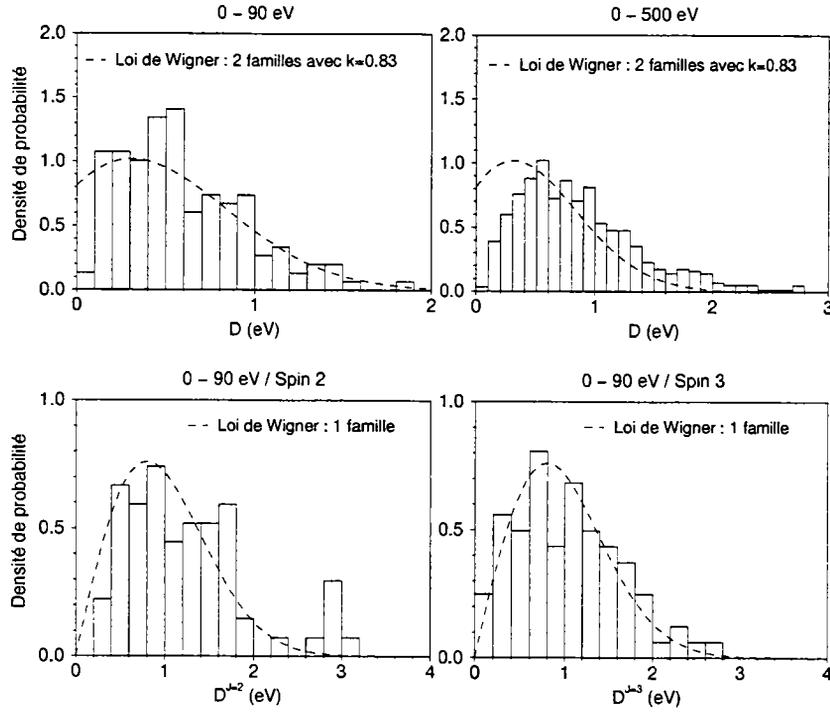


Fig.87 : Comparaison entre la distribution expérimentale des espacements et la loi de Wigner. Pour les deux figures supérieures, la distribution considérée est celle correspondant à un mélange de deux familles de résonances avec  $k = 0,83$ . Dans le cas de la distribution de l'espacement associé à chaque spin, la loi de Wigner simple est utilisée.

### 3.4.3 Distribution des largeurs neutroniques réduites

La largeur neutronique réduite est distribuée selon la loi de Porter et Thomas, définie par l'équation (II.60) :

$$p(x) \cdot dx = \frac{1}{\sqrt{2\pi x}} \cdot e^{-\frac{x}{2}} \cdot dx$$

avec

$$x = \frac{\Gamma_n^0}{\langle \Gamma_n^0 \rangle} \quad (l = 0 \text{ pour toutes les résonances})$$

$\langle \Gamma_n^0 \rangle$ , valeur moyenne des largeurs neutroniques réduites.

On utilise fréquemment la distribution intégrale de la loi de Porter et Thomas donnant le nombre de résonances  $N(x)$  dont la largeur neutronique réduite est supérieure à  $x \cdot \langle \Gamma_n^0 \rangle$  :

$$N(x) = N(0) \cdot \int_x^{+\infty} p(X) \cdot dX = N(0) \left( 1 - \operatorname{erf} \left( \sqrt{\frac{x}{2}} \right) \right) \quad (\text{V.53})$$

avec  $N(0)$ , nombre total de résonances.

Afin de s'affranchir du spin des résonances, on étudie la distribution de la largeur neutronique réduite multipliée par le facteur statistique de spin  $g$  :

$$x = \frac{g\Gamma_n^0}{\langle g\Gamma_n^0 \rangle} \quad (\text{V.54})$$

$$\text{avec } \langle g\Gamma_n^0 \rangle = 0,0621 \text{ meV (entre 0 et 90 eV)} \quad (\text{V.55})$$

En utilisant le programme ESTIMA pour estimer la valeur de  $N(0)$  en ne considérant que les résonances pour lesquelles  $x > 0,09$ , le nombre de résonances obtenu est  $N_e(0) = 155$ , valeur utilisée précédemment pour déterminer l'espacement moyen. Dans ce cas, la valeur moyenne  $\langle g\Gamma_n^0 \rangle_e$  à considérer est, d'après les résultats obtenus par ESTIMA :

$$\langle g\Gamma_n^0 \rangle_e = 0,0604 \pm 0,0074 \text{ meV} \quad (\text{V.56})$$

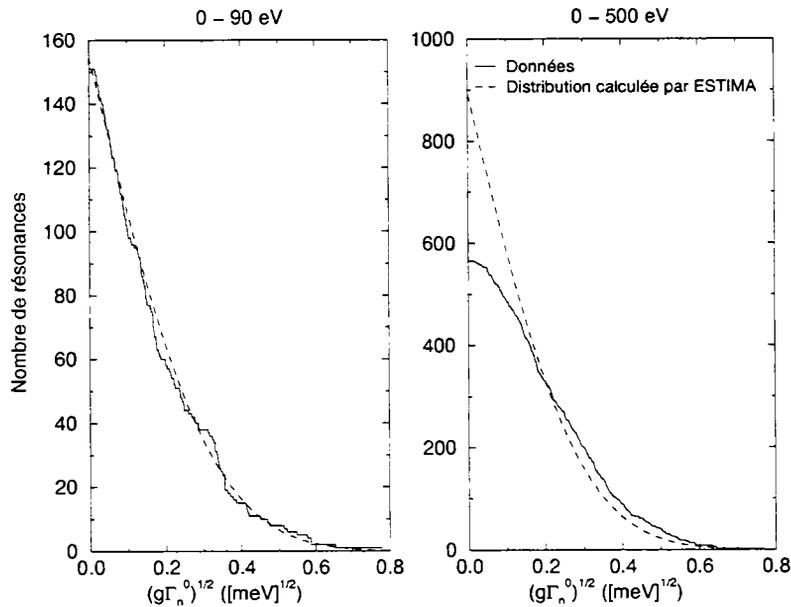


Fig.88 : Distribution intégrale des largeurs neutroniques réduites (en fonction de  $\sqrt{g\Gamma_n^0}$ ) et comparaison avec la loi de Porter et Thomas. Entre 0 et 90 eV, la loi de Porter et Thomas a été construite avec l'espacement moyen et la largeur neutronique moyenne déterminés soit directement à partir des données soit en utilisant ESTIMA.

Sur la figure 88, la distribution intégrale de la valeur  $g\Gamma_n^0$  pour les 151 résonances d'énergie inférieure à 90 eV est comparée à la distribution intégrale de la loi de Porter et Thomas calculée par ESTIMA avec les valeurs [ $N(0) = 155$  ;  $\langle g\Gamma_n^0 \rangle = 0,0604$ ] : l'accord est très satisfaisant.

La même distribution théorique est ensuite appliquée à l'ensemble des résonances identifiées jusqu'à 500 eV. Cette fois, un nombre important de petites résonances a été omis, se traduisant par l'augmentation artificielle du nombre de grandes largeurs neutroniques.

#### 3.4.4 Fonction densité d'onde-s

La fonction densité  $S_0$  pour les ondes "s", dans le cas d'un mélange de spin, se déduit de l'équation (II.71) :

$$S_0 = \frac{\langle g \cdot \Gamma_n^0 \rangle}{\langle D_{1+2} \rangle} = \frac{1}{\Delta E} \sum g \cdot \Gamma_n^0 \quad (\text{V.57})$$

avec

$\Delta E$ , intervalle d'énergie considéré.

$\sum$ , somme sur les résonances identifiées dans l'intervalle  $\Delta E$ .

$\langle D_{1+2} \rangle$ , espacement moyen.

$S_0$  est la pente de l'histogramme de la valeur cumulée de  $g\Gamma_n^0$ , pour le mélange de spin, en fonction de l'énergie.

La fonction densité n'est pas grandement affectée par les niveaux manquants, la méthode d'analyse utilisée conservant l'aire : si une seule résonance est identifiée alors que plusieurs sont mélangées, l'aire de cette résonance est pratiquement la somme des aires des résonances superposées. Au delà de 90 eV, où le nombre de niveaux manquants augmente, la transmission est toujours supérieure à 0,2, si bien que l'aire des résonances peut être considérée comme proportionnelle à  $g\Gamma_n$ , d'après la relation (V.2).

La fonction densité associée à chaque spin est définie comme :

$$S_0^J = \frac{\langle \Gamma_n^0 \rangle}{\langle D^J \rangle} = \frac{1}{\Delta E} \sum \Gamma_n^0 \quad (\text{V.58})$$

avec

$\Delta E$ , intervalle d'énergie considéré.

$\sum$ , somme sur les résonances de spin  $J$  identifiées dans l'intervalle  $\Delta E$ .

$\langle D^J \rangle$ , espacement moyen des résonances de spin  $J$ .

Entre 0 et 120 eV, où le spin des résonances est assez bien connu, l'histogramme de la fonction densité  $S_0$  sans distinction de spin est représenté sur la figure 89-A et sur les figures 89-C et D pour les fonctions densité  $S_0^J$  associées à chaque spin.

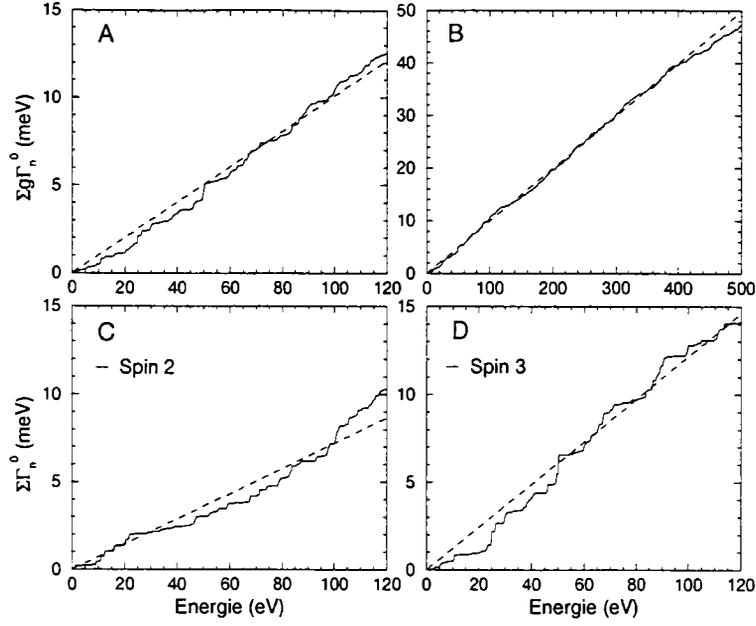


Fig.89 : Histogrammes, en fonction de l'énergie, de la valeur cumulée de : A :  $g\Gamma_n^0$  pour le mélange des spins entre 0 et 120 eV, B :  $g\Gamma_n^0$  pour le mélange des spins entre 0 et 500 eV, C :  $\Gamma_n^0$  pour les résonances de spin 2 entre 0 et 120 eV et D :  $\Gamma_n^0$  pour les résonances de spin 3 entre 0 et 120 eV. Est également représentée la droite ajustée sur les histogrammes (entre 0 et 400 eV pour B), dont la pente permet d'obtenir la fonction densité associée.

La mauvaise linéarité, notamment dans le cas  $J = 2$ , pourrait être due à une mauvaise attribution des spins de quelques résonances. L'incertitude sur la fonction densité est obtenue à partir de l'équation (II.72) et on obtient de la pente des droites ajustées entre 0 et 120 eV :

$$S_0 = (1,01 \pm 0,11) \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.59})$$

$$S_0^{J=2} = (0,72 \pm 0,05) \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.60})$$

$$S_0^{J=3} = (1,22 \pm 0,10) \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.61})$$

Les valeurs obtenues ci-dessus vérifient bien la relation :

$$S_0 = g_{J=2}S_0^{J=2} + g_{J=3}S_0^{J=3} \quad (\text{V.62})$$

Une hypothèse souvent émise est que la fonction densité est indépendante du spin [90]. On s'attend donc à retrouver la relation :

$$S_0 = S_0^{J=2} = S_0^{J=3} \quad (\text{V.63})$$

Ce n'est pas réellement notre cas. L'origine de ce désaccord peut venir d'une dépendance de la fonction densité selon la valeur du spin, mais plus vraisemblablement d'une erreur d'attribution de spin ou d'échantillonnage.

Un exemple d'erreur d'échantillonnage serait l'obtention d'une valeur nettement plus faible de la fonction densité en ne considérant que les énergies inférieures à 50 eV.

La valeur la plus précise, que nous préconisons pour la fonction densité, est celle déterminée par la pente de la droite ajustée sur l'histogramme cumulé de  $g\Gamma_n^0$  entre 0 et 400 eV (figure 89-B) :

$$S_0 = (1,00 \pm 0,07) \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.64})$$

Cette valeur est tout à fait compatible avec celle obtenue entre 0 et 120 eV.

Une rupture de pente apparaît entre 400 et 500 eV. Avant toute conclusion à ce niveau, il convient de vérifier les valeurs des paramètres de résonances dans cette plage d'énergie, notamment par comparaison entre les différentes expériences à notre disposition, ce qui n'a pu être effectué dans le temps imparti à ce travail.

La fonction densité peut également être obtenue directement à partir de l'équation  $S_0 = \frac{\langle g \cdot \Gamma_n^0 \rangle}{\langle D \rangle}$ . Dans ce cas, en prenant les valeurs de  $\langle D_{1+2} \rangle$  et  $\langle g \cdot \Gamma_n^0 \rangle$  déterminées à l'aide ESTIMA, on obtient :

$$S_0 = (1,03 \pm 0,13) \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.65})$$

Cette valeur est bien en accord avec celles déterminées précédemment.

### 3.4.5 *Largeur radiative moyenne*

La largeur radiative doit suivre une loi du  $\chi^2$  à grand nombre de degrés de liberté. Seules de faibles fluctuations sont donc attendues autour de la valeur moyenne. La largeur totale de plusieurs résonances entre 0 et 120 eV a pu être ajustée par REFIT, donnant accès à la somme  $\Gamma_\gamma + \Gamma_f$ . La valeur  $\Gamma_f$  déterminée par d'autres laboratoires doit ensuite être soustraite pour obtenir  $\Gamma_\gamma$ . La valeur de la largeur totale est surtout déterminée par  $\Gamma_\gamma$ , car dans la majorité des cas,  $\Gamma_\gamma \gg \Gamma_n \gg \Gamma_f$  pour  $^{237}\text{Np}$ .

REFIT procédant par analyse de forme, la valeur de la largeur totale va dépendre également de la fonction de résolution expérimentale et de l'élargissement Doppler. Toute erreur à ce niveau a une répercussion sensible sur  $\Gamma$  et donc sur  $\Gamma_\gamma$  et une attention particulière doit donc être apportée à la détermination de la résolution expérimentale et de l'élargissement Doppler.

La description de l'élargissement Doppler dans REFIT est le modèle du gaz libre avec une température effective. D'après les conditions d'application définie par Lamb pour ce modèle, celui-ci ne peut être correctement utilisé à basse énergie pour  $^{237}\text{Np}$ .

Les valeurs de  $\Gamma_\gamma$  en dessous de 10 à 20 eV sont donc vraisemblablement faussées par l'utilisation d'une mauvaise description de l'élargissement Doppler. Une étude approfondie de ce point sera développée dans la partie 4.

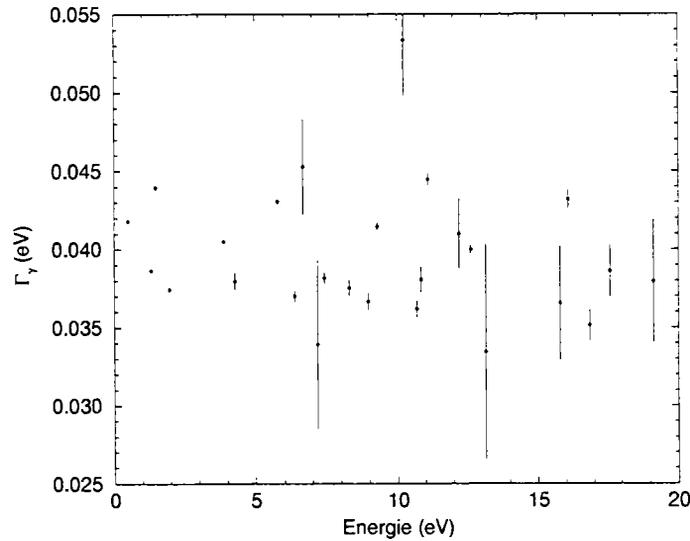


Fig.90 : Valeur des largeurs radiatives ajustées par REFIT pour les résonances d'énergie inférieure à 20 eV. L'incertitude représentée est l'incertitude statistique issue de l'ajustement par REFIT.

La fonction de résolution a été étudiée précédemment, montrant une forte influence sur la largeur radiative dès une vingtaine d'électrons-Volts selon deux types de paramétrisation utilisée. La largeur radiative, en fonction de l'énergie et selon la résolution choisie, est représentée sur la figure 82 :  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$  est déterminée avec la plus grande précision en dessous de 15 eV où, en outre, elle dépend peu de la modélisation choisie pour la résolution expérimentale. Aussi, la détermination de  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$  a-t-elle tout intérêt à être entreprise en dessous de 15 eV, les largeurs radiatives dans cet intervalle d'énergie étant représentées sur la figure 90.

La valeur moyenne  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$  est obtenue par moyenne pondérée :

$$\langle \Gamma_\gamma \rangle = 39 \pm 2 \text{ meV}$$

Dans cet intervalle d'énergie, le modèle du gaz libre utilisé pour l'effet Doppler n'est pas correctement applicable. Aussi, avant de donner une valeur définitive pour  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$ , convient-il d'étudier une description plus exacte de l'élargissement Doppler que celle du modèle du gaz libre, ce qui fait l'objet de la partie suivante.

## 4 Etude de l'effet Doppler

### 4.1 Validation d'un modèle cristallin

#### 4.1.1 Structures dans le résiduel et variation de la température effective

REFIT cherche à minimiser la valeur du résiduel  $R(E)$ , différence entre les courbes expérimentale et théorique divisée par l'incertitude de l'ajustement sur chaque point, ainsi que l'exprime la relation (V.6).

Si l'ajustement est bon, chaque point du résiduel doit être distribué aléatoirement autour de 0 avec un écart-type proche de 1. Or, au niveau de chaque résonance de basse énergie, ce résiduel présente une structure caractéristique représentée sur la figure 91 qui s'atténue fortement au-delà de 10 eV, ce qui traduit une mauvaise description de la forme des résonances à ces énergies par REFIT.

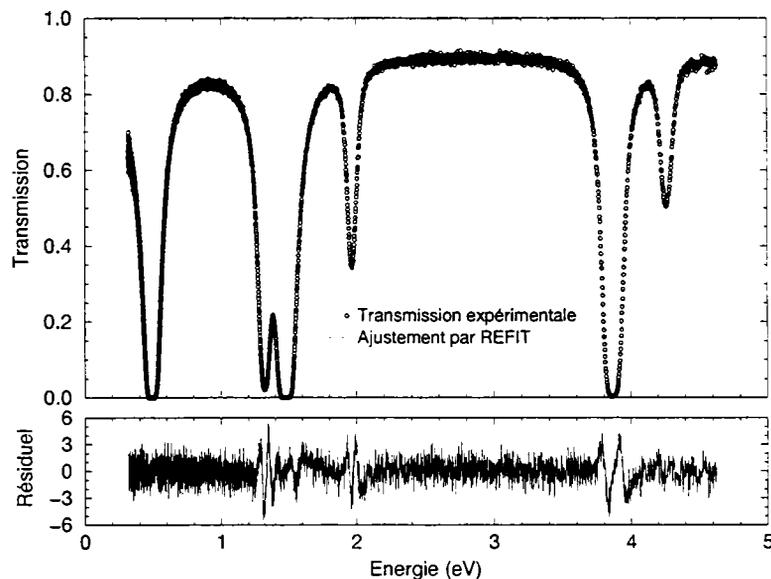


Fig.91 : Forme du résiduel de l'ajustement par REFIT des premières résonances de l'expérience Fevrier98.

Cette mauvaise description de la forme des résonances est d'autant plus importante que l'énergie (à l'exception de la première résonance dont la largeur naturelle est très supérieure à l'élargissement Doppler) et la température sont faibles.

L'effet Doppler, dont la description par le modèle du gaz libre (utilisé par REFIT) est inadéquate à basse énergie, et de manière accrue à basse température d'après la condition de Lamb (relation (II.113)), a donc été mis en cause pour expliquer ce phénomène dans  $\text{NpO}_2$ .

Un autre effet observé est le comportement de la température utilisée dans le modèle du gaz libre de REFIT. Cette température peut en effet être ajustée et le résultat de cet ajustement est représenté sur la figure 95 pour les premières résonances du neptunium-237 pour l'expérience Fevrier97 menée à 290K.

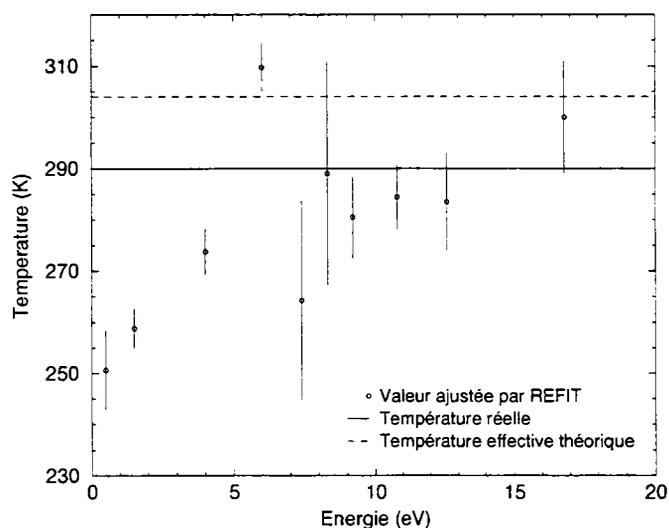


Fig.92 : Valeurs ajustées de la température utilisée dans le modèle du gaz libre pour l'élargissement Doppler par REFIT en fonction de l'énergie pour l'expérience Fevrier97 menée à 290 K.

A basse énergie, cette température est inférieure à la température thermodynamique, ce qui est interdit par la définition même de la température effective dans la théorie de Lamb pour le modèle du gaz libre. Ce nouveau phénomène est un indice supplémentaire prouvant que le modèle du gaz libre utilisé par REFIT pour décrire l'élargissement Doppler ne peut s'appliquer correctement à basse énergie pour le  $\text{NpO}_2$ .

#### 4.1.2 Etudes antérieures

La forme des structures du résiduel est similaire à celle de la différence entre la section efficace de la première résonance de l'uranium (6,67 eV) obtenue avec un échantillon d'uranium métallique et celle obtenue avec un échantillon de dioxyde d'uranium [92]. Dans le cas de cette résonance, la condition de Lamb pour

l'utilisation du modèle du gaz libre est vérifiée pour l'uranium métallique mais pas pour l'uranium dans  $\text{UO}_2$ .

Plus récemment, des études menées à l'IRMM sur  $^{238}\text{U}$  ont montré que cette structure venait bien de l'application du modèle du gaz libre dans des conditions où la validité de son utilisation est à remettre en cause [148]. L'utilisation d'un modèle cristallin par Meister avec un formalisme exact basé sur les équations (II.101), (II.104) et un spectre de vibration d'Einstein constitué de deux fréquences ajustables a permis de réduire de manière notable la structure observée sur la résonance à 6,67 eV [149].

Des mesures préliminaires sur  $\text{NpO}_2$ , menées à l'IRMM en 1994, avaient déjà montré l'existence de ces structures dans le résiduel. Là encore, Meister [151] et Moxon [150] montrèrent que l'utilisation d'un modèle cristallin avec un spectre constitué de deux phonons était à même de décrire plus correctement la forme des résonances.

### 4.1.3 DOPUSH

DOPUSH ([95] [88]) est un programme écrit par Naberejnev permettant de calculer des sections efficaces pour une température donnée selon différents modèles d'élargissement Doppler.

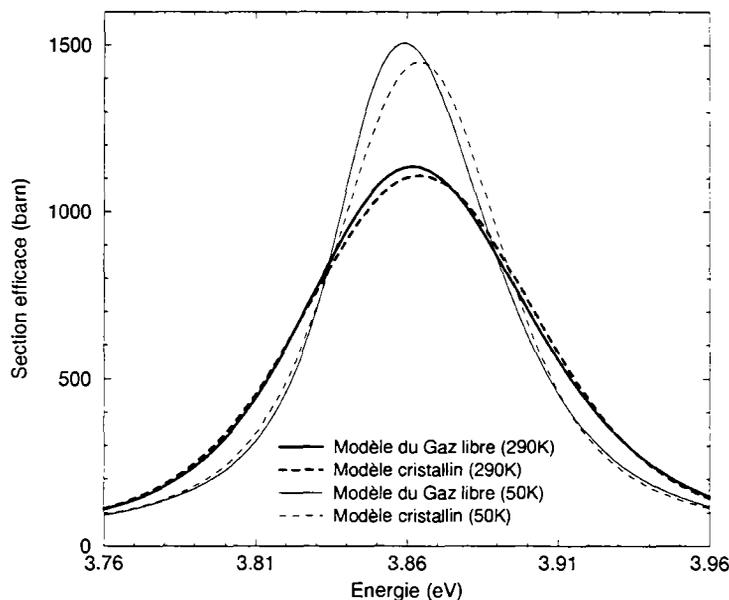


Fig.93 : Comparaison entre les sections efficaces de  $^{237}\text{Np}$  (au niveau de la résonance à 3,86 eV) calculées par DOPUSH avec deux modèles différents pour l'élargissement Doppler : le modèle du gaz libre et un modèle cristallin harmonique directement issu de la théorie de Lamb.

DOPUSH possède un modèle cristallin harmonique utilisant les équations (II.101) et (II.104) et un spectre de fréquence. Le grand avantage de DOPUSH est d'utiliser ce spectre discret avec un grand nombre de phonons permettant ainsi de décrire de manière précise les spectres de vibration connus des édifices cristallins.

Dans le cas de  $\text{NpO}_2$ , le spectre de vibration est inconnu et nous avons pris le parti de le considérer identique à celui de  $\text{UO}_2$  qui possède une structure cristalline identique et une masse atomique similaire. Le spectre de vibration pondéré du neptunium dans  $\text{NpO}_2$  a donc été décrit sur 86 points par le spectre de vibration pondéré de Dolling pour l'uranium dans  $\text{UO}_2$  (représenté sur la figure 26) et aucune de ces vibrations n'est ajustée sur les données.

La comparaison de la forme de la section efficace de  $^{237}\text{Np}$ , au niveau de la résonance à 3,86 eV, entre le modèle du gaz libre et le modèle cristallin harmonique est représentée à 293 K et 50 K sur la figure 93.

#### 4.1.4 Simulations et comparaisons

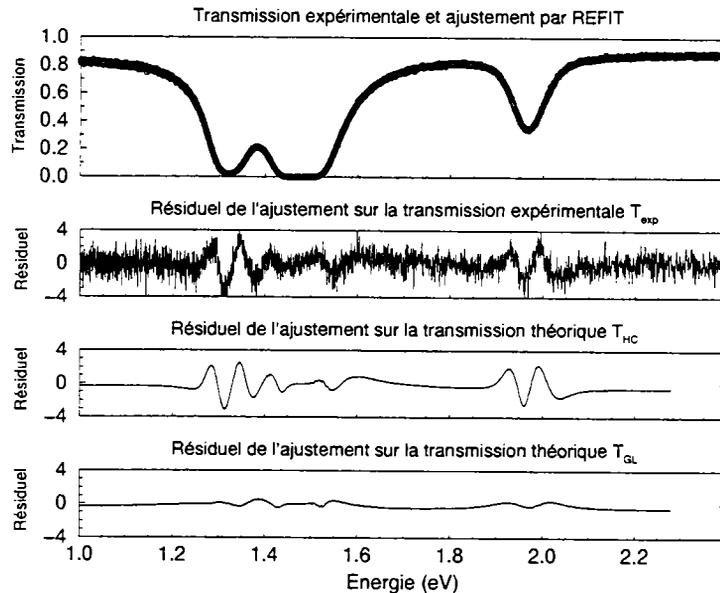


Fig.94 : De haut en bas : 1) transmission expérimentale de l'expérience 98 et son ajustement par REFIT avec le modèle du gaz libre , 2) résiduel de l'ajustement précédent, 3) résiduel obtenu si on ajuste REFIT sur la transmission théorique  $T_{HC}$  générée avec le modèle cristallin harmonique contenu dans DOPUSH pour l'élargissement Doppler, 4) résiduel obtenu si on ajuste REFIT sur la transmission théorique  $T_{GL}$  générée avec le modèle du gaz libre contenu dans DOPUSH pour l'élargissement Doppler.

Dans une première approche, nous avons reconstruit entre 0 et 20 eV deux transmissions théoriques  $T_{HC}$  et  $T_{GL}$  à partir de la section efficace calculée par DOPUSH (avec les paramètres de résonances obtenus dans la partie précédente) respectivement avec le modèle cristallin harmonique et le modèle du gaz libre pour l'élargissement Doppler [152].

Ces deux transmissions ont été ensuite considérées comme points expérimentaux. Le résultat de l'ajustement par REFIT sur ces deux transmissions et sur la transmission expérimentale de l'expérience Février98 est représenté sur la figure 94.

L'ajustement par REFIT sur  $T_{GL}$  ne laisse apparaître aucune structure nette dans le résiduel, alors que dans le cas de  $T_{HC}$  le résiduel est très similaire à celui observé expérimentalement.

Sur la figure 95 est représenté le résultat de l'ajustement par REFIT de la valeur de la température effective sur ces deux transmissions. On observe que, dans le cas de  $T_{GL}$ , la température effective reste constante autour de la valeur théorique donnée par l'équation (II.106). Par contre, les valeurs obtenues sur  $T_{HC}$  reproduisent bien le comportement de la température effective observé expérimentalement.

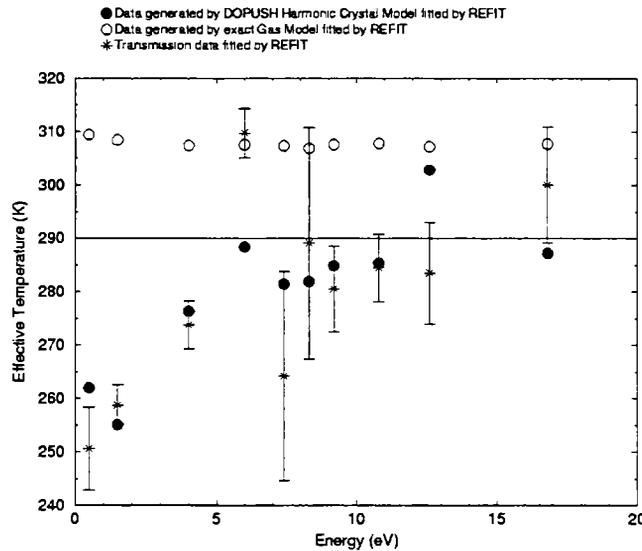


Fig.95 : Comparaison des valeurs ajustées par REFIT de la température effective pour les premières résonances de  $^{237}\text{Np}$  sur la transmission expérimentale et les deux transmissions théoriques générées avec le modèle du gaz libre et le modèle cristallin harmonique pour l'élargissement Doppler.

Il semble donc que les effets observés sur le résiduel et le comportement de la température effective puissent être expliqués par une mauvaise description de l'effet Doppler.

#### 4.1.5 Validité du modèle cristallin de DOPUSH

Le résiduel de l'ajustement sur  $T_{HC}$  et sur la transmission expérimentale de Fevrier98 étant semblables, on s'attend à ce que  $T_{HC}$  donne une meilleure description de la forme des résonances observée expérimentalement que l'ajustement par REFIT.

Partons de l'hypothèse selon laquelle la description de l'élargissement Doppler donnée par le modèle cristallin de DOPUSH est exacte. Dans ce cas, l'erreur commise lors de l'ajustement par REFIT sur  $T_{HC}$  est identique à celle sur la transmission expérimentale. Puisque les paramètres de résonance initiaux avec lesquels  $T_{HC}$  a été générée sont connus, la différence entre ceux-ci et les valeurs obtenues par l'ajustement de REFIT sur  $T_{HC}$  vont permettre de déterminer l'écart sur chaque paramètre dû à l'utilisation du modèle du gaz libre.

En corrigeant les paramètres initiaux de cet écart, une nouvelle transmission  $T_{HC}^N$  est générée avec le modèle cristallin harmonique de DOPUSH pour l'élargissement Doppler.

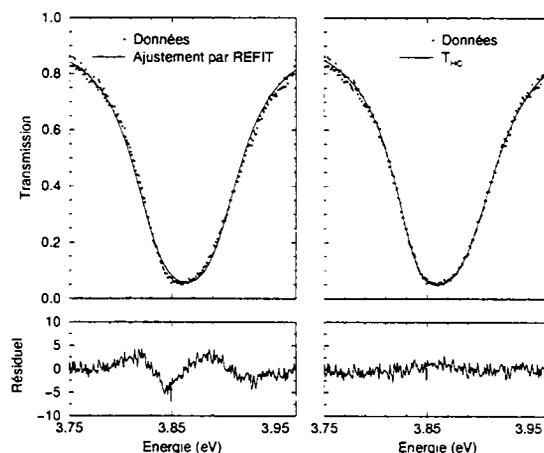


Fig.96 : Comparaison entre la transmission expérimentale et, à gauche l'ajustement par REFIT, à droite, la transmission théorique générée avec le modèle cristallin harmonique pour l'élargissement Doppler.

$T_{HC}^N$  est ensuite comparée à la transmission expérimentale  $T_{exp}$ , une simulation du résiduel étant obtenue en faisant la différence entre les deux transmissions, divisée par l'incertitude sur les points expérimentaux. Afin de valider la modélisation de

l'effet Doppler proposée par DOPUSH, cette méthode a été appliquée à l'expérience Fevrier97 ayant eu lieu à 50 K, où l'écart entre les deux modèles (gaz libre et cristallin harmonique) est bien plus important d'après la figure 93.

La figure 96 représente le résultat de cette méthode sur la résonance à 3,86 eV de  $^{237}\text{Np}$  : le résiduel ainsi obtenu ne présente plus de structure apparente et la forme de la résonance est nettement mieux décrite que lors de l'ajustement par REFIT, l'écart principal ayant lieu au pic et dans les flancs de la résonance [153].

Le modèle cristallin utilisé dans DOPUSH permet donc d'obtenir une bonne reproduction des données expérimentales, sans ajustement du moindre paramètre supplémentaire, et a de ce fait été implanté comme sous-programme dans REFIT.

## 4.2 Utilisation du modèle cristallin dans REFIT

### 4.2.1 Ajustement des données à basse énergie et température

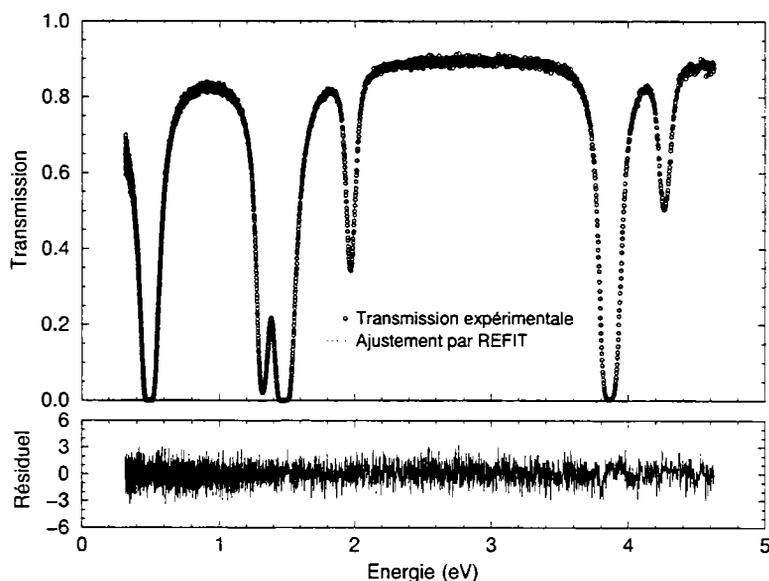


Fig.97 : Ajustement des premières résonances de l'expérience Fevrier98 par REFIT utilisant le modèle cristallin harmonique de DOPUSH pour décrire l'élargissement Doppler.

Une fois DOPUSH intégré dans REFIT, nous avons à nouveau ajusté les données expérimentales en dessous de 20 eV en utilisant cette fois le modèle cristallin

harmonique. Nous avons toutefois été limité à l'intervalle d'énergie 0-7 eV du fait de problèmes numériques dans l'incorporation de DOPUSH dans REFIT.

Le résiduel, comme l'illustre la figure 97 à comparer avec la figure 91, ne présente plus de structures notables vérifiant bien les assertions émises dans le paragraphe précédent.

En ajustant de même l'expérience Fevrier97 à basse température (50 K), il reste quelques structures mineures (visibles dans le résiduel de la figure 98) provenant très certainement d'une mauvaise description du bruit de fond ou de la résolution.

