



HAL
open science

**Des données nucléaires expérimentales à l'évaluation :
contribution à l'analyse statistique dans la réduction des
données et les tests d'hypothèses – application à la
fission**

Grégoire Kessedjian

► **To cite this version:**

Grégoire Kessedjian. Des données nucléaires expérimentales à l'évaluation : contribution à l'analyse statistique dans la réduction des données et les tests d'hypothèses – application à la fission. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Joseph Fourier, Grenoble, 2015. tel-01230164

HAL Id: tel-01230164

<https://hal.in2p3.fr/tel-01230164>

Submitted on 17 Nov 2015

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

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

Mémoire

Pour obtenir le diplôme d'

Habilitation à Diriger des Recherches

Spécialité : **Physique**

Arrêté ministériel : 23 novembre 1988

Présenté par

Grégoire Kessedjian

préparé au sein du **Laboratoire de Physique Subatomique et de
Cosmologie**
dans l'**École Doctorale de physique de Grenoble**

Des données nucléaires expérimentales à l'évaluation : contribution à l'analyse statistique dans la réduction des données et les tests d'hypothèses – application à la fission

HDR soutenue publiquement le **22 septembre 2015**,
devant le jury composé de :

M. Eric Liatard

Professeur des universités, LPSC (Grenoble), Président

Mme Héloïse Goutte

Chercheur, CEA Saclay, Rapporteur

M. Bertram Blank,

Directeur de recherche au CNRS, CENBG (Bordeaux), Rapporteur

M. Philippe Dessagne

Directeur de recherche au CNRS, IPHC (Strasbourg), Rapporteur

M. Herbert Faust

Chercheur, ILL (Grenoble), examinateur

M. Sylvain David

Chargé de Recherche au CNRS, IPN Orsay, examinateur

M. Olivier Serot

Directeur de Recherche, CEA Cadarache, examinateur invité



Habilitation à Diriger des Recherches

Des données nucléaires expérimentales à l'évaluation :
contribution à l'analyse statistique dans la réduction des données
et les tests d'hypothèses

-

application à la fission

Grégoire Kessedjian

27 octobre 2015

Remerciements

Ce travail est le fruit des excellentes conditions de travail qu'offre le LPSC et l'environnement scientifique à Grenoble. Si d'aucuns savent que je ne suis pas venu pour les montagnes, il est incontestable que le choix du poste à Grenoble INP/LPSC s'est avéré judicieux. Néanmoins le programme développé au LPSC en collaboration avec le CEA et l'ILL n'aurait pu voir le jour sans le soutien des directeurs successifs du LPSC Mrs. Serge Kox et Arnaud Lucotte. Je remercie les rapporteurs, Mme Héloïse Goutte, Mrs Philippe Dessagne et Bertram Blank d'avoir pris le temps d'évaluer ce travail ainsi que les examinateurs Mrs Eric Liatard, Sylvain David, Herbert Faut et Olivier Serot.

Pour un maître de conférences, à côté des enseignements et responsabilités pédagogiques, développer, porter, demander et gérer le budget d'un programme expérimental, en plus de l'encadrement des stagiaires et doctorants, demande une motivation à l'échelle de la passion. Enseignant à Grenoble INP, j'ai eu la chance d'avoir le soutien du directeur de l'école Phelma, M. Pierre Benech, dans ma demande de demi-délégation au CNRS durant deux dernières années afin de développer le projet FIPPS. Ce projet marque un point de départ dans la volonté d'imaginer un équipement innovant susceptible d'apporter des réponses instrumentales nouvelles aux questions posées par la fission. Via ce projet proposé par M. Herbert Faust en 2010, j'ai eu la chance de partager avec lui un grand nombre de discussions sur la fission comme sur l'instrumentation, instrumentation aussi complexe soit elle à l'image du spectromètre Lohengrin; qu'il soit grandement remercié pour ces nombreux échanges qui ont enrichi considérablement ma culture scientifique et technique. Il ne pourrait être oublié M. Olivier Serot d'avoir ouvert sa collaboration au LPSC. Au-delà des qualités humaines quasi-inégalables, Olivier a permis au LPSC d'être « proposeur » et porteur de projets aussi beaux que celui sur l'étude de la fission symétrique. Associer physique fondamentale et applications en apportant une réponse modeste mais utile est une satisfaction personnelle et une approche intelligible des besoins des données nucléaires concernant la fission. Ce prisme particulier des études de physique est très clairement présent dans la collaboration, notamment avec Mrs Oliver Litaize, Stefano Panebianco et tant d'autres que j'oublie *vraiment* ici. Je remercie également l'ensemble du groupe de physique des réacteurs¹ pour la confiance et le soutien accordé au démarrage de ce programme et l'apport de la compréhension des implications entre les physiques des réactions nucléaires et la physique des réacteurs.

On ne peut oublier les étudiants, en cours, en stage et en thèse qui ont façonné mon approche de l'enseignement et de l'encadrement. La philosophie de la distance optimale d'action semble être la caractéristique de cet échange, présent au quotidien en ayant la volonté d'orienter les travaux, mais suffisant éloigné pour permettre une exploration des outils nouveaux issus d'autres thématiques. Depuis 2010, j'ai eu la chance de suivre trois doctorants dans le champ d'interaction de notre groupe. Je pourrais dire de manière caricaturale que j'ai appris à diriger avec F.Martin, à échanger et innover avec A.Chebboubi. Avec Sylvain Julien-Laferrrière, un nouveau champ d'action reste à définir pour cette thèse qui commence juste. Qu'ils soient tous remerciés de m'avoir permis de passer cette étape importante dans la vie d'un enseignant-chercheur.

1. en particulier Mme Annick Billebaud et Mrs Christophe Sage, Olivier Méplan et Adrien Bidaud.

Mais la recherche, c'est aussi un savant compromis avec la vie de famille durant les we, les soirées, les vacances, parce que les semaines sont bien occupées par les enseignements et autres charges administratives. Néanmoins mes plus belles avancées durant ces cinq dernières années restent mes sources d'entropie au quotidien.

Table des matières

1	La problématique des données nucléaires	8
1.1	Les besoins de la thématique : données nucléaires directes et indirectes	8
1.2	Des données expérimentales aux données évaluées	11
1.2.1	Outils statistiques mis en œuvre - Illustrations sur les mesures de sections efficaces de réactions réalisées au CENBG et au LPSC	11
1.2.1.1	Les estimateurs utilisés	11
1.2.1.2	Outputs de l'analyse - Inputs de l'évaluation	13
1.2.1.3	Degrés de liberté associés à une série de mesures - décomposition en composantes principales	15
1.2.1.4	Approche fréquentiste	16
1.2.1.5	Approche bayésienne	19
1.2.2	Origine des termes de covariances dans les données	22
1.2.2.1	Covariance d'origine systématique	22
1.2.2.2	Covariance d'origine statistique : distribution de probabilité associée à un ensemble	22
1.3	Interprétation géométrique des covariances et méthode de propagation	28
1.4	Le futur des données nucléaires : pérennisation des données libres de toute normalisation	35
2	Mesures de rendements de fission pour les cycles du combustible	40
2.1	Objectifs et Méthodologie des mesures de rendements de fission	41
2.2	Mesures absolues des rendements en masse et en charge dans la région des fragments lourds	43
2.2.1	Principe de mesures de rendements en masse et en charge nucléaire : évolution apportée par la collaboration	45
2.2.2	Résultats de la collaboration	50
2.3	Descente vers les masses symétriques : la physique fondamentale se nourrit de la recherche appliquée	54
3	Validation des modèles pour les évaluations :	60
3.1	Des hypothèses aux modèles pour les évaluations	61
3.2	Projet d'étude de la région des fragments symétriques	63
3.3	Projet d'étude des rapports isomériques produits dans la fission – distribution de spin induite par la fission	77
3.3.1	Mesures directes de Rapports isomériques	77
3.3.2	Mesures indirectes de la population d'isomères ns par effet de conversion électronique	83
3.3.3	Interprétation par inférences bayésiennes	86
3.3.4	Conclusions sur les mesures de rapports isomériques : limites et perspectives	89
3.4	Les projets à venir autour des spectromètres magnétiques gazeux (GFM)	90
3.4.1	Résultats de la caractérisation des GFM dédiés aux fragments de fission	90
3.4.2	Projet de ligne isobarique pour l'étude de la puissance résiduelle	95

3.4.3	Proposition de projet d'un nouvel instrument : Fission Prompt Particule Spectrometer (FIPPS)	95
A	Mesure d'une observable par méthode de coïncidence	100
A.1	Méthodologie d'analyse	100
A.1.1	Calcul d'une observable par méthode de coïncidences	100
A.1.2	Incertitude associée à ce type de mesures : distribution de probabilité associée à un ensemble	100
A.1.2.1	Positionnement du problème	100
A.1.2.2	Ensembles d'évènements ne suivant pas une loi binomiale a priori	101
A.1.2.3	Approche a priori exacte : distribution multinomiale	102
A.1.2.4	Comparaison des différentes approches pour le calcul des incertitudes statistiques	103
A.2	Illustration sur les mesures de probabilités de fission par réactions de transfert	110
B	Exemples de distributions en charges ioniques par isotope	112
C	Curriculum Vitae	116