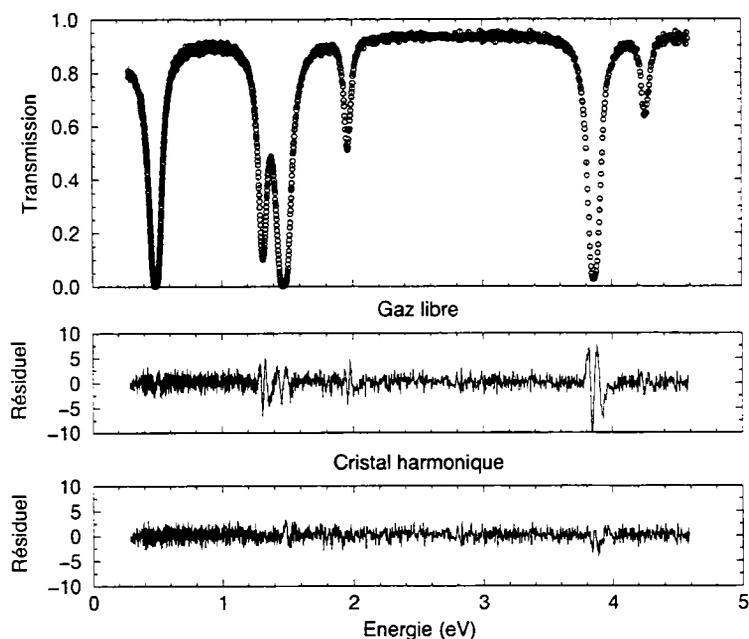


Fig.98 : Ajustement des premières résonances de l'expérience Fevrier97 à 50 K par REFIT et comparaison des résiduels obtenus selon le modèle de description de l'élargissement Doppler choisi (gaz libre ou cristallin harmonique).

#### 4.2.2 Effet sur les paramètres de résonance

Cette étude a été menée sur l'expérience Fevrier98.

Tout d'abord, l'utilisation du spectre de fréquences pondéré de l'uranium dans  $\text{UO}_2$  pouvant être critiqué, car rien ne prouve la pleine similarité avec le spectre de fréquences pondéré du neptunium dans  $\text{NpO}_2$ , nous avons effectué un test de sensibilité en modifiant le spectre de fréquence. Le résultat obtenu montre que l'influence du spectre de vibration est très faible sur les paramètres de résonance obtenus.

Ensuite, les paramètres de résonance obtenus en utilisant le modèle cristallin sont comparés à ceux déterminés avec le modèle du gaz libre dans la figure 99.

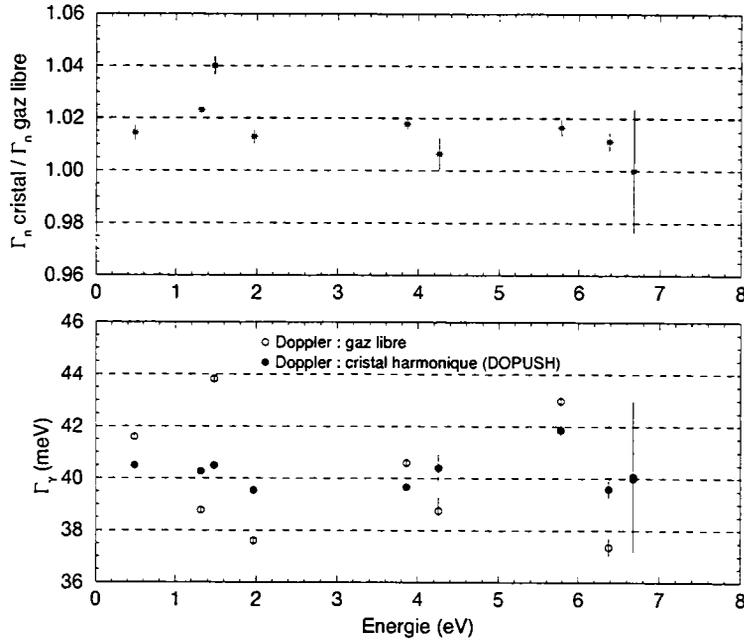


Fig.99 : Comparaison entre les largeurs partielles des résonances d'énergie inférieure à 7 eV. Les paramètres ont été obtenus par l'analyse avec REFIT utilisant dans un cas le modèle du gaz libre et dans l'autre le modèle cristallin harmonique provenant de DOPUSH. Pour la résonance à 5,77 eV (pratiquement noire), un problème dans la détermination du bruit de fond a été identifié et explique la valeur plus élevée de la largeur radiative de cette résonance, même après utilisation du modèle cristallin harmonique.

#### Largeur neutronique :

A la vue de cette figure, la largeur neutronique déterminée en utilisant le modèle du gaz libre pour l'élargissement Doppler est sous-estimée d'environ 2 % pour les premières résonances. Au delà de 7 eV, nous n'avons pu ajuster la transmission expérimentale avec le modèle cristallin harmonique. Aussi, avons-nous étudié l'écart entre les deux modèles en ajustant la transmission théorique générée à l'aide de DOPUSH ainsi que nous l'avons expliqué dans la partie 4.1.5 : la différence sur la valeur des paramètres s'atténue au fur et à mesure que l'énergie augmente et deviendrait négligeable au delà de 15 eV.

A basse température (20 K), où la condition de Lamb n'est vérifiée qu'à plus haute énergie, cette différence d'environ 2 à 3 % persiste apparemment jusqu'à plus de 50 eV.

### Largeur radiative :

La largeur radiative est également affectée, mais il est difficile de voir sur la figure 99 un quelconque effet systématique. Cependant, le point le plus important est une diminution très nette de la dispersion de la largeur radiative autour de la valeur moyenne.

Ce comportement variable d'une résonance à l'autre avec une correction changeant de sens peut paraître curieux au premier abord. Pour l'expliquer, la transmission théorique  $T_{HC}$  définie précédemment est générée pour plusieurs épaisseurs d'échantillon et REFIT ajuste les paramètres de résonance, avec le modèle du gaz libre, pour chacune des épaisseurs. La variation du rapport entre la largeur radiative obtenue par cet ajustement et la valeur initiale (utilisée pour générer  $T_{HC}$ ) en fonction de la transmission de la résonance est représentée sur la figure 100.

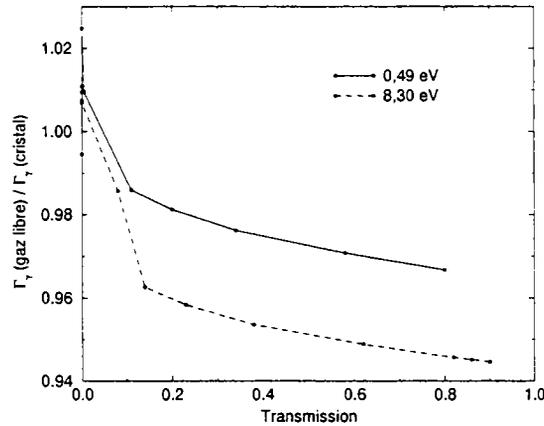


Fig.100 : Evolution du biais sur la largeur radiative, provenant de l'utilisation du modèle du gaz libre, en fonction de la transmission pour la première résonance (0,49 eV) du  $^{237}\text{Np}$  et la résonance à 8,3 eV.

Si la transmission n'est pas trop faible, il y a une sous-estimation de la largeur radiative. Par contre, si la transmission est proche de 0, la largeur radiative est cette fois surestimée. Cette différence de comportement de l'erreur commise vient du fait que, pour des résonances pratiquement noires, la mauvaise description de la forme au niveau du pic s'estompe, la résonance s'applatissant à ce niveau. C'est alors principalement la différence au niveau des flancs de la résonance que le programme va chercher à minimiser. Or sur la figure 99, toutes les résonances ayant une très faible transmission (les résonances pratiquement noires) ont une largeur radiative supérieure à la moyenne tandis que celle des plus petites résonances est inférieure à

la moyenne. Il semble donc que, dans la dispersion considérée naturelle des valeurs de  $\Gamma_\gamma$ , la mauvaise description de l'effet Doppler intervienne pour beaucoup.

Cet effet est confirmé sur la figure 101, où sont comparés les paramètres obtenus selon les deux modèles d'élargissement Doppler sur l'échantillon le plus mince pour lequel aucune résonance n'a de transmission inférieure à 0,3. Dans ce cas, on observe bien une augmentation de la largeur radiative quelle que soit la résonance.

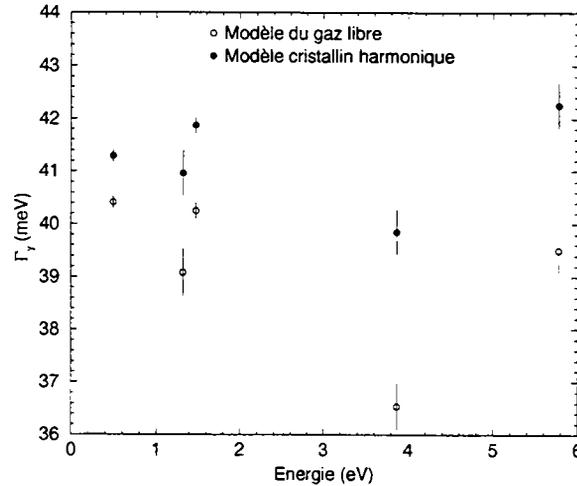


Fig.101 : Comparaison des largeurs radiatives obtenues par REFIT, sur l'expérience Fevrier97 à 15 K avec l'échantillon le plus mince (SP96094), dans deux cas : en utilisant le modèle du gaz libre pour l'élargissement Doppler et en utilisant le modèle cristallin harmonique implanté dans DOPUSH.

### 4.2.3 Largeur radiative moyenne

La largeur radiative moyenne  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$  devrait être déterminée à partir des valeurs de la largeur radiative obtenue en dessous de 15 eV. Nous n'avons pu utiliser REFIT avec le modèle cristallin harmonique que jusqu'à 7 eV, où la largeur radiative de 8 résonances a pu être ajustée.  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$  en a été déduite par moyenne pondérée :

$$\langle \Gamma_\gamma \rangle = 39,9 \pm 0,6 \text{ meV} \quad (\text{V.66})$$

Cette valeur devrait être utilisée pour les résonances dont la largeur radiative est fixée. Toutefois, du fait du faible nombre de résonances ayant pu être analysées avec le modèle cristallin, et dans l'attente de résultats jusqu'à 15 eV, c'est l'incertitude précédente qui va être considérée dans ce travail, soit :

$$\langle \Gamma_\gamma \rangle = 40 \pm 2 \text{ meV} \quad (\text{V.67})$$

La valeur de la largeur radiative moyenne obtenue sur la base 2 est supérieure (entre 41 et 42 meV) quel que soit l'échantillon et la température considérée. Cela peut s'expliquer par un bruit de fond structuré affectant plus particulièrement cette base de vol, l'origine des structures venant, d'après nos hypothèses, des rayons gamma créés par la capture de neutrons dans l'environnement du détecteur. En effet, d'après la figure 80, ne pas tenir compte de ces structures dans le bruit de fond a pour effet d'augmenter artificiellement la valeur de la largeur radiative des résonances, même à très basse énergie.

Notons également que si la précision sur cette valeur a été nettement améliorée, le fait que les deux valeurs de  $\langle \Gamma_\gamma \rangle$  (obtenue avec le modèle du gaz libre et le modèle cristallin harmonique) soient très proches est le fruit du hasard : il se trouve que nous avons un nombre similaire de résonances pratiquement noires et de résonances plus petites, si bien qu'une sorte de compensation s'est opérée pour la valeur moyenne.

#### 4.2.4 *Compatibilité des résultats entre basse température et température ambiante*

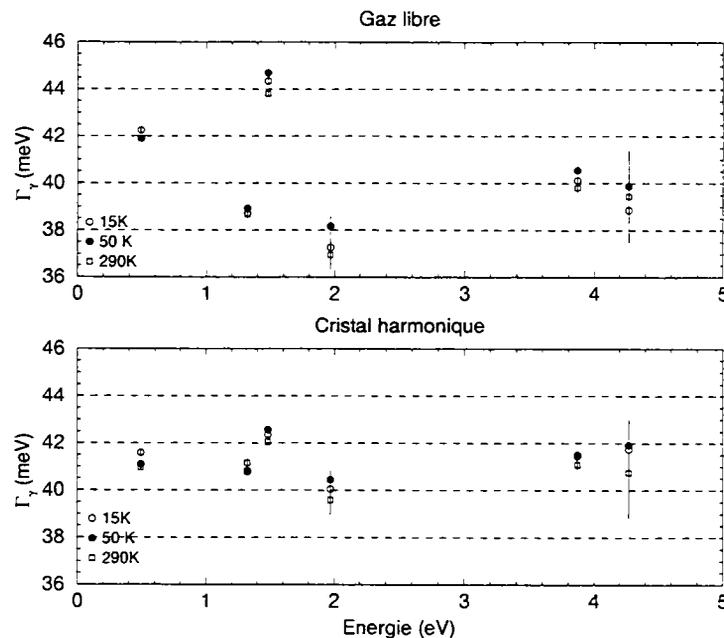


Fig.102 : Largeurs radiatives en dessous de 4,5 eV déterminées à partir des mesures à trois températures différentes (15 K, 50 K et 290 K) de l'expérience Fevrier97. Sur la figure du haut, le modèle du gaz libre pour l'élargissement Doppler a été utilisé, et sur la figure du bas, le modèle cristallin harmonique.

L'expérience Fevrier97 a été effectuée à trois températures différentes : 15 K, 50 K et 290 K. En comparant les valeurs obtenues en dessous de 4,5 eV, il semble que la valeur des largeurs partielles dépendent très peu de la température (entre 15 et 290 K), contrairement à ce que nous aurions pu imaginer. Cette indépendance apparente se retrouve également si l'on utilise le modèle cristallin, ce qui était cette fois plus prévisible. Le comportement de la largeur radiative est représenté sur la figure 102.

Par conséquent, il semble que, dans le cas où la condition de Lamb pour l'utilisation du modèle du gaz libre n'est pas vérifiée, la température à laquelle se trouve l'échantillon importe peu. L'écart sur les paramètres de résonance induit par l'utilisation du modèle du gaz libre serait donc, dans ce cas, assez peu sensible à la température. La différence essentielle réside dans le fait qu'à basse température, la condition de Lamb est vérifiée à une énergie plus élevée qu'à température ambiante et nécessite donc l'utilisation du modèle cristallin sur une plage d'énergie plus étendue.

### **4.3 Conclusions**

L'utilisation du modèle cristallin harmonique pour l'élargissement Doppler a permis d'obtenir une meilleure description de nos expériences quelle que soit la température. De ce fait, une source d'erreur systématique a pu être apparemment éliminée et permet notamment de déterminer la largeur radiative moyenne avec une précision accrue.

Si on peut contester l'utilisation du spectre de fréquence de l'uranium, un intérêt particulièrement important apparaît immédiatement : une analyse avec ce nouvel outil des premières résonances de l'uranium-238.

Un problème surgit néanmoins : l'élargissement Doppler des sections efficaces calculées à partir des fichiers d'évaluation dans le cadre d'études de réacteurs est déterminé par le modèle du gaz libre avec température effective et non avec le modèle cristallin. Toutefois, d'après la référence [95], l'influence du choix du modèle d'élargissement Doppler lors de la reconstruction des sections efficaces est d'un ordre de grandeur inférieur aux erreurs introduites par les paramètres de résonance eux-mêmes. C'est donc la valeur réelle de ces paramètres qui importe, indépendamment de toutes considérations de modèles de reconstruction de section efficace afin de leur conserver toute leur valeur physique et universelle. C'est dans les fichiers d'évaluation qu'il convient d'intégrer les caractéristiques cristallines des différents composés et un modèle cristallin pour le calcul de l'élargissement Doppler. Ce programme est très vaste et très coûteux, et à la vue de son importance une telle opération peut apparaître prématurée. Toutefois, elle pourrait être considérée dans une politique d'utilisation de l'énergie nucléaire à long terme.

## 5 Analyse de la section efficace totale entre 500 eV et 2 keV

### 5.1 Méthode utilisée

Bien que des résonances soit toujours discernables à des énergies supérieures à 500 eV, l'important recouvrement entre elles rend leur identification délicate. S'il peut paraître opportun de poursuivre l'analyse des résonances au-delà de 500 eV, nous avons, dans une première étape, considéré l'intervalle d'énergie entre 0,5 et 2 keV comme appartenant au domaine des résonances non-résolues. Dans ce domaine, l'analyse des données peut être entreprise en ajustant les valeurs des paramètres moyens.

Dans un premier temps, nous avons construit la section efficace totale moyenne  $\langle\sigma\rangle$  entre 0,5 et 2 keV, qui est reliée à la transmission moyenne  $\langle T\rangle$  par la relation :

$$\langle T\rangle = \langle e^{-n\sigma}\rangle = e^{-n\langle\sigma\rangle} \cdot \langle e^{-n(\sigma-\langle\sigma\rangle)}\rangle \quad (\text{V.68})$$

avec

$\langle X\rangle$ , valeur moyenne de la grandeur  $X$ .

$\langle e^{-n(\sigma-\langle\sigma\rangle)}\rangle$ , facteur correctif des fluctuations de la section efficace et calculé à partir des lois statistiques des niveaux. Le code SESH [154] a été utilisé à cet effet pour calculer, par méthode Monte-Carlo, cette correction qui s'avère inférieure à 0,5 % dans notre cas.

Cette section efficace moyenne est cependant celle de  $\text{NpO}_2$ , et non de  $^{237}\text{Np}$ . Nous avons donc soustrait à la section efficace moyenne, deux fois la section efficace de l'oxygène considérée constante entre 0,5 et 2 keV.

La section efficace moyenne ainsi obtenue peut alors être décrite à l'aide des paramètres moyens en utilisant la théorie de Hauser-Feshbach [155]. Celle-ci relie en effet, les sections efficaces moyennes pour toutes les voies de réaction d'une manière similaire à ce que fait la théorie de la matrice-R pour la section efficace dans le domaine des résonances résolues. Une description détaillée du principe et de son application à  $^{238}\text{U}$  est présentée dans la référence [156].

### 5.2 Résultat

Nous avons utilisé le code FITACS [157] pour l'analyse de la section efficace totale moyenne déterminée sur l'expérience Octobre97 entre 0,5 et 2 keV. L'ajustement sur les données s'est avéré très peu sensible aux valeurs de l'espacement moyen  $D_1$  et de

la fonction densité  $S_1$  pour les ondes "p". Nous les avons donc fixées à  $S_1 = 2 \cdot 10^{-4}$  et  $D_1 = \frac{D_0}{2} = 0,29$  eV. De plus, nous avons supposé que la valeur moyenne de la largeur radiative était la même quel que soit le type d'ondes considéré :  $\Gamma_\gamma = 40$  meV.

Nous avons dans un premier temps ajusté la fonction densité  $S_0$  et le rayon de diffusion  $R$  pour les ondes "s". Les résultats obtenus sont, avec un facteur de corrélation de 0,976 entre les deux valeurs :

$$S_0 = (1,05 \pm 0,13) \cdot 10^{-4} \text{ et } R = 9,36 \pm 0,72 \text{ fm} \quad (\text{V.69})$$

Nous avons ensuite fixé tour à tour la fonction densité et le rayon de diffusion aux valeurs déterminées dans le domaine des résonances et ajusté l'autre paramètre :

-avec  $R = 9,99 \pm 0,38$  fm :

$$S_0 = (0,93 \pm 0,07) \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.70})$$

Cette valeur est plus faible est que celle obtenue en dessous de 400 eV. Il est cependant difficile de dire si elle confirme ou non la diminution de pente observée dans l'histogramme cumulé des  $g\Gamma_n$  entre 400 et 500 eV, ce qu'une comparaison entre les résultats provenant des expériences Octobre97 et Juin98 permettrait sans doute d'élucider.

-avec  $S_0 = (1,00 \pm 0,07) \cdot 10^{-4}$  :

$$R = 9,62 \pm 0,38 \text{ fm} \quad (\text{V.71})$$

En supposant que la valeur de la fonction densité est bien celle déterminée en dessous de 400 eV, cette valeur du rayon de diffusion semble plus conforme à nos attentes (d'après la valeur du rayon des noyaux voisins) que celle déterminée par l'analyse du domaine des résonances résolues, même si ces deux valeurs restent pleinement compatibles. Là encore, aucune conclusion ne peut cependant être formulée tant que la comparaison entre les résultats de l'expérience Juin98 et Octobre97 n'aura pas été entreprise. De plus une erreur systématique sur la normalisation de l'une de ces expériences est également envisageable.

La section efficace moyenne de  $^{237}\text{Np}$  et l'ajustement dans ce dernier cas (la différence avec les configurations précédentes étant très minime) sont représentés sur la figure 103.

Il convient d'ajouter que, dans les valeurs données par FITACS, aucune erreur systématique sur la section efficace totale moyenne n'est prise en compte.

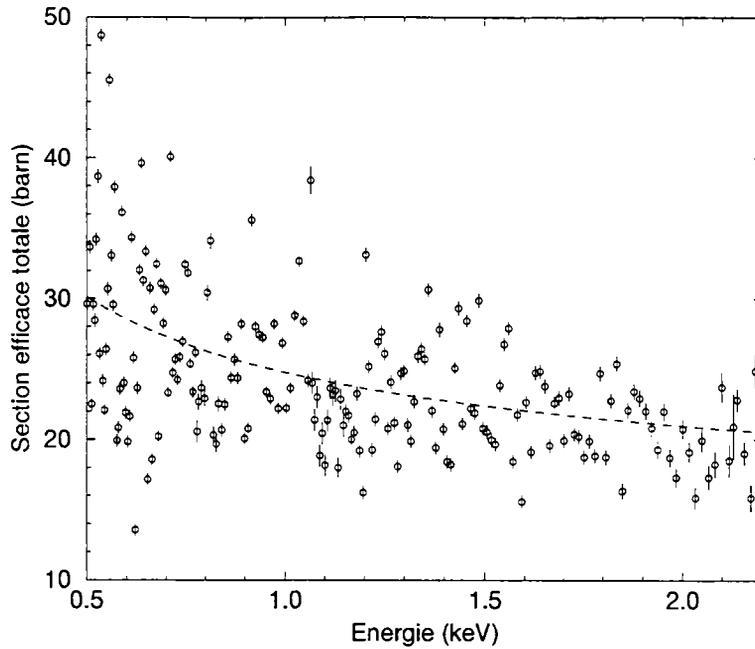


Fig.103 : Ajustement (en pointillé) de la section efficace moyenne de  $^{237}\text{Np}$  entre 0,5 et 2 keV par le programme FITACS : seule la valeur du rayon de diffusion a été ajustée sur cette figure.

### 5.3 Conclusion

L'analyse de la section efficace totale moyenne entre 0,5 et 2 keV donne des résultats compatibles, pour le rayon et la fonction densité  $S_0$ , avec ceux déterminés par l'analyse des résonances en dessous de 500 eV. Compte tenu des incertitudes sur chacune des grandeurs, on ne peut, en effet, mettre en lumière un quelconque écart significatif.

## 6 Comparaisons des résultats avec les publications antérieures

### 6.1 Les autres expériences

Il y a quatre principales expériences ayant permis la détermination des paramètres de résonance de  $^{237}\text{Np}$ . Nous commencerons néanmoins par présenter les résultats d'une des plus anciennes mesures de  $^{237}\text{Np}$ , celles de Smith et al.

#### 6.1.1 Smith (1957) [158]

Cette mesure fut la première donnant accès aux paramètres de résonance de  $^{237}\text{Np}$ . Menée dans un réacteur, elle permit d'obtenir la section efficace totale entre 0,02 et 2,8 eV et d'identifier ainsi les trois premières résonances qui furent analysées avec le formalisme de Breit et Wigner.

Les résultats obtenus sont les suivants :

-section efficace totale au point thermique :  $180 \pm 22$  barns.

-paramètres de résonance : seules les largeurs partielles de la première résonance ont été déterminées de manière quantitative. Les valeurs de ces largeurs partielles sont données page 262.

#### 6.1.2 Paya (1972) [59]

La première mesure des paramètres de résonance sur une large plage d'énergie est celle de Paya, dont l'objectif était avant tout l'étude des paramètres de fission de ce noyau.

L'expérience eut lieu auprès de l'accélérateur linéaire de Saclay utilisant, tout comme GELINA, une cible d'uranium naturel pour produire les neutrons. Deux types de mesures furent entreprises : transmission et section efficace de fission entre 0,5 eV et 45 keV.

En dessous de 20 eV, la distance de vol était de 16,7 m et 53,7 m à plus haute énergie.

Trois échantillons de  $\text{NpO}_2$  (contaminés par 0,2 % de thorium) furent utilisés :  $6,6 \cdot 10^{-3}$  atome/barn (sur une surface de  $9,6 \text{ cm}^2$ ),  $2 \cdot 10^{-3}$  atome/barn ( $14,5 \text{ cm}^2$ ) et  $6,3 \cdot 10^{-4}$  atome/barn ( $44 \text{ cm}^2$ ). Dans les deux derniers échantillons,  $\text{NpO}_2$  est mélangé à de l'oxyde de plomb  $\text{PbO}_2$ . L'échantillon le plus mince ne fut utilisé que pour les résonances les plus grandes, encore pratiquement noires pour une épaisseur de  $2 \cdot 10^{-3}$  atome/barn.

L'analyse des résonances a été entreprise entre 0,5 eV et 250 eV avec un programme d'analyse de forme utilisant le formalisme de Breit et Wigner enrichi d'un terme pour tenir compte de l'interférence entre les résonances.

Notons d'ores et déjà la difficulté pour cette expérience d'extraire les paramètres pour la première résonance.

Les paramètres de résonance de cette expérience entre 3 et 155 eV ont été publiés en 1976 dans la référence [60].

### **6.1.3 Mewissen (1978) [159]**

Cette expérience est constituée de trois mesures effectuées auprès de GELINA (dans la configuration de l'époque) : transmission, capture radiative et diffusion élastique entre 8 et 204 eV.

La distance de vol fut unique pour les trois mesures : 30 m.

Plusieurs échantillons de  $\text{NpO}_2$  furent également utilisés :

-trois échantillons en transmission, d'un diamètre de 14 mm et d'épaisseur  $2,36 \cdot 10^{-2}$ ,  $5,33 \cdot 10^{-3}$  et  $1,78 \cdot 10^{-3}$  atome/barn.

-un échantillon de 83,1 mm de diamètre et de  $1,39 \cdot 10^{-3}$  atome/barn d'épaisseur utilisé en capture et diffusion.

Les données de capture et de transmission furent traitées par un programme d'analyse de surface, un programme d'analyse de forme étant également utilisé en transmission. Les paramètres de résonance publiés correspondent à un accord entre l'expérience de capture et une des expériences de transmission (une des trois épaisseurs) et l'incertitude est déterminée de manière à ce que l'ensemble des expériences soit en accord.

### **6.1.4 Weston et Todd (1981) [143]**

C'est une mesure de la section efficace de capture radiative entre 0,01 eV et 200 keV effectuée auprès de l'accélérateur ORELA (Oak Ridge Electron Linear Accelerator) du laboratoire national d'Oak Ridge. La distance de vol est de 20 m et l'échantillon est également composé de  $\text{NpO}_2$ . 2 g de  $\text{NpO}_2$  (pur à plus de 99,9 %) sont mélangés avec 5 g de soufre dans un échantillon de 50,8 mm de diamètre, soit une épaisseur de  $2,5 \cdot 10^{-4}$  atome/barn.

Après avoir été normalisées dans le domaine des résonances sur les valeurs de Paya et Mewissen, les données ont été analysées par la méthode d'analyse de forme et les paramètres de résonances ont été extraits en dessous de 100 eV.

### 6.1.5 Auchampaugh (1983) [61]

Le but de cette expérience était avant tout l'étude de la section efficace de fission de  $^{237}\text{Np}$  et notamment le couplage entre les états de classe I et II. Elle est donc constituée d'une mesure de transmission et de section efficace de fission couvrant la région d'énergie allant de 1 à 600 eV. Ces deux mesures ont été effectuées auprès d'ORELA.

Pour la mesure de transmission, la distance de vol était de 78 m. Les deux échantillons utilisés étaient constitués de neptunium sous forme métallique, avaient un diamètre de 9,9 mm et une épaisseur de  $2,6 \cdot 10^{-3}$  et  $1,7 \cdot 10^{-2}$  atome/barn. De plus, ces échantillons étaient refroidis à la température de l'azote liquide (77 K).

Il apparaît évident que, ayant la longueur de vol la plus grande et travaillant à basse température, la mesure de transmission d'Auchampaugh et al. est celle offrant la meilleure résolution, y compris comparativement à celle présentée dans ce travail au delà de 40-50 eV où la résolution expérimentale devient relativement importante.

De plus, un des échantillons utilisés dans cette expérience de transmission présente l'une des épaisseurs les plus importantes. Aussi n'est-il pas étonnant de voir un nombre bien plus important de résonances identifiées que dans les expériences précédentes pour une gamme d'énergie comparable. Les paramètres de résonance ont été obtenus entre 1 et 600 eV par l'utilisation d'un programme d'analyse de forme utilisant le formalisme de Reich-Moore, et donc proche du programme REFIT que nous avons utilisé.

Il convient cependant de noter que, aux dires des auteurs, l'ajustement des données au-delà de 160 eV n'a pas été effectué avec autant de minutie qu'aux énergies inférieures et que l'incertitude donnée sur les paramètres correspond uniquement aux éléments diagonaux de la matrice de covariance issu de l'ajustement, aucune erreur systématique n'ayant été prise en compte [61].

Le spin des résonances a également été déterminé en utilisant l'information des deux expériences et en réanalysant les données de Keyworth et coll. [146], sans modifier pour autant les résultats obtenus dans cette référence.

## 6.2 Les évaluations

Les informations obtenues par les différentes expériences ont ensuite été regroupées dans des fichiers d'évaluations.

### 6.2.1 JEF2.2 - ENDF/B.VI

Les paramètres de résonance sont ceux de Paya hormis pour la première résonance. En effet, les paramètres des résonances négatives et ceux de la résonance

à 0,49 eV ont été choisis de manière à reproduire la forme de la section efficace de capture mesurée par Weston et Todd dans le domaine thermique, cette section efficace ayant été renormalisée sur la section efficace totale déterminée par Paya dans le domaine des résonances [58].

Notons que, dans ENDF/B-VI, le spin des deux premières résonances positives est considéré comme étant inconnu alors que JEF2.2 leur a attribué une valeur.

Les résultats obtenus pour le domaine thermique sont les suivants :

Energie (eV)	$\Gamma_\gamma$ (meV)	$2g\Gamma_n$ (meV)
-1,000	40	1,896
0,490	40	0,0384

### 6.2.2 JENDL 3.2

Dans cette évaluation, ce sont les paramètres de résonances de Weston et Todd entre 0 et 130 eV qui sont considérés. Là encore, le spin des deux premières résonances est considéré inconnu.

Pour le domaine thermique, la première résonance négative de Weston et Todd à -0,22 eV a été diminuée de manière à tenir compte des résultats de Kobayashi et al. [160]. En effet, ceux-ci ont mesuré une section efficace de capture au point thermique de  $158 \pm 3$  barns, soit inférieure de 13 % à la valeur de 181 barns considérée jusqu'alors.

Dans l'évaluation JENDL3.2, le point thermique est ainsi fixé à 164,6 barn en prenant pour les paramètres du domaine thermique :

Energie (eV)	$\Gamma_\gamma$ (meV)	$2g\Gamma_n$ (meV)
-2,500	23,5	8,735
-0,220	25	0,0135
0,491	40,3	0,038

### 6.2.3 BNL-325 [85]

Ce qu'on appelle "BNL" est en fait la référence [85]. C'est un recueil de paramètres de résonance et de paramètres moyens pour chaque isotope.

Pour la première résonance, ce sont à nouveau les valeurs de Weston et Todd qui ont été retenues. A partir de 1,97 eV, les paramètres de résonance sont ceux donnés par Auchampaugh et al. Pour les résonances à 1,32 et 1,48 eV, ces paramètres de résonance semble avoir été renormalisés et ne correspondent à aucun jeu de données expérimentales. Notons en effet que les valeurs d'Auchampaugh pour la résonance à 1,48 eV possèdent une très grande incertitude et sont donc sujettes à caution.

## 6.3 Comparaison des résultats

### 6.3.1 Le rayon de diffusion

Le rayon de diffusion est donné uniquement dans les évaluations. Pour JEF2.2, la référence [58] indique que le rayon a été ajusté sur les données de Paya entre 22 et 30 eV. La valeur retenue est :

$$R = 9,54 \pm 0,50 \text{ fm} \quad (\text{V.72})$$

Le rayon utilisé dans JENDL3.2 est :

$$R = 9,4 \text{ fm} \quad (\text{V.73})$$

Ces valeurs sont plus faibles que celle déterminée par ce travail et semblent plus en accord avec la valeur des rayons des différents isotopes du thorium, de l'uranium et du plutonium, variant entre 9,3 et 9,7 fm.

Seul un problème dans la composition exacte de l'échantillon peut être apparemment incriminé dans nos mesures, le doute pouvant subsister tant que la différence de 3 % sur l'épaisseur entre nos échantillons ne sera pas pleinement élucidée. De plus, même si elle est supérieure, notre valeur de  $9,99 \pm 0,38$  fm reste compatible avec celle donnée par la référence [58].

### 6.3.2 Le domaine thermique

Résonance à 0,49 eV :

Les paramètres de la première résonance n'ont été extraits que par Smith, par Paya (mais de manière difficile) et enfin par Weston et Todd. Les doutes sur les valeurs proposées par Smith et Paya ont amenés les différents évaluateurs à ne considérer que la valeur de Weston.

Nous confirmons cette hypothèse, nos données étant parfaitement compatibles avec celles de Weston et Todd.

Expérience	Energie (eV)	$\Gamma_\gamma$ (meV)	$2g\Gamma_n$ (meV)
Smith	$0,489 \pm 0,017$	$32 \pm 3$	0,032
Paya	0,49	$33 \pm 2$	$0,032 \pm 0,001$
Weston	0,491	$40,3 \pm 0,2$	$0,038 \pm 0,001$
Ce travail (gaz libre)	$0,4918 \pm 0,002$	$41,6 \pm 1,4$	$0,0386 \pm 0,0011$
Ce travail (cristal)	$0,4914 \pm 0,002$	$40,5 \pm 1,6$	$0,0392 \pm 0,0011$

### Résonances négatives :

Comme nous l'avons vu précédemment, il existe une différence importante sur la valeur de la section efficace de capture radiative au point thermique valant 164,6 barns dans le fichier d'évaluation JENDL3.2 et 181 barns dans JEF2.2 ou ENDF/B-VI.

Les paramètres des résonances négatives ont ainsi été ajustés avec les deux valeurs de la section efficace de capture à l'énergie thermique. Afin d'imposer la pente de la section efficace, deux autres valeurs à 0,015 et 0,045 eV ont également été fixées. L'allure de la section efficace de capture radiative obtenue entre 0,02 eV et 1 eV par REFIT est représentée sur la figure 104.

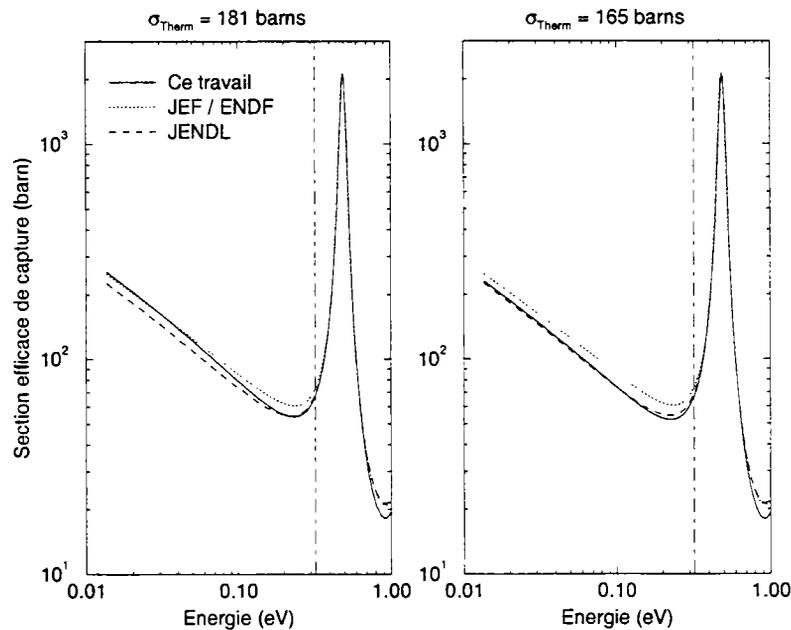


Fig.104 : Comparaison des sections efficaces de capture radiative entre 0,01 et 1 eV calculées par REFIT à partir des fichiers d'évaluations JEF2.2, JENDL3.2 et à partir des paramètres de résonances déterminés par ce travail. Sur la figure de gauche, la section efficace de capture radiative à l'énergie thermique (0,0253 eV) a été fixée dans notre analyse à 181 barns, alors que dans celle de droite la valeur 164,6 barns a été considérée.

La forme de la section efficace de capture est la même pour JENDL3.2 ou JEF2.2 (ENDF/B-VI), car elles sont toutes basées sur la mesure de Weston et Todd. Pour reproduire cette forme, nos résultats semblent plus en accord avec la valeur la plus basse pour le point thermique, que nous avons par conséquent utilisée dans notre analyse.

### 6.3.3 Les paramètres de résonance

#### Identification des résonances :

Disposant d'une meilleure résolution, Auchampaugh donne un nombre de résonances bien plus important que les autres mesures, comme l'illustre la figure 108. A quelques exceptions près, l'identification des résonances dans ce travail a consisté à confirmer l'existence des résonances reportées par Auchampaugh.

Dans le tableau 14 sont données les énergies des résonances d'énergies inférieures à 120 eV n'ayant été identifiées que par Auchampaugh et dans ce travail.