Introduction

Ce mémoire présente l'état de ma réflexion sur la thématique des « données nucléaires » sur laquelle je suis engagé depuis maintenant dix ans. Ce travail se veut être un document utile pour notre thématique où l'analyse statistique joue un rôle prédominant dans l'interprétation des résultats. Le diplôme d'Habilitation à Diriger des Recherches a la particularité de valider a posteriori la capacité à encadrer des travaux de thèse. Depuis 2009, date de l'obtention de mon poste de maître de conférences à Grenoble INP/LPSC, j'ai eu la chance de co-encadrer deux thèses avec Olivier Serot et Herbert Faust sur des travaux initiés auprès du spectromètre Lohengrin à l'ILL. Ces thèses ont été réalisées au sein d'un programme expérimental que j'ai initié au LPSC avec le soutien et l'expérience de la collaboration et en particulier avec mon collègue Christophe Sage qui nous a rejoint de manière permanente en 2012 au LPSC.

Mon approche de la thématique a d'abord été la mesure de précision et la compréhension des biais des observables mesurées. Si cette problématique est considérée par bon nombre de chercheurs comme un travail ingrat, elle est en réalité garante de la validation des modèles par le test des hypothèses sous-jacentes. Cette discussion sur la précision et l'analyse statistique a été nourrie de l'émulation des thématiques éclectiques du LPSC qui partagent ces questions de vraisemblances et représentativités des résultats. Ce que nous apprend la statistique c'est qu'il n'est pas possible d'identifier un modèle vrai mais simplement de rejeter les modèles faux. Cela paraît anodin mais cette perception de la physique est à l'origine de beaucoup de dissensions dans la physique nucléaire. Les « écoles » sont encore très présentes et la place au doute oubliée au profit de certitudes sur des approches certes intéressantes mais dont la robustesse n'est pas testée.

Néanmoins, si la méthodologie est importante et reste la clé de la recherche, la satisfaction est portée par la compréhension des phénomènes ou la découverte d'observations nouvelles. De ce point de vue, la thématique de la fission, ou des données nucléaires en général, est à la fois riche et laborieuse. Riche de la pluralité des physiques qui la composent, laborieuse devant le fossé qui sépare encore les expériences des modèles après plus de 75 ans d'études. Si le phénomène dans sa globalité est bien compris, la modélisation précise et la prédiction buttent encore sur le problème à N corps non-perturbatif qui reste le « drame » et l'enjeu de la physique nucléaire. Ce faisant, ce mémoire se veut optimiste en proposant des démarches d'analyses nouvelles en physique nucléaire et en particulier pour le processus de fission.

Ce manuscrit est donc naturellement organisé en trois parties. Un premier chapitre présente la problématique des Données Nucléaires et les outils statistiques utilisés, pour certains, développés dans le cadre des données nucléaires en précisant les prérogatives propres à cette thématique. Le cadre des méthodes d'analyses, les notions d'indépendance des résultats, de corrélations de variables et d'observables sont présentés et illustrés par des exemples expérimentaux de nos collaborations avec le CENBG et le CEA. Le dernier paragraphe dessine les limites des approches actuelles et tente d'initier une réflexion sur les évolutions nécessaires de la thématique.

Le second chapitre est consacré au programme réalisé au LPSC en collaboration avec le CEA sur les mesures de rendements de fission dans la région des fragments lourds. Un rappel du cadre du programme et les objectifs des mesures sont détaillés avant de proposer une nouvelle méthode de mesures de rendements de fission auprès du spectromètre Lohengrin de l'ILL afin de limiter les biais expérimentaux et de quantifier

les effets systématiques. Les limites du programme actuel sont détaillées et les perspectives donnent lieu à un nouveau projet détaillé dans le chapitre suivant.

Le dernier chapitre présente les projets de recherche engagés ou à venir en détaillant la faisabilité et les perspectives des sujets abordés. Ce programme s'oriente vers des études sur le processus de fission afin de s'ouvrir à la validation de modèles via les tests d'hypothèses. Les outils utilisés, s'appuyant sur le formalisme succinctement rappelé dans le premier chapitre, prennent toute leur importance dans ces projets. L'objectif des études de physique nucléaire dans le cadre des données nucléaires est d'identifier les modèles utiles à la construction de bases de données pour les applications. Pour cela, trois projets sont proposés sur la base de résultats préliminaires sur deux sujets centraux : l'origine du moment angulaire induit par fission et le questionnement de l'existence de mécanismes dans la fission. Un dernier projet porte sur de nouvelles mesures différentielles de la puissance résiduelle des fragments de fission.

Si aujourd'hui ces bases de données s'appuient fortement sur les données expérimentales, l'avenir doit renforcer le poids des modèles dans ce programme afin d'initier un saut en précision utile à tous les noyaux présents dans les cycles du combustible. Cet enjeu est particulièrement crucial pour les noyaux non-majoritaires et/ou non-prioritaires dans les cycles. C'est en particulier le cas pour tous les cycles innovants pour lesquels les expériences en réacteur sont parcellaires voire inexistantes, ne permettant pas une validation des données évaluées.

Chapitre 1

La problématique des données nucléaires

Ce premier chapitre présente la problématique des observables de physique nucléaire dans le cadre du programme de mesures de données nucléaires pour les applications. Si cette problématique se base sur les équipements et les formalismes de la physique fondamentale, les prérogatives des applications doivent être considérées à leur juste niveau. Celles-ci sont la fiabilité des mesures en valeur absolue avec la prise en compte des effets systématiques et l'étude des possibles biais. En effet si l'interprétation de la physique utilise souvent les mesures relatives, les outils de calculs dédiés à la physique des réacteurs considèrent ces observables en valeur absolue pour étudier les différents cycles de combustibles dans des scénarii complexes et variés. Ce caractère absolu des données impose de se pencher sur les questions des normalisations et des références, questions à la base de l'existence de cohérences dans les données mais aussi d'interdépendance. Cette dépendance est usuellement quantifiée par l'estimation de corrélations. Toutes ces questions supposent un rappel du paradigme gaussien et de ses limites, omniprésents en physique et dans la théorie de la mesure.

1.1 Les besoins de la thématique : données nucléaires directes et indirectes

Les études sur la fission à l'IN2P3 ont connu une nouvelle impulsion depuis 1991, date à partir de laquelle la thématique «données nucléaires» est née au sein de l'IN2P3. Cette thématique, bien plus large que la seule fission, englobe toutes les réactions et désexcitation de noyaux (ou d'atomes) d'intérêt pour les applications nucléaires. Cependant il est indispensable de redéfinir la sémantique du nom de la thématique qui résonne différemment à l'IN2P3; à la DEN, la DAM ou la DSM. Pour les applications, les données nucléaires sont les résultats des évaluations utilisables dans un schéma de calcul. Ces « données nucléaires évaluées », communément appelées évaluations par la communauté à l'IN2P3 ou de la DSM, constituent l'objectif final de l'ensemble des actions ou projets engagés à la DEN ou la DAM. Ces évaluations résultent d'une comparaison entre les modèles disponibles et les résultats expérimentaux. En Europe, ces évaluations sont le fruit d'une collaboration portée principalement par le CEA (DAM, DEN), le NRG (Pays-Bas) et le Royaume-Uni. Jusqu'ici, la DSM et l'IN2P3 ne sont pas impliqués notablement dans cette étape d'évaluation en réservant leur champ d'action aux programmes de «données nucléaires expérimentales».

La communauté des « évaluateurs », liée à celle des théoriciens, est historiquement organisée dans le cadre de la NEA autour des ateliers « JEFF-meeting »¹ dans le but d'orchestrer un échange entre les participants à cette thématique et la physique des réacteurs. Depuis 2012, le GDR Gedepeon² puis le DEFI NEEDS³ font «

1. Groupe de travail piloté par l'OECD/NEA sur les problématiques de l'évaluation des données nucléaires.

2. Groupement de recherche « Gestion des Déchets et Production d'Energies Nouvelles » réunissant le CNRS, Le CEA, l'ANDRA, AREVA, EDF