Tableau 14 : Liste des résonances d'énergie inférieure à 120 eV uniquement identifiées par ce travail ou par Auchampaugh et al. Les résonances sont identifiées par leur énergie en eV.

<i>Ce travail</i>	<i>Auchampaugh</i>	<i>Ce travail</i>	<i>Auchampaugh</i>	<i>Ce travail</i>	<i>Auchampaugh</i>
	3,05	56,57	56,57		79,90
7,68	7,68	56,86	56,87	82,40	82,39
14,39	14,41		57,40	83,82	83,80
15,94	15,93	61,37	61,63	87,75	87,79
17,94	17,93	62,37	62,32		89,94
28,61	28,63	63,45	63,42		91,02
32,48	32,49	66,36	66,40	94,52	94,57
34,08	34,07		66,80	95,09	94,92
38,05	38,04	69,28	69,35		97,39
39,01	39,02	71,55			103,40
	43,20		72,30	103,99	104,05
44,28	44,23	72,97	73,08	106,75	
44,92	44,95	75,65	75,65		108,28
48,90	48,87	76,22	76,20	109,69	109,84
49,27	49,23	77,57	77,55	112,63	112,65
	50,34		77,83	113,06	113,00
56,16	56,20	78,47	78,50	114,08	

Notons également que les résonances à 17,05 et 102,1 eV, identifiées par Paya, n'ont pas été identifiées dans notre expérience ni dans celle d'Auchampaugh, remettant ainsi leur existence en cause.

#### Valeurs des paramètres de résonance :

Le rapport entre la largeur neutronique déterminée par ce travail et celle des différentes expériences précédentes est représenté, en dessous de 100 eV, en fonction de l'énergie sur la figure 105. Seules les résonances isolées (ou les mélanges ayant été identifiés de manière identique) sont comparées. De plus, nous n'avons représenté que les points dont l'incertitude (calculée à partir de l'incertitude totale sur les largeurs neutroniques) est inférieure à 5 %.

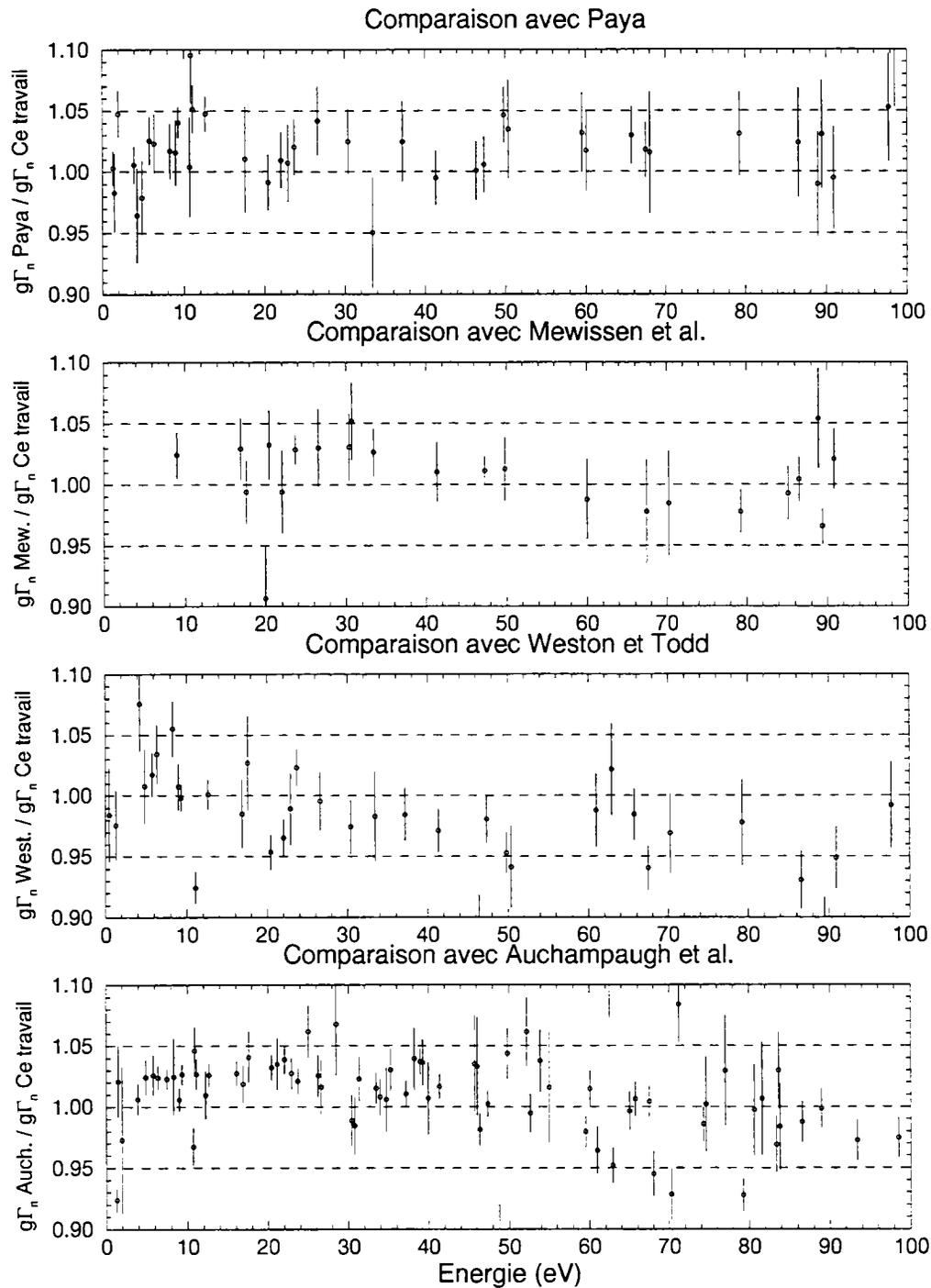


Fig.105 : Rapport des largeurs neutroniques, en fonction de l'énergie entre celles obtenues par les différentes expériences et les nôtres. L'incertitude sur les points est calculée à partir de l'incertitude totale sur les largeurs neutroniques. Seules les résonances identifiées de manière identique (notamment dans le cas de superpositions entre plusieurs d'entre elles) sont comparées et seuls les points dont l'incertitude est inférieure à 5 % sont représentés.

On peut voir qu'hormi pour l'expérience de Weston et Todd, nos données sont en moyenne 3 % inférieure à celles des autres en dessous de 50 eV. Cette même différence de 3 % existant entre nos expériences menées sur la base 2 avec l'échantillon SP96095 et celles menées sur la base 4 avec l'échantillon NS97048, nous avons été amené dans un premier temps à incriminer la composition exacte de ce dernier, aidé en cela par une quantité de thorium plus de 1000 fois supérieure à celle annoncée. C'est dans ce sens que nous avons tout d'abord présenté les résultats issus des expériences de la base 2 [153]. Toutefois, à la lumière des études effectuées sur la composition et l'homogénéité de l'échantillon NS97048, nous en venons maintenant à suspecter les expériences de la base 2 et l'épaisseur des échantillons utilisés sur cette base dont la composition isotopique est très mal connue. Dans l'attente d'une étude allant dans ce sens, nous considérons pour le moment (comme nous l'avons déjà spécifié auparavant) une erreur éventuelle de 3 % sur l'épaisseur des échantillons.

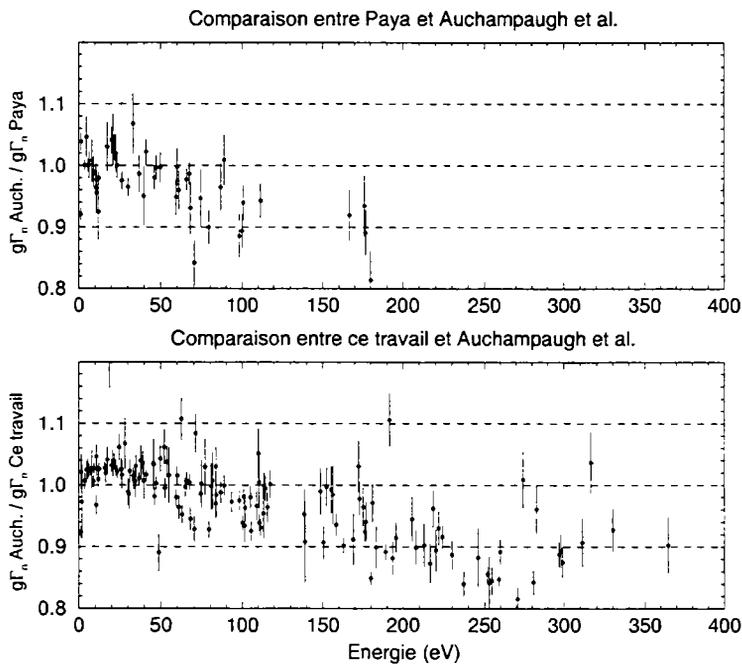


Fig.106 : Rapport des largeurs neutroniques, en fonction de l'énergie, entre celles obtenues par Auchampaugh et celles déterminées par Paya ou par ce travail. Incertitudes et sélection des points sont identiques à la figure précédente.

Entre 50 et 90 eV, les valeurs de Mewissen et al. diminuent pour devenir environ 2 à 3 % plus faibles que les nôtres (au delà de 100 eV, elles remontent légèrement mais l'incertitude devient trop grande pour y voir une tendance significative). Ce phénomène laisse entendre une erreur systématique dont l'origine peut être une

mauvaise détermination du bruit de fond dans cette plage d'énergie pour l'expérience de Mewissen et al. Un tel comportement n'apparaît pas sur les résultats de Paya. Un des objectifs d'une nouvelle mesure était de pouvoir valider le choix des valeurs de Paya plutôt que celle de Mewissen et al. lors de l'évaluation de JEF2.2 [58]. Ce choix semble approprié à condition de faire abstraction de la différence systématique de 3 % (ce qui n'est pas négligeable).

Comparées aux valeurs de Weston, les nôtres sont cette fois, à partir de 10 eV, supérieure de 2 à 3 %. Lors de l'évaluation JEF2.2, la différence entre les valeurs de Weston et celles de Paya avaient été attribuées à une erreur de normalisation, chose plus concevable pour une expérience de capture. Nos résultats se situant entre les deux, il est difficile de confirmer cette hypothèse.

Au delà de 50 eV, les valeurs d'Auchampaugh et al. diminuent progressivement. Le phénomène est nettement plus visible si on regarde le rapport des largeurs neutroniques sur la figure 106, pour une plage d'énergie plus étendue.

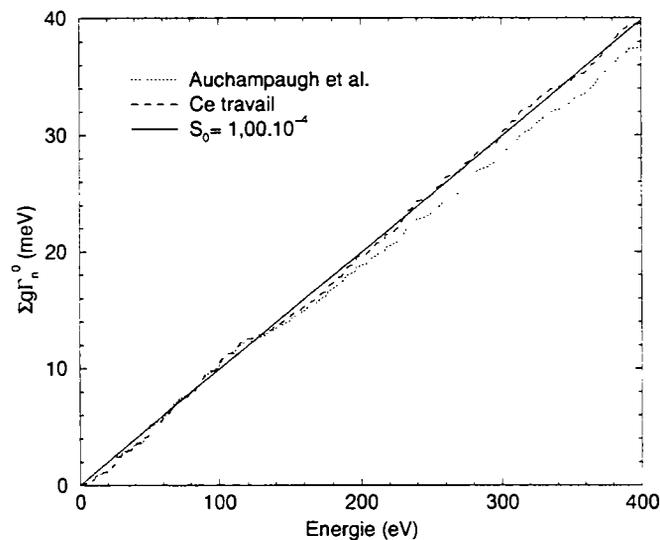


Fig.107 : Comparaison de l'histogramme des valeurs cumulées de  $g\Gamma_n^0$  en fonction de l'énergie pour nos résultats et ceux d'Auchampaugh et al.

Ce comportement étant le même comparativement aux données de Paya ou aux nôtres, il y a tout lieu de penser que les valeurs d'Auchampaugh et al. sont faussées par un effet systématique dépendant de l'énergie des neutrons, tel que bruit de fond ou résolution. A notre avis, les largeurs neutroniques données par Auchampaugh et al. et reportées dans le BNL-325 sont de ce fait sous-estimées d'en moyenne 10 % au delà de 100 -150 eV. Cette hypothèse est renforcée par l'histogramme des valeurs cumulées de  $g\Gamma_n^0$ , en fonction de l'énergie, pour nos résultats et ceux d'Auchampaugh

et al. Sur ces derniers, on peut observer au delà de 120 eV d'après la figure 107, une rupture de pente se traduisant par une diminution de la fonction  $S_0$ .

### 6.3.4 Les paramètres moyens

#### Espacement moyen :

La valeur expérimentale de l'espacement moyen de  $^{237}\text{Np}$  déterminée par Paya entre 0 et 40 eV est, avec 61 résonances :

$$\langle D \rangle = 0,67 \pm 0,05 \text{ eV} \quad (\text{V.74})$$

En effectuant un ajustement par la loi de Porter et Thomas sur une section efficace totale théorique, Paya arrive à la conclusion que l'espacement moyen doit plutôt être :

$$\langle D \rangle = 0,50 \text{ eV} \quad (\text{V.75})$$

Ainsi que nous l'avons déduit de nos résultats, Paya estime que les niveaux manquants proviennent de petites résonances se mélangeant à des résonances plus importantes et donc correspondent à de faibles espacements.

Mewissen et al. ont déterminé l'espacement moyen à partir d'un ajustement de la distribution des largeurs neutroniques réduites avec la loi de Porter et Thomas en dessous de 100 et 200 eV. Ils proposent ainsi :

$$\langle D \rangle = 0,74 \pm 0,06 \text{ eV} \quad (\text{V.76})$$

Cette valeur est trop élevée car elle est supérieure à l'espacement expérimental entre 8 et 40 eV pour cette expérience, valant avec 45 résonances :  $\langle D \rangle = 0,70 \text{ eV}$ .

Un ajustement par la loi de Porter et Thomas sur les données de Paya a été effectué par Derrien et Fort [58] en estimant le nombre de doublets et de niveaux manquants. La valeur obtenue et utilisée dans JEF2.2 est en accord avec celle déterminée expérimentalement par ce travail :

$$\langle D \rangle = 0,56 \pm 0,05 \text{ eV} \quad (\text{V.77})$$

Dans l'évaluation JENDL3.2, l'espacement moyen est celui donné par Weston et Todd. Il a été obtenu, ainsi que les autres paramètres moyens, par un ajustement de la section efficace moyenne de capture entre 100 eV et 200 keV :

$$\langle D \rangle = 0,45 \pm 0,10 \text{ eV} \quad (\text{V.78})$$

Auchampaugh et al. ont déterminé un nombre bien plus important de résonances et la valeur de l'espacement moyen doit donc être plus faible. Ils déterminèrent l'espacement moyen de deux manières. La première consista à utiliser un programme d'estimation de niveaux manquants, la seconde un traitement statistique [161]. Les deux valeurs obtenues sont respectivement :

$$\langle D \rangle = 0,51 \pm 0,03 \text{ eV} \quad (\text{V.79})$$

$$\langle D \rangle = 0,57^{+0,00}_{-0,02} \text{ eV} \quad (\text{V.80})$$

Le nombre cumulé de résonances en fonction de l'énergie est donné à titre d'illustration sur la figure 108.

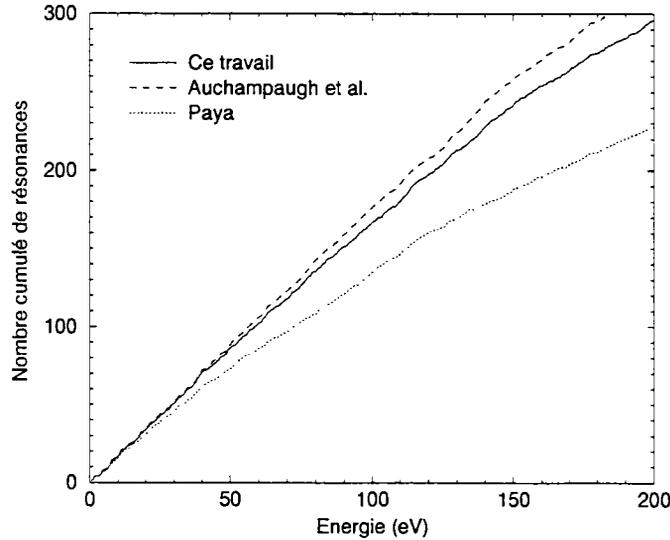


Fig.108 : Nombres cumulés de résonances en fonction de l'énergie obtenus à partir de nos résultats et avec ceux des expériences de Paya (JEF2.2) et d'Auchampaugh et al.

#### Fonction densité :

Les différentes valeurs de la fonction de densité  $S_0$  sont données dans le tableau 15.

Toutes ces valeurs sont en parfait accord entre elles. La valeur de Paya semble un peu surestimée du fait d'un choix un peu faible pour l'espacement moyen (0,50 eV) : la valeur de JEF2.2 correspond d'ailleurs à une correction de celle de Paya. Quant à la valeur de  $0,95 \pm 0,06$  obtenue en ajustant une droite passant par l'origine sur l'histogramme cumulé des valeurs de  $g\Gamma_n^0$  données par Auchampaugh et al. entre 0 et 400 eV, elle nous semble un peu sous-estimée. Ce sont les valeurs de la largeur neutronique des résonances que nous mettons en cause comme nous l'avons expliqué auparavant. Nous préférons de ce fait déterminer  $S_0$  entre 0 et 120 eV et obtenons  $1,01 \pm 0,11$ , une valeur très similaire à la nôtre.

La fonction densité pour les ondes "p" a été calculée pour l'évaluation ENDF/B-VI à partir des données de transmission de Paya dans le domaine non-résolu.

$$S_1 = 1,35 \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.81})$$

Tableau 15 : Comparaison des fonctions densité d'onde "s". La valeur d'Auchampaugh a été calculée dans ce travail par l'ajustement d'une droite sur l'histogramme cumulé des  $g\Gamma_n^0$  entre 0 et 120 eV d'une part et entre 0 et 400 eV d'autre part

Expériences	$S_0 \times 10^4$	Expériences	$S_0 \times 10^4$
Paya	$1,20 \pm 0,14$	Weston / JENDL3.2	$1,02 \pm 0,06$
Mewissen	$1,02 \pm 0,14$	Auchampaugh	$1,01 \pm 0,11 / 0,95 \pm 0,06$
JEF2.2	$0,99 \pm 0,12$	Ce travail	$1,00 \pm 0,07$

Tableau 16 : Comparaison de la largeur radiative moyenne déterminée par les différentes expériences

Expériences	$\langle \Gamma_\gamma \rangle$ (meV)	Expériences	$\langle \Gamma_\gamma \rangle$ (meV)
Paya / JEF2.2	$40,0 \pm 1,2$	Weston / JENDL3.2	40
Mewissen	$41,2 \pm 2,9$	Auchampaugh / BNL-325	$40,8 \pm 1,0$
Ce travail (Gaz libre)	$38,8 \pm 2,0$	Ce travail (DOPUSH)	$39,9 \pm 0,6$

Weston et Todd l'ont déterminée à partir du changement de pente de la section efficace de capture moyenne entre 10 et 40 keV [143] :

$$S_1 = (2,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.82})$$

En renormalisant les données de Weston et Todd sur celles de Paya dans le domaine des résonances, la valeur de  $S_1$  calculée par la référence [58] est :

$$S_1 = (1,82 \pm 0,20) \cdot 10^{-4} \quad (\text{V.83})$$

#### Largeur radiative moyenne :

Les différentes valeurs de la largeur radiative moyenne sont données dans le tableau 16.

L'utilisation du modèle cristallin harmonique dans REFIT, par le sous-programme DOPUSH, a permis de réduire considérablement l'incertitude sur la largeur radiative moyenne, cette incertitude comprenant une partie irréductible correspondant à la dispersion naturelle des largeurs radiatives. Malgré le faible nombre de résonances disponibles (8 résonances d'énergie inférieure à 7 eV), notre résultat est celui offrant la plus grande précision.

# Conclusion et perspectives

Nous avons montré au début de cet exposé que l'incertitude estimée de 10 % sur la section efficace de capture de  $^{237}\text{Np}$  a un impact notable pour la phase de conception de réacteurs dédiés à la transmutation / incinération des déchets nucléaires. La précision recherchée de ce fait sur la section efficace totale est de l'ordre de 1 % [14], au niveau de la phase d'évaluation. L'incertitude sur nos résultats et la comparaison avec les valeurs issues des autres expériences, nous amène à estimer une précision actuelle moyenne de l'ordre de 3 à 4 % donnée par ce travail et qui devrait pouvoir être améliorée dans un futur proche.

En effet, les expériences menées dans ce travail représentent pas moins de 7 mesures de transmission et 3 de capture effectuées auprès de GELINA. L'intercomparaison entre ces différentes mesures et l'amélioration de la compréhension des différentes sources d'erreurs systématiques pouvant les affecter, permet d'espérer une convergence des résultats et l'obtention d'une précision accrue.

De ce fait, un travail important a été consacré à l'étude de l'origine et de la forme du bruit de fond et de la résolution expérimentale permettant certaines avancées dans leur compréhension et leur prise en compte dans l'analyse. L'amélioration la plus marquante a cependant été au niveau de l'élargissement Doppler. En utilisant un modèle cristallin harmonique directement issu de la théorie de Lamb, plutôt que le modèle du gaz libre, la description de la forme des résonances à basse énergie ou basse température a été grandement améliorée. Les paramètres de résonance ont ainsi pu être corrigés, jusqu'à 7 eV, de l'écart introduit par la mauvaise description de l'effet Doppler.

Nous avons identifiés 570 résonances et fourni les paramètres de résonance entre 0,3 et 500 eV : le rayon de diffusion, la largeur neutronique de chaque résonance et la largeur radiative des principales résonances d'énergie inférieure à 15 eV.

-la valeur obtenue pour le rayon de diffusion semble légèrement trop élevée mais reste compatible avec les déterminations précédentes.

-un grand nombre de nouvelles résonances, par rapport à celles données dans les évaluations, a été identifié, ceci en accord avec les résultats d'Auchampaugh dans la plupart des cas.

-pour les largeurs neutroniques en dessous de 100 eV, nos valeurs sont situées en moyenne entre celles de JEF2.2 et JENDL3.2. Au dessus de 250 eV, seules existaient les valeurs d'Auchampaugh et al. et nous avons montré que celles-ci sont apparemment sous-estimées d'environ 10 %. Nos résultats semblent donner une description plus fiable du domaine des résonances, au moins entre 150 et 400 eV.

Ce travail s'est néanmoins également attaché à donner la section efficace totale moyenne entre 500 eV et 2 keV, une tendance sur la valeur du point thermique et les différents paramètres moyens.

-d'après notre étude, la valeur du point thermique semblerait plus proche de celle proposée par JENDL3.2 que par JEF2.2.

-nous avons déterminé l'espacement moyen  $\langle D_0 \rangle$  et la fonction densité  $S_0$  avec une des meilleures précisions, mais le résultat le plus intéressant concerne la largeur radiative moyenne. En effet, la meilleure description de l'élargissement Doppler a diminué de manière spectaculaire la dispersion observée des largeurs radiatives dont une partie lui était donc imputable. Même si limitée à 9 résonances d'énergie inférieure à 7 eV et contenant la dispersion naturelle des largeurs radiatives, la précision obtenue sur la largeur radiative moyenne a été améliorée de manière notable.

Il reste cependant beaucoup de travail à faire :

-résoudre l'écart systématique de 3 % observé entre les expériences menées sur la base 2 et la base 4. L'analyse de la composition et de l'homogénéité des échantillons utilisés sur la base 2 est a priori la première étape.

-réévaluer l'épaisseur d'oxygène présente dans l'échantillon NS97048, en fonction des résultats qui seront fournis par le laboratoire PSI et qui pourraient amener à modifier la valeur du rayon de diffusion ou de son incertitude.

-vérifier expérimentalement les hypothèses formulées sur l'origine du bruit de fond, son importance sur chaque base de vol et sa relation étroite avec la résolution expérimentale. Une tâche restant à accomplir serait une détermination du bruit de fond par la méthode de Moxon dans le cas des expériences menées sur la base 2.

-étudier plus avant la résolution expérimentale, notamment au niveau de la diffusion des neutrons dans l'environnement du détecteur. Par exemple, des mesures de transmission de plusieurs corps, ayant des résonances de largeurs totales différentes, pour diverses épaisseurs permettraient d'observer le comportement du bas de résonances noires à plusieurs énergies. Travailler à basse température sur des corps ayant des résonances de faible largeur totale, permettrait de plus d'observer (et donc de mieux ajuster) cette queue dans la résolution.

-analyser, après réduction des données, les expériences de capture afin de comparer les résultats à ceux de la transmission. Dans ce cas, une étude plus approfondie de la fonction de pondération de l'ensemble de détection apparaît nécessaire. De plus, un des échantillons est constitué d'un alliage métallique et par conséquent son élargissement Doppler devrait être différent, permettant de confronter les résultats provenant de structures cristallines différentes.

-corriger REFIT afin qu'il puisse tenir compte de la valeur des largeurs de fission.

-déterminer l'incertitude totale sur les paramètres au-delà de 120 eV. De plus, seule une analyse rapide a été effectuée dans cette plage d'énergie et il convient de procéder à une identification et à un ajustement plus soignés des résonances d'énergie supérieure à 120 eV.

-vérifier si la variation de la fonction  $S_0$  entre 400 et 500 eV est due à une mauvaise détermination des paramètres de résonance dans cette plage d'énergie.

-finaliser l'implantation de DOPUSH dans REFIT afin de pouvoir ajuster les résonances d'énergie supérieure à 7 eV. De plus, une analyse de la première résonance de  $^{238}\text{U}$  à l'aide de ce nouvel outil d'analyse semble particulièrement intéressant.

-confirmer la valeur du point thermique : pour cela, nous avons étudié la possibilité d'effectuer une mesure de transmission à Geel à très basse énergie, la limite inférieure de 0,3 eV dans nos mesures provenant de la résonance noire à 0,17 eV du filtre anti-recouvrement de cadmium. En se plaçant à une distance de vol de 10 m (base de vol numéro 5) et en utilisant un filtre d'euporium, il est possible de mesurer la transmission entre 0,02 et 0,3 eV avec des points de bruit de fond de part et d'autre.

-nous avons perdu beaucoup de niveaux au delà de 90 eV. Si des expériences futures doivent être envisagées sur ce corps, il serait possible d'extraire les paramètres de résonances jusqu'à 300 eV auprès de GELINA en ne perdant que très peu de niveaux, ce qui permettrait également d'améliorer de manière conséquente la connaissance de  $\langle D_0 \rangle$ . Pour cela, il faudrait travailler à basse température et à une distance de vol de 100 m. En effet, à 100 m, la résolution expérimentale reste inférieure à l'élargissement Doppler en dessous de 500 eV et nous aurions à 300 eV, la même résolution que celle que nous avons aujourd'hui à 90 eV dans le meilleur des cas (base 2 à une température de 15 K). Reste à savoir si une telle mesure de longue haleine (plusieurs mois d'acquisition du fait de la diminution du taux de comptage) apparaît nécessaire. Une autre possibilité peut également résider dans des mesures de capture effectuées auprès de la future installation "n-TOF", celle-ci offrant apparemment une résolution similaire pour les modérateurs dans cette gamme d'énergie, mais surtout une distance de vol de 200 m.

-améliorer la précision sur  $S_0$ . En effet, l'incertitude sur la fonction densité est une des sources majeures d'incertitude sur la section efficace de capture radiative moyenne. Par ce travail, nous donnons une incertitude équivalente à celle de Weston

et Todd qui était la plus précise à ce jour. Il serait possible de diminuer cette incertitude en augmentant le nombre de résonances considérés. Pour cela, une analyse des résonances jusqu'à 2 keV peut être envisagée, puisque  $S_0$  est assez peu sensible aux niveaux manquants. Une nouvelle expérience disposant d'une meilleure résolution serait néanmoins indiquée. Une autre solution consisterait à effectuer une mesure dans le domaine non-résolu, soit de quelques centaines de eV à quelques MeV. Dans les deux cas, la future installation "n-TOF" semble la plus indiquée, surtout si des mesures de transmission peuvent également être envisagées.

Enfin, pour un futur travail d'évaluation tenant compte de nos résultats, nous proposons de considérer également les valeurs d'Auchampaugh et al. En effet, ceux-ci ont la meilleure résolution de toutes les expériences entreprises jusqu'à ce jour et ont identifié un nombre de résonances encore supérieur à celui déterminé dans ce travail. S'il semble que les résultats d'Auchampaugh et al. soient affectés par un effet systématique entraînant une sous-estimation croissante des largeurs neutroniques en fonction de l'énergie, cet effet pourrait être corrigé en se renormalisant sur nos valeurs.

# Références

- [1] *Radioactive Waste Management In Perspective*, publié par la Nuclear Energy Agency, OCDE (1996).
- [2] J.P. Schapira, *Les différents aspects du cycle actuel, de l'extraction de l'uranium au stockage des déchets*, Ecole Joliot Curie de Physique Nucléaire (1996) 179.
- [3] *Informations utiles*, publié par la Direction de la Communication du CEA (1995).
- [4] Stéphanie Sala, Thèse de l'Université de Provence, 26 Juin 1995.
- [5] Annals of the ICRP, ICRP Publication 72, 26 (1996).
- [6] F. Lelievre, *Stratégies pour l'incinération de déchets nucléaires dans des réacteurs hybrides, thèse de docteur en Sciences*, Université Paris XI-Orsay (1998).
- [7] Ghislain de Marsily, *Les déchets nucléaires, un dossier scientifique*, édité par René Turlay aux éditions de physiques (1997), 203.
- [8] Loi n° 91-1381 du 30 décembre 1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs, Journal officiel de la République française, 1<sup>er</sup> janvier 1992, 10.
- [9] H. Takahashi and H. Rief, Proceedings of Specialist's Meeting on Accelerator-Based Transmutation, PSI Zurich (1992).
- [10] C. Raepsaet, *Nouvelle détermination expérimentale des paramètres de résonances neutroniques de  $^{99}\text{Tc}$* , thèse de docteur en Physique, Université d'Aix-Marseille I (1998).
- [11] C. Rubbia et coll., *Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier*, CERN/AT/95-44.
- [12] JEF2.2, OCDE NEA Databank (1992).
- [13] S. Ion, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste (1997) 18.

- [14] *The NEA high priority nuclear data request list - status in june 1997*, NEA Nuclear Science Comitee publications, NEA/NSC/DOC4(1997).
- [15] *Les recherches sur les actinides*, clefs CEA 31, édité par le CEA (1996).
- [16] T.H. Pigford, *Review of Modern Physics*, 50 , No. 1, Part II (Janvier 1998) p S1.
- [17] C.D. Bowman at al., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A320 (1992) 336.
- [18] Expert Group on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation Systems Studies, *Status and Assessment Report on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, NEA/PTS/DOC(98)6 (Novembre 1998).
- [19] H.Gruppelaar, J.L. Kloosterman, R.J.M Konings, *Advanced Technologies for the Reduction of Nuclear Waste*, Technical Report ECN-R—98-008, Netherlands Energy Research Fondation, Petten, The Netherlands (1998).
- [20] M. Coste, G.Mathonniere, R. Sanchez, Z. Stankovski, I. Zmijarevic, *Notice théorique APOLLO2*, Rapport DMT/93-581 SERMA/LENR/1535 (1993).
- [21] B. Boullis, *Les déchets nucléaires, un dossier scientifique*, édité par René Turley aux éditions de physiqués (1997) 69.
- [22] J.Bussac, P.Reuss, *Traité de neutronique*, Hermann (1985).
- [23] E. Fort, Cahier des charges concernant l'expérience de mesure des sections efficaces de  $^{237}\text{Np}$ , Communication privée (1995).
- [24] M. Salvatores, *Transactinide data requirements, benchmarking and uncertainty impact on transmutation devices*, Proceeding of International Symposium on Nuclear Data Evaluation Methodology, Brookhaven 12-16 October (1992) 200.
- [25] G. Palmiotti, M. Salvatores and R. N. Hill, *Data uncertainty impact in radiotoxicity evaluation connected to EFR and IFR systems*, Proceeding of International Conference GLOBAL'93, Seattle 12-17 September (1993) 461.
- [26] P.Reuss, *La neutronique*, Que sais-je ? n° 3307, édité par les Presses Universitaires de France (1998).
- [27] *Electronucléaire, une présentation par des physiciens*, publié par le CESEN, CEA-Saclay (1999).
- [28] A. Foderaro, *The elements of Neutron Interaction Theory*, édité par The Maple Press Co., (1971).
- [29] H. Tellier, *Réactions nucléaires induites par les neutrons*, édité par l'INSTN, (1989).

- [30] J.E. Lynn, *The theory of neutron resonance reactions*, édité par Oxford University (1968).
- [31] J. Chadwick, *Nature* **129** (1932) 312.
- [32] P. Reuss, *Eléments de Physique nucléaire à l'usage du neutronicien*, édité par l'INSTN (1987).
- [33] H. A. Bethe, *Physical Review* **47** (1935) 747.
- [34] P. B. Moon et R. Tillman, *Proc. R. Soc.* **153** (1936) 421
- [35] F. Rasetti, E. Segre, G. Fink, J. R. Dunning, G. B. Pegram, *Physical Review* **119** (1936) 2017.
- [36] N. Bohr, *Neutron capture and nuclear constitution*, *Nature*, **137** (1936) 344.
- [37] H. A. Bethe, *Review of Modern Physics*, **9** (1937) 69.
- [38] H. A. Bethe and G. Plavzek, *Physical Review*, **51** (1937) 450.
- [39] V. F. Weisskopf et E. P. Wigner, *Z. Physik*, **63** (1930) 54.
- [40] G. Breit et E. P. Wigner, *Physical Review*, **49** (1936) 519.
- [41] P. L. Kapur et R. E. Peierls, *Proceeding Royal Society*, **A166** (1938) 450.
- [42] E. P. Wigner et L. Eisenbud, *Physical Review*, **72** (1947) 29.
- [43] H. Feshbach, C. E. Porter et V. F. Weisskopf, *Physical Review* **90** (1953) 166.
- [44] R. S. Carter, J. A. Harvey, D. J. Hugues et V. E. Pilcher, *Physical Review* **96** (1954) 113.
- [45] H. H. Barschall, D. W. Miller, R. E. Fields et C. K. Bockelman, *Physical Review*, **85** (1952) 704.
- [46] H. Feshbach, D. C. Peaslee et V. F. Weisskopf, *Physical Review* **71** (1947) 145.
- [47] H. Feshbach, C. E. Porter et V. F. Weisskopf, *Physical Review* **96** (1954) 448.
- [48] A. M. Lane et C. Wandel, *Physical Review* **98** (1955) 1524.
- [49] D. M. Chase, L. Wilets et A. R. Edmonds, *Physical Review* **110** (1958) 1080.
- [50] A. M. Lane, R.G. Thomas et E. P. Wigner, *Physical Review* **98** (1953) 693.

- [51] C. E. Porter et R. G. Thomas, *Physical Review* **104** (1956) 483.
- [52] A. M. Lane et J. E. Lynn, *Nuclear Physic* **17** (1960) 563.
- [53] A. M. Lane et R. G. Thomas, *Review of Modern Physic*, **30** (1958) 257.
- [54] B. J. Allen, I. Bergqvist, R. E. Chrien, D. Gardner and W. P. Poenitz, *Neutron Radiative Capture*, OCDE / NEA, édité par R.E Chrien, Pergamon Press, Oxford (1984).
- [55] R. E. MacFarlane, R. W. Muir, *The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 91*, LA-12740-M (1994).
- [56] ENDF/B-VI, OCDE NEA Databank (1997).
- [57] Meyerhof, *Eléments de physique nucléaire*, édité par Dunod (1970).
- [58] H. Derrien et E. Fort, *Evaluation of the  $^{237}\text{Np}$  neutron cross section in the energy range from  $10^{-5}$  eV to 5 MeV*, International Conference on Nuclear Cross Sections for Technology, Knoxville, Tenn, USA (1979).
- [59] D. Paya, *Mise en évidence et étude d'une structure intermédiaire dans la section efficace de fission de  $^{237}\text{Np}$* , FRNC-TH-431, Thèse de docteur en Physique, université de Paris-Sud (1972).
- [60] S. Plattard, J. Blons et D. Paya, *Nuclear Science and Engineering* **61** (1976) 477.
- [61] G. F. Auchampaugh, M. S. Moore, J. D. moses, R. O. Nelson, C. E. Olsen, R. C. Extermann, N. W. Hill and J. A. Harvey, Los Alamos National Laboratory Report, LA-9756-MS (1983).
- [62] S. B. Borzakov, E. Dermendjiev, A. A. Goverdovsky, A. I. Kalinin, V. Yu Konovalov, I. Ruskov, S. M. Soloviev and Yu S. Zamyatnin, *Physics of Atomic Nuclei* **62** (1999) 872.
- [63] E. Dupont, *Mesures à haute résolution et étude de la réaction de diffusion inélastique de neutrons sur le  $^{56}\text{Fe}$* , Thèse de docteur en Physique, université de Provence (1998).
- [64] H. Derrien, *Etude des sections efficaces de réaction des neutrons de résonance avec  $^{239}\text{Pu}$* , Thèse de docteur en Physique, université de Paris-Sud (1973).
- [65] P. Blaise, *Théorie de la matrice-R et formalismes des sections efficaces*, CEA/DRN/DER report NT/SPRC/LEPH/94-MtxR (1994).
- [66] E. P. Wigner, *Physical Review*, **70** (1946) 606.