3. Programme interdisciplinaire du CNRS en collaboration avec le CEA, EDF, l'Andra et l'IRSN sur la problématique de

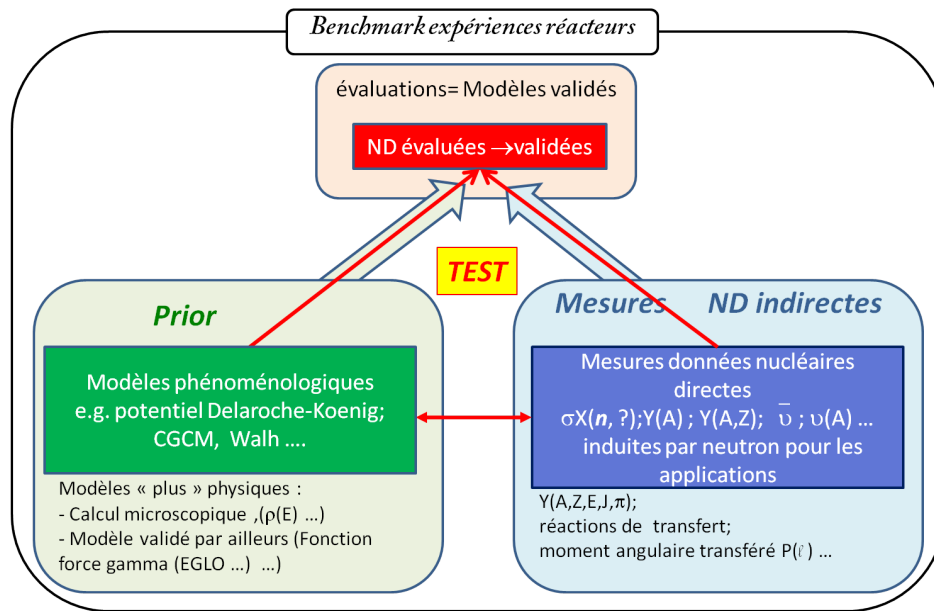


FIGURE 1.1 – Schéma relatif à l'organisation des sous-items de la thématique données nucléaires (ND) et leurs intrications.

chaises communes » lors d'un atelier JEFF de fin d'année pour permettre une discussion entre « expérimentateurs » et « évaluateurs ». L'objectif est de faire sortir les communautés de leurs seules prérogatives afin de considérer la problématique de la thématique dans sa globalité. L'évaluation ne consiste pas simplement à un ajustement de paramètres phénoménologiques dans le but de reproduire les données, le but est de fournir la description la plus crédible d'une observable avec son degré de confiance associé. Néanmoins, l'interprétation des paramètres des modèles phénoménologiques doit se faire au regard des modèles microscopiques afin d'interpréter les éventuels désaccords ou, dans un cas positif, tenter de contraindre les incertitudes associées.

Dès lors, ce travail d'évaluation et de comparaison de modèles doit s'appuyer sur une « approche objective »⁴ afin de ne pas biaiser les décisions ou éliminer des solutions possibles d'un problème. L'approche statistique permet d'apporter un indicateur sur la confiance des solutions possibles et de sélectionner la plus fiable avec ses marges sans pour autant rejeter d'autres solutions et/ou interprétations. Les tests statistiques peuvent être divers (e.g. estimateur de moyenne pondérée), ad hoc ou tenter de suivre une approche générale. Dans tous les cas, les biais des estimateurs constituent la limite inhérente de cette méthode. Validé, le test reste cependant « l'approche objective » dans la description d'un ensemble d'observables complexes. Une large bibliographie dans des domaines aussi variés que l'économie ou la Biologie a été à l'initiative de l'utilisation de cet outil mathématique [1][2].

La figure 1.1 est une représentation schématique de la thématique « Données Nucléaires ». Les évaluations sont conjointement alimentées par des mesures et des modèles afin d'estimer dans sa complétude une observable (variables continues : énergie, angle... ; ou discrètes : masses, isotopes, isomères...). L'interprétation des « mesures directes » nécessite dans la majorité des cas des modèles connexes à l'observable souhaitée⁵. Aux observables demandées explicitement pour les applications, « des données nucléaires indirectes » sont nécessaires pour valider et fiabiliser les évaluations et leurs interprétations. Comme nous le verrons dans le §1.2,

l'énergie nucléaire et des questions environnementales et sociétales.

4. Le terme objectif en statistique est usuellement réservé à l'approche « fréquentiste » qui sera développée dans le §1.2.1.4.

5. Pour n'en citer que quelques uns, e.g. modèles de densité de niveau, de fonction de force gamma, de répartition de l'énergie d'excitation, du spin induit par une réaction (e.g. capture neutronique, pick-up, stripping, fission...)

la possibilité de fixer même partiellement certains paramètres libres via des données indirectes va permettre d'augmenter le nombre de degrés de liberté et ainsi de contraindre les marges des observables souhaitées. In fine, l'évaluation correspond à la modélisation réalisant à la fois un test satisfaisant au regard des données expérimentales microscopiques (mesures différentielles dans un spectre de neutrons mono-énergétiques) et présentant le meilleur benchmark à l'échelle des systèmes nucléaires testés (sphère critique, test d'irradiation de combustibles dans des réacteurs expérimentaux ...).