- [67] C. W. Reich et M. S. Moore, *Physical Review*, **111** (1958) 929.
- [68] M.C. Moxon, *REFIT, A Least Square Fitting Program for Resonance Analysis of Neutron Transmission and Capture Data*, Technical Report, AEA Industrial Technology, Harwell Laboratory, AEA-InTec-0470 (1991).
- [69] L. Zanini, *Neutron capture gamma-ray spectroscopy with  $^{107}\text{Ag}$ ,  $^{109}\text{Ag}$  and  $^{115}\text{In}$  for parity violation and nuclear structure studies*, Thèse de docteur en physique, université de Delft, Pays-Bas, ISBN 90-407-1731-1 (1998).
- [70] A. Gilbert et A. G. W. Cameron, *Canadian Journal of Physics*, **43** (1965) 1446.
- [71] E. Urba, U. Facchini et E. Saetta-Menichella, *Nuovo cimento*, **22** (1961) 1237.
- [72] T. D. Newton, *Canadian Journal of Physics*, **34** (1956) 804.
- [73] E. P. Wigner, *Proceeding of the International Conference on Neutron Physics by Time of Flight, Gatlinburg, Tennessee, ORNL report, ORNL-2309, (1956)*.
- [74] D. J. Hugues et J. A. Harvey, *Physical Review* **104** (1956) 483.
- [75] T. J. Krieger et C. E. Porter, *Journal of Math. Phys.* **4** (1963) 1272.
- [76] P. Axel, *Physical Review*, **126** (1962) 671.
- [77] D.F. Zaretskii et V.K. Sirotkin, *Yad. Fiz.*, **27** (1978) 1534.
- [78] S. F. Mughabghab, M. Divadeenam et N. E. Holden, *Neutron cross sections-Volume 1 : Neutron resonance parameters and thermal cross sections-Part A*, Brookhaven National Laboratory, édité par Academic Press (1981).
- [79] A. Bohr, *Actes de la conférence sur l'utilisation pacifique de l'énergie atomique, Genève, (1955)* 911.
- [80] D. L. Hill et J. A. Wheeler, *Physical Review*, **89** (1953) 1102.
- [81] D. Paya, H. Derrien, A. Fubini, A. Michaudon et P. Ribon, *Nuclear data for reactors 1*, Paris (1966) AIEA, Vienne, **2** (1967) 128 et supplément.
- [82] D. Paya, J. Blons, H. Derrien, A. Fubini, A. Michaudon et P. Ribon, *Journal de physique* **29**, Supplément n°1 (1968) 159.
- [83] H. Weigmann, *Z. Phys.*, **214** (1968) 7.
- [84] V. M. Strutinsky, *Nuclear Physics*, **6** (1973) 1.
- [85] S. F. Mughabghab, *Neutron cross sections-Volume 1 : Neutron resonance param-*

*ters and thermal cross sections-Part B*, Brookhaven National Laboratory, édité par Academic Press (1984).

- [86] A. W. Solbrig, *American Journal of Physics*, **29** (1961) 257.
- [87] *Particle Physics Booklet* (1994).
- [88] D. G. Naberejnev, *Etude de l'influence des liaisons cristallines sur l'absorption et la diffusion des neutrons aux énergies de résonances*, thèse de docteur en physique, université d'Aix-Marseille I (1998).
- [89] W. E. Lamb, *Physical Review*, **55** (1939) 190.
- [90] A. Michaudon, *Contribution à l'étude par des méthodes de temps de vol de l'interaction des neutrons lents avec l' $U^{235}$* , Thèse de docteur en physique de l'Université de Paris (1964).
- [91] C. Mounier et D. Naberejnev, *Etude de l'influence des liaisons cristallines sur les sections efficaces et les paramètres neutroniques*, rapport DMT/97-219 (1997).
- [92] K. Seidel, D. Seeliger, A. Meister, S. Mittag et W. Pitz, *Soviet Journal Part. Nucl.* **19** (1988) 132.
- [93] G. M. Borgonovi, D. H. Houston, J. U. Koppel et E. L. Slaggie, *Physical Review*, **1**, N6 (1970) 2054.
- [94] G. Dolling et Coll., *Canadian Journal of Physics*, **43** (1965) 8.
- [95] D. G. Naberejnev, C. Mounier et R. Sanchez, *Nuclear Science and Engineering*, **131** (1999) 222.
- [96] J. A. Young, *Nukleonik*, 12. Bd., Heft 5 (1969).
- [97] J. Rowland, JEF/DOC-555 (1995).
- [98] S. Cierjacks, *Neutron Sources For Basic Physics and Applications, An OECD/NEA Report*, édité par S. Cierjacks, Pergamon Press (1983).
- [99] *Nuclear Science and Engineering*, **106 et 107** (1990).
- [100] K.H. Böckhoff et al., *Nuclear Science and Engineering* **106** (1990) 192.
- [101] D. Tronc, J.M. Salomé and K.H. Böckhoff, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **228** (1985) 217.
- [102] J.M. Salomé and R. Cools, *Nuclear Instruments and Methods* **179** (1981) 13.

- [103] F. Gunsing, *The spins of resonances in reactions of neutrons with  $^{238}\text{U}$  and  $^{113}\text{Cd}$* , thèse de Docteur en Physique, Université de Delft, Pays-Bas, (1995).
- [104] E.R. Cohen and B.N. Taylor, *Review of Modern Physics*, **59** (1987) 1121.
- [105] H.J. Groenewold and H.Groendijk, *Physica* **13** (1947) 141.
- [106] M. C. Moxon and J.B. Brisland, *GEEL REFIT, A Least Square Fitting Program for Resonance Analysis of Neutron Transmission and Capture Data*, Technical Report, AEA Industrial Technology, Harwell Laboratory, AEA-InTec-0630 (1991).
- [107] C. Coceva, M. Magnani and D.K.Olsen, *Nuclear Instruments and Methods* **211** (1983) 459.
- [108] C. Mounier, C. Raepsaet, *Etude comparée des fonctions de SAMMY et REFIT. Besoins d'intégration de certaines fonctions de REFIT dans SAMMY*, DMT report SERMA/LENR/RT/98-2449/A.
- [109] M. C. Moxon, communication privée.
- [110] C. Coceva and M. Magnani, *Resolution Rotary Target*, IRMM internal report GE/R/ND/06/96 (1996).
- [111] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, deuxième édition par John Wiley & Sons, New York (1989).
- [112] S. A. Korff and W. E. Danforth, *Physical Review*, **55** (1939) 980.
- [113] N. Tsoulfanidis, *Measurement and Detection of Radiation*, édité par Taylor & Francis, seconde édition (1995).
- [114] *Scintillators For the Physical Sciences*, Brochure 126 P de Nuclear Enterprises (1980).
- [115] R. J. Ginther, *IRE Trans. Nuclear Science, NS-7*, **2 et 3** (1960) 28.
- [116] A. R. Spowart, *Nuclear Instruments and Methods*, **135** (1976) 441.
- [117] E. J. Fairlay and A. R. Spowart, *Nuclear Instruments and Methods*, **150** (1978) 159.
- [118] L. A.Wraight, D. H. C. Harris and P. A. Egelstaff, *Nuclear Instruments and Methods*, **33** (1965) 181.
- [119] N. W. Hill, J. A. Harvey, G. G. Slaughter, A. St. James, ORNL-4743 (1972) 137.
- [120] C. Coceva, *Nuclear Instruments and Methods*, **21** (1963) 93.

- [121] F. Corvi, H. Riemenschneider, T. Van Der Veen, *Flux Detector Intercomparisons : High Efficiency Detectors*, Proceedings on Advisory ... , IAEA-Tecdoc-335 (1984)
- [122] S. de Jonge, communication privée (1987).
- [123] *Data Acquisition System Manual*, CMTE-FAST Daten System, GmbH, Munich, Allemagne (1990).
- [124] M. C. Moxon, E. R. Rae, Proceedings of the International Conference on Neutron Time-of-Flight Method, Saclay, France (1961) 439.
- [125] E. L. Macklin, J. H. Gibbons, *Physical Review*, **159** (1967) 1007.
- [126] G. Fioni, *Resonance neutron capture in  $^{56}\text{Fe}$  and  $^{60}\text{Ni}$  below 300 keV*, thèse de Docteur en Physique, Université de Gand, Belgique, (1991).
- [127] F. Corvi, G. Fioni, F. Gasperini and P. B. Smith, *Nuclear Science and Engineering*, **107** (1991) 272.
- [128] C. Ingelbrecht, communication privée.
- [129] *Handbook of Chemistry and Physics*, édité par CRC Press, 62<sup>ème</sup> édition (1981).
- [130] J. K. Tuli, *Nuclear Wallet Cards*, 5<sup>ème</sup> édition, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, New York (1995).
- [131] C. Bastian, *Real-Time Multiparametric Analysis in a Single Processor*, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, **43-4** (1996) 2343.
- [132] C. Bastian, *Proceeding of International Symposium on Nuclear Data Evaluation Methodology*, Brookhaven 12-16 Octobre (1992) 642.
- [133] C. Bastian, *Proceeding of International Conference on Neutrons in Research Industry*, Crète, Grèce (1996) 611.
- [134] N. M. Larson, *Updated Users' Guide for SAMMY : Multilevel R-matrix Fits to Neutron Data using Bayes' Equations*, ORNL/TM-9179/R3 (1996).
- [135] R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, édité par Springer-Verlag (1992).
- [136] F. W. K. Firk et E. Melkonian, *Experimental Neutron Resonance Spectroscopy*, édité par J. A. Harvey (1970).
- [137] M. C. Moxon, *Input list for the program BACFITH*, Communication privée (1994).
- [138] M. C. Moxon, *Notes on the background determination in the Doppler measurements*,

- Rapport interne IRMM GE/R/ND/, Communication privée (1994).
- [139] A. Meister, H. Tagziria, A. Royer, H. Weigmann, C. Bürkholz et C. Van der Vorst, *Measurements to investigate the Doppler-broadening of  $^{238}\text{U}$  neutron resonances*, Rapport interne IRMM GE/R/ND/02/95, Communication privée (1995).
- [140] A. Brusegan, communication privée (1999).
- [141] E. L. Macklin, J. Halperin et R. R. Winters, *Nuclear Science and Engineering*, **81** (1982) 520.
- [142] F. H. Fröhner, *Applied Neutron Resonance Theory*, Winter courses on Nuclear Physics and Reactors - Part I : Nuclear Theory for Applications, International Centre for Theoretical Physics, Trieste, 16 Janvier-10 Février 1978.
- [143] L. W. Weston et J. H. Todd, *Nuclear Science and Engineering*, **79** (1981) 184.
- [144] N. M. Larson, *Introduction to the theory and Analysis of Resolved (and Unresolved) Neutron Resonances via SAMMY*, Rapport ORNL/M-6576 (1998).
- [145] E. Fort et J. P. Doat, ESTIMA - a code to calculate average parameter from sets of resolved resonance parameters, Rapport NEA-NDC 161 U (1983).
- [146] G. A. Keyworth et coll., *Physical Review C*, **8** (1973) 2352.
- [147] F. Gunsing, A. Leprêtre, C. Raepsaet, C. Mounier, F. Corvi,  $^{99}\text{Tc}$  (à paraître).
- [148] A. Meister, H. Tagziria, A. Royer, H. Weigmann, C. Bürkholz et C. Van der Vorst, *Measurements to investigate the Doppler-broadening of  $^{238}\text{U}$  neutron resonances - part 2*, Rapport interne IRMM GE/R/ND/01/96, Communication privée (1995).
- [149] A. Meister et al., International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste (1997) 435.
- [150] M. C. Moxon, *Doppler effects*, Rapport interne IRMM GE/R/ND/05/95, Communication privée (1995).
- [151] A. Meister, *Analysis of the Doppler broadening of the 0.5 eV neutron resonance in  $^{237}\text{Np}$* , Meeting on Neutron Resonance Doppler broadening, 21 November 1997, CE Saclay.
- [152] V. Gressier, A. Brusegan, K. Bürkholz, F. Gunsing, Z. Hudson, A. Leprêtre, E. Macavero, P. Ribon et P. Siegler, 5<sup>th</sup> International Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Mol, 25-27 Novembre (1998) 239.
- [153] V. Gressier, A. Brusegan, F. Corvi, F. Gunsing, A. Leprêtre, P. Ribon et P. Siegler,

3<sup>rd</sup> International Conference on Accelerator Driven Transmutation Technologies, Pruhonice 7-11 Juin (1999).

- [154] F. H. Fröhner, SESH, computer code, Rapport GA-8380 (1968).
- [155] W. Hauser et H. Feshbach, *Physical Review*, **87** (1952) 366.
- [156] F. H. Fröhner, *Nuclear Science and Engineering*, **103** (1989) 119.
- [157] F. H. Fröhner, B. Goel et U. Fischer, FITACS, computer code, Rapport ANL-83-4 (1983).
- [158] M. S. Smith, R. R. Smith, E. G. Joki et J. E. Evans, *Physical Review*, **107** (1957) 525.
- [159] L. Mewissen, F. Poortmans, E. Cornelis, G. Vanpraet, A. Angeletti, G. Rohr and H. Weigmann, *Nuclear Science and Engineering*, **70** (1979) 155.
- [160] K. Kobayashi, A. Yamanaka et I. Kimura, *Journal of Nuclear Science and Technology*, **31** (1994) 1239.
- [161] G. F. Auchampaugh, M. S. Moore, J. D. moses, R. O. Nelson, C. E. Olsen, R. C. Extermann, N. W. Hill and J. A. Harvey, *Physical Review C*, **29** (1984) 174.
- [162] M. L. Ter-Mikalian, *High energy electromagnetic processes in condensed media*, édité par Wiley Interscience (1972).
- [163] L. Wartski, *Etude du rayonnement de transition optique produit par des électrons d'énergie 30 à 70 MeV. Applications aux diagnostics de faisceaux de particules chargées*, Thèse de docteur en sciences de l'Université de Paris-Sud (1976).
- [164] A. Leprêtre et V. Gressier, Rapport interne IRMM, Communication privée (1998).

# ANNEXE A

## Les détecteurs

### 1 Définition de l'efficacité d'un détecteur

Un des paramètres les plus importants pour un détecteur est son efficacité. Il existe deux types d'efficacité : l'efficacité absolue et l'efficacité intrinsèque [111].

L'efficacité absolue  $\varepsilon_{abs}$  d'un détecteur est le rapport suivant :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{nombre d'impulsions enregistrées dans le détecteur}}{\text{nombre de particules émises par la source}} \quad (\text{A.1})$$

L'efficacité intrinsèque  $\varepsilon_{int}$  s'affranchi de l'angle solide entre le détecteur et la source en ne considérant que le nombre de particules atteignant le détecteur :

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{nombre d'impulsions enregistrées dans le détecteur}}{\text{nombre de particules atteignant le détecteur}} \quad (\text{A.2})$$

Dans le cas de nos expériences, l'efficacité absolue est redéfinie de la manière suivante :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{nombre d'impulsions enregistrées dans le détecteur}}{\text{nombre de neutrons incidents}} \quad (\text{A.3})$$

Les neutrons doivent d'abord interagir dans le détecteur pour donner naissance à des particules chargées détectables.

Nous proposons, pour des raisons de simplifications, de décomposer l'efficacité absolue  $\varepsilon_{abs}(E)$  d'un détecteur en deux efficacités :

-l'efficacité de réaction  $\varepsilon_R(E)$  : la probabilité qu'une particule d'énergie  $E$  interagisse dans le détecteur.

-l'efficacité  $\varepsilon_S(E)$  : la probabilité que cette interaction donne lieu à un signal en sortie du détecteur (un rayon gamma envoyé sur un photomultiplicateur par exemple).

L'efficacité absolue s'exprime alors comme :

$$\varepsilon_{abs}(E) = \varepsilon_R(E) \cdot \varepsilon_S(E) \quad (\text{A.4})$$

Dans de nombreuses références, le calcul de l'efficacité d'un détecteur de neutrons se limite à  $\varepsilon_R(E)$ . Dans la suite, nous veillerons autant que possible à distinguer les efficacités précédentes.

$\varepsilon_{abs}(E)$  n'est toutefois pas l'efficacité de l'ensemble de détection qui doit être multipliée pour cela par l'efficacité des différents éléments que traverse le signal une fois sorti du détecteur (notamment l'efficacité des photomultiplicateurs).

## 2 Les détecteurs de mesure du flux

### 2.1 Les moniteurs

#### 2.1.1 Description

Ce sont des compteurs proportionnels remplis de gaz  $\text{BF}_3$  fortement enrichi en  $^{10}\text{B}$  (plus de 90%) de type TGM 25. De forme cylindrique, la cathode est constituée par la paroi et l'anode par un fil central.

Appelés  $\text{BF}_3$  par commodité, ces détecteurs ont été développés en 1939 par Korff et Danforth [112]. Lorsqu'un neutron pénètre dans le gaz du détecteur, des particules  $\alpha$  et de lithium 7 sont produites par la réaction  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ , l'énergie  $Q$  de la réaction valant 2,78 MeV. Les particules  $\alpha$  ionisent alors fortement le gaz durant leur parcours dans le compteur. En sélectionnant uniquement les signaux de grande amplitude, il est possible de discriminer les comptages provenant des particules  $\alpha$  de ceux issus des rayonnements  $\beta$  ou  $\gamma$ . Ces détecteurs se présentent sous la forme de long cylindres et sont placés dans le plafond du hall des cibles de GELINA.

Si  $\varphi_{ref}$  est le flux de neutrons supposé uniforme au niveau du détecteur, fonction de l'énergie et du temps, vu par un des détecteurs  $\text{BF}_3$  durant un temps  $\Delta t$ , alors le nombre de coups  $N$  dans ce moniteur est donné par :

$$N = \iint_{\Delta E, \Delta t} \varphi_{ref}(E, t) \cdot \varepsilon_{\text{BF}_3}(E) \cdot dE \cdot dt \quad (\text{A.5})$$

avec

$E$ , énergie cinétique des neutrons.

$\varepsilon_{\text{BF}_3}(E)$ , efficacité du moniteur.

Les caractéristiques des compteurs  $\text{BF}_3$  utilisés sont : diamètre 2,54 cm (1"), longueur 63,2 cm (9,8 "), pression 1 atm, tension d'alimentation 1,6 kV.

#### 2.1.2 Efficacité

Une valeur approchée de l'efficacité  $\varepsilon_R(E)$  (dépendant de l'énergie cinétique  $E$  des neutrons) d'un tel détecteur peut être obtenue par l'équation (A.6), en faisant l'hypothèse que les neutrons arrivent tous parallèles, dans l'axe du détecteur, et qu'aucun neutron ayant réagi avec le matériel entourant le gaz ne peut être détecté [113].

Cette efficacité est considérée comme étant le produit entre trois termes :

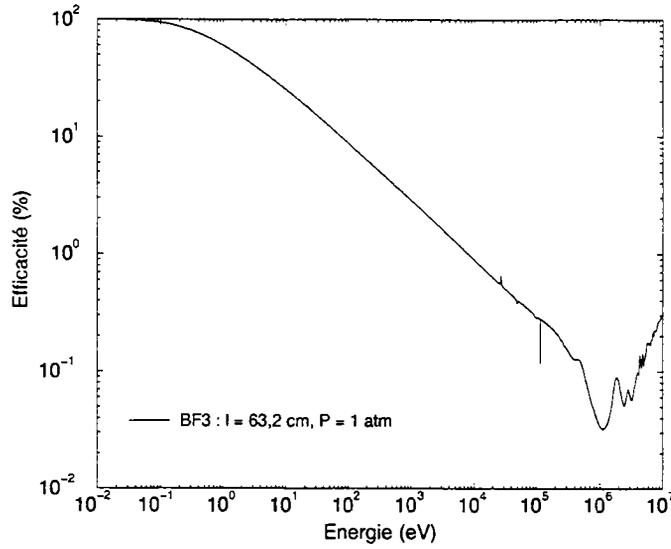


Fig.109 : Efficacité des compteurs proportionnels  $BF_3$  utilisés comme moniteurs du faisceau de neutrons.

-la probabilité pour un neutron d'énergie  $E$  de parvenir au détecteur, en traversant sans interaction l'enceinte du détecteur :  $T_{fen}(E)$

-la probabilité pour un neutron d'énergie  $E$  d'interagir dans le détecteur :  $(1 - T_{dét})$ .

-la probabilité pour que l'interaction du neutron d'énergie  $E$  dans le détecteur soit une réaction  $(n, \alpha)$  :  $\frac{\sum_{(n, \alpha)}(E)}{\sum_t(E)}$ .

Soit :

$$\varepsilon_R(E) = \frac{\sum_{(n, \alpha)}(E)}{\sum_t(E)} \cdot T_{fen}(E) \cdot (1 - e^{-l \sum_t(E)}) \quad (A.6)$$

$$\sum_t(E) = N(BF_3) \cdot (0,9 \cdot \sigma_t^{10B}(E) + 0,1 \cdot \sigma_t^{11B}(E) + 3 \cdot \sigma_t^F(E))$$

$$\sum_{(n, \alpha)}(E) \simeq N(BF_3) \cdot 0,9 \cdot \sigma_{(n, \alpha)}^{10B}(E)$$

avec

$\sum_t(E)$  section efficace totale macroscopique du gaz  $BF_3$  à l'énergie  $E$ , en  $cm^{-1}$ .

$\sum_{(n, \alpha)}(E)$  section efficace de réaction  $(n, \alpha)$  macroscopique du gaz  $BF_3$  à l'énergie  $E$ , en  $cm^{-1}$ .

$T_{fen}(E)$  transmission de la fenêtre du détecteur.

$T_{dét}(E) = e^{-l \sum_t(E)}$  transmission du détecteur.

$N(BF_3)$  nombre de molécules  $BF_3$  par unité de volume.

$\sigma_t^A$  section efficace totale microscopique de l'élément A, en barn.

$\sigma_{(n,\alpha)}^A$  section efficace de réaction (n,  $\alpha$ ) microscopique de l'élément A, en barn.

$l$  longueur du détecteur, en cm.

Pour obtenir l'allure de  $\varepsilon_R(E)$ , les différentes sections efficaces microscopiques ont été calculées par le code NJOY [55] à 300 K puis portées dans l'équation (A.6). En négligeant la transmission de la fenêtre, on obtient la figure 109.

L'efficacité  $\varepsilon_S(E)$  est celle de la détection de particules chargées produites au sein d'une chambre proportionnelle. Elle est donc pratiquement égale à 1[113] et l'efficacité absolue  $\varepsilon_{abs}(E)$  du détecteur est donc approximativement égale à  $\varepsilon_R(E)$ .

Les  $\text{BF}_3$  sont donc particulièrement sensibles aux neutrons lents et leur utilisation en tant que moniteur n'est envisageable que si les neutrons issus de la cible sont modérés.

Toutefois, étant gazeux, ces détecteurs nécessitent une épaisseur importante (plusieurs dizaines de cm), ce qui engendre une incertitude élevée sur la distance et un temps de réponse trop long (typiquement 3 à 5  $\mu\text{s}$  [111]) pour être utilisés dans des mesures de temps de vol. Aussi, leur préfère t'on des détecteurs solides à base de bore ou de lithium.

## 2.2 Les verres au lithium

### 2.2.1 Description

Les détecteurs utilisés sur les bases 2 et 4 sont tous deux des disques de silicate de lithium de 11 cm de diamètre dopé au cérium (élément scintillant) et enrichi à 7,7 % en lithium 6 (type NE912) [114].

Développé en 1960 par R. J. Ginther [115], le principe de ces détecteurs est le suivant : les neutrons pénétrant dans un verre au lithium réagissent avec les atomes de lithium 6 selon la réaction  ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$  libérant une énergie de 4,76 MeV. Les particules chargées produites sont des alphas et des tritons emportant respectivement 2,04 MeV et 2,72 MeV, si on néglige l'énergie cinétique des neutrons incidents. Ces particules chargées ionisent le verre durant leur parcours et les électrons ainsi créés peuvent atteindre des atomes de cérium, dans l'état  $\text{Ce}^{3+}$ , qui jouent le rôle d'élément scintillant [116]. Le rayonnement gamma de luminescence du cérium est ensuite récupéré par un ou plusieurs photomultiplicateurs.

### 2.2.2 Temps de réponse

Les caractéristiques et l'allure du temps de réponse de ces détecteurs ont été déterminés expérimentalement pour des neutrons thermiques [117]. Le signal présente un sommet entre 10 et 20 ns, puis une décroissance (due à la fluorescence des ions  $Ce^{3+}$ ) qui peut être décrite par deux décroissances exponentielles de 18 ns et 55 ns. Ces deux queues exponentielles sont utilisées par REFIT dans le calcul de la fonction de résolution du détecteur (voir figure 37). La référence [117] mentionne également la présence d'une queue de très faible amplitude s'étendant sur plusieurs microsecondes.

Ce temps de réponse relativement faible allié au grand nombre de sites de cérium, permet à ce détecteur d'être utilisé sous les flux de neutrons délivrés par GELINA.

### 2.2.3 Efficacité

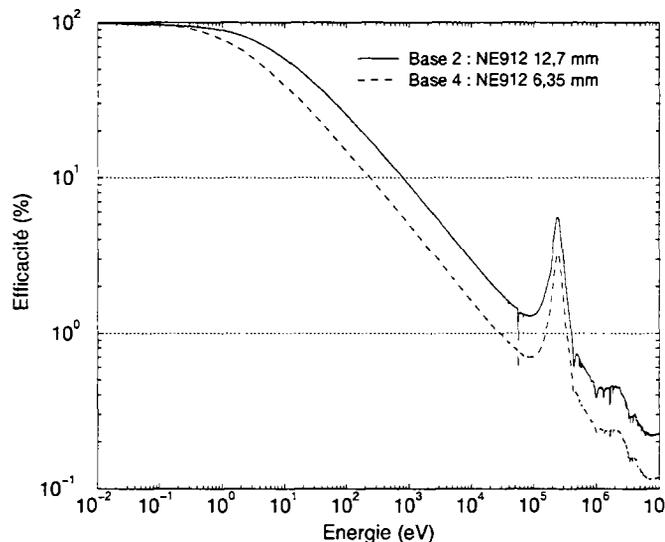


Fig.110 : Efficacité de réaction  $(n,\alpha)$  pour différentes épaisseurs de scintillateur en verre au lithium de type NE912 (7,76 % de lithium enrichi à 95 %). L'efficacité totale du détecteur peut être estimée en multipliant ces valeurs par 0,007.

Pour calculer l'efficacité  $\varepsilon_R(E)$  d'un tel détecteur, la référence [118] propose d'utiliser une équation très proche de l'équation (A.6), soit la probabilité d'interaction d'un neutron dans le détecteur multipliée par la probabilité pour que cette interaction soit une réaction  $(n,\alpha)$  avec le lithium 6. La composition exacte

et les caractéristiques du détecteur NE912 sont données dans les références [114] et [116]. Les NE912 sont composés, en masse, à 74,7 % de SiO<sub>2</sub>, 4,6 % de Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et 20,7 % de Li<sub>2</sub>O, le rapport total de lithium 6 étant de 7,73 % (lithium enrichi à 95 % en lithium 6). L'efficacité  $\varepsilon_R(E)$  du détecteur se calcule alors selon la formule approchée suivante :

$$\varepsilon_R(E) = \frac{\sum_{(n,\alpha)}(\sigma(E))}{\sum_t(E)} \cdot (1 - e^{-l \sum_t(E)}) \quad (\text{A.7})$$

avec, en négligeant la faible quantité de lithium 7 :

$$\sum_t(E) \simeq \rho \cdot 0,6022 \cdot \left[ 0,747 \cdot \frac{\sigma_t^{\text{Si}}(E)}{M_{\text{SiO}_2}} + \left( \frac{1,494}{M_{\text{SiO}_2}} + \frac{0,138}{M_{\text{Ce}_2\text{O}_3}} + \frac{0,207}{M_{\text{Li}_2\text{O}}} \right) \cdot \sigma_t^{\text{O}}(E) \right] \\ + 0,092 \cdot \frac{\sigma_t^{\text{Ce}}(E)}{M_{\text{Ce}_2\text{O}_3}} + 0,077 \cdot \frac{\sigma_t^{\text{Li}}(E)}{M_{\text{Li}_2\text{O}}}$$

$$\sum_{(n,\alpha)}(\sigma(E)) \simeq \rho \cdot 0,6022 \cdot 0,077 \cdot \frac{\sigma_{(n,\alpha)}^{\text{Li}}(E)}{M_{\text{Li}_2\text{O}}}$$

où :

$\rho$ , densité du détecteur : 2,4 g/cm<sup>3</sup> [114].

$\sum_t(E)$ , section efficace totale macroscopique à l'énergie E, en cm<sup>-1</sup>.

$\sum_t(E)$ , section efficace macroscopique de réaction (n,α) à l'énergie E, en cm<sup>-1</sup>.

$\sigma_t^{\text{A}}$ , section efficace totale microscopique de l'élément A, en barn.

$\sigma_{(n,\alpha)}^{\text{Li}}(E)$ , section efficace microscopique de la réaction (n,α) du lithium 6, en barn.

$M_{\text{A}}$ , masse atomique de l'élément A, en g.

$l$ , épaisseur du détecteur traversée par les neutrons, en cm.

Les sections efficaces microscopiques sont calculées comme précédemment à 300 K par le code NJOY et l'allure de l'efficacité  $\varepsilon_R(E)$  du scintillateur en verre au lithium NE912 pour deux épaisseurs (6,35 mm et 12,7 mm) est représentée sur la figure 110.

L'efficacité ainsi obtenue est similaire même si légèrement inférieure à celle donnée dans la référence [119] (verre au lithium enrichi à 95 % et de 12,7 mm d'épaisseur).

$\varepsilon_S(E)$  est la probabilité de conversion des particules  $\alpha$  et <sup>3</sup>H en un rayonnement gamma. Cette probabilité est le produit de la probabilité  $F$  de non-recombinaison des paires d'ions-électrons créées, de la probabilité  $P$  de transfert de l'énergie jusqu'aux sites dopés au cérium et de l'efficacité  $E$  de luminescence des ions Ce<sup>3+</sup>. En négligeant le fait que la valeur du flux de neutrons modifie la densité d'ionisation du verre, le produit  $F \cdot P \cdot E$  peut être considéré, pour un même type de détecteur, comme dépendant uniquement de l'énergie cinétique des particules chargées  $\alpha$  et <sup>3</sup>H avec :

$$E_{\alpha} + E_{3H} = Q + E_n \quad (\text{A.8})$$

où :

$E_{\alpha}$ , énergie cinétique des particules alphas.

$E_{3H}$ , énergie cinétique des tritons.

$Q$ , énergie de la réaction  $(n, \alpha)$  (4,76 MeV).

$E_n$ , énergie cinétique des neutrons.

A.R. Spowart a mesuré le produit  $F \cdot P \cdot E$  d'un détecteur NE912 de 1 mm d'épaisseur pour des neutrons thermiques. Il a trouvé une valeur de 0,007 [116]. Une estimation de  $\varepsilon_S(E)$  peut alors être :

$$\varepsilon_S(E) = 0,007 \cdot \frac{Q + E}{Q} \sim 0,007 \text{ (pour nos énergies)} \quad (\text{A.9})$$

Il suffit donc de multiplier les valeurs de la figure 110 par 0,007 (voir équation (A.4)) pour estimer l'efficacité absolue des détecteurs utilisés en transmission. Les NE912 possèdent l'efficacité  $\varepsilon_S(E)$  la plus faible des scintillateurs en verre, mais leur grand intérêt est d'avoir un verre nettement moins radioactif (car possédant moins de thorium et de potassium) et donc un bruit de fond naturel plus faible (20 désintégrations par minute pour 100 g de verre soit dix fois moins que pour les autres scintillateurs en verre [114]).

L'avantage de la transmission est d'être insensible à la dépendance énergétique de l'efficacité de l'ensemble détecteur-photomultiplicateur. En effet, l'efficacité s'élimine en faisant le rapport flux transmis sur flux incident.

#### 2.2.4 Discrimination des signaux

Le problème des scintillateurs en verre au lithium est leur grande sensibilité aux rayonnements gamma. Il convient en effet de séparer les signaux provenant de la réaction  $(n, \alpha)$  de ceux issus de rayonnements gamma. On utilise à cette fin, une discrimination sur l'amplitude du signal récupéré par les photomultiplicateurs [120]. Comme le montre la figure 111, les rayonnements gamma caractérisant la réaction  $(n, \alpha)$  ont une amplitude distribuée dans un pic situé entre les signaux de basses amplitudes correspondant au bruit de fond (électronique et gamma) et ceux de très grande amplitude correspondant au flash gamma (l'intense rayonnement gamma issu de l'interaction entre le faisceau d'électrons et la cible d'uranium). Les événements correspondant au flash gamma sont éliminés par une discrimination sur le temps de vol.

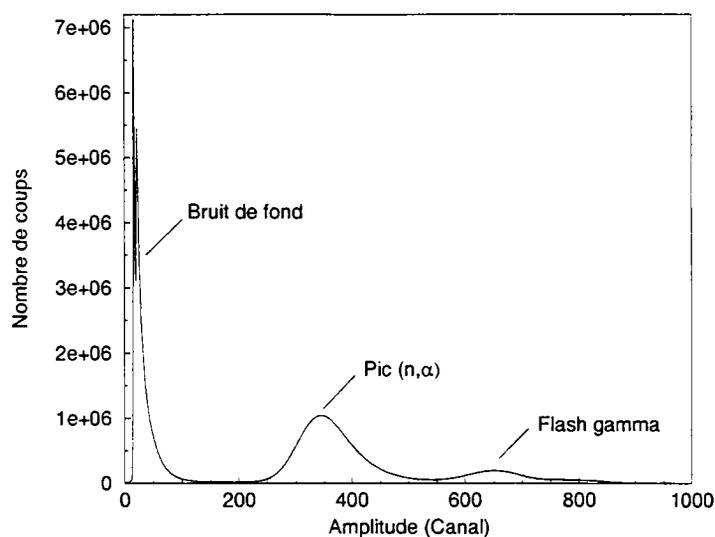


Fig.111 : Spectre d'amplitude des détecteurs utilisés en transmission avec, pour les bas canaux, le bruit de fond électronique et gamma, le pic  $(n,\alpha)$  entre les canaux 200 et 500, et enfin le pic du flash gamma aux plus hautes amplitudes. On notera que chacune des composantes se mêle aux autres d'où la présence du flash gamma et d'une partie du bruit de fond dans nos spectres de temps de vol.

### 2.2.5 Caractéristiques des détecteurs utilisés

Les détecteurs utilisés durant nos expériences sont tous les deux des NE912. Ils se différencient l'un de l'autre par leur dimension et les dispositifs placés autour d'eux.

-Détecteur de la base 2 :

Ce disque de verre au lithium de 300 g a une épaisseur de 12,7 mm ( $1/2''$ ) et un diamètre de 110 mm. Il est placé dans un cylindre en aluminium (chargé de maintenir l'ensemble détecteur-photomultiplicateurs et de limiter le nombre de rayonnements gamma venant de l'extérieur qui perturbent la mesure) contenant également de part et d'autre du détecteur un photomultiplicateur de type EMI 9823 KQB. Ce détecteur et son environnement sont schématisés de manière très simplifiée sur la figure 112.

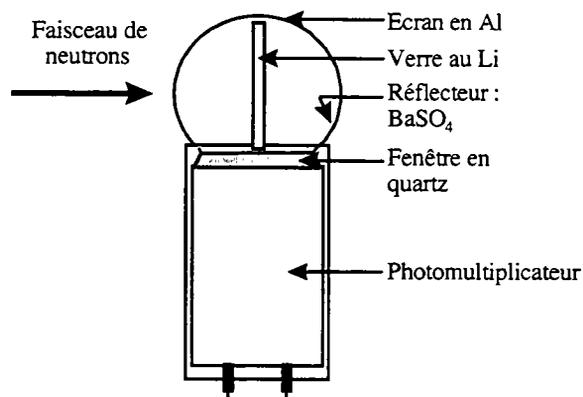
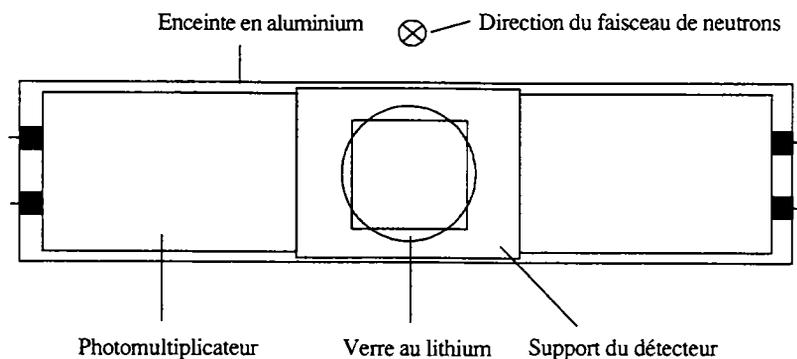


Fig.112 : Schéma simplifié du scintillateur en verre au lithium NE912 de la base 2 (figure du haut) et de la base 4 (figure du bas) [10] avec leur environnement.

-Détecteur de la base 4 :

C'est également un disque mais ses dimensions sont de 6,35 mm (1/4") d'épaisseur et 152,4 mm (6") de diamètre.

Il est placé dans une sphère d'aluminium de 98 mm de rayon. Ne possédant qu'un seul photomultiplicateur (de type EMI 9823 KQB) disposé perpendiculairement à la direction du faisceau et sous la sphère, la surface interne de cette dernière est revêtue de sulfate de baryum chargé de réfléchir les rayonnements gamma vers le photomultiplicateur.

Un schéma simplifié de ce détecteur est représenté sur la figure 112.

## 2.3 La chambre à ionisation à dépôt de bore-10

### 2.3.1 Description

Ce détecteur, cylindre de 18,2 cm de diamètre (dont seulement 8,4 cm sont remplis de gaz) et de 11,5 cm de long est une chambre à ionisation à double grille et dont la cathode est recouverte sur chaque face par un fin dépôt de bore-10 de  $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  d'épaisseur [121]. Un schéma du détecteur est donné sur la figure 113.

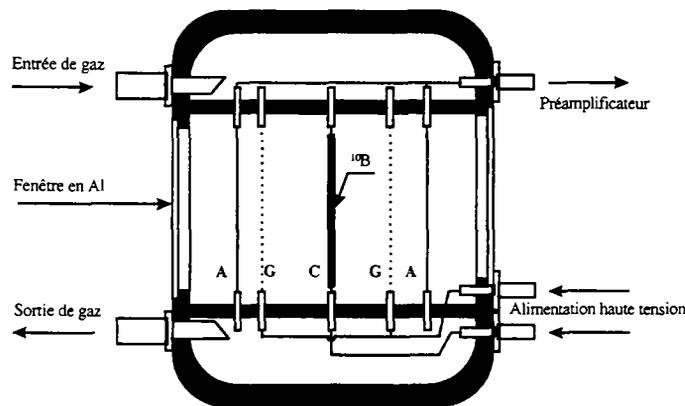
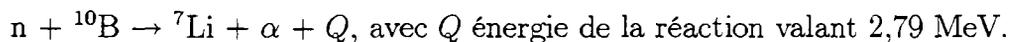


Fig.113 : Schéma simplifié de la chambre à ionisation à dépôt de bore utilisé comme détecteur de flux sur la base 15 (C = cathode, G = grille et A = anode) [10].

Afin de minimiser la perturbation du flux, la cathode, les anodes et les fenêtres sont constituées de feuilles d'aluminium de  $30 \mu\text{m}$  d'épaisseur et la grille est composée de fils en acier inoxydable de 0,1 mm de diamètre. Le détecteur est continuellement alimenté par un mélange gazeux constitué de 90 % d'argon et 10 % de méthane sous pression atmosphérique.

### 2.3.2 Principe de fonctionnement

Les neutrons interagissent avec le bore-10 déposé sur la cathode selon la réaction  $(n, \alpha)$  suivante :



Dans la majorité des cas, le lithium est dans un état excité et dans ce cas, la partie de  $Q$  se retrouvant sous forme d'énergie cinétique ne vaut que 2,31 MeV, les 0,48 MeV étant perdus dans l'émission d'un rayon gamma de desexcitation. Les

deux particules chargées sont pratiquement émises à  $180^\circ$  l'une par rapport à l'autre. Il y en a donc toujours une des deux qui est arrêtée dans l'aluminium de la cathode. Ensuite, c'est le fonctionnement classique d'une chambre à ionisation : la particule chargée emmène une portion de  $Q$  ( $7/11$  pour  $\alpha$ ,  $4/11$  pour  ${}^7\text{Li}$ ) sous forme d'énergie cinétique. Elle ionise alors le gaz, créant des paires d'ion-électron.

L'énergie déposée dans le détecteur aura donc principalement quatre valeurs qui se traduisent dans le spectre en amplitude du détecteur, représenté figure 114, par :

- un pic important à 0,84 MeV si l'énergie de la réaction ( $n, \alpha$ ) est déposée dans le détecteur par une particule  ${}^7\text{Li}$  créée dans un état excité.

- un pic beaucoup plus faible à 1,01 MeV dans le cas d'une particule  ${}^7\text{Li}$  créée dans son état fondamental.

- un pic important à 1,47 MeV pour une particule  $\alpha$  dans le cas d'une particule  ${}^7\text{Li}$  créée dans un état excité.

- un pic beaucoup plus faible à 1,78 MeV pour une particule  $\alpha$  dans le cas d'une particule  ${}^7\text{Li}$  créée dans son état fondamental.

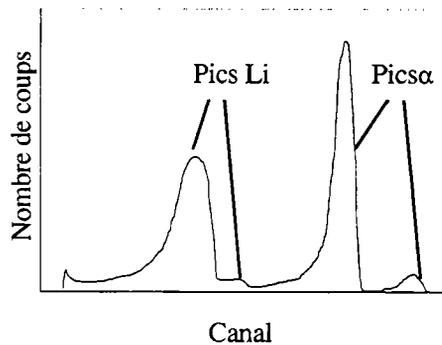


Fig.114 : Spectre d'amplitude de la chambre à ionisation à dépôt de bore-10 utilisée comme détecteur de flux dans les expériences de capture.

### 2.3.3 Temps de réponse

Les électrons sont d'ordinaire récupérés sur l'anode et les ions sur la cathode. Dans ce détecteur, une grille située entre l'anode et la cathode est portée à un potentiel intermédiaire pour diminuer le temps de réponse du détecteur. En effet, elle est située à 6 mm seulement de l'anode et seuls les électrons (ils ont tous été créés entre la grille et la cathode) se déplaçant entre la grille et l'anode donnent lieu à un signal sur l'anode.

Le temps de réponse de ce détecteur n'est pas donné, mais nous pouvons essayer de l'estimer par le temps nécessaire pour que tous les électrons soit collectés, c'est à dire le temps mis par les électrons pour parcourir l'espace entre la grille et l'anode (6 mm). La vitesse moyenne des électrons dans un mélange 90 % argon - 10 % méthane sous pression atmosphérique est environ de  $5 \cdot 10^4$  m/s [111]. Le temps de réponse de ce détecteur est donc de l'ordre de 100 ns, ce qui est bien plus élevé que pour les scintillateurs en verre au lithium utilisé en transmission ( $< 20$  ns), surtout que la chambre à ionisation ne peut traiter qu'un seul évènement à la fois. Toutefois, la rapidité de ce détecteur est suffisante vu le nombre de neutrons détectés.

### 2.3.4 Efficacité

Le calcul de l'efficacité de ce détecteur est similaire aux deux détecteurs précédents.

En considérant, une fois de plus, que tous les neutrons arrivent parallèles à l'axe du détecteur, la probabilité d'obtenir une réaction  $(n, \alpha)$  au niveau de la cathode s'exprime d'une façon similaire à l'équation (A.7) :

$$\varepsilon_R(E) = \frac{\sum_{(n,\alpha)}(E)}{\sum_t(E)} \cdot (1 - e^{-l \sum_t(E)}) \quad (\text{A.10})$$

avec

$$\begin{aligned} l \cdot \sum_{(n,\alpha)}(E) &= n_B \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10\text{B}}(E) \\ l \cdot \sum_t(E) &= n_B \cdot \sigma_t^{10\text{B}}(E) + n_{\text{Al}} \cdot \sigma_t^{\text{Al}}(E) \end{aligned}$$

où :

$l$ , épaisseur de la cathode et des dépôts de bore-10, en cm.

$n_B$ , épaisseur de bore-10 déposée sur la cathode, en atomes par barn.

$n_{\text{Al}}$ , épaisseur de la cathode en aluminium, en atomes par barn.

$\sigma_t^X(E)$ , section efficace totale du noyau X, en barn.

$\sigma_{(n,\alpha)}^{10\text{B}}(E)$ , section efficace de réaction  $(n, \alpha)$  du bore-10, en barn.

L'épaisseur de la cathode et la section efficace de l'aluminium étant faibles, l'approximation suivante est faite dans la gamme d'énergie de nos expériences :

$$l \cdot \sum_t(E) \simeq n_B \cdot \sigma_t^{10\text{B}}(E) \simeq n_B \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10\text{B}}(E) \simeq l \cdot \sum_{(n,\alpha)}(E) \quad (\text{A.11})$$

L'épaisseur de bore-10 est elle-même très faible ( $4,8 \cdot 10^{-6}$  at/barn). La valeur de la section efficace totale du bore-10 étant inférieure à 4000 barns au dessus de 0,1 eV, on a  $l \cdot \sum_t(E) < 0,02$ .

On peut donc effectuer un développement limité au premier ordre de l'exponentielle dans l'équation (A.10).

Finalement, l'efficacité de réaction du détecteur s'écrit :

$$\varepsilon_R(E) \simeq n_B \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10\text{B}}(E) \quad (\text{A.12})$$

La probabilité  $\varepsilon_S(E)$  de conversion d'un évènement de réaction  $(n, \alpha)$  en un signal en sortie du détecteur peut être considérée comme étant égale à 1, à condition que l'intervalle moyen entre deux évènements soit inférieur à 100 ns, ce qui est amplement vérifié (le nombre moyen d'évènements par centaine de nanoseconde, pour des neutrons dont le temps de vol est compris dans un intervalle de 100 ns, est de l'ordre de  $10^{-9}$  dans notre plage d'énergie, valeur obtenue en utilisant l'équation (III.16) avec une surface du détecteur égale à  $55 \text{ cm}^2$ ).

L'efficacité absolue  $\varepsilon_{abs}(E)$  de la chambre à ionisation à dépôt de bore est donc :

$$\varepsilon_{abs}(E) = \varepsilon_S(E) \cdot \varepsilon_R(E) \simeq n_B \cdot \sigma_{(n,\alpha)}^{10\text{B}}(E) \quad (\text{A.13})$$

L'efficacité de réaction de la chambre à ionisation à dépôt de bore-10 est représentée sur la figure 115.

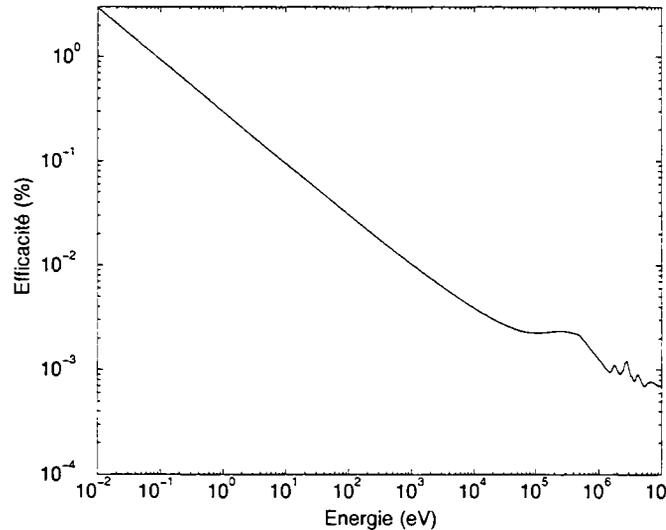


Fig.115 : Efficacité de la chambre à ionisation à dépôt de bore-10 utilisée comme détecteur de flux dans les expériences de capture sur la base 15.

### 3 Les détecteurs de rayonnement gamma

Les seuls détecteurs de rayons gamma utilisés dans nos mesures sont ceux entrant dans le dispositif de détection des expériences de capture, les scintillateurs  $C_6D_6$ .

#### 3.1 Définition des efficacités

L'efficacité de tels détecteurs est différente des détecteurs de neutrons, car les rayons gamma ne sont pas créés au sein du détecteur mais de l'échantillon. De plus, ce que nous cherchons à déterminer n'est pas l'efficacité du détecteur pour des rayons gamma d'énergie définie, mais l'efficacité d'un ensemble de détection (composé de deux  $C_6D_6$ ), pour des neutrons d'énergie  $E$  arrivant sur l'échantillon. Dans ce cas, l'efficacité de réaction  $\varepsilon_R(E)$  est la probabilité pour un neutron d'énergie  $E$  de subir une réaction de capture radiative dans l'échantillon.  $\varepsilon_R(E)$  est totalement indépendant du système de détection et ne sera fonction que des caractéristiques de l'échantillon :

$$\varepsilon_R(E) = \frac{\sum_{(n,\gamma)}(E)}{\sum_t(E)} \cdot (1 - T(E)) \quad (\text{A.14})$$

avec

$\sum_{(n,\gamma)}(E)$ , section efficace de capture radiative macroscopique de l'échantillon.

$\sum_t(E)$ , section efficace totale macroscopique de l'échantillon.

$T(E)$ , transmission de l'échantillon.

La probabilité qu'un évènement de capture radiative pour un neutron d'énergie  $E$  soit détecté correspond à l'efficacité  $\varepsilon_s(E)$  défini pour la transmission notée  $\varepsilon_{cap}(E)$  pour l'expérience de capture.

$\varepsilon_{cap}(E)$  est reliée à  $\varepsilon(E_{\gamma_i})$ , l'efficacité absolue du dispositif de détection pour un rayon gamma d'énergie  $E_{\gamma_i}$ , par l'équation (III.53), rappelée ici :

$$\varepsilon_{cap}(E) = \sum_i P_i(E) \cdot \varepsilon(E_{\gamma_i})$$

avec

$P_i(E)$ , probabilité d'émission d'un rayon gamma d'énergie  $E_{\gamma_i}$  dans une cascade résultant d'un évènement de capture radiative pour un neutron d'énergie  $E$ .

Dans cette annexe, l'intérêt sera porté uniquement sur l'efficacité  $\varepsilon(E_{\gamma_i})$ . L'obtention de  $\varepsilon_{cap}(E)$  est expliquée dans la partie 5.3 du chapitre III.

## 3.2 Les scintillateurs liquides $C_6D_6$

### 3.2.1 Description

La détection des rayons gamma dans nos expériences de capture est assurée par des scintillateurs liquides non hydrogénés (et ainsi moins sensibles aux neutrons) de type NE230. Le liquide scintillant, le benzène deutéré ( $C_6D_6$ ), est contenu dans une cellule cylindrique en aluminium de type BA1 de 10,6 cm de diamètre interne et 7,6 cm de longueur interne (voir référence [114] pour plus de détails sur les caractéristiques du liquide scintillant et les cellules). Le scintillateur est couplé à un photomultiplicateur de type EMI KQB 9823 comme indiqué sur la figure 116.

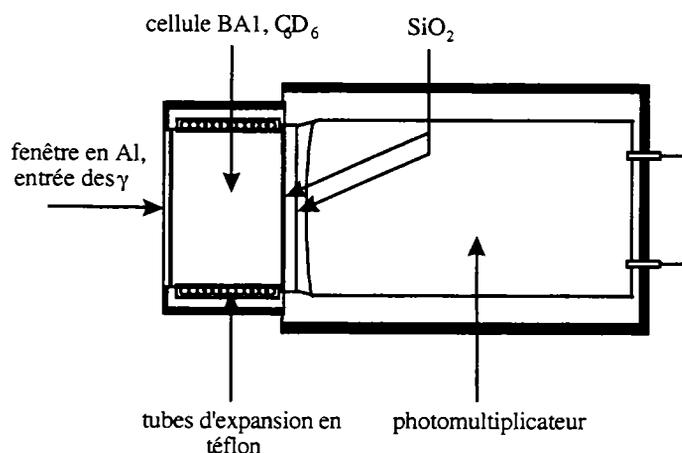


Fig.116 : Schéma simplifié des scintillateurs liquides de type  $C_6D_6$  et de leur environnement immédiat [10].

Les rayons gamma peuvent interagir de trois façons dans le scintillateur : par effet Compton (largement prédominant pour ce détecteur), par effet photoélectrique (très faible) et par effet de paire (négligeable dans notre cas). Le résultat de cette interaction est la production de rayons gamma secondaires et d'électrons qui vont également donner naissance (du fait des propriétés scintillantes du benzène deutéré) à des photons. Une partie de ces photons est récupérée par le photomultiplicateur et transformée en signal.

Le spectre en amplitude de ce détecteur, représenté figure 117, est donc principalement un spectre dû à des diffusions Compton simples et multiples.

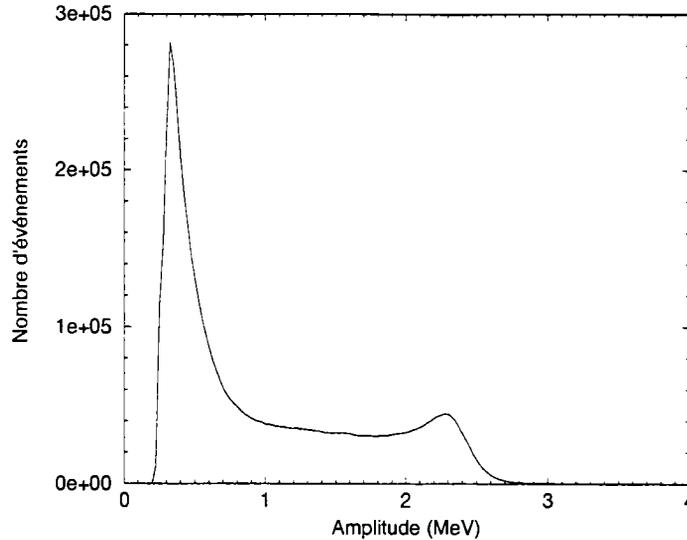


Fig.117 : Réponse amplitude des détecteurs de type  $C_6D_6$ , avec un seuil de coupure à 300 keV.

Ces détecteurs ne sont pas appropriés pour un rôle de spectroscopie gamma, mais sont utilisés dans nos mesures pour leur très faible sensibilité aux neutrons [126], par la possibilité qu'ils offrent de pouvoir leur appliquer une fonction de pondération (rendant l'efficacité de détection d'une capture radiative indépendante de la résonance considérée et du rayon gamma détecté dans la cascade de désexcitation) et leur temps de réponse très rapide.

### 3.2.2 Temps de réponse

Le temps de décroissance de la réponse des NE230 est de 3 ns [114]. Les  $C_6D_6$  font donc partie des scintillateurs liquides les plus rapides. Seuls les scintillateurs organiques plats offrent mieux avec des temps de décroissance proche de 2 ns.

### 3.2.3 Efficacité

#### Efficacités d'un $C_6D_6$ (calculs Monte Carlo)

Les efficacités d'un détecteur  $C_6D_6$ , ayant une fenêtre d'entrée en aluminium d'1 mm d'épaisseur, pour des rayons gamma et des électrons mono-énergétiques ont été calculées par Fioni [126] et sont représentées figure 118.

On peut voir sur cette figure que l'efficacité de détection des électrons est très supérieure à celle de rayons gamma de même énergie à partir de 1 MeV (en dessous, le fenêtre en aluminium arrête en bonne partie les électrons). Par conséquent, l'efficacité totale du détecteur pour un rayon gamma d'énergie définie va dépendre

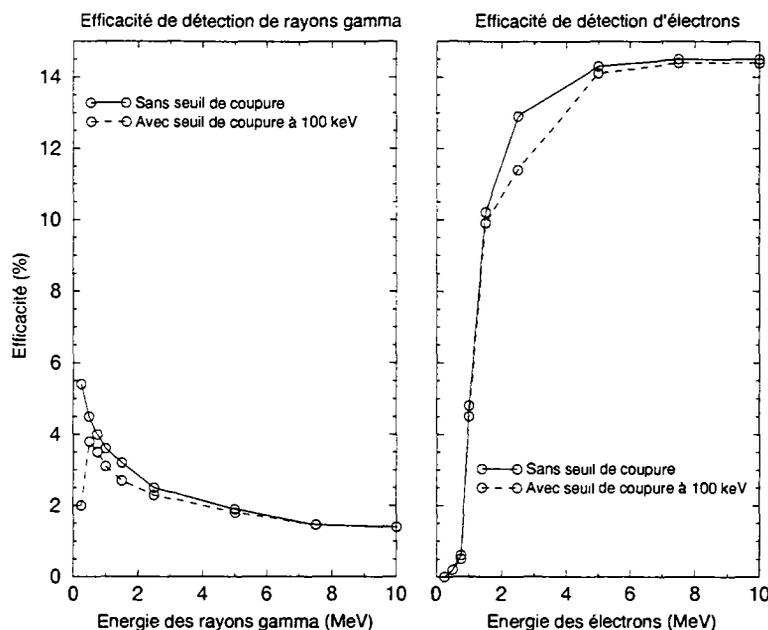


Fig.118 : Efficacités d'un scintillateur liquide  $C_6D_6$ , ayant une fenêtre d'entrée en aluminium de 1 mm d'épaisseur, pour des rayons gamma et des électrons mono-énergétiques avec et sans seuils de coupure à 100 keV [126].

non seulement du rayon gamma provenant de l'échantillon mais également des électrons produits par ce rayon gamma.

Ces électrons de haute énergie peuvent être produits en deux endroits principaux :

- dans l'échantillon lui-même lors de l'interaction entre des rayons gamma énergétiques de désexcitation et les atomes de l'échantillon.

- dans les écrans de plomb, lors du passage de rayons gamma ou d'électrons provenant de l'échantillon.

L'efficacité de détection  $\varepsilon(E_{\gamma_i})$  d'un rayon gamma d'énergie  $E_{\gamma_i}$  issu d'un évènement de capture radiative dépend donc des caractéristiques du détecteur, mais aussi de l'échantillon et des matériaux disposés entre l'échantillon et les détecteurs. Considérer l'efficacité du détecteur seul n'a donc que peu d'intérêt et c'est l'efficacité de l'ensemble de détection des rayons gamma (l'échantillon, les deux  $C_6D_6$  et leurs écrans de plomb) qu'il faut chercher à déterminer.

Efficacité  $\varepsilon(E_{\gamma_i})$  du système de détection :

L'efficacité de détection d'un rayon gamma d'énergie a été déterminée expérimentalement dans la référence [127] et est représentée sur la figure 119. Des rayons gamma d'énergie bien définie ont été obtenus par réaction  $(p, \gamma)$  sur différentes cibles très minces déposées sur 0,3 mm de tantale. Ce dispositif permet de simuler expérimentalement la création de ces rayons gamma à la surface d'une

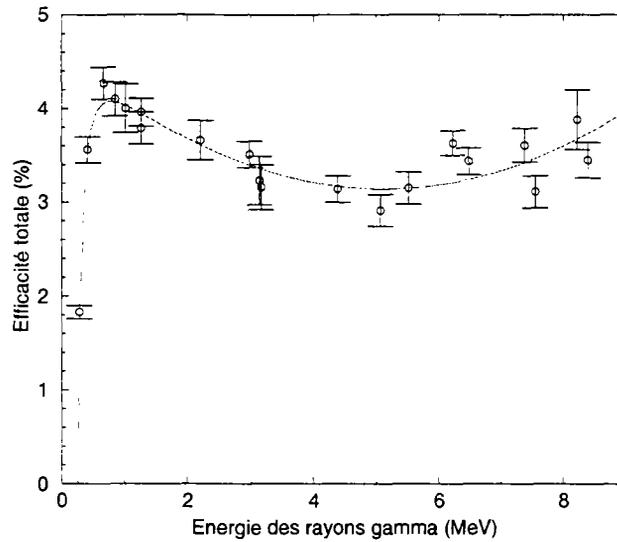


Fig.119 : Efficacité  $\varepsilon(E_{\gamma_i})$  de détection d'un rayon gamma d'énergie  $E_{\gamma_i}$  créé dans 0,3 mm de tantale pour deux détecteurs  $C_6D_6$  en coïncidence avec un seuil de coupure de 100 keV et sans écrans de plomb [127].

cible de tantale de 0,3 mm, ce qui est comparable à la création de ces rayons gamma à la surface d'une cible de fer d'environ 1 mm d'épaisseur [126].

Cette efficacité  $\varepsilon(E_{\gamma_i})$  est donc dans le cas de nos expériences de capture, uniquement applicable à un dispositif de détection des gamma par deux  $C_6D_6$  fonctionnant avec un seuil en amplitude de 100 keV, sans écrans de plomb et pour un échantillon de tantale de 0,3 mm d'épaisseur ou de fer de 1 mm d'épaisseur. Si le premier point est vérifié dans notre configuration expérimentale, aucune des autres conditions est remplie. Il faudrait pour ce faire, soit déterminer l'efficacité de manière expérimentale pour notre configuration, soit la calculer par la méthode présentée dans la référence [126].

# ANNEXE B

## Les échantillons

### 1 Echantillons pour les mesures de transmission

#### 1.1 Echantillons SP96094 et SP96095

##### 1.1.1 Description

Le dioxyde de neptunium a la même origine pour ces deux échantillons. Nous ne possédons pas l'analyse chimique et isotopique de la composition de ce dioxyde de neptunium, aussi l'avons nous considéré, à la vue de la compatibilité des résultats avec les expériences précédentes, comme pur. D'après différentes analyses effectuées sur du dioxyde de neptunium [128], le rapport stoechiométrique peut être considéré comme :

$$\frac{m_{^{237}\text{Np}}}{m_{\text{NpO}_2}} = 87,8 \pm 0,5 \% \quad (\text{B.1})$$

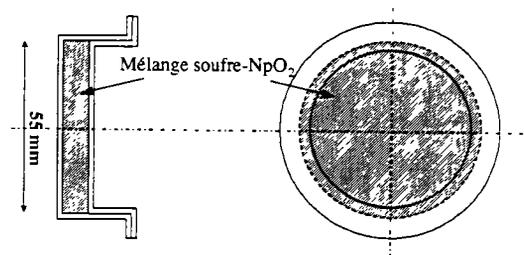


Fig.120 : Schéma simplifié de la boîte en cuivre contenant le mélange soufre-dioxyde de neptunium des échantillons SP96094 et SP96095.

Le rapport donné par l'équation (B.1) n'est pas égal à celui des masses atomiques du fait de plusieurs arrangements possibles du neptunium avec l'oxygène notamment sous forme  $\text{Np}_3\text{O}_8$  [129]. L'incertitude attribuée correspond à celle obtenue lors des analyses de la composition de notre échantillon le plus épais (NS97048, voir ci-dessous).

Le dioxyde de neptunium est ici mélangé à du soufre, puis compressé sous 20 t. En effet, pour des échantillons minces comme ceux-ci, un tel mélange permet d'obtenir une répartition plus homogène du dioxyde de neptunium sur toute la surface de l'échantillon. De plus, la première résonance du soufre n'étant qu'à 13 keV, cet élément ne perturbera pas nos mesures autrement que par une très légère atténuation du flux. Le mélange soufre-dioxyde de neptunium est contenu dans une boîte en cuivre dont les parois font 1 mm d'épaisseur. Le mélange soufre-dioxyde de neptunium est réparti de manière homogène sur un disque de 55 mm de diamètre (voir figure 120).

Ces échantillons étant destinés à être refroidis (d'où l'utilisation d'une boîte en cuivre ayant une très bonne conductivité thermique) dans une enceinte où un vide primaire est pratiqué, une grande attention a été portée à son herméticité.

L'échantillon SP96094, ayant une épaisseur de neptunium d'environ  $0,2 \text{ g/cm}^2$ , est le plus mince que nous ayons utilisé et est dédié principalement à l'étude des grandes résonances pour l'effet Doppler. Pour les autres échantillons, les grandes résonances du neptunium situées à basse énergie sont pratiquement noires (transmission proche de 0). Elles sont alors plus sensibles au bruit de fond amenant une précision moindre sur les paramètres de résonance et compliquant l'étude de l'effet Doppler qui s'intéresse essentiellement à la forme de la résonance.

L'échantillon SP96095, d'épaisseur proche de  $1 \text{ g/cm}^2$ , permet de mieux voir les petites résonances et donc de pouvoir, à statistique égale, obtenir des résultats plus précis sur celles-ci.

Notons également que la boîte, appelée "dummy" (SP96111), utilisée pour les mesures dans la position OUT, n'est pas vide mais possède une quantité de soufre très proche de celle contenue dans les échantillons.

### 1.1.2 *Épaisseur des différents éléments*

Les informations données sur l'échantillon sont les suivantes [128] :

-échantillon SP96094 : 5,3366 g de  $\text{NpO}_2$  (soit d'après l'équation (B.1), 4,687 g de  $^{237}\text{Np}$  et 0,633 g d'oxygène) et 37,4000 g de soufre.

-échantillon SP96095 : 26.5390 g de  $\text{NpO}_2$  (soit 23,260 g de  $^{237}\text{Np}$  et 3,232 g d'oxygène) et 33,6500 g de soufre.

-dummy (SP96111) : 36,9856 g de soufre.

Tableau 17 : Epaisseurs des éléments contenus dans les différents échantillons utilisés dans les expériences de transmission.

Echantillon	Elément	Masse (g)	Epaisseur (g/cm <sup>2</sup> )	Epaisseur (at/barn)
SP96094	<sup>237</sup> Np	4,69 ± 0,03	0,196 ± 0,001	(4,97 ± 0,03)·10 <sup>-4</sup>
	<sup>16</sup> O	0,63 ± 0,03	0,027 ± 0,001	(1,03 ± 0,04)·10 <sup>-3</sup>
	S	37,284	1,57	2,95·10 <sup>-2</sup>
SP96095	<sup>237</sup> Np	23,26 ± 0,14	0,979 ± 0,005	(2,49 ± 0,02)·10 <sup>-3</sup>
	<sup>16</sup> O	3,23 ± 0,14	0,136 ± 0,005	(5,12 ± 0,20)·10 <sup>-3</sup>
	S	33,59	1,414	2,66·10 <sup>-2</sup>
SP96111	S	36,986	1,431	2,92·10 <sup>-2</sup>
NS97048	<sup>237</sup> Np	38,90 ± 0,21	1,981 ± 0,011	(5,03 ± 0,03)·10 <sup>-3</sup>
	<sup>16</sup> O	5,46 ± 0,22	0,278 ± 0,011	(1,04 ± 0,04)·10 <sup>-2</sup>
	<sup>232</sup> Th	0,21 ± 0,05	0,011 ± 0,002	(2,82 ± 0,59)·10 <sup>-5</sup>

Le mélange étant considéré comme parfaitement homogène sur le disque de 55 mm de diamètre, l'épaisseur  $e_A$  en g/cm<sup>2</sup> (supposée constante sur toute la surface de l'échantillon) pour chaque élément A est donc de :

$$e_A = \frac{m_A}{S} \quad (\text{B.2})$$

avec

$m_A$ , masse de l'élément A

$S = \pi \frac{d^2}{4}$ , surface de l'échantillon contenant l'élément A ( $d = 55$  mm)

L'épaisseur  $n_A$  en atome par barn s'obtient directement de  $e_A$  par la formule :

$$n_A = \frac{e_A \cdot N \cdot 10^{-24}}{M_A} \simeq \frac{e_A \cdot 0,6022}{M_A} \quad (\text{B.3})$$

avec

$M_A$ , masse molaire de l'élément A

$N$ , nombre d'Avogadro

Les résultats sont donnés dans le tableau 17. D'après les résultats obtenus par l'analyse des expériences de transmission, ces valeurs sont toutefois actuellement mises en doute et une analyse de la composition et de l'homogénéité de ces deux échantillons semble nécessaire.

## 1.2 Echantillon NS97048

### 1.2.1 Description

Contrairement aux deux échantillons précédents, ce dioxyde de neptunium provient du CEA Valrho. Une description de la composition isotopique analysée par la COGEMA de cet échantillon était fournie. Toutefois, durant nos expériences, la présence de résonances de thorium-232 a été détectée. L'épaisseur de thorium ajustée sur ces résonances s'avère être mille fois supérieure à celles mesurées par la COGEMA. Aussi, une analyse de la composition du neptunium a été effectuée sur cet échantillon. Les résultats de cette analyse, effectuée par le laboratoire Paul Scherrer Institut (PSI), sont présentés dans le tableau 18. Une mesure du taux d'oxydation est actuellement entreprise afin de déterminer plus précisément la quantité d'oxygène présente dans l'échantillon.

Tableau 18 : Concentration massique des éléments lourds ( $A > 80$ ) contenus dans l'échantillon NS97048,

Elément	Concentration massique (%)
$^{237}\text{Np}$	$87,27 \pm 0,48$
$^{232}\text{Th}$	$4,8 \pm 0,1$
U	$< 0,0075$
Pu	$< 0,0060$

La quantité de matière première (44,5717 g) était ici suffisante pour éviter d'y adjoindre un autre élément lors de la fabrication de l'échantillon. Ce dernier n'étant pas placé dans un vide, une boîte classique en aluminium (qui a l'avantage de ne présenter aucune résonance dans la plage d'énergie contrairement au cuivre ayant une résonance vers 200 eV et une autre vers 500 eV), scellée avec de la résine epoxy, d'épaisseur 0,5 mm a été choisie. Le dioxyde de neptunium est contenu dans un espace cylindrique dont la section interne est de 5 cm comme indiqué sur la figure 121. Le "dummy" est cette fois vide.

Cet échantillon d'épaisseur proche de 2 g/cm<sup>2</sup> est le plus épais de ceux dont nous disposons. Il est principalement dédié aux mesures dans la gamme d'énergie supérieure de notre plage d'étude, où la transmission des pics des résonances est plus grande c'est à dire où la section efficace totale est plus faible.

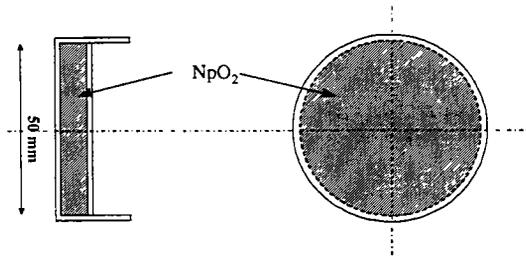


Fig.121 : Schéma simplifié de la boîte d'aluminium contenant le dioxyde de neptunium de l'échantillon NS97048.

### 1.2.2 *Épaisseur des différents éléments*

La masse de dioxyde de neptunium est de 40 g [128]. Toutefois, à la vue des résultats de l'analyse de l'échantillon, le dioxyde de neptunium n'est pas pur. Les épaisseurs des différents éléments à considérer, établies à partir des équations (B.2) et (B.3), sont données dans le tableau 17.

## 2 Echantillons pour les mesures de capture

### 2.1 Echantillon SP94065

#### 2.1.1 Description

Cet échantillon est constitué de  $11,100 \pm 0,001$  g d'alliage comprenant 90 % en masse d'aluminium et  $10 \pm 0,1$  % de neptunium-237. C'est une fine feuille de  $0,775 \pm 0,150$  mm d'épaisseur constituée de 4 bandes de 20 mm de large et ayant la forme d'un disque de 80 mm de diamètre. Cette feuille d'alliage est scellée dans une boîte d'aluminium de 0,5 mm d'épaisseur de paroi de 10 cm de diamètre par de la résine epoxy [128].

Utiliser un alliage permet d'obtenir une bonne homogénéité de la répartition du neptunium et une épaisseur constante de l'échantillon.

Un schéma simplifié de l'échantillon SP94065 est représenté sur la figure 122.

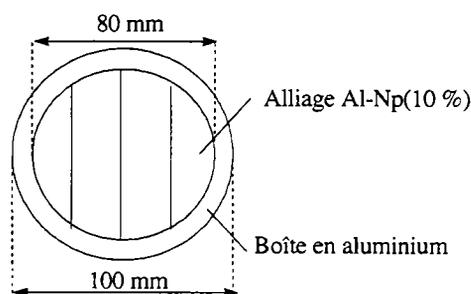


Fig.122 : Schéma simplifié de la boîte en aluminium contenant l'alliage aluminium (90 %) - neptunium (10 %) de l'échantillon NS94065.

La faible épaisseur de cet échantillon présente l'avantage de permettre de s'affranchir de la correction de diffusion multiple. Toutefois, son utilisation a été limitée aux premières résonances, car au delà de quelques dizaines d'électron-volts son épaisseur s'avère insuffisante pour observer correctement des résonances plus petites.

#### 2.1.2 Epaisseur des différents éléments

Il n'y a que deux éléments dans cet échantillon : du neptunium et de l'aluminium.

-La quantité de neptunium est, d'après les données ci-dessus, de  $1,110 \pm 0,011$  g.

-Pour la quantité d'aluminium, il y a  $9,990 \pm 0,011$  g venant de l'alliage, mais il faut également ajouter une épaisseur d'aluminium  $x$  égale à 1 mm due aux parois de la boîte contenant l'échantillon. La densité de l'aluminium à 293 K est  $\rho_{Al} = 2,6989$  g/cm<sup>3</sup> [130] et l'épaisseur  $e_{Al}$  (en g/cm<sup>2</sup>) équivalente est donc :

$$e_{Al} = \rho_{Al} \cdot x = 0,27 \text{ g/cm}^2 \quad (\text{B.4})$$

Les épaisseurs de chaque élément présent dans cet échantillon sont données dans le tableau 19 en g/cm<sup>2</sup> et en at/barn à l'aide des équations (B.2) et (B.3).

Tableau 19 : Epaisseurs des éléments contenus dans les différents échantillons utilisés dans les expériences de capture.

Echantillon	Elément	Masse (g)	Epaisseur (g/cm <sup>2</sup> )	Epaisseur (at/barn)
SP94065	<sup>237</sup> Np	$1,110 \pm 0,011$	$0,0221 \pm 0,0002$	$(0,562 \pm 0,006) \cdot 10^{-4}$
	Al	-	$0,469 \pm 0,003$	$(1,046 \pm 0,007) \cdot 10^{-2}$
NS98052	<sup>237</sup> Np	$49,47 \pm 0,27$	$0,972 \pm 0,005$	$(2,470 \pm 0,013) \cdot 10^{-3}$
	<sup>16</sup> O	$6,95 \pm 0,28$	$0,137 \pm 0,006$	$(5,14 \pm 0,21) \cdot 10^{-3}$
	<sup>232</sup> Th	$0,27 \pm 0,06$	$0,005 \pm 0,001$	$(1,38 \pm 0,31) \cdot 10^{-5}$
	Al	-	$0,269 \pm 0,003$	$(0,600 \pm 0,006) \cdot 10^{-2}$

## 2.2 Echantillon NS98052

### 2.2.1 Description

Cet échantillon a été créé avec la même poudre de dioxyde de neptunium et avec les mêmes techniques que pour l'échantillon NS97048.