1.2 Des données expérimentales aux données évaluées

Dans cette partie, nous n'aborderons que les outils statistiques nécessaires et mis en pratique dans le cadre des travaux réalisés au LPSC et au CENBG. Ces outils font suite à ceux développés dans ma thèse de doctorat sur la propagation des incertitudes systématiques dans les expériences de mesures de sections efficaces et de probabilités de fission. Depuis 2008, les travaux réalisés au LPSC sur la plateforme PEREN, à l'ILL auprès du spectromètre Lohengrin ou en collaboration avec le CENBG, m'ont permis d'élargir la compréhension et l'impact des incertitudes dans le processus d'évaluation d'une observable. Ce paragraphe ne se veut aucunement exhaustif mais souhaite permettre une lecture claire et compréhensible des résultats obtenus et présentés aux chapitres suivants.

1.2.1 Outils statistiques mis en œuvre - Illustrations sur les mesures de sections efficaces de réactions réalisées au CENBG et au LPSC

Dans le cadre de notre thématique, l'objectif est de comparer des données mesurées aux évaluations existantes et de retenir la modélisation la plus représentative de la connaissance actuelle des observables. Un « a priori » nous fait souvent considérer les mesures comme l'information la plus vraisemblable par rapport aux modèles, encore faut-il que ces informations ne soient pas biaisées et les incertitudes réalistes. La comparaison d'un modèle à des données est principalement réalisée par les méthodes des moments, du χ^2 ou de moindres carrés. Cette dernière est régulièrement utilisée pour les régressions. Néanmoins l'interprétation physique des valeurs extraites dépend complètement de la manière dont est construit l'estimateur et des hypothèses sous-jacentes. Pour réaliser une évaluation, la question initiale est celle du choix de l'estimateur. Celui-ci n'a pas de caractère absolu et, en physique, la fonction de vraisemblance reste la plus utilisée car elle fournit toujours des estimateurs de variance minimum ou asymptotiquement minimum. Néanmoins cet estimateur n'est pas toujours non-biaisé [1]. Nous ne reviendrons pas sur cette discussion qui est largement reprise dans les ouvrages de référence en statistique [55]. Dans le cadre de la comparaison « modèles - données », les deux grands types d'opérations réalisées sont les ajustements ou marginalisations et les tests statistiques. Ces deux opérations sont malheureusement trop souvent indifférenciées ce qui apporte une ambiguïté quant à leur utilisation. Les paragraphes suivants ont pour objectif de clarifier les idées et les notations utiles pour discuter des résultats présentés dans les chapitres suivants.

1.2.1.1 Les estimateurs utilisés

La fonction de vraisemblance

La fonction de vraisemblance, notée L est définie comme le produit des probabilités de recouvrement des n mesures avec un modèle suivant la distribution de probabilité associée aux mesures :

$$L(\vec{\theta}; E(x_i)) = \prod_{i=1,n} \varrho [Th(\vec{\theta}, x_i); E(x_i)] \text{ avec } \vec{\theta} \begin{pmatrix} \theta_1 \\ \dots \\ \theta_p \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

où ϱ représente la densité de probabilité associée à la mesure, $\vec{\theta}$ correspond aux p paramètres du modèle Th en fonction de la variable observée $x_{i=1,\dots,n}$; E représente l'observable mesurée. La gestion des paramètres systématiques d'une analyse est considérée comme une nuisance $\vec{\eta}$ et ceux-ci sont intégrés sur la plage de validité :

$$L(\vec{\theta}; E(x_i)|\vec{\eta}) = \int_{\vec{\eta}} \varrho(\vec{\eta}) \prod_{i=1,n} \varrho [Th(\vec{\theta}, x_i); E(x_i)] d\vec{\eta} \quad (1.2)$$

où $\varrho(\vec{\eta})$ correspond à la densité de probabilité associée aux paramètres de nuisances $\vec{\eta}$. Cette méthode est utilisée généralement lorsque les statistiques sont faibles et suivent une distribution de Poisson. Dès lors, les paramètres systématiques de l'expérience sont pris en compte en tant que nuisances. Dans ce cas, l'analyse

en « profil likelihood » se fait en négligeant au premier ordre les corrélations dans les systématiques puis en permutant les corrections des incertitudes systématiques (i.e. l'intégration des paramètres de nuisances $\vec{\eta}$, méthode dite « profiling »). Le but est de vérifier que le profil final n'est pas trop différent d'une permutation à l'autre, autrement dit, que les corrélations des paramètres n'influencent pas trop les résultats. Cette démarche permet de prendre en compte des profils de systématique non-gaussiens mais pose problème dans la prise en compte explicite des corrélations des paramètres. Pour résoudre explicitement la question des corrélations des paramètres de nuisances, il faut diagonaliser la matrice de corrélations pour faire varier les paramètres indépendants et propager ceux-ci (cf. § 1.3). Sans le dire explicitement, écrire une matrice de corrélations (linéaires) suppose que l'on se place dans le paradigme de la loi gaussienne des erreurs systématiques.

La méthode du χ^2

La méthode du χ^2 généralisé correspond à l'application de la fonction de vraisemblance à un « monde gaussien ». Il est alors possible de prendre en compte de manière déterministe les corrélations des paramètres systématiques et statistiques. Dans le cas où la distribution associée à la mesure suit une loi gaussienne (ie les incertitudes sont décrites par une distribution gaussienne), de manière générale la densité de probabilité Gaussienne s'écrit :

$$\rho_{Gauss} [\vec{T\hat{h}}(\vec{\theta}); \vec{E}] = \frac{1}{(2.\pi)^n |Cov|^{1/2}} .exp \left[-\frac{1}{2} (\vec{T\hat{h}} - \vec{E})^* .Cov^{-1} . (\vec{T\hat{h}} - \vec{E}) \right] \quad (1.3)$$

en utilisant les notations vectorielles pour décrire l'ensemble des n points mesurés \vec{E} , des calculs du modèle considéré $\vec{T\hat{h}}$ et la matrice de covariances⁶ Cov de dimension $[n; n]$ entre les mesures :

$$\vec{E} \begin{pmatrix} E(x_1) \\ \vdots \\ E(x_n) \end{pmatrix}; \vec{T\hat{h}} \begin{pmatrix} Th(\vec{\theta}, x_1) \\ \vdots \\ Th(\vec{\theta}, x_n) \end{pmatrix}; Cov \begin{pmatrix} Cov(E_1; E_1) & \dots & Cov(E_1; E_n) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ Cov(E_n; E_1) & \dots & Cov(E_n; E_n) \end{pmatrix} \quad (1.4)$$

La variable x_i correspond à un paramètre dans l'espace des phases de l'observable E (e.g. énergie, angle, masse...)⁷. On posera la notation abrégé $E(x_i) = E_i$ par la suite. On peut alors définir la grandeur χ^2 comme proportionnelle au logarithme de la fonction de vraisemblance :

$$\chi^2 = -2.ln \left(L(\vec{\theta}; E(x_i)) \right) \quad (1.5)$$

$$\chi^2 = (\vec{T\hat{h}} - \vec{E})^* .Cov^{-1} . (\vec{T\hat{h}} - \vec{E}) - 2.ln \left(\frac{1}{(2.\pi)^n |Cov|^{1/2}} \right) \quad (1.6)$$

Le second terme de cette équation est une constante pour une mesure $\vec{E}(x_{i=1,n})$ donnée et ne sera plus considérée par la suite. Dans le cas où les n mesures sont indépendantes i.e. les termes de la matrice de covariances sont nuls en dehors de la diagonale, on peut alors simplifier la relation précédente :

$$\chi^2 = \sum_{i=1,n} \frac{(Th(\vec{\theta}, x_i) - E(x_i))^2}{Var(E(x_i))} \quad (1.7)$$

où $Var(E(x_i)) = \sigma_i^2$ est la variance de la mesure $E(x_i)$ correspondant au carré de l'écart-type σ_i associé à la $i^{ème}$ mesure. On retrouve alors l'expression usuelle du χ^2 . La fonction de vraisemblance et la méthode du

6. On introduit ici uniquement les covariances linéaires. Néanmoins celles-ci peuvent prendre des formes beaucoup plus compliquées qui ne seront pas traitées ici [5].

7. La variable x_i peut aussi décrire le numéro de la mesure dans le cas où l'on a répété n fois la même mesure de l'observable E .

χ^2 donnent des résultats identiques sous condition de normalité [1].

Pour des probabilités de détection P_{det} élevées (classiquement $P_{det} \gtrsim 5\%$), la distribution de probabilité associée aux taux de comptage des événements est gaussienne. Dès lors l'utilisation de l'estimateur χ^2 est légitime. Dans le cas pratique où la probabilité de détection est faible, on doit associer aux taux de comptage une distribution de probabilité de Poisson (voir § 1.2.2). Dans l'absolu, l'estimateur χ^2 est biaisé. Pour des mesures longues permettant d'obtenir un nombre « suffisant »⁸ d'événements N , l'approximation gaussienne est réalisée par l'application du théorème central limite. Dans la pratique des données nucléaires, la recherche de précision (quelques %) nous amène à dimensionner les expériences pour avoir une statistique suffisante pour nous placer dans l'hypothèse gaussienne (mais celle-ci reste à vérifier dans la pratique, cf. les études des rapports isomériques § 3.3.1).