Seule la quantité de matière (56,6879 g de NpO<sub>2</sub> [128]) et le diamètre intérieur de la boîte (80,5 mm) différent. Le schéma simplifié de l'échantillon est identique, au diamètre près, à celui de la figure 121.

### 2.2.2 Epaisseur des différents éléments

Puisque le dioxyde de neptunium est le même, la proportion de chaque élément est identique à celle utilisée dans l'échantillon NS97048. Les épaisseurs des différents éléments à considérer, établies à partir des équations (B.2) et (B.3), sont données

dans le tableau 19. Comme pour l'échantillon précédent, il faut aussi ajouter une épaisseur d'aluminium de 1 mm venant de la boîte.

# ANNEXE C

## Description des différentes expériences

### 1 Expériences de transmission

#### 1.1 *Février97*

Même si elle donne accès aux paramètres de résonance du neptunium jusqu'à plusieurs dizaines d'électron-volts, cette expérience est avant tout destinée à l'étude de l'effet Doppler. La mesure s'intéresse donc tout particulièrement aux premières résonances du neptunium, en dessous de 20 eV. La transmission des deux échantillons SP96094 et 95 a été mesurée à trois températures différentes (15 K, 50 K, 290 K) afin d'observer les variations de l'élargissement Doppler avec la température.

Les échantillons sont placés dans un cryostat à circulation d'hélium permettant de maintenir la température constante sur une gamme allant de 15 K à 293 K.

Cette mesure se destinant aux premières résonances, l'accélérateur a fonctionné à une fréquence de 100 Hz. Le filtre anti-recouvrement était du cadmium de  $2,17 \cdot 10^{-3}$  at/barn d'épaisseur. Afin d'obtenir une bonne détermination du bruit de fond à basse énergie en plus des points donnés par le cadmium en dessous de 0,25 eV (voir figure 42), des écrans d'or ( $5,36 \cdot 10^{-4}$  at/barn), de platine ( $6,05 \cdot 10^{-3}$  at/barn), de molybdène ( $2,81 \cdot 10^{-2}$  at/barn) et de cobalt ( $1,98 \cdot 10^{-3}$  at/barn) ont été utilisés.

L'accordéon utilisé est donné dans le tableau 20 où les largeurs de canaux calculées proviennent de l'équation (III.21) et (III.22) pour la valeur entre parenthèse. Un retard  $\Delta T$  de 82316 ns est appliqué sur l'acquisition. Le temps de vol codé  $T_{vol}$  est donc, avec les notations de l'équation (III.4) :

$$T_{\text{vol}} = (T_n - T_0) - \Delta T \quad (\text{C.1})$$

Le premier canal de temps de vol correspond à un temps de vol réel de  $T_{\text{vol}} + \Delta T$ .

Tableau 20 : Accordéon des mesures de transmission de l'expérience Février 97 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 26,45 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu\text{s}$ )	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 5120	32	82,3 - 246,2	539,7 - 60,4	9 - 26
5121 - 9168	64	246,2 - 505,2	60,4 - 14,3	26 - 53 (73)
9169 - 13888	128	505,2 - 1109,4	14,3 - 2,97	53 - 116 (775)
13889 - 21688	256	1109,4 - 3106,2	2,97 - 0,38	116 - 325 (17000)
21689 - 24576	1024	3106,2 - 6063,5	0,38 - 0,10	325 - 634 (126000)

Tableau 21 : Accordéon des mesures de transmission de l'expérience Juin 97 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 26,45 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu\text{s}$ )	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 2560	16	52,1 - 93,1	1347,3 - 422,3	5 - 10
2561 - 8192	32	93,1 - 273,3	422,3 - 49,0	10 - 29
8193 - 12288	64	273,3 - 535,4	49,0 - 12,8	29 - 56 (87)
12289 - 14848	128	535,4 - 863,1	12,8 - 4,9	56 - 90 (365)
14849 - 16384	256	863,1 - 1256,3	4,9 - 2,3	90 - 132 (1125)

## 1.2 Juin97

Les mesures de transmission pour des énergies supérieures à 40 eV ont été effectuées sur la base 4, la distance de vol supérieure de celle-ci donnant une meilleure résolution expérimentale. Toutefois, la base 2 offre la possibilité de travailler à basse température. Si on se réfère à la figure 46, la résolution totale de la base 2 à 15 K est plus faible en dessous de 200 eV que celle de la base 4. C'est pourquoi cette mesure a été entreprise, notamment avec l'échantillon le plus épais utilisable sur cette base (SP96095).

Cette expérience a été divisée en deux parties, différentes l'une de l'autre par la configuration des écrans de bruit de fond. En effet, dans la première mesure, la large résonance noire du cobalt rend une gamme d'énergie (entre 120 et 140 eV) inexploitable. Nous avons donc effectué une deuxième mesure, dans des conditions

identiques, en remplaçant uniquement l'écran de cobalt ( $1,98 \cdot 10^{-3}$  at/barn) par un écran de germanium ( $1,9 \cdot 10^{-2}$  at/barn), dont la résonance noire est à 102 eV.

Ces deux mesures ont été effectuées avec une fréquence de l'accélérateur de 800 Hz, un filtre anti-recouvrement de bore (bore-10 :  $2,15 \cdot 10^{-2}$  at/barn, bore-11 :  $8,74 \cdot 10^{-2}$  at/barn) et un retard initial de 52 100 ns.

L'accordéon utilisé est décrit dans le tableau 21.

### **1.3 Octobre97**

Cette expérience s'est déroulée sur la base 4 avec l'échantillon NS97048. Son objectif étant de couvrir la plage d'énergie allant de 40 eV à 2 keV, l'accélérateur fonctionna à 800 Hz. Le filtre anti-recouvrement était en bore, avec une épaisseur de  $4,1 \cdot 10^{-2}$  at/barn en bore-10. L'épaisseur en bore-11 est inconnue mais inférieure à  $8,6 \cdot 10^{-2}$  at/barn.

Trois combinaisons d'écrans de bruit de fond ont été utilisées et chaque cycle de mesure est donc constitué de 6 mesures durant chacune une vingtaine de minutes (3 positions IN et 3 positions OUT). Un écran de NaF ( $3,18 \cdot 10^{-2}$  at/barn) donnant une mesure de bruit de fond à 2,8 keV est laissé en permanence dans le faisceau. Les autres écrans sont associés de la manière suivante :

- bismuth ( $2,8 \cdot 10^{-3}$  at/barn) et cobalt ( $1,8 \cdot 10^{-3}$  at/barn).

- manganèse ( $7,6 \cdot 10^{-3}$  at/barn, mais contenant également  $3 \cdot 10^{-2}$  at/barn de soufre) et cobalt. Alliée à la combinaison précédente, cela permet d'étudier (le bruit de fond étant déterminé de façon fiable) la plage d'énergie allant de 130 eV à 2,8 keV.

- manganèse et molybdène ( $7,6 \cdot 10^{-3}$  at/barn) pour l'étude de la plage 45 eV à 130 eV.

Afin d'avoir la position du flash gamma, l'accordéon a été choisi de manière à atteindre des temps inférieurs au temps de vol de la lumière ( $\sim 0,16 \mu\text{s}$ ), c'est à dire sans retard initial (même s'il y a toujours le temps de traitement des signaux  $\sim 0,044 \mu\text{s}$ ) comme on peut le voir dans le tableau 22. Dans ce tableau, les valeurs pour les énergies élevées sont très approximatives du fait que la différence entre le  $T_0$  et l'instant réel de création des neutrons engendre ici des variations considérables. L'énergie sera calculée de manière plus précise lors de l'analyse en déterminant le retard initial grâce à la position du flash gamma.

### **1.4 Janvier98**

Au travers de cette expérience nous avons voulu utiliser un flux élevé et un échantillon le plus épais possible, afin de confirmer l'existence de très petites

Tableau 22 : Accordéon des mesures de transmission de l'expérience Octobre 97 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 49,33 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu$ s)	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 12288	1	0,044 - 12,3	$\infty$ - 83700	0 - 1
12289 - 16384	16	12,3 - 78,9	83700 - 2099	1 - 4
16385 - 32768	32	78,9 - 602,2	2099 - 35,1	4 - 34

Tableau 23 : Accordéon des mesures de transmission de l'expérience Janvier 98 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 26,45 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu$ s)	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 8192	8	51,2 - 116,7	1395,7 - 268,5	5 - 12
8193 - 16444	16	116,7 - 248,8	268,5 - 59,1	12 - 26
16445 - 24576	32	248,8 - 509,0	59,1 - 14,1	26 - 53 (75)
24577 - 29696	64	509,0 - 836,7	14,1 - 5,2	53 - 87 (332)
29696 - 32768	128	836,7 - 1229,9	5,2 - 2,4	87 - 129 (1064)

résonances (la section efficace ne dépassant pas quelques barns) à peine discernable sur l'expérience Février 97. Pour obtenir un flux élevé, nous avons travaillé sur la base 2 à une fréquence de 800 Hz avec un filtre anti-recouvrement constitué de l'association d'un écran de cadmium de  $3,2 \cdot 10^{-2}$  at/barn d'épaisseur et d'un écran de rhodium ( $5,3 \cdot 10^{-2}$  at/barn). Afin d'avoir une importante épaisseur de neptunium, les deux échantillons SP96095 et NS97048 ont été mis ensemble dans le faisceau de neutrons.

Les points de bruit de fond ont été déterminés par les résonances noires du cadmium et du rhodium.

Cette mesure a trois inconvénients majeurs :

-il n'y a pas de points de bruit de fond en dessous de 40 eV, donnant une grande incertitude quant à la valeur du bruit de fond entre 2,4 et 40 eV.

-la présence de nombreuses grandes résonances du cadmium et du rhodium au delà de 40 eV.

-une normalisation approximative du fait de l'absence du dummy correspondant à l'échantillon NS97048 dans la position OUT.

Elle doit donc être utilisée principalement dans le but de confirmation de l'existence des petites résonances.

La description de l'accordéon est donnée dans le tableau 23.

## 1.5 *Février98*

L'expérience de Février 97 étant surtout destinée à l'étude de l'effet Doppler sur les premières résonances du neptunium, nous avons décidé d'effectuer une nouvelle mesure de la plage d'énergie inférieure à 40 eV, que nous avons étendue jusqu'à 130 eV afin d'avoir une zone de recouvrement avec toutes les autres expériences.

Un des objectifs de cette nouvelle mesure est d'obtenir la valeur du rayon du noyau. Outre le fait que l'utilisation de l'échantillon le plus épais soit préférable, il est apparu qu'un problème de normalisation, dû à une différence d'épaisseur des supports d'échantillon, rend délicat l'utilisation des mesures effectuées sur la base 2 pour une détermination précise de la section efficace potentielle et donc du rayon.

De plus, une statistique plus élevée et avec un échantillon plus épais que lors de l'expérience Février 97 permet, avec l'aide de l'expérience Janvier 98, d'extraire les paramètres de résonance des petites résonances.

Cette expérience a donc été menée sur la base 4 avec l'échantillon NS97048. Afin d'atteindre les plus basses énergies de notre plage d'étude, la fréquence de l'accélérateur était de 100 Hz. Le filtre anti-recouvrement était en cadmium ( $5,0 \cdot 10^{-3}$  at/barn).

Les écrans de bruit de fond sont les mêmes écrans de fluorure de sodium, de cobalt et de molybdène que ceux utilisés dans l'expérience Octobre97, ainsi que l'écran d'or de l'expérience Février97.

L'accordéon est décrit dans le tableau 24.

## 1.6 *Juin98*

Nous avons été amené à vouloir refaire l'expérience Octobre 97 pour plusieurs raisons :

- l'épaisseur du filtre anti-recouvrement (bore) était trop élevée, d'où une perte très importante du taux de comptage en dessous de 100 eV.

- la largeur des canaux était surtout adaptée jusqu'à une centaine d'électron-volts.

- enfin, nous voulions étudier, au travers de cette expérience, différentes hypothèses relatives au bruit de fond et à l'information données par les moniteurs.

L'épaisseur du filtre anti-recouvrement de bore est cette fois de  $2,4 \cdot 10^{-2}$  at/barn en bore-10, l'épaisseur de bore-11 étant inconnue mais inférieure à  $6,6 \cdot 10^{-2}$  at/barn.

Les écrans de bruit de fonds sont les même, mais il y a quatre configurations :

- les deux configurations sodium-bismuth-cobalt et sodium-manganèse-cobalt sont identiques à Octobre97.

- par contre, l'écran de molybdène possède une résonance presque noire à 131,4 eV. Les résonances du neptunium proches de cette énergie sont donc perturbées, si bien

Tableau 24 : Accordéon des mesures de transmission de l'expérience Février98 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 49,33 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu$ s)	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 512	0,5	0,044 - 0,556	$\infty - 44 \cdot 10^6$	0 - 0
513 - 992	128	0,556 - 62,0	$44 \cdot 10^6 - 3310$	0 - 3
993 - 2016	16	62,0 - 78,4	3310 - 2071	3 - 4
2017 - 2400	512	78,4 - 275,0	2071 - 168,2	4 - 15
2401 - 6496	16	275,0 - 340,5	168,2 - 109,7	15 - 19
6497 - 10592	32	340,5 - 471,6	109,7 - 57,2	19 - 26
10593 - 14688	64	471,6 - 733,7	57,2 - 23,6	26 - 41 (64)
14689 - 18784	128	733,7 - 1258	23,6 - 8,04	41 - 71 (325)
18785 - 22880	256	1258 - 2307	8,04 - 2,39	71 - 129 (2000)
22881 - 31328	512	2307 - 6632	2,39 - 0,29	129 - 372 ( $5 \cdot 10^4$ )
31329 - 31456	4096	6632 - 7156	0,29 - 0,25	372 - 401 ( $6 \cdot 10^4$ )
31457 - 32768	1024	7156 - 8500	0,25 - 0,18	401 - 477 ( $1 \cdot 10^5$ )

Tableau 25 : Accordéon des mesures de transmission de l'expérience Juin98 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 49,33 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu$ s)	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 384	1	0,044 - 0,428	$\infty - 77 \cdot 10^6$	0 - 0
385 - 510	512	0,428 - 64,9	$77 \cdot 10^6 - 3016$	0 - 4
511 - 766	16	64,9 - 69,0	3016 - 2669	4 - 4
767 - 6910	4	69,0 - 93,6	2669 - 1451	4 - 5
6911 - 17150	8	93,6 - 175,5	1451 - 413	5 - 10
17151 - 25342	16	175,5 - 306,6	413 - 135	10 - 17
25343 - 32768	32	306,6 - 544,2	135 - 43	17 - 31

le fait d'ajouter un écran de cobalt donne un point de bruit de fond à 132 eV sans diminuer particulièrement la plage d'énergie exploitable. Aussi, la troisième combinaison d'écrans de bruit de fond est-elle sodium-manganèse-cobalt-molybdène.

-les trois combinaisons précédentes ne nous permettent toujours pas d'étudier correctement les résonances autour de 130 eV, soit à cause du molybdène, soit du cobalt. Aussi l'écran de germanium de Juin97 est-il utilisé dans la quatrième combinaison : sodium-manganèse-germanium.

L'accordéon est donné dans le tableau 25.

## 1.7 Juin99

Dans le cas du neptunium, la composante majeure de l'élargissement des résonances en dessous de 200 eV (pour nos expériences) est l'effet Doppler. En

dessous de 40 eV, pour des expériences menées à basses températures sur la base 2, la résolution est même la meilleure que l'on puisse obtenir physiquement.

Des mesures à basses températures ont été entreprises dans les expériences Février97 et Juin97. Toutefois, la première d'entre elles était surtout destinée à l'étude de l'effet Doppler sur les grandes résonances et la statistique est de ce fait assez faible. Quant à l'expérience Juin97, l'utilisation d'un filtre anti-recouvrement en bore ne permet d'obtenir une statistique intéressante qu'au delà de 50 eV.

Or à la vue des résultats de l'analyse, certaines questions se posaient à propos de l'existence de doublons à 7,68 eV, 15,92 eV ou 17,93 eV ainsi que sur l'existence de la résonance à 17,02 eV donnée par JEF2.2 et de petites résonances en dessous de 100 eV.

Pour répondre rapidement à ces questions, cette nouvelle expérience a été entreprise. En travaillant sur la base de vol 2 à 800 Hz avec la combinaison rhodium-cadmium de Janvier98 pour le filtre anti-recouvrement, nous avons ainsi disposé d'un flux élevé.

L'échantillon SP96095 a été refroidi à 20 K et un écran d'or de  $6 \cdot 10^{-4}$  at/barn d'épaisseur a été ajouté afin d'avoir un point de bruit de fond à très basse énergie.

L'accordéon utilisé est reporté dans le tableau 26.

Tableau 26 : Accordéon des mesures de transmission de l'expérience Juin99 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 26,45 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu$ s)	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 8192	8	76,8 - 142,3	620 - 181	12 - 22
8193 - 17408	16	142,3 - 289,8	181 - 43,6	22 - 45
17409 - 25600	32	289,8 - 551,9	43,6 - 12,0	45 - 87 (127)
25601 - 29696	64	551,9 - 814,1	12,0 - 5,5	87 - 128 (408)
29697 - 32768	128	814,1 - 1207,3	5,5 - 2,5	128 - 190 (1330)

## 2 Expériences de capture

### 2.1 *CapFévrier97*

Le but de cette expérience est la mesure des toutes premières résonances du neptunium en couvrant la plage d'énergie allant de 0,3 à 40 eV. La fréquence de l'accélérateur est donc de 100 Hz et l'échantillon utilisé est le plus mince, soit SP94065. Le filtre anti-recouvrement était du cadmium de  $2,3 \cdot 10^{-3}$  at/barn d'épaisseur.

Les écrans de bruit de fond utilisés sont :

- argent ( $1,2 \cdot 10^{-3}$  at/barn)
- tungstène ( $6 \cdot 10^{-4}$  at/barn)
- molybdène ( $6,4 \cdot 10^{-3}$  at/barn)
- cobalt ( $4,5 \cdot 10^{-3}$  at/barn)

Le retard initial est de 173,056  $\mu$ s et l'accordéon est décrit dans le tableau 27. Le calcul de la largeur des canaux est effectué de la même manière qu'en transmission en assimilant la résolution de la base 15 à celle de la base 2.

Tableau 27 : Accordéon des mesures de capture de l'expérience CapFévrier97 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 28,4 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu$ s)	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 1376	8	173 - 184	140,8 - 124,4	18 - 17
1377 - 10660	32	296 - 593	48,1 - 12,0	29 - 58 (137)
10661 - 14492	64	593 - 838	12,0 - 6,0	58 - 82 (387)
14493 - 17204	128	838 - 1186	6,0 - 3,0	82 - 115 (1090)
17205 - 18704	256	1186 - 1570	3,0 - 1,7	115 - 153 (2540)
18705 - 20122	512	1570 - 2296	1,7 - 0,8	153 - 224 (7940)
20123 - 21050	1024	2296 - 3246	0,8 - 0,4	224 - 316 ( $2 \cdot 10^4$ )
21051 - 22634	2048	3246 - 6490	0,4 - 0,1	316 - 632 ( $2 \cdot 10^5$ )

Tableau 28 : Accordéon des mesures de capture de l'expérience CapFévrier98 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 28,4 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu$ s)	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 256	32	172,8 - 181	141,2 - 128,7	17 - 18
257 - 496	512	181 - 304	128,7 - 45,7	18 - 30
497 - 5616	32	304 - 468	45,7 - 19,3	30 - 46 (67)
5617 - 9712	64	468 - 730	19,3 - 7,9	46 - 71 (255)
9713 - 14832	128	730 - 1385	7,9 - 2,2	71 - 135 (1740)
14833 - 23152	256	1385 - 3515	2,2 - 0,34	135 - 342 ( $3 \cdot 10^4$ )
23153 - 24576	1024	3515 - 4973	0,34 - 0,17	342 - 484 ( $8 \cdot 10^4$ )

## 2.2 CapFévrier98

Cette expérience est en fait la répétition de la précédente du fait d'un mauvais fonctionnement du détecteur de flux durant CapFévrier97. Seuls les écrans de bruit de fond et l'accordéon diffèrent.

Les épaisseurs d'écrans de bruit de fond utilisés sont :

- argent ( $1,2 \cdot 10^{-3}$  at/barn)
- tungstène ( $6 \cdot 10^{-4}$  at/barn)
- molybdène ( $8,6 \cdot 10^{-3}$  at/barn)
- cobalt ( $2,7 \cdot 10^{-3}$  at/barn)

Le retard initial est ici de 172,8  $\mu$ s et l'accordéon est décrit dans le tableau 28.

### 2.3 CapNovembre98

Cette expérience se charge de couvrir la plage en énergie allant de quelques dizaines d'électron-volts à plus de 2 keV. Pour ce faire, l'échantillon épais (NS98052) est utilisé avec une fréquence de l'accélérateur de 800 Hz et un filtre anti-recouvrement de bore ( $2,56 \cdot 10^{-2}$  at/barn de bore-10).

Plusieurs écrans de bruit de fond sont utilisés :

- tungstène ( $8 \cdot 10^{-4}$  at/barn)
- molybdène ( $3,9 \cdot 10^{-3}$  at/barn)
- cobalt ( $1,8 \cdot 10^{-3}$  at/barn)
- bismuth ( $2,8 \cdot 10^{-2}$  at/barn)
- sodium

Le retard initial est fixé à 37,888  $\mu$ s comme la description de l'accordéon dans le tableau 29 le laisse entendre.

Tableau 29 : Accordéon des mesures de capture de l'expérience CapNovembre98 avec les numéros de canaux, la largeur en temps de ces canaux, le temps de vol et l'énergie des neutrons correspondant à ces canaux (pour une distance de vol de 28,4 m) et enfin la largeur calculée de ces canaux.

Canal	Largeur (ns)	Temps de vol ( $\mu$ s)	Energie (eV)	$\Delta t$ calculé (ns)
1 - 128	16	37,9 - 39,9	2937 - 2643	4 - 4
129 - 4224	4	39,9 - 56	2643 - 1329	4 - 5
4225 - 10112	8	56 - 103	1329 - 394	5 - 10
10112 - 16256	16	103 - 202	394 - 104	10 - 20
16257 - 22144	32	202 - 390	104 - 27,7	20 - 38
22145 - 24576	64	390 - 546	27,7 - 14,1	38 - 53 (107)

# ANNEXE D

## Détails sur l'électronique utilisée en transmission

### 1 La salle de mesure

#### 1.1 *Le signal amplitude*

Dans la base 2, le signal amplitude n'est pas utilisé.

Dans le cas de la base 4, il est amplifié puis envoyé :

-directement vers l'ADC, afin de pouvoir être visualisé lors de l'acquisition.

-vers un analyseur mono-canal pour pouvoir opérer une sélection par l'amplitude sur le signal temps associé.

#### 1.2 *Le signal temps*

Le détecteur de la base 2 est associé à deux photomultiplicateurs. Les deux signaux issus de l'anode de chaque photomultiplicateur sont d'abord sommé. L'amplitude du signal résultant de cette somme est représenté sur la figure ?? . En éliminant la partie de basse amplitude de ce signal, on s'affranchi ainsi d'une partie du bruit de fond.

Le signal somme est ensuite transformé en signal logique par un discriminateur à fraction constante (DFC) afin d'avoir une information précise sur le temps. Le signal  $T_n$  ainsi créé est alors envoyé vers la salle d'acquisition.

Dans le cas de la base 4, il n'y a qu'un seul photomultiplicateur. Le signal temps est d'abord envoyé dans un DFC. Il est ensuite retardé pour être en coïncidence avec le signal amplitude en arrivant sur un deuxième DFC. En effet, le signal amplitude correspondant est envoyé dans un analyseur mono-canal. Dans ce dernier une fenêtre

sur l'amplitude a été sélectionnée de manière à n'encadrer que le pic de la réaction  $(n,\alpha)$  indiqué sur la figure 111 de l'annexe A. Si le signal amplitude est dans cette fenêtre alors un signal porte est émis de l'analyseur mono-canal en direction du deuxième DFC. Celui-ci laisse passer le signal temps uniquement en présence de cette porte. Par conséquent, seuls les événements dont l'amplitude correspond à celle des signaux issus de la réaction  $(n,\alpha)$  sont codés, limitant ainsi la quantité d'informations à traiter et la contribution du bruit de fond. C'est aussi au niveau de ce deuxième DFC que le temps mort est fixé : après chaque signal porte reçu de l'analyseur mono-canal, le DFC est inhibé durant un temps fixé, légèrement supérieur au temps mort du FTD, l'élément le plus lent de la chaîne d'acquisition en transmission. Fixer le temps mort permet d'avoir une valeur constante pour celui-ci, rendant la correction de temps mort plus exacte. A la sortie du deuxième DFC, le signal temps est envoyé dans la salle d'acquisition.

### **1.3 Stabilisation des alimentations**

Associée au signal  $T_0$  délivré par GELINA, une impulsion de lumière est envoyée sur la cathode du photomultiplicateur et décalée en temps afin d'être hors de la région d'intérêt en temps de vol. Cette impulsion est utilisée pour stabiliser le gain du photomultiplicateur et de l'électronique associée.

## **2 La salle d'acquisition**

### **2.1 Le signal amplitude**

Le signal amplitude provenant de la base 4 est codé (transformé en numéro de canal) par un ADC à condition d'être en coïncidence avec un signal temps. En effet, l'ADC code le signal amplitude uniquement s'il a également en entrée un signal porte provenant du FTD, attestant la présence d'un signal temps en coïncidence.

### **2.2 Le signal temps**

Le signal temps traverse un discriminateur le remettant en forme logique après l'atténuation due à un voyage de plusieurs dizaines de mètres dans des cables. Puis il est envoyé dans le FTD où la valeur  $(T_n - T_0)$  est transformée en un mot d'au maximum 25 bits à condition qu'un signal d'alarme n'inhibe pas le discriminateur (cas de la base 4) ou le FTD (cas de la base 2), arrêtant de ce fait l'acquisition.

### 2.3 Les autres signaux

Plusieurs autres signaux arrivent également dans la salle d'acquisition.

Il y a tout d'abord les signaux destinés au FTD :

-*Pt* : envoyé au FTD et issu de l'accélérateur. Il réinitialise le FTD juste avant une nouvelle bouffée des électrons, c'est à dire juste avant le signal  $T_0$ .

- $T_0$  : envoyé au FTD lorsque les électrons sortent des sections accélératrices, juste avant d'atteindre la cible d'uranium. Le FTD le prend comme instant initial pour le codage du temps de vol.

Les autres signaux sont envoyés pour la plupart sur des échelles de comptage. Tous ces signaux sont utilisés selon le choix de l'expérimentateur. En voici une liste non-exhaustive :

-*CM1*, *CM2*, *CM3*, *CMN*, *CMS* : le nombre de coups dans les différents moniteurs existants. Nous n'avons utilisé que *CM1* et *CM3*, les informations issues des deux moniteurs décrits dans la partie 1.2 du chapitre III, ainsi que *CM2*, le nombre de coups dans un nouveau moniteur uniquement utilisé dans Juin98.

-*BF* (Buffer Full) : ce signal provient de l'acquisition et signale le remplissage anormal de la mémoire tampon.

-*CA* : ce signal d'alarme signale l'absence d'alimentation des tiroirs électroniques.

Les signaux  $T_0$ , *CM2*, *CA* et *BF* sont associés dans une porte OU de manière à ce que l'absence du signal  $T_0$  ou *CM2*, ou la présence des signaux *CA* ou *BF*, envoie un signal d'alarme inhibant le discriminateur du signal temps (base 4) ou le FTD (base 2).

# ANNEXE E

## Influence de la position du faisceau d'électrons de GELINA

Ainsi qu'introduit dans le chapitre IV, la position du faisceau d'électrons est à même de modifier le flux de neutrons. Un dispositif de visualisation de la position du faisceau d'électrons par rayonnement de transition a donc été mis en place dans le cadre de ce travail.

### 1 Dispositif installé

#### 1.1 *Rayonnement OTR*

Le rayonnement de transition optique (OTR) est créé lorsqu'une particule chargée traverse l'interface entre deux matériaux possédant des constantes diélectriques différentes [162]. Il a déjà été montré que ce rayonnement permet d'étudier des faisceaux d'électrons tels que ceux produits par des accélérateurs linéaires [163].

La figure 123 représente schématiquement les rayonnements de transition produits, à chaque interface, lorsqu'un électron traverse une fine feuille d'aluminium inclinée par rapport à l'axe du faisceau. L'OTR se traduit par un cône de lumière, dont la coupe est constituée de deux lobes et dont l'ouverture est directement proportionnelle à l'énergie des électrons. Pour des électrons d'énergies supérieure à 10 MeV, le rayonnement de transition créé au niveau de la première interface est émis dans une direction proche de la réflexion spéculaire. C'est ce rayonnement qui est utilisé dans notre cas.

L'OTR étant produit au point d'impact entre les électrons et la feuille d'aluminium, son observation à l'aide d'une caméra, dont la mise au point est effectuée sur la feuille d'aluminium, permet d'obtenir une image directe de la distribution du faisceau d'électrons si celui-ci était monochromatique. Avec une

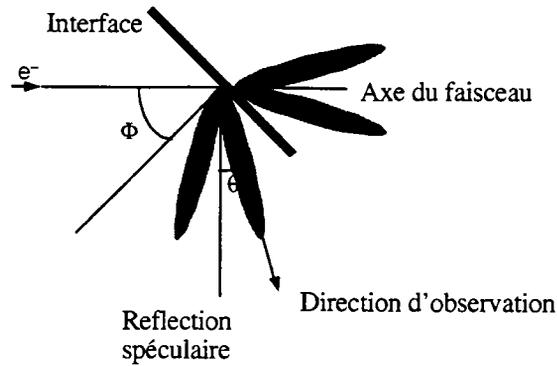


Fig.123 : Schéma des rayonnements de transition optiques créés par un électron traversant une feuille d'aluminium inclinée par rapport à la direction incidente.

mise au point à l'infini, la mesure de la distribution angulaire du rayonnement de transition permettrait d'obtenir l'énergie et la divergence du faisceau d'électrons. Du fait de l'importance de la dispersion énergétique du faisceau d'électrons (entre 70 et 140 MeV), cette propriété ne peut pas être utilisée. Toutefois, la divergence du rayonnement de transition optique produit par le faisceau d'électrons de GELINA est faible : l'angle d'ouverture du lobe étant de l'ordre de 10 mrad. Par conséquent, le point d'impact entre le faisceau d'électrons (de 1 à 2 cm) et la feuille d'aluminium peut être observé à une distance assez importante (environ 10 m) sans qu'il soit nécessaire de recourir à des éléments optiques supplémentaires. C'est une propriété importante, car l'environnement difficile, du fait de la forte irradiation par des neutrons ou des rayons gamma, ne permet pas d'installer une caméra dans le hall des cibles.

## 1.2 Description du dispositif

Une feuille d'aluminium de 20  $\mu\text{m}$  a été placée à la sortie de l'aimant de compression, juste avant le collimateur de la cible rotative en uranium. Le rayonnement optique de transition est observée par une caméra CCD intensifiée Hamamatsu, équipée d'un objectif de 200 mm, située à l'extérieur de la salle des cibles des cibles, derrière une épaisseur de 3,5 m d'eau afin de la protéger des neutrons (base de vol 18 sur la figure 27).

Pour un faisceau d'électrons de 70  $\mu\text{A}$  d'intensité, l'observation de l'OTR peut être effectuée par une caméra standard, mais une amplification peut être nécessaire pour des intensités de GELINA plus faible.

Une application informatique a été développée de manière à traiter les images et de donner, toutes les 2 s, au pupitre de commande de GELINA la position du centre

de gravité du faisceau d'électrons ainsi que sa forme et sa densité. Les coordonnées du centre de gravité sont stockées à intervalles régulier dans un fichier.

La figure 124 représente une capture d'écran de l'application où l'on peut observer le faisceau d'électrons en taille réelle ainsi qu'une fenêtre centrée sur le faisceau, avec un agrandissement de 400 %, et enfin l'évolution de la position verticale et horizontale du centre de gravité du faisceau dans les 10 dernières minutes.

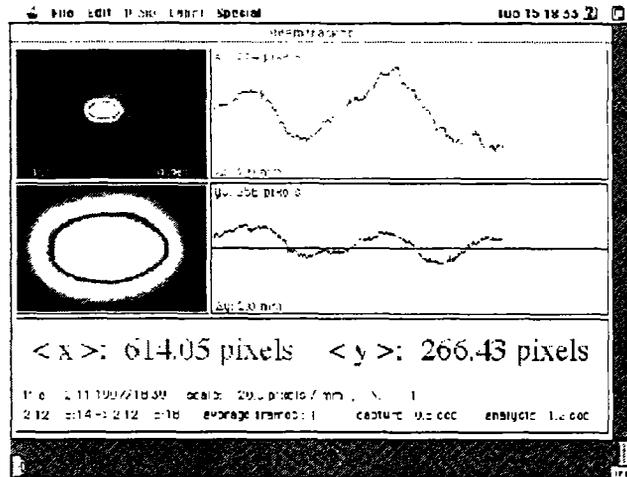


Fig.124 : Capture d'écran de l'application permettant de visualiser le faisceau d'électron et de suivre l'évolution de sa position.

### 1.3 Observation du faisceau d'électrons

Ce nouveau dispositif nous a permis d'observer que le diamètre typique du faisceau d'électron est de 1 cm, sa position horizontale et verticale pouvant varier respectivement de  $\pm 5$  mm et  $\pm 2$  mm.

Ces variations sont de deux types :

- des variations lentes (inférieures à 1 mm par heure) provenant de variations des caractéristiques de fonctionnement de GELINA au niveau par exemple de la température des sections accélératrices ou d'un changement de champ dans les quadripôles. Il est désormais facile aux opérateurs de maintenir la position du centre de gravité du faisceau dans un rectangle de 0,8 mm (dans le plan horizontal) sur 0,2 mm (dans le plan vertical) où les variations du flux engendrées par la modification de la position du faisceau sont apparemment inférieure à 1 % [164].

- des variations brutales intervenant, outre au moment de réglages, lors de la disjonction de l'accélérateur. Lorsque GELINA redémarre après une telle disjonction

ou en début de semaine, la position du faisceau d'électrons est souvent différente et il apparaît utile de pouvoir replacer le faisceau d'électrons à la même position.

## 2 Position du faisceau d'électrons et flux de neutrons

### 2.1 Incidence sur le rapport des moniteurs

Nous avons déjà mentionné l'existence de plusieurs moniteurs dans le plafond de la salle des cibles (voir figure 31), dont les moniteurs  $M_1$  et  $M_2$  utilisés dans nos expériences.  $M_1$  est situé juste au dessus du modérateur supérieur ( $x = 0$ , avec  $x$  position horizontale du faisceau d'électron par rapport au centre du collimateur du faisceau d'électrons) alors que  $M_2$  est placé plus latéralement ( $x > 0$ ).

A l'aide du dispositif de contrôle de la position du faisceau d'électrons, il a été possible de maintenir celle-ci constante à plusieurs coordonnées horizontales et verticales, sans qu'aucune perte d'intensité ne soit perceptible par les opérateurs.

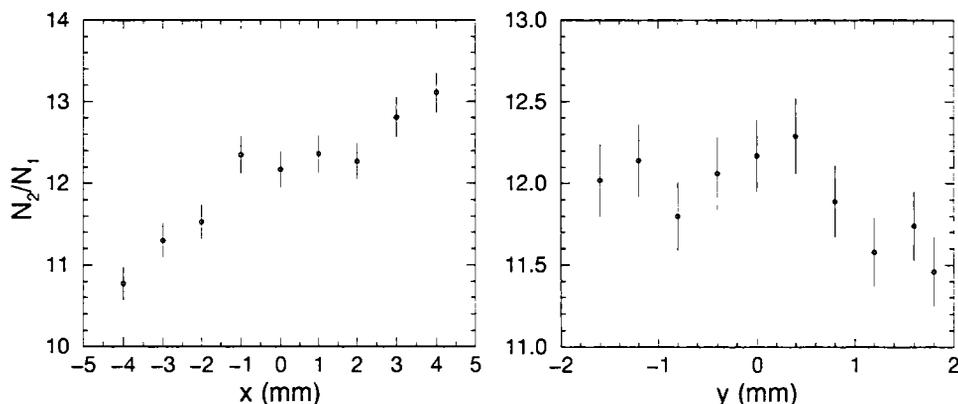


Fig.125 : Variation de  $\frac{N_2}{N_1}$ , le rapport entre le nombre d'évènements des deux moniteurs  $M_2$  et  $M_1$  selon la position horizontale ( $x$ ) ou verticale ( $y$ ) du faisceau d'électrons, l'origine étant prise au centre du collimateur.

Quelle que soit la position du faisceau d'électrons, l'épaisseur du modérateur supérieur vue par  $M_1$  est la même. Le nombre de coups enregistrés dans  $M_1$  est donc indépendant de la position du faisceau d'électrons. Par contre, si la position horizontale du faisceau d'électron se déplace vers les plus grandes valeurs de  $x$ , l'épaisseur moyenne du modérateur traversée par les neutrons atteignant  $M_2$  diminue

et donc le nombre de coups dans  $M_2$  augmente. L'effet est évidemment l'inverse si  $x$  devient négatif. On constate également une légère diminution du taux de comptage dans  $M_2$  lorsque le faisceau s'approche, dans l'axe vertical, du modérateur supérieur. Cela s'explique également par l'épaisseur du modérateur entre le point d'impact du faisceau d'électrons et  $M_2$ .