Discussion

Dans le cas où la statistique est faible avec une distribution poissonnienne des événements (i.e. $P_{det} \lll 1$), il paraît alors intéressant de privilégier l'approche « likelihood » car on peut penser que la systématique (supposée gaussienne dans la plupart des cas) ne sera pas dominante. Dès lors le profil de vraisemblance sera principalement sensible à la distribution statistique. En revanche, lorsque la systématique est majeure comme dans les expériences autour de la fission et des données nucléaires en général, l'approche du χ^2 généralisé semble judicieuse pour ne pas être biaisée par les corrélations. La comparaison des deux méthodes est parfois utilisée pour vérifier la convergence des profils des densités de probabilité des résultats. Cette question importante dans les études « fréquentistes » (cf. § 1.2.1.4) me semble toutefois éludée par la méthode bayésienne (cf. § 1.2.1.5) qui a pour objectif de construire la distribution de densité de probabilité (*PDF*) d'une observable.

1.2.1.2 Outputs de l'analyse - Inputs de l'évaluation

Outputs de l'analyse

Quel que soit le type de mesure, celui-ci est le résultat d'une réduction de données. Cela paraît évident mais on oublie trop souvent l'idée de base : fournir l'ensemble des informations permettant de décrire ou rejouer l'expérience avec l'ensemble des éléments fournis. Il apparaît donc qu'une réduction de données doit fournir une description des quantités suivantes :

- **variances** (ou écart-types) : La description des *incertitudes par groupe* permet d'identifier les incertitudes communes (ou systématiques) en vue de reconstruire rapidement les covariances des observables. Ces informations sont indispensables pour pouvoir « re-normaliser » les mesures suite à un changement d'évaluation de réactions standards, de schéma de structure nucléaire ou de correction/réduction des effets systématiques de l'expérience (etc...);
- **covariances des mesures** : Fournir la matrice de covariances permet d'illustrer les choix d'analyse, de comprendre et présenter la cohérence des données. Le réflexe habituel considérant la covariance comme un « défaut » de l'analyse ou du modèle est un leurre. La covariance fournit des contraintes qui sont une source d'acuité pour la comparaison modèles-expériences. Quelle qu'elle soit, même nulle par construction, préciser sa valeur est indispensable. Néanmoins la covariance nulle est rarement le cas dans une série de mesures même s'il arrive parfois que celle-ci s'annule *en moyenne* par le jeu des normalisations (cf. § 1.2.2);
- **degrés de liberté** : ceux-ci correspondent au nombre de points significatifs (n). Le rapport de la covariance sur les écart-types des mesures définit la corrélation. Celle-ci permet de fournir le nombre de degrés de liberté (i.e. le nombre de mesures considérées comme indépendantes) apporté par une

8. L'approximation gaussienne est réalisée lorsque la distribution de probabilité des événements devient symétrique et tend vers une répartition gaussienne des événements à 1, 2 ou 3 écart-types.

expérience. Dans un modèle, cela permet de mettre en exergue les paramètres contraints par le modèle lui-même ;

- **distributions de probabilité des mesures (PDF)** : Définir le caractère gaussien ou non d'une mesure peut se révéler indispensable pour rejeter ou valider un modèle. C'est tout l'intérêt de l'approche « Total Monte-Carlo » (TMC) qui explore l'espace des paramètres pour reconstruire la densité de probabilité ;
- **les standards** : la problématique des standards qui corrént l'ensemble des données (évaluées ou mesurées) apporte son lot d'avantages et d'inconvénients. Ces standards sont nécessaires pour avoir une cohérence des mesures mais ne doivent pas pour autant être l'unique référence afin de limiter les biais et réduire les incertitudes systématiques.

In Fine même si les effets physiques peuvent souvent se discuter sur les grandeurs relatives qui minimisent les incertitudes systématiques, la thématique des données nucléaires a pour objectif de fournir une valeur absolue des observables. C'est typiquement le cas des sections efficaces de réactions qui se basent sur les réactions de références (standards). S'il est possible de discuter des effets de structures (en énergie, angle...) des observables au regard de la barrière de fission⁹, l'incertitude finale sur l'observable utile pour les applications découle de l'analyse des grandeurs absolues. Dès lors les questions sur la précision des mesures et des corrélations