D'après ce qui précède, le rapport entre le nombre de coups  $N_1$  dans le moniteur  $M_1$  et  $N_2$  dans le moniteur  $M_2$  est représentatif des variations de  $N_2$  corrélées principalement aux mouvements horizontaux et, dans une moindre mesure, verticaux du faisceau d'électrons comme l'illustre la figure 125.

Si on représente l'évolution de ce rapport pour une expérience de transmission menée sur le  $^{99}\text{Tc}$  [147] en 1996 avant l'installation de ce dispositif de contrôle de la position du faisceau d'électrons, on observe des variations de près de 20 %. Cette valeur amène à penser que, durant cette expérience, la position du faisceau d'électrons a pu varier de part et d'autre du collimateur.

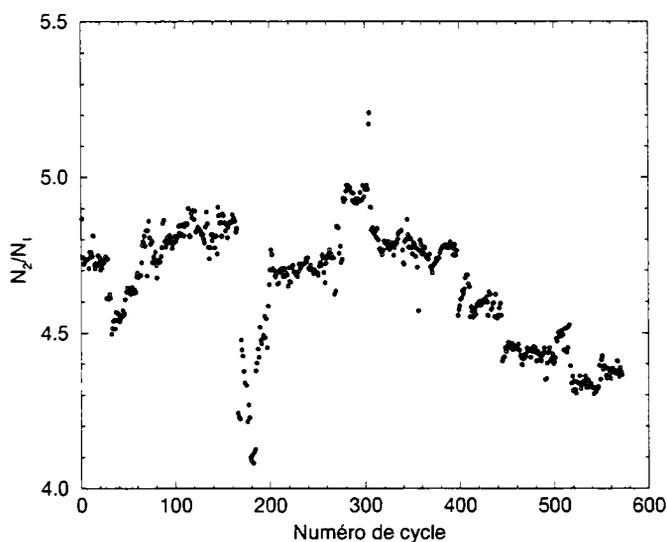


Fig.126 : Rapport entre les nombres d'évènements enregistrés dans les moniteurs  $M_1$  et  $M_2$  pour chaque cycle durant une mesure de la transmission du  $^{99}\text{Tc}$ .

Les valeurs de ce rapport diffèrent de celles de la figure 125 car entre temps l'alimentation haute tension des moniteurs a été modifiée.

## 2.2 Variations du flux

Le spectre de temps de vol  $S_{out}(E)$ , somme du flux de neutrons  $\phi_{out}(E)$  (le flux incident intégré en temps) et du bruit de fond  $B_{out}(E)$  a été mesuré sur la base de vol 2 par le scintillateur en verre au lithium utilisé dans les expériences de transmission pour plusieurs positions prédéfinies du faisceau d'électrons (durant une heure) comme le schématise la figure 127 : au centre du collimateur, aux quatre positions extrêmes et à quatre positions médianes (que nous ne représenterons pas par souci de simplification mais donnant des résultats intermédiaires à ceux qui vont suivre).

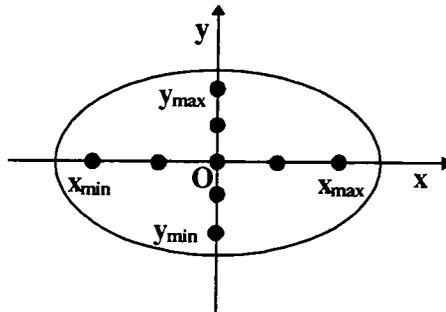


Fig.127 : Schéma des positions, par rapport au collimateur de la cible d'uranium, du faisceau d'électrons.

Chaque spectre de temps de vol obtenu a ensuite été divisé par le nombre de coups relatifs  $N_{out}$  dans le moniteur  $M_1$ , puis par le spectre de temps de vol normalisé correspondant à la mesure effectuée au centre du collimateur. Le résultat obtenu (soit le rapport des  $\frac{S_{out}(E)}{N_{out}}$ ) est reporté sur la figure 73.

Il apparaît donc que la forme du flux de neutrons varie avec la position du faisceau d'électrons non seulement dans le nombre de neutrons produits mais également dans la distribution en énergie de ces neutrons, ce qui se comprend aisément par le fait que c'est la modération des neutrons qui est directement affectée.

De même, le détecteur situé dans la base de vol utilisée (la base 2 dans ce cas) ne voyant que les neutrons provenant du modérateur supérieur, il n'est pas étonnant que les variations et déformations les plus importantes soient celles dues à un déplacement vertical de la position du faisceau d'électrons.

Il faut toutefois tenir compte du fait que ce n'est pas directement le flux qui est mesuré dans les bases de vol mais également le bruit de fond associé. On est donc en droit de penser que le bruit de fond va être également affecté par les variations de position du faisceau d'électrons.

## 2.3 Variations de la transmission

### 2.3.1 Flux intégré et moniteurs

5 mesures de la transmission de  $^{237}\text{Np}$  sur la base de vol 2 (800 Hz et filtres de rhodium et cadmium pour avoir un flux important à basse énergie) ont été effectuées durant 7 heures chacune en maintenant la position du faisceau d'électrons au centre du collimateur, puis à une distance de 0,75 mm sur chaque axe, de part et d'autre du centre (les notations  $x_{\min}$ ,  $x_{\max}$ ,  $y_{\min}$  et  $y_{\max}$  étant désormais associées à ces points). Notons que le domaine d'énergie enregistré est limité aux valeurs inférieures à 1 keV.

Les valeurs du rapport  $\frac{S_{out}}{N_{out}}$  entre  $S_{out}$  le spectre de temps de vol intégré en énergie et le nombre de coups dans le moniteur  $M_1$  ainsi que du rapport  $\frac{N_2}{N_1}$  entre le nombre d'évènements dans les moniteurs  $M_1$  ( $N_1 = N_{out}$ ) et  $M_2$  sont représentées pour chacune des positions sur la figure 128.

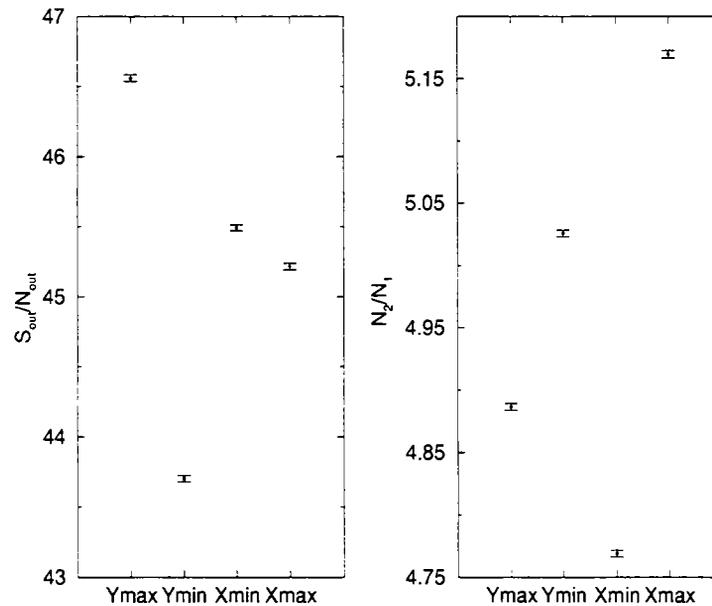


Fig.128 : Variation, selon la position du faisceau d'électrons, du rapport  $\frac{S_{out}}{N_{out}}$  entre  $S_{out}$  le spectre de temps de vol intégré en énergie et le nombre de coups  $N_{out}$  dans le moniteur  $M_1$  ainsi que du rapport  $\frac{N_2}{N_1}$  entre le nombre d'évènements dans les moniteurs  $M_1$  ( $N_1 = N_{out}$ ) et  $M_2$ . Seules les valeurs aux positions horizontales ( $x_{\min}$  et  $x_{\max}$ ) et verticales ( $y_{\min}$  et  $y_{\max}$ ) situées à 0,75 mm du centre du collimateur sont représentées.

$N_1$  étant constant quelle que soit la position, on constate à nouveau que la variation la plus importante sur le flux (en négligeant le bruit de fond) est provoquée par un déplacement vertical de la position du faisceau d'électrons, alors que pour  $N_2$  c'est un mouvement horizontal qui engendre la plus grande variation.

### 2.3.2 Les différentes transmissions

L'impact de la variation de la position du faisceau d'électrons va être maintenant étudiée sur la transmission.

Pour cette dernière, la notation suivante est adoptée :

$$T^A(E) = \frac{N_{out}^A \phi_{in}^A(E)}{N_{in}^A \phi_{out}^A(E)} \quad (E.1)$$

avec

$A$ , position du faisceau d'électrons, soit dans notre cas :

$x_{max}, x_{min}, y_{min}, y_{max}$ .

$N_{in}^A$  et  $N_{out}^A$ , nombre d'évènements dans le moniteur  $M_1$  à la position  $A$  lorsque l'échantillon est dans et hors du faisceau de neutrons.

$\phi_{in}^A(E)$  et  $\phi_{out}^A(E)$ , flux de neutrons avec et sans échantillon dans le faisceau de neutrons (spectre de temps de vol corrigé du bruit de fond).

Afin de simuler l'effet des variations de position du faisceau d'électrons lors d'un cycle, les transmissions suivantes ont été construites :

$$\begin{aligned} T^{\Delta x}(E) &= \frac{N_{out}^{x_{max}} \phi_{in}^{x_{min}}(E)}{N_{in}^{x_{min}} \phi_{out}^{x_{max}}(E)} \\ T^{-\Delta x}(E) &= \frac{N_{out}^{x_{min}} \phi_{in}^{x_{max}}(E)}{N_{in}^{x_{max}} \phi_{out}^{x_{min}}(E)} \\ T^{\Delta y}(E) &= \frac{N_{out}^{y_{max}} \phi_{in}^{y_{min}}(E)}{N_{in}^{y_{min}} \phi_{out}^{y_{max}}(E)} \\ T^{-\Delta y}(E) &= \frac{N_{out}^{y_{min}} \phi_{in}^{y_{max}}(E)}{N_{in}^{y_{max}} \phi_{out}^{y_{min}}(E)} \end{aligned}$$

avec

$|\Delta x| = |-\Delta x| = 1,5$  mm, déplacement horizontal.

$|\Delta y| = |-\Delta y| = 1,5$  mm, déplacement vertical.

Les rapports de ces 8 transmissions par rapport à  $T^{x_{max}}$  (la position centrale ayant été mesurée dans des conditions différentes) sont représentées sur la figure 129, ainsi que la valeur intégrée  $\frac{N_{out}}{N_{in}} \frac{S_{in}}{S_{out}}$  pour chacune de ces positions.  $\frac{N_{out}}{N_{in}} \frac{S_{in}}{S_{out}}$  est la valeur donnée par le système d'acquisition que nous utilisons pour déterminer la distribution de la constante de normalisation  $K$ .

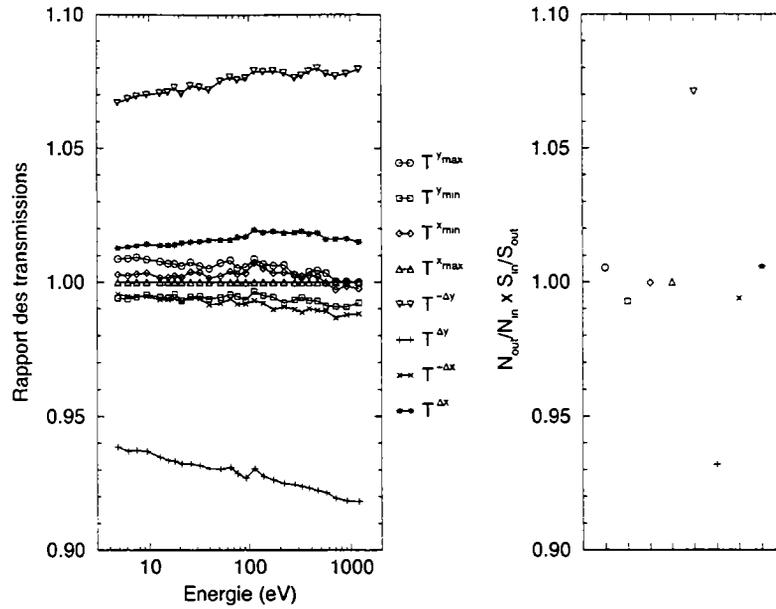


Fig.129 : Variation des transmissions mesurées pour différentes positions du faisceau d'électrons ( $x_{min} = -0,75$  mm,  $x_{max} = 0,75$  mm,  $y_{min} = -0,75$  mm,  $y_{max} = 0,75$  mm) et des transmissions correspondant à une variation de position du faisceau d'électrons de 1,5 mm dans le plan horizontal et vertical ( $\Delta x = x_{max} - x_{min}$ ,  $\Delta y = y_{max} - y_{min}$ ). Cette variation est représentée sur la figure de droite en fonction de l'énergie par rapport à la transmission mesurée à  $x = x_{max}$  tandis que sur la figure de gauche sont comparées les valeurs intégrées en énergie des transmissions, sans correction de bruit de fond.

### 2.3.3 Interprétation

A la lumière de la figure 129, les conséquences de la variation de la position du faisceau d'électrons sur le flux de neutrons se retrouvent comme attendu sur la transmission.

Si les deux flux  $\phi_{in}(E)$  et  $\phi_{out}(E)$  sont mesurés pour une même position de faisceau d'électrons, alors la transmission peut être considérée constante sur tout le domaine d'énergie (la petite différence observée pouvant être due à des variations dans les limites du rectangle de  $0,8 \times 0,2$  mm imposé pour le faisceau d'électrons).

Dans le cas contraire, on observe une variation, fonction de l'énergie, de la constante de normalisation. Quelque soit la position du faisceau d'électrons, il importe donc que celle-ci reste constante.

L'effet le plus marqué se traduit par une variation de la constante de normalisation. Une origine possible de ce phénomène est l'utilisation de l'information provenant des moniteurs. En effet, ceux-ci étant placés derrière plusieurs centimètres de modérateurs et de béton léger, ils ne voient que les neutrons des plus hautes énergies qui ne sont pas forcément ceux dont le temps de vol est mesuré dans nos expériences. Comme le laisse entendre la déformation, provoquée

par les variations de la position du faisceau d'électrons, du flux de neutrons en fonction de l'énergie, le nombre d'évènements donnés par le moniteur  $M_1$  ne serait pas représentatif du nombre réel de neutrons au niveau de la base de vol.

La déformation de la transmission en fonction de l'énergie provient entre autres de la modération des neutrons et du nombre de neutrons créés qui diffèrent selon le lieu où le faisceau d'électrons interagit avec la cible d'uranium.

Notons toutefois que d'après la figure 129, ces variations sur la transmission sont relativement symétriques et de plus n'interviennent que si le faisceau d'électrons change de position (surtout verticalement) au milieu d'un cycle, ce qui va se traduire par une variation notable du rapport  $\frac{N_{out}}{N_{in}} \frac{S_{in}}{S_{out}}$ , c'est à dire de la constante de normalisation  $K$ .

De plus, l'utilisation des cycles correspondant à un échantillonnage de la mesure du flux de neutrons, on s'attend à ce que, même en cas de variations chroniques de la position du faisceau d'électrons, la constante de normalisation soit distribuée autour de la valeur moyenne de manière plus ou moins statistique. Néanmoins, tout cycle ayant une valeur s'écartant anormalement de cette distribution devrait être éliminé.

### 3 Conclusion

L'installation d'un dispositif de contrôle de la position du faisceau d'électrons permet de visualiser directement ce faisceau et peut ainsi jouer un rôle significatif en cas de dysfonctionnement intervenant au niveau de l'accélérateur. De plus, le faisceau peut maintenant être maintenu facilement au centre du collimateur évitant ainsi des corrections en aveugle lorsque le faisceau s'approche du collimateur.

Même si l'échantillonnage résultant de l'utilisation de cycles réduit la dépendance de nos mesures vis à vis des variations du flux, il semble que la stabilisation de la position du faisceau d'électrons permet d'éliminer une des sources de ces variations. L'importance de cette stabilisation intervient particulièrement dans le cas de mesures de courtes durées ou n'utilisant pas la méthode des cycles alternés.

Dans le cas des expériences de capture, le flux est mesuré en même temps que les rayons gamma de désexcitation de l'échantillon et donc les variations de ce flux ne devraient pas intervenir, a priori. Néanmoins, ces expériences sont sensibles à des variations affectant l'uniformité du flux de neutrons.

Si la position du faisceau d'électrons permet d'éliminer une des sources de variation du flux de neutrons, il semble cependant que d'autres phénomènes agissent sur le flux. En effet, sur la figure 130 sont représentées les variations du rapport  $\frac{S_{out}}{N_{out}}$  et  $\frac{N_2}{N_1}$  en fonction du numéro du cycle pour l'expérience Février98 où la position du faisceau d'électrons était pourtant stabilisée à l'aide du dispositif décrit dans cette annexe.

Il apparaît donc que le flux de neutrons varie toujours, tant au niveau de la salle des cibles que dans les bases de vol. Outre une mauvaise procédure dans la correction apportée à la position du faisceau d'électrons (deux dipôles situés à la sortie de l'aimant de compression sont utilisés à cet effet), d'autres variations telles que celles de la distribution énergétique et la densité du faisceau d'électrons ou des variations de bruit de fond peuvent être incriminées, ce qui demanderait des études plus poussées dépassant le cadre de ce travail.

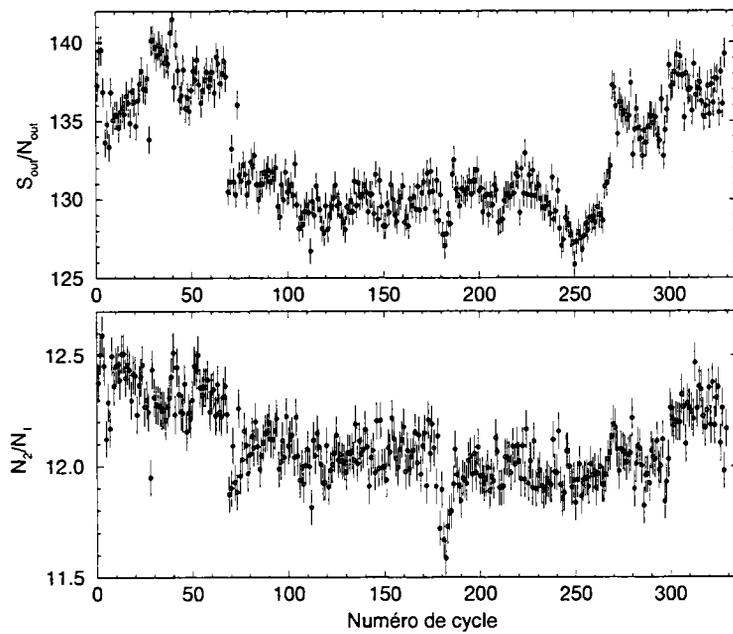


Fig.130 : Variations du rapport  $\frac{S_{out}}{N_{out}}$  entre le spectre de temps de vol intégré et le nombre d'évènements dans le moniteur  $M_1$  et du rapport  $\frac{N_1}{N_2}$  entre le nombre de coups dans les deux moniteurs  $M_1$  et  $M_2$  ( $N_{out} = N_1$ ).

# ANNEXE F

## Liste des paramètres de résonance

Cette annexe donne la liste des paramètres de résonance du  $^{237}\text{Np}$  déterminés par ce travail entre 0 et 500 eV. Il convient de préciser que la détermination de ces paramètres au delà de 120 eV a, pour le moment, été effectuée avec moins de rigueur qu'en dessous de 120 eV. Les notations utilisées, pour chaque résonance, sont les suivantes :

- $E$  : énergie cinétique des neutrons dans le laboratoire (en eV).
- $\Delta E$  : incertitude totale sur cette énergie (en eV).
- $J$  : spin de la résonance.
- $g\Gamma_n$  : largeur partielle neutronique multipliée par le facteur statistique de spin (en meV).
- $\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$  : incertitude sur  $g\Gamma_n$  provenant uniquement de l'ajustement par REFIT (en meV).
- $\Delta g\Gamma_n$  : incertitude totale sur  $g\Gamma_n$  (en meV). Sa détermination n'a été entreprise pour l'instant que jusqu'à 120 eV.
- $\Gamma_\gamma$  : largeur partielle radiative (en meV). Elle a été fixée à  $40 \pm 2$  meV pour la plupart des résonances.
- $\Delta\Gamma_\gamma \text{ fit}$  : incertitude sur  $\Gamma_\gamma$  provenant uniquement de l'ajustement par REFIT (en meV). Elle est nulle dans le cas où la largeur radiative a été fixée.
- $\Delta\Gamma_\gamma$  : incertitude totale sur  $\Gamma_\gamma$  (en meV), valant 2 meV dans le cas où  $\Gamma_\gamma$  est fixée.

Ce que nous appelons incertitude totale ne tient pas compte de l'incertitude sur l'épaisseur de  $^{237}\text{Np}$ . En effet, cela nous apparaît prématuré tant que l'écart supposé de 3 % entre l'épaisseur de nos différents échantillon n'a pas été résolu.

Pour l'instant, en nous fiant aux résultats du laboratoire PSI, nous considérons que l'incertitude sur l'épaisseur de  $^{237}\text{Np}$  est de 0,5 %. En première approximation, on peut considérer qu'elle équivaut à une incertitude de 0,5 % sur  $g\Gamma_n$ , à ajouter quadratiquement à  $\Delta g\Gamma_n$ .

La figure 131 présente les valeurs obtenues en dessous de 7 eV en utilisant le modèle cristallin harmonique pour l'élargissement Doppler. Les figures 132 à 143

donnent les paramètres de résonance, obtenus avec le modèle du gaz libre (dont l'utilisation semble correcte à partir de 15 à 20 eV), entre 0 et 500 eV.

<b>E</b>	<b>J</b>	<b>g<math>\Gamma</math>n</b>	<b><math>\Delta</math>g<math>\Gamma</math>n fit</b>	<b><math>\Delta</math>g<math>\Gamma</math>n</b>	<b><math>\Gamma</math><math>\gamma</math></b>	<b><math>\Delta</math><math>\Gamma</math><math>\gamma</math>fit</b>	<b><math>\Delta</math><math>\Gamma</math><math>\gamma</math>fit</b>
-3,49	3	1,2693	0,0360	1,0013	40,00	0,00	2,00
-0,56	2	0,1891	0,0011	0,0245	40,00	0,00	2,00
0,49	2	0,01958	0,00004	0,00062	40,50	0,12	1,59
1,32	3	0,01887	0,00002	0,00020	40,27	0,07	0,40
1,48	2	0,0767	0,0002	0,0023	40,49	0,15	1,52
1,97	3	0,00822	0,00001	0,00003	39,54	0,16	0,29
3,86	3	0,1234	0,0002	0,0022	39,67	0,12	1,21
4,26	2	0,01357	0,00006	0,00014	40,40	0,52	0,85
5,78	3	0,3082	0,0006	0,0144	41,86	0,19	2,55
6,38	3	0,0460	0,0001	0,0005	39,59	0,32	1,45
6,68	2	0,0055	0,0001	0,0005	40,08	2,90	9,86

Fig.131 : Paramètres de résonance entre 0 et 7 eV déterminés avec le modèle cristallin harmonique pour l'élargissement Doppler. Les incertitudes sont uniquement celles provenant de l'ajustement par REFIT. La résonance à 4,86 eV n'est pas donnée du fait de la présence de la résonance noire de l'or dans l'expérience Fevrier98 dont sont issues ces valeurs. Les paramètres sont : énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X$  fit, incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_y$	$\Delta\Gamma_y \text{ fit}$	$\Delta\Gamma_y$
-3,49		3	1,1492	0,0388	0,7618	40,00	0,00	2,00
-0,56		2	0,1897	0,0011	0,0096	40,00	0,00	2,00
0,4918	0,0002	2	0,01930	0,00004	0,00059	41,59	0,12	1,43
1,3208	0,0004	3	0,01845	0,00002	0,00020	38,78	0,07	0,31
1,4773	0,0005	2	0,07375	0,00016	0,00219	43,82	0,15	1,58
1,9683	0,0006	3	0,00811	0,00001	0,00004	37,60	0,17	0,32
3,865	0,001	3	0,1213	0,0002	0,0023	40,60	0,12	0,79
4,264	0,001	2	0,0135	0,0001	0,0002	38,75	0,52	1,02
4,861	0,002	2	0,0174	0,0001	0,0002	40,00	0,00	2,00
5,777	0,002	3	0,3032	0,0007	0,0112	42,98	0,18	1,01
6,375	0,002	3	0,0454	0,0001	0,0006	37,36	0,34	1,10
6,676	0,002	2	0,0055	0,0001	0,0002	40,00	0,00	2,00
7,188	0,003	2	0,0037	0,0001	0,0002	40,00	0,00	2,00
7,421	0,002	3	0,0714	0,0002	0,0006	38,36	0,32	0,86
7,681	0,005	2	0,0009	0,0001	0,0002	40,00	0,00	2,00
8,305	0,003	3	0,0526	0,0002	0,0006	37,59	0,48	1,56
8,976	0,003	3	0,0596	0,0002	0,0005	36,99	0,55	1,14
9,297	0,003	2	0,2509	0,0003	0,0040	41,44	0,22	0,79
10,231	0,004	2	0,0118	0,0001	0,0004	40,00	0,00	2,00
10,681	0,004	3	0,2519	0,0007	0,0032	40,00	0,00	2,00
10,843	0,004	3	0,4017	0,0012	0,0082	40,00	0,00	2,00
11,095	0,004	2	0,4208	0,0008	0,0114	43,78	0,30	1,90
12,201	0,004	3	0,0284	0,0002	0,0005	40,00	0,00	2,00
12,616	0,004	2	0,3795	0,0006	0,0073	40,16	0,25	1,18
13,135	0,005	3	0,0097	0,0002	0,0006	40,00	0,00	2,00
14,387	0,027	2	0,0010	0,0003	0,0007	40,00	0,00	2,00
15,787	0,006	3	0,0404	0,0003	0,0013	40,00	0,00	2,00
15,938	0,009	3	0,0223	0,0004	0,0007	40,00	0,00	2,00
16,086	0,005	2	0,4383	0,0008	0,0045	40,00	0,00	2,00
16,857	0,005	2	0,1244	0,0006	0,0018	37,78	0,96	2,68
17,592	0,006	3	0,0911	0,0006	0,0018	39,11	1,54	3,63
17,898	0,013	2	0,0076	0,0010	0,0015	40,00	0,00	2,00
17,942	0,025	3	0,0018	0,0010	0,0018	40,00	0,00	2,00
18,890	0,007	2	0,0198	0,0005	0,0009	40,00	0,00	2,00
19,126	0,006	3	0,0512	0,0005	0,0010	40,00	0,00	2,00
19,925	0,007	3	0,0408	0,0005	0,0010	40,00	0,00	2,00
20,398	0,007	2	0,5700	0,0011	0,0058	39,39	0,40	1,83
21,096	0,007	3	0,2599	0,0007	0,0027	40,00	0,00	2,00
21,319	0,007	2	0,0118	0,0006	0,0012	40,00	0,00	2,00
22,015	0,007	2	0,6242	0,0013	0,0065	39,49	0,46	1,97
22,864	0,007	3	0,2219	0,0011	0,0026	38,53	1,10	2,31
23,675	0,008	3	0,8283	0,0018	0,0084	37,95	0,52	2,50
23,981	0,008	2	0,0794	0,0008	0,0019	40,00	0,00	2,00
24,780	0,008	3	0,0154	0,0013	0,0064	40,00	0,00	2,00
24,982	0,008	3	2,1379	0,0062	0,0451	40,00	0,00	2,00
26,190	0,009	3	0,1163	0,0009	0,0018	40,00	0,00	2,00
26,560	0,009	3	1,3627	0,0031	0,0304	40,73	0,51	3,46
27,090	0,011	2	0,0157	0,0008	0,0017	40,00	0,00	2,00

Fig.132 : Paramètres de résonance de 0 à 28 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n$ fit	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_y$	$\Delta\Gamma_y$ fit	$\Delta\Gamma_y$
28,463	0,011	2	0,0391	0,0012	0,0015	40,00	0,00	2,00
28,613	0,010	3	0,0179	0,0016	0,0025	40,00	0,00	2,00
28,933	0,010	2	0,0570	0,0010	0,0018	40,00	0,00	2,00
29,480	0,010	2	0,0351	0,0010	0,0018	40,00	0,00	2,00
30,417	0,010	3	1,8346	0,0049	0,0386	38,15	0,57	3,46
30,742	0,010	2	0,1545	0,0015	0,0036	40,00	0,00	2,00
31,303	0,010	3	0,1432	0,0012	0,0024	40,00	0,00	2,00
31,657	0,012	3	0,0253	0,0011	0,0021	40,00	0,00	2,00
32,482	0,015	2	0,0044	0,0003	0,0010	40,00	0,00	2,00
33,421	0,011	3	0,2304	0,0013	0,0028	40,00	0,00	2,00
33,904	0,011	2	0,2030	0,0017	0,0029	40,00	0,00	2,00
34,076	0,012	3	0,0206	0,0020	0,0034	40,00	0,00	2,00
34,685	0,011	3	0,0991	0,0013	0,0024	40,00	0,00	2,00
35,203	0,011	2	0,1703	0,0014	0,0028	40,00	0,00	2,00
36,385	0,012	3	0,0733	0,0014	0,0025	40,00	0,00	2,00
36,818	0,014	2	0,0364	0,0017	0,0023	40,00	0,00	2,00
37,155	0,012	3	0,6638	0,0029	0,0068	37,37	1,31	2,58
37,830	0,016	2	0,0176	0,0017	0,0029	40,00	0,00	2,00
38,054	0,015	2	0,0868	0,0042	0,0122	40,00	0,00	2,00
38,194	0,012	3	0,6959	0,0038	0,0171	40,00	0,00	2,00
38,915	0,013	3	0,4759	0,0039	0,0044	40,00	0,00	2,00
39,012	0,014	2	0,1708	0,0043	0,0081	40,00	0,00	2,00
39,245	0,013	3	0,3085	0,0022	0,0056	40,00	0,00	2,00
39,800	0,016	2	0,0368	0,0043	0,0087	40,00	0,00	2,00
39,932	0,013	3	0,2624	0,0034	0,0077	40,00	0,00	2,00
41,358	0,013	3	1,1358	0,0036	0,0116	38,91	0,94	3,01
42,385	0,015	3	0,0490	0,0020	0,0032	40,00	0,00	2,00
42,836	0,015	3	0,0486	0,0021	0,0033	40,00	0,00	2,00
43,647	0,015	2	0,1411	0,0028	0,0040	40,00	0,00	2,00
44,277	0,018	2	0,0109	0,0010	0,0013	40,00	0,00	2,00
44,921	0,028	2	0,0050	0,0010	0,0013	40,00	0,00	2,00
45,712	0,015	2	0,2129	0,0036	0,0040	40,00	0,00	2,00
46,031	0,015	3	0,3326	0,0044	0,0052	40,00	0,00	2,00
46,359	0,015	3	1,5336	0,0077	0,0205	45,33	1,72	3,03
47,328	0,015	2	1,1929	0,0047	0,0127	38,22	1,25	2,83
48,440	0,016	2	0,0433	0,0025	0,0038	40,00	0,00	2,00
48,775	0,016	3	0,2037	0,0042	0,0059	40,00	0,00	2,00
48,895	0,022	2	0,0716	0,0042	0,0047	40,00	0,00	2,00
49,27	0,03	2	0,0030	0,0023	0,0032	40,00	0,00	2,00
49,82	0,02	3	2,4319	0,0078	0,0299	36,52	1,03	2,07
50,40	0,02	3	4,3143	0,0148	0,1493	46,79	0,98	6,19
51,71	0,02	3	0,0656	0,0027	0,0046	40,00	0,00	2,00
52,21	0,02	2	0,1672	0,0029	0,0046	40,00	0,00	2,00
52,65	0,02	2	0,3665	0,0031	0,0054	40,00	0,00	2,00
53,05	0,02	3	0,0341	0,0029	0,0048	40,00	0,00	2,00
53,89	0,02	2	0,2040	0,0031	0,0050	40,00	0,00	2,00
54,28	0,02	2	0,0656	0,0031	0,0048	40,00	0,00	2,00
55,04	0,02	3	0,1510	0,0031	0,0051	40,00	0,00	2,00

Fig.133 : Paramètres de résonance de 28 à 56 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X$  fit, incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_\gamma$	$\Delta\Gamma_\gamma \text{ fit}$	$\Delta\Gamma_\gamma$
56,01	0,02	2	0,5054	0,0341	0,0382	40,00	0,00	2,00
56,16	0,02	3	0,4188	0,0337	0,0361	40,00	0,00	2,00
56,57	0,03	2	0,0150	0,0042	0,0053	40,00	0,00	2,00
56,86	0,08	3	0,0073	0,0037	0,0052	40,00	0,00	2,00
58,39	0,02	3	0,2170	0,0041	0,0052	40,00	0,00	2,00
58,63	0,02	3	0,1429	0,0047	0,0066	40,00	0,00	2,00
59,51	0,02	2	0,9738	0,0048	0,0098	40,00	0,00	2,00
60,06	0,02	3	1,3265	0,0056	0,0176	40,00	0,00	2,00
60,97	0,02	3	0,9112	0,0049	0,0115	40,00	0,00	2,00
61,37	0,03	3	0,0087	0,0051	0,0072	40,00	0,00	0,00
61,66	0,02	3	0,2639	0,0041	0,0059	40,00	0,00	2,00
62,37	0,02	2	0,1593	0,0135	0,0301	40,00	0,00	2,00
62,51	0,02	3	0,8254	0,0117	0,0279	40,00	0,00	2,00
62,92	0,02	3	0,8663	0,0051	0,0123	40,00	0,00	2,00
63,45	0,02	2	0,0345	0,0038	0,0061	40,00	0,00	2,00
63,96	0,02	3	0,1438	0,0039	0,0063	40,00	0,00	2,00
64,97	0,02	3	0,4990	0,0044	0,0072	40,00	0,00	2,00
65,71	0,02	3	2,2091	0,0090	0,0307	47,36	1,65	3,74
66,36	0,05	2	0,0115	0,0041	0,0062	40,00	0,00	2,00
67,49	0,02	3	2,8385	0,0118	0,0357	42,76	1,56	4,38
67,98	0,02	2	1,1767	0,0068	0,0212	40,00	0,00	2,00
68,78	0,02	3	0,1799	0,0043	0,0073	40,00	0,00	2,00
69,28	0,06	2	0,0054	0,0021	0,0021	40,00	0,00	2,00
70,26	0,02	3	0,9701	0,0057	0,0111	40,00	0,00	2,00
70,69	0,02	2	0,2598	0,0052	0,0086	40,00	0,00	2,00
71,22	0,02	3	1,0640	0,0087	0,0330	40,00	0,00	2,00
71,45	0,03	2	1,0029	0,0178	0,0535	40,00	0,00	2,00
71,55	0,03	3	0,3407	0,0140	0,0751	40,00	0,00	2,00
72,97	0,06	2	0,0042	0,0042	0,0042	40,00	0,00	2,00
73,88	0,03	3	0,1612	0,0048	0,0079	40,00	0,00	2,00
74,30	0,02	2	0,7058	0,0057	0,0098	40,00	0,00	2,00
74,59	0,02	3	0,2654	0,0070	0,0100	40,00	0,00	2,00
75,15	0,03	2	0,0609	0,0046	0,0075	40,00	0,00	2,00
75,65	0,06	3	0,0058	0,0058	0,0058	40,00	0,00	2,00
76,22	0,03	3	0,0170	0,0046	0,0073	40,00	0,00	2,00
76,58	0,03	2	0,0731	0,0052	0,0070	40,00	0,00	2,00
77,01	0,03	3	0,1640	0,0055	0,0070	40,00	0,00	2,00
77,57	0,03	2	0,0137	0,0037	0,0061	40,00	0,00	2,00
78,33	0,03	3	0,8575	0,0525	0,0684	40,00	0,00	2,00
78,47	0,03	2	0,2888	0,0543	0,0705	40,00	0,00	2,00
79,28	0,03	2	1,2221	0,0068	0,0161	40,00	0,00	2,00
80,40	0,03	2	0,0892	0,0075	0,0122	40,00	0,00	2,00
80,65	0,03	3	0,2494	0,0065	0,0085	40,00	0,00	2,00
81,63	0,03	2	0,1991	0,0059	0,0088	40,00	0,00	2,00
82,12	0,03	3	0,4013	0,0061	0,0093	40,00	0,00	2,00
82,40	0,03	2	0,0263	0,0042	0,0042	40,00	0,00	2,00
83,41	0,03	2	1,3629	0,0112	0,0220	40,00	0,00	2,00
83,69	0,03	3	1,8387	0,0222	0,0574	40,00	0,00	2,00

Fig.134 : Paramètres de résonance de 56 à 83,7 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_\gamma$	$\Delta \Gamma_\gamma \text{ fit}$	$\Delta \Gamma_\gamma$
83,82	0,03	2	1,0446	0,0172	0,0367	40,00	0,00	2,00
85,22	0,03	3	0,5440	0,0065	0,0110	40,00	0,00	2,00
86,12	0,03	2	0,4258	0,0082	0,0163	40,00	0,00	2,00
86,54	0,03	3	2,7936	0,0130	0,0464	40,00	0,00	2,00
87,60	0,03	2	0,6775	0,0125	0,0182	40,00	0,00	2,00
87,75	0,03	3	1,0704	0,0143	0,0175	40,00	0,00	2,00
88,18	0,03	3	0,5376	0,0071	0,0127	40,00	0,00	2,00
88,95	0,03	3	0,9345	0,0080	0,0143	40,00	0,00	2,00
89,47	0,03	3	2,0813	0,0104	0,0299	40,00	0,00	2,00
90,89	0,03	3	2,5031	0,0109	0,0343	40,00	0,00	2,00
91,36	0,03	2	0,0780	0,0071	0,0124	40,00	0,00	2,00
91,99	0,03	3	0,2812	0,0069	0,0117	40,00	0,00	2,00
92,81	0,03	3	0,0932	0,0064	0,0112	40,00	0,00	2,00
93,41	0,03	2	0,9083	0,0080	0,0148	40,00	0,00	2,00
94,27	0,04	3	0,1801	0,0270	0,0281	40,00	0,00	2,00
94,52	0,12	2	0,0409	0,0269	0,0281	40,00	0,00	2,00
95,09	0,07	3	0,0418	0,0097	0,0126	40,00	0,00	2,00
95,43	0,03	2	0,1766	0,0104	0,0123	40,00	0,00	2,00
96,46	0,09	3	0,0444	0,0310	0,0324	40,00	0,00	2,00
96,68	0,04	2	0,1945	0,0269	0,0290	40,00	0,00	2,00
97,77	0,03	2	1,6529	0,0110	0,0198	40,00	0,00	2,00
98,51	0,03	2	1,0817	0,0108	0,0166	40,00	0,00	2,00
99,00	0,05	3	0,0571	0,0091	0,0135	40,00	0,00	2,00
99,54	0,03	3	0,9293	0,0103	0,0155	40,00	0,00	2,00
100,23	0,03	3	2,5241	0,0137	0,0265	40,00	0,00	2,00
101,08	0,03	2	2,5908	0,0141	0,0302	40,00	0,00	2,00
101,67	0,03	2	0,7004	0,0136	0,0186	40,00	0,00	2,00
102,02	0,03	2	0,8696	0,0120	0,0179	40,00	0,00	2,00
103,79	0,03	3	0,6557	0,0227	0,0284	40,00	0,00	2,00
103,99	0,04	2	0,1726	0,0273	0,0358	40,00	0,00	2,00
104,62	0,04	2	0,2014	0,0102	0,0147	40,00	0,00	2,00
105,24	0,03	3	1,0121	0,0120	0,0169	40,00	0,00	2,00
105,77	0,03	2	1,6392	0,0134	0,0253	40,00	0,00	2,00
106,75	0,03	3	0,0181	0,0131	0,0175	40,00	0,00	2,00
107,11	0,04	2	0,2785	0,0123	0,0144	40,00	0,00	2,00
108,85	0,04	2	0,4438	0,0211	0,0233	40,00	0,00	2,00
109,18	0,04	2	1,0871	0,0216	0,0251	40,00	0,00	2,00
109,69	0,07	3	0,0142	0,0053	0,0053	40,00	0,00	2,00
110,36	0,04	3	0,5715	0,0136	0,0162	40,00	0,00	2,00
110,64	0,04	2	0,5925	0,0166	0,0178	40,00	0,00	2,00
111,03	0,04	3	1,4741	0,0136	0,0195	40,00	0,00	2,00
111,78	0,04	3	1,6561	0,0137	0,0227	40,00	0,00	2,00
112,31	0,04	3	0,2547	0,0116	0,0164	40,00	0,00	2,00
112,63	0,25	2	0,0093	0,0088	0,0088	40,00	0,00	2,00
113,06	0,08	2	0,0760	0,0199	0,0225	40,00	0,00	2,00
113,44	0,04	2	0,7400	0,0246	0,0283	40,00	0,00	2,00
113,79	0,04	3	1,7856	0,0314	0,0380	40,00	0,00	2,00
114,08	0,10	3	0,0286	0,0128	0,0128	40,00	0,00	2,00

Fig.135 : Paramètres de résonance de 83,7 à 114,5 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_\gamma$	$\Delta\Gamma_\gamma \text{ fit}$	$\Delta\Gamma_\gamma$
114,78	0,04	2	1,0917	0,0132	0,0197	40,00	0,00	2,00
115,53	0,04	2	0,2496	0,0181	0,0240	40,00	0,00	2,00
115,85	0,04	2	0,9896	0,0163	0,0216	40,00	0,00	2,00
116,82	0,04	3	0,2059	0,0131	0,0183	40,00	0,00	2,00
117,68	0,04	2	1,0400	0,0153	0,0221	40,00	0,00	2,00
119,13	0,04	2	0,5892	0,0233	0,0255	40,00	0,00	2,00
119,53	0,04	3	0,3705	0,0231	0,0259	40,00	0,00	2,00
120,14	0,05	3	0,2003	0,0181		40,00	0,00	2,00
121,56	0,09	2	0,0000	0,0079		40,00	0,00	2,00
122,04	0,05	3	0,1699	0,0215		40,00	0,00	2,00
122,43	0,08	2	0,0185	0,0244		40,00	0,00	2,00
123,52	0,07	3	0,0390	0,0294		40,00	0,00	2,00
123,83	0,06	3	0,1623	0,0274		40,00	0,00	2,00
125,08	0,04	3	0,5489	0,0269		40,00	0,00	2,00
125,71	0,04	3	1,1072	0,0194		40,00	0,00	2,00
125,99	0,05	2	0,4143	0,0200		40,00	0,00	2,00
126,32	0,04	3	0,7204	0,0417		40,00	0,00	2,00
127,03	0,06	3	0,1096	0,0250		40,00	0,00	2,00
127,37	0,06	2	0,3031	0,0289		40,00	0,00	2,00
127,71	0,06	2	0,1045	0,0339		40,00	0,00	2,00
128,70	0,08	3	0,0000	0,2834		40,00	0,00	2,00
129,40	0,05	2	0,2555	0,0454		40,00	0,00	2,00
129,67	0,05	3	0,3380	0,0343		40,00	0,00	2,00
131,47	0,05	2	0,3073	0,0353		40,00	0,00	2,00
131,92	0,05	3	0,5056	0,0487		40,00	0,00	2,00
132,75	0,14	2	0,0509	0,0229		40,00	0,00	2,00
133,56	0,04	3	2,6968	0,0329		40,00	0,00	2,00
134,20	0,08	3	0,1271	0,0231		40,00	0,00	2,00
134,78	0,04	3	0,0251	0,0230		40,00	0,00	2,00
135,48	0,12	2	0,0614	0,0252		40,00	0,00	2,00
136,38	0,34	2	0,0222	0,0229		40,00	0,00	2,00
137,07	0,14	3	0,1007	0,0491		40,00	0,00	2,00
137,50	0,05	3	1,5983	0,0517		40,00	0,00	2,00
137,95	0,06	2	0,3903	0,0398		40,00	0,00	2,00
138,51	0,05	3	1,3656	0,0553		40,00	0,00	2,00
138,99	0,05	2	1,2700	0,0799		40,00	0,00	2,00
139,42	0,10	3	0,2343	0,0564		40,00	0,00	2,00
139,94	0,07	3	0,2509	0,0431		40,00	0,00	2,00
140,43	0,07	2	0,2127	0,0441		40,00	0,00	2,00
141,24	0,05	2	0,7421	0,0613		40,00	0,00	2,00
141,60	0,09	3	0,2123	0,0590		40,00	0,00	2,00
142,27	0,05	3	0,3083	0,0263		40,00	0,00	2,00
143,44	7,70	2	0,0202	0,2799		40,00	0,00	2,00
144,37	0,08	3	2,1788	0,4608		40,00	0,00	2,00
144,66	0,37	2	0,2042	0,4563		40,00	0,00	2,00
145,60	0,05	2	0,3261	0,0224		40,00	0,00	2,00
146,59	0,06	2	0,6154	0,2274		40,00	0,00	2,00
146,89	0,33	3	0,2140	0,1439		40,00	0,00	2,00

Fig.136 : Paramètres de résonance de 114,5 à 147 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_\gamma$	$\Delta\Gamma_\gamma \text{ fit}$	$\Delta\Gamma_\gamma$
147,33	0,05	3	0,9176	0,1143		40,00	0,00	2,00
148,58	0,05	3	0,5444	0,0184		40,00	0,00	2,00
149,66	0,06	2	0,5904	0,0728		40,00	0,00	2,00
150,00	0,06	2	0,7196	0,0498		40,00	0,00	2,00
150,49	0,05	3	2,3538	0,0604		40,00	0,00	2,00
150,82	0,05	3	0,5381	0,0803		40,00	0,00	2,00
151,97	0,07	2	0,1823	0,0381		40,00	0,00	2,00
152,32	0,05	3	1,2641	0,0378		40,00	0,00	2,00
154,20	0,05	3	1,0226	0,0593		40,00	0,00	2,00
154,43	0,06	2	0,3225	0,0604		40,00	0,00	2,00
155,41	0,05	3	0,5777	0,0177		40,00	0,00	2,00
156,43	0,05	3	0,8919	0,0411		40,00	0,00	2,00
156,84	0,05	3	0,4533	0,0391		40,00	0,00	2,00
158,07	0,05	3	0,7222	0,0373		40,00	0,00	2,00
158,46	0,05	3	1,9822	0,0340		40,00	0,00	2,00
159,60	0,12	3	0,0440	0,0126		40,00	0,00	2,00
160,70	0,05	3	2,6746	0,0222		68,30	0,00	2,00
161,90	0,05	3	0,5101	0,0194		40,00	0,00	2,00
163,00	0,05	3	1,9793	0,0207		42,20	0,00	2,00
164,34	0,05	3	1,1807	0,0185		40,00	0,00	2,00
165,24	0,06	3	0,2749	0,0183		40,00	0,00	2,00
166,83	0,10	3	1,5394	1,8159		40,00	0,00	2,00
166,96	0,10	2	0,8754	1,3171		40,00	0,00	2,00
168,67	0,08	3	0,2440	0,0892		40,00	0,00	2,00
169,05	0,06	3	2,4459	0,1015		40,00	0,00	2,00
169,94	0,08	3	0,7187	0,1167		40,00	0,00	2,00
170,31	0,06	3	0,3393	0,0811		40,00	0,00	2,00
171,05	0,06	2	1,9642	0,0220		40,00	0,00	2,00
172,29	0,06	2	0,5458	0,0201		40,00	0,00	2,00
173,00	0,06	3	0,9193	0,0215		40,00	0,00	2,00
173,34		3	0,5130			40,00	0,00	2,00
174,85	0,06	3	0,6032	0,0398		40,00	0,00	2,00
175,31	0,06	2	1,5083	0,0420		40,00	0,00	2,00
176,28	0,06	3	2,2552	0,0255		40,00	0,00	2,00
176,93	0,06	3	3,0503	0,0936		40,00	0,00	2,00
177,24	0,14	3	0,3058	0,1244		40,00	0,00	2,00
180,17	0,06	3	3,3104	0,0257		40,00	0,00	2,00
181,06	0,06	2	1,3658	0,0380		40,00	0,00	2,00
181,55	0,07	2	0,2215	0,0350		40,00	0,00	2,00
182,47	0,06	3	1,2285	0,0226		40,00	0,00	2,00
183,36	0,06	2	1,0658	0,0227		40,00	0,00	2,00
184,15	0,06	2	2,8992	0,0202		40,00	0,00	2,00
185,67	0,08	2	0,1959	0,0242		40,00	0,00	2,00
186,29	0,06	2	0,4358	0,0235		40,00	0,00	2,00
188,04	0,06	2	5,7875	0,0315		40,00	0,00	2,00
189,18	0,06	2	3,0271	0,0269		40,00	0,00	2,00
190,66	0,06	3	2,1082	0,2816		40,00	0,00	2,00
190,90	0,08	2	0,9942	0,2943		40,00	0,00	2,00

Fig.137 : Paramètres de résonance de 147 à 191 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n$ fit	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_y$	$\Delta\Gamma_y$ fit	$\Delta\Gamma_y$
191,74	0,06	3	0,5944	0,0237		40,00	0,00	2,00
193,63	0,06	2	1,6125	0,0256		40,00	0,00	2,00
194,56	0,07	3	0,6568	0,0340		40,00	0,00	2,00
195,13	0,12	2	0,1358	0,0289		40,00	0,00	2,00
195,79	0,06	2	1,3800	0,0273		40,00	0,00	2,00
196,62	0,07	3	4,8300	1,1918		40,00	0,00	2,00
196,79	0,07	3	2,6314	1,0593		40,00	0,00	2,00
197,95	0,14	2	0,1050	0,0278		40,00	0,00	2,00
198,67	0,07	2	0,2838	0,0262		40,00	0,00	2,00
199,87	0,07	2	0,5617	0,0767		40,00	0,00	2,00
200,27	0,12	2	0,2507	0,0712		40,00	0,00	2,00
200,93	0,07	3	1,1340	0,0348		40,00	0,00	2,00
202,43	0,12	3	0,1551	0,0317		40,00	0,00	2,00
203,08	0,09	3	0,3803	0,0419		40,00	0,00	2,00
203,76	0,17	2	0,1908	0,0545		40,00	0,00	2,00
204,35	0,07	3	1,7914	0,0573		40,00	0,00	2,00
205,73	0,07	2	0,8225	0,0266		40,00	0,00	2,00
206,71	0,07	3	4,6655	0,0302		40,00	0,00	2,00
207,97	0,07	2	1,9254	0,0300		40,00	0,00	2,00
208,67	0,11	3	0,1453	0,0299		40,00	0,00	2,00
210,27	0,07	2	2,1542	0,1120		40,00	0,00	2,00
210,56	0,07	2	1,9750	0,1154		40,00	0,00	2,00
213,03	0,07	2	1,0717	0,0357		40,00	0,00	2,00
213,62	0,08	3	0,4705	0,0297		40,00	0,00	2,00
214,58	0,08	2	0,7100	0,0518		40,00	0,00	2,00
214,90	0,07	3	0,2875	0,0673		40,00	0,00	2,00
216,75	0,07	2	2,8050	0,0878		40,00	0,00	2,00
217,24	0,07	2	5,1750	0,0844		40,00	0,00	2,00
218,61	0,07	2	1,1400	0,0322		40,00	0,00	2,00
219,42	0,08	3	0,4668	0,0306		40,00	0,00	2,00
220,30	0,07	2	0,9558	0,0298		40,00	0,00	2,00
221,52	0,07	3	0,1587	0,0897		40,00	0,00	2,00
222,05	0,07	2	1,5813	0,0424		40,00	0,00	2,00
222,64	0,08	2	0,5017	0,0394		40,00	0,00	2,00
223,65	0,13	3	0,1508	0,0375		40,00	0,00	2,00
224,34	0,07	2	2,2125	0,0402		40,00	0,00	2,00
225,53	0,11	3	0,1951	0,0362		40,00	0,00	2,00
226,40	0,09	2	2,6542	1,0083		40,00	0,00	2,00
226,63	0,08	3	4,4923	0,9969		40,00	0,00	2,00
227,62	0,16	3	0,1969	0,0591		40,00	0,00	2,00
228,21	0,08	3	1,1025	0,0542		40,00	0,00	2,00
228,95	0,09	2	1,3954	0,2260		40,00	0,00	2,00
229,30	0,08	2	1,3617	0,2331		40,00	0,00	2,00
230,17	0,08	3	1,9023	0,0413		40,00	0,00	2,00
231,70	0,08	2	5,6875	0,6721		40,00	0,00	2,00
231,93	0,08	3	2,4739	0,6487		40,00	0,00	2,00
232,98	0,08	2	1,7063	0,0366		40,00	0,00	2,00
234,09	0,08	2	1,6713	0,0365		40,00	0,00	2,00

Fig.138 : Paramètres de résonance de 191 à 234,5 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X$  fit, incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_\gamma$	$\Delta\Gamma_\gamma \text{ fit}$	$\Delta\Gamma_\gamma$
234,79	0,18	2	0,2202	0,0494		40,00	0,00	2,00
235,39	0,08	2	1,5058	0,0510		40,00	0,00	2,00
236,15	0,08	3	0,4877	0,0398		40,00	0,00	2,00
237,28	0,08	3	2,9050	0,0529		40,00	0,00	2,00
238,03	0,11	3	0,6860	0,3930		40,00	0,00	2,00
238,29	0,08	2	3,0346	0,3871		40,00	0,00	2,00
239,41	0,08	2	1,7179	0,1287		40,00	0,00	2,00
239,86	0,08	3	1,5079	0,1139		40,00	0,00	2,00
240,63	0,11	2	0,3118	0,0425		40,00	0,00	2,00
241,33	0,36	3	0,0685	0,0433		40,00	0,00	2,00
242,53	0,08	2	0,7396	0,0373		40,00	0,00	2,00
243,44	0,09	3	0,4850	0,0380		40,00	0,00	2,00
244,49	0,09	2	0,4621	0,0404		40,00	0,00	2,00
245,29	0,09	3	0,4005	0,0402		40,00	0,00	2,00
246,23	0,08	3	1,6176	0,0709		40,00	0,00	2,00
246,85	0,14	3	0,4364	0,0622		40,00	0,00	2,00
247,40	0,14	2	0,3201	0,0748		40,00	0,00	2,00
248,13	0,15	2	0,2238	0,0478		40,00	0,00	2,00
249,13	0,11	3	0,9748	0,1706		40,00	0,00	2,00
249,55	0,08	2	2,3729	0,1488		40,00	0,00	2,00
251,02	0,08	2	1,0479	0,0464		40,00	0,00	2,00
252,01	0,08	3	4,6801	0,0495		40,00	0,00	2,00
253,02	0,08	3	2,6758	0,1118		40,00	0,00	2,00
253,51	0,10	2	0,5379	0,1084		40,00	0,00	2,00
254,75	0,08	3	2,1379	0,0442		40,00	0,00	2,00
256,45	0,09	2	1,1071	0,0635		40,00	0,00	2,00
257,15	0,12	3	1,6083	0,7688		40,00	0,00	2,00
257,51	0,16	2	1,8479	0,6317		40,00	0,00	2,00
258,04	0,16	3	0,3953	0,2660		40,00	0,00	2,00
259,13	0,08	3	5,3159	0,0563		40,00	0,00	2,00
259,90	0,08	3	2,7323	0,0498		40,00	0,00	2,00
260,89	0,14	2	0,3875	0,0666		40,00	0,00	2,00
261,49	0,11	2	0,4450	0,0792		40,00	0,00	2,00
263,85	0,09	3	2,3631	0,1571		40,00	0,00	2,00
264,39	0,14	3	1,3137	0,6230		40,00	0,00	2,00
264,64	0,33	3	0,5226	0,8773		40,00	0,00	2,00
266,65	0,19	3	0,2084	0,0675		40,00	0,00	2,00
267,82	0,10	2	0,7954	0,0781		40,00	0,00	2,00
268,41	0,09	3	0,6802	0,0737		40,00	0,00	2,00
269,44	0,72	2	0,1069	0,0940		40,00	0,00	2,00
270,35	0,10	3	1,2868	0,0901		40,00	0,00	2,00
270,88	0,09	2	6,9500	0,1282		40,00	0,00	2,00
272,12	0,10	2	0,8213	0,0721		40,00	0,00	2,00
272,97	0,12	2	1,2442	0,2039		40,00	0,00	2,00
273,42	0,10	3	1,0955	0,2304		40,00	0,00	2,00
274,38	0,09	3	1,4123	0,0620		40,00	0,00	2,00
275,32	0,13	2	0,4358	0,1001		40,00	0,00	2,00
275,85	0,12	2	0,6021	0,0996		40,00	0,00	2,00

Fig.139 : Paramètres de résonance de 234,5 à 276 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_\gamma$	$\Delta\Gamma_\gamma \text{ fit}$	$\Delta\Gamma_\gamma$
277,15	0,09	2	2,1058	0,1412		40,00	0,00	2,00
277,57	0,09	2	2,7954	0,1509		40,00	0,00	2,00
278,50	0,23	2	0,1805	0,0714		40,00	0,00	2,00
280,14	0,10	2	0,9521	0,0636		40,00	0,00	2,00
280,90	0,09	2	4,6250	0,0797		40,00	0,00	2,00
282,17	0,09	2	1,6279	0,0710		40,00	0,00	2,00
283,08	0,09	2	2,2921	0,0858		40,00	0,00	2,00
283,86	0,10	3	0,8558	0,0848		40,00	0,00	2,00
285,13	0,19	3	0,3755	0,1000		40,00	0,00	2,00
286,97	0,16	2	1,3338	0,9629		40,00	0,00	2,00
287,29	0,77	2	0,2694	0,9129		40,00	0,00	2,00
288,54	0,11	3	0,6918	0,0895		40,00	0,00	2,00
290,58	0,10	2	2,9800	0,0939		40,00	0,00	2,00
291,96	0,10	2	1,4525	0,0864		40,00	0,00	2,00
293,41	0,10	3	2,2132	0,0874		40,00	0,00	2,00
295,10	0,11	3	0,7554	0,0881		40,00	0,00	2,00
296,44	0,12	3	0,7303	0,0907		40,00	0,00	2,00
297,19	0,10	2	5,7083	0,1165		40,00	0,00	2,00
298,14	0,10	3	4,5868	0,1149		40,00	0,00	2,00
299,34	0,10	2	4,2625	0,1035		40,00	0,00	2,00
300,66	0,10	2	3,7392	0,3384		40,00	0,00	2,00
301,16	0,12	2	1,5038	0,3170		40,00	0,00	2,00
302,10	0,10	3	2,2348	0,1061		40,00	0,00	2,00
304,21	0,12	2	0,5875	0,0898		40,00	0,00	2,00
306,42	0,14	3	3,5496	2,5562		40,00	0,00	2,00
306,70	0,14	2	5,6625	2,4279		40,00	0,00	2,00
307,41	0,11	2	2,3858	0,2233		40,00	0,00	2,00
309,22	1,39	2	0,3094	3,9038		40,00	0,00	2,00
309,41	0,74	3	0,5016	4,2764		40,00	0,00	2,00
310,73	0,16	3	0,5528	0,1935		40,00	0,00	2,00
311,39	0,11	2	4,8333	0,1859		40,00	0,00	2,00
312,10	0,18	3	1,4928	0,3928		40,00	0,00	2,00
312,58	0,11	2	3,3900	0,3750		40,00	0,00	2,00
313,30	0,10	3	3,6283	0,1949		40,00	0,00	2,00
314,88	0,10	2	2,2471	0,1007		40,00	0,00	2,00
316,49	0,10	2	2,0663	0,0992		40,00	0,00	2,00
318,54	0,11	2	2,0913	0,1392		40,00	0,00	2,00
319,44	0,27	3	0,2153	0,1307		40,00	0,00	2,00
321,43	0,19	3	2,0102	0,8377		40,00	0,00	2,00
321,84	0,18	2	2,8321	0,3475		40,00	0,00	2,00
322,55	0,25	2	1,5292	0,1810		40,00	0,00	2,00
323,13	0,11	3	4,1743	0,4790		40,00	0,00	2,00
323,90		2	0,2841			40,00	0,00	2,00
325,77	0,60	2	0,0011	0,0718		40,00	0,00	2,00
326,40	0,39	3	2,5678	1,2985		40,00	0,00	2,00
326,99	0,63	2	1,4854	2,6225		40,00	0,00	2,00
327,68	0,18	3	0,8348	0,3417		40,00	0,00	2,00
330,07	0,11	3	4,2309	0,1142		40,00	0,00	2,00

Fig.140 : Paramètres de résonance de 276 à 331 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_\gamma$	$\Delta\Gamma_\gamma \text{ fit}$	$\Delta\Gamma_\gamma$
331,02	0,13	3	0,5769	0,0942		40,00	0,00	2,00
332,44	0,11	3	2,1379	0,1074		40,00	0,00	2,00
333,59	0,11	3	2,3252	0,1145		40,00	0,00	2,00
335,41	0,11	3	3,2025	0,1604		40,00	0,00	2,00
336,45	0,43	3	0,3620	0,3235		40,00	0,00	2,00
336,96	0,14	2	0,9629	0,3089		40,00	0,00	2,00
338,76	0,13	3	1,1358	0,1376		40,00	0,00	2,00
339,63	0,29	3	0,4577	0,1538		40,00	0,00	2,00
340,35	0,26	2	0,7363	0,2372		40,00	0,00	2,00
341,19	0,62	2	0,1523	0,1368		40,00	0,00	2,00
342,95	0,25	3	0,6423	0,2867		40,00	0,00	2,00
343,46	0,12	2	1,8817	0,2642		40,00	0,00	2,00
346,21	0,12	2	2,7446	0,1375		40,00	0,00	2,00
347,08	0,13	3	1,1848	0,1221		40,00	0,00	2,00
349,20	0,12	2	1,7617	0,1418		40,00	0,00	2,00
350,02	0,18	3	1,1877	0,4377		40,00	0,00	2,00
350,81	0,12	2	3,0908	0,4517		40,00	0,00	2,00
352,05	0,12	2	2,4296	0,2320		40,00	0,00	2,00
352,63	0,14	3	1,0436	0,2011		40,00	0,00	2,00
353,77	0,12	2	1,6321	0,1252		40,00	0,00	2,00
355,12	0,12	3	1,6841	0,1308		40,00	0,00	2,00
356,17	0,15	2	0,4221	0,2446		40,00	0,00	2,00
357,31		2	0,2779			40,00	0,00	2,00
358,32	0,12	3	1,4146	0,2361		40,00	0,00	2,00
359,56	17,04	2	0,0000	0,0629		40,00	0,00	2,00
361,52	0,13	3	5,1363	0,8120		40,00	0,00	2,00
361,99	0,57	2	0,5375	0,6933		40,00	0,00	2,00
362,75	0,17	2	1,0429	0,2312		40,00	0,00	2,00
363,85	0,13	3	1,7809	0,1877		40,00	0,00	2,00
364,68	0,12	3	5,3655	0,1886		40,00	0,00	2,00
365,49	0,15	2	1,3088	0,1833		40,00	0,00	2,00
366,48	0,63	3	0,2963	0,3798		40,00	0,00	2,00
367,11	0,14	2	2,0629	0,6467		40,00	0,00	2,00
369,06	0,14	3	5,4233	2,0318		40,00	0,00	2,00
369,38	0,20	2	2,5192	2,0763		40,00	0,00	2,00
371,36	0,15	3	1,1398	0,1914		40,00	0,00	2,00
372,11	0,13	2	1,7729	0,2048		40,00	0,00	2,00
373,46	0,12	2	11,4625	0,1505		40,00	0,00	2,00
374,60	0,24	3	0,1664	0,1284		40,00	0,00	2,00
375,59	0,34	3	0,3729	0,1563		40,00	0,00	2,00
376,60	0,20	2	2,2875	1,2192		40,00	0,00	2,00
377,21	2,16	3	1,7862	31,4650		40,00	0,00	2,00
377,40	13,43	3	0,2056	31,9725		40,00	0,00	2,00
378,61	0,30	3	0,7723	0,3418		40,00	0,00	2,00
379,26	0,14	3	2,1986	0,2801		40,00	0,00	2,00
380,22	0,13	2	2,1446	0,1609		40,00	0,00	2,00
381,53	0,12	2	8,0208	0,2266		40,00	0,00	2,00
382,27	0,14	3	1,5464	0,2066		40,00	0,00	2,00

Fig.141 : Paramètres de résonance de 331 à 383 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_\gamma$	$\Delta \Gamma_\gamma \text{ fit}$	$\Delta \Gamma_\gamma$
383,55	0,32	2	1,7404	1,9221		40,00	0,00	2,00
383,93	0,19	3	3,8033	2,1257		40,00	0,00	2,00
384,90	0,13	2	5,5125	0,2180		40,00	0,00	2,00
386,60	0,15	3	1,2308	0,2105		40,00	0,00	2,00
387,60	0,28	2	0,7379	0,2780		40,00	0,00	2,00
388,19	0,14	3	1,7127	0,3112		40,00	0,00	2,00
390,13	0,17	3	1,5756	0,4545		40,00	0,00	2,00
390,72	0,13	2	4,2875	0,4588		40,00	0,00	2,00
392,22	0,16	3	0,8447	0,1447		40,00	0,00	2,00
394,51	0,31	2	0,2593	0,1432		40,00	0,00	2,00
397,08	0,41	2	0,4059	0,1691		40,00	0,00	2,00
398,69	0,18	3	0,6895	0,1102		40,00	0,00	2,00
399,80	0,14	2	1,8613	0,1145		40,00	0,00	2,00
401,56	0,32	2	0,8121	0,6908		40,00	0,00	2,00
402,02	0,20	3	1,4029	0,5997		40,00	0,00	2,00
403,15	0,14	2	2,5325	0,2340		40,00	0,00	2,00
404,03	0,36	3	0,4033	0,3417		40,00	0,00	2,00
405,14	0,13	2	3,3158	0,1363		40,00	0,00	2,00
407,27	0,18	2	1,1863	0,2190		40,00	0,00	2,00
408,19	0,16	3	1,3889	0,2064		40,00	0,00	2,00
410,56	0,75	2	1,2871	8,3375		40,00	0,00	2,00
411,62	9,96	3	0,0653	18,9408		40,00	0,00	2,00
413,13	4,15	2	1,5700	46,1667		40,00	0,00	2,00
414,16	13,25	3	2,5468	9,0650		40,00	0,00	2,00
414,85	1,07	2	2,5221	23,2833		40,00	0,00	2,00
415,75	2,84	2	2,9008	126,8333		40,00	0,00	2,00
416,98	0,34	3	0,3183	0,1686		40,00	0,00	2,00
418,20	0,18	3	1,8673	0,4686		40,00	0,00	2,00
418,73	0,21	3	1,3504	0,5655		40,00	0,00	2,00
420,50	0,16	3	3,3612	0,9584		40,00	0,00	2,00
421,01	0,21	2	3,7308	0,6758		40,00	0,00	2,00
421,55	0,23	2	2,2283	1,1767		40,00	0,00	2,00
422,82	0,14	3	3,8290	0,1721		40,00	0,00	2,00
423,57	0,29	3	0,3509	0,1899		40,00	0,00	2,00
425,66	0,19	2	0,2214	0,0778		40,00	0,00	2,00
426,67	0,14	3	3,3956	0,1674		40,00	0,00	2,00
427,44	0,16	3	0,9170	0,1524		40,00	0,00	2,00
429,62	0,20	3	0,0821	0,0788		40,00	0,00	2,00
431,84	0,17	3	1,0844	0,2433		40,00	0,00	2,00
432,54	0,20	2	0,7821	0,2237		40,00	0,00	2,00
436,29	0,15	3	2,5124	0,1413		40,00	0,00	2,00
437,59	0,24	3	1,3038	0,7671		40,00	0,00	2,00
438,15	0,23	2	2,1904	0,4529		40,00	0,00	2,00
438,84	0,19	3	1,3965	0,3997		40,00	0,00	2,00
439,95	0,15	2	2,7321	0,1400		40,00	0,00	2,00
441,22	0,25	3	0,3887	0,1325		40,00	0,00	2,00
444,94	0,15	2	3,5392	0,1558		40,00	0,00	2,00
447,65	0,19	3	0,8394	0,1640		40,00	0,00	2,00

Fig.142 : Paramètres de résonance de 383 à 448 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

E	$\Delta E$	J	$g\Gamma_n$	$\Delta g\Gamma_n \text{ fit}$	$\Delta g\Gamma_n$	$\Gamma_y$	$\Delta \Gamma_y \text{ fit}$	$\Delta \Gamma_y$
448,72	0,15	2	4,7000	0,3903		40,00	0,00	2,00
449,43	0,21	3	2,0738	0,4213		40,00	0,00	2,00
450,08	0,46	3	0,4526	0,5004		40,00	0,00	2,00
451,45	0,20	2	1,9808	0,3773		40,00	0,00	2,00
452,22	0,16	3	6,3583	0,3093		40,00	0,00	2,00
453,02	0,15	2	5,0000	0,4567		40,00	0,00	2,00
453,96	0,16	3	2,6542	0,2787		40,00	0,00	2,00
455,05	0,16	2	1,7500	0,2557		40,00	0,00	2,00
456,73	0,15	3	5,8800	0,2091		40,00	0,00	2,00
457,80	0,15	3	2,2931	0,2227		40,00	0,00	2,00
459,45	0,21	3	0,2884	0,1341		40,00	0,00	2,00
460,67	0,17	2	1,3300	0,2001		40,00	0,00	2,00
461,53	0,15	2	3,3158	0,2215		40,00	0,00	2,00
463,05	0,20	2	2,1779	0,6667		40,00	0,00	2,00
463,56	0,30	3	0,5610	0,6055		40,00	0,00	2,00
465,38	0,16	3	2,2038	0,2760		40,00	0,00	2,00
466,71	0,18	2	1,8175	0,2734		40,00	0,00	2,00
467,84	0,27	3	0,8021	0,3144		40,00	0,00	2,00
468,61	0,17	2	2,9779	0,3172		40,00	0,00	2,00
470,16	0,18	3	1,2413	0,2018		40,00	0,00	2,00
470,99	0,15	3	7,2158	0,2040		40,00	0,00	2,00
473,69	0,27	3	0,1400	0,1129		40,00	0,00	2,00
474,96	0,17	2	1,4308	0,2058		40,00	0,00	2,00
475,85	0,19	2	1,1308	0,2031		40,00	0,00	2,00
478,58	0,51	3	0,6055	0,5122		40,00	0,00	2,00
479,17	0,16	3	3,0963	0,4624		40,00	0,00	2,00
481,14	0,35	2	0,5346	0,3107		40,00	0,00	2,00
482,04	0,26	3	1,2180	0,2115		40,00	0,00	2,00
482,73	0,16	3	4,3383	0,3387		40,00	0,00	2,00
484,06	0,18	2	1,0258	0,1780		40,00	0,00	2,00
486,16	0,25	2	1,8821	1,0213		40,00	0,00	2,00
487,65	0,98	3	5,9792	76,8833		40,00	0,00	2,00
488,12	2,46	2	0,4375	24,1125		40,00	0,00	2,00
489,77	1,99	2	1,1579	7,7333		40,00	0,00	2,00
490,27	0,86	3	2,9383	1,3207		40,00	0,00	2,00
491,57	3,58	3	0,2328	0,6189		40,00	0,00	2,00
493,61	0,19	3	0,9462	0,2181		40,00	0,00	2,00
494,87	0,17	2	2,6713	0,2852		40,00	0,00	2,00
495,99	0,19	3	7,1050	1,7897		40,00	0,00	2,00
496,49	0,39	2	1,2067	2,2558		40,00	0,00	2,00
497,85	0,21	3	0,9987	0,3060		40,00	0,00	2,00
499,78	0,16	2	8,8542	0,2509		40,00	0,00	2,00
500,71	0,27	3	0,4619	0,1363		40,00	0,00	2,00

Fig.143 : Paramètres de résonance de 448 à 501 eV avec :  $\Delta E$ , incertitude totale sur l'énergie  $E$  (en eV) -  $J$ , spin -  $\Delta X \text{ fit}$ , incertitude de l'ajustement par REFIT sur  $X$  (nulle si le paramètre  $X$  est fixé) -  $\Delta X$ , incertitude totale sur  $X$ .  $X$  et  $\Delta X$  sont en meV.

## Résumé

Dans la phase d'études de futurs réacteurs dédiés à la transmutation des déchets nucléaires, une amélioration de la précision de la section efficace de capture radiative de  $^{237}\text{Np}$  apparaît nécessaire. Dans le cadre d'une collaboration entre le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) et le Institute for Reference Materials and Measurement (IRMM, Geel, Belgique), une nouvelle détermination des paramètres de résonance neutronique de  $^{237}\text{Np}$  a été entreprise. Deux types d'expériences furent menés auprès de la source pulsée de neutrons GELINA de l'IRMM en utilisant la méthode de temps de vol : une expérience de transmission permettant de remonter à la section efficace totale et une expérience de capture donnant accès à la section efficace de capture radiative. Les paramètres de résonances présentés dans ce travail sont déterminés à partir des données de transmission entre 0 et 500 eV à l'aide de REFIT, un code d'analyse par moindres carrés utilisant le formalisme de Reich-Moore. En parallèle à cette analyse, l'effet Doppler est étudié. Le modèle du gaz libre couramment employé se montre inadéquat en dessous de 20 eV pour le dioxyde de neptunium à température ambiante. En utilisant le programme DOPUSH, calculant l'élargissement Doppler à l'aide d'un modèle cristallin harmonique issu directement de la théorie de Lamb, nous pouvons décrire plus fidèlement les résonances de  $^{237}\text{Np}$  dans  $\text{NpO}_2$  à basse énergie ou température. Outre les paramètres de résonances, l'étude de leur valeur moyenne et de leur distribution a fait l'objet de ce travail.

## Abstract

For studies of future nuclear reactors dedicated to nuclear waste transmutation, an improvement of the accuracy of the neutron radiative capture cross section of  $^{237}\text{Np}$  appears necessary. In the framework of a collaboration between the Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) and Institute for Reference Materials and Measurement (IRMM, Geel, Belgium), a new determination of the resonance parameters of  $^{237}\text{Np}$  has been performed. Two types of experiments are carried out at GELINA, the IRMM pulsed neutron source, using the time of flight method : a transmission experiment which is related to the neutron total cross section and a capture experiment which gives the neutron radiative capture cross section. The resonance parameters presented in this work are extracted from the transmission data between 0 and 500 eV with the least square code REFIT, using the Reich-Moore formalism. In parallel, the Doppler effect is investigated. The commonly used free gas model appears inadequate below 20 eV for neptunium dioxide at room temperature. By the use of the program DOPUSH, which calculates the Doppler broadening with a harmonic crystal model according to Lamb's theory, we are able to produce a better fit of the experimental data for the resonances of  $^{237}\text{Np}$  in  $\text{NpO}_2$  at low energy or temperatures. In addition to the resonance parameters, a study of their mean value and distribution is included in this work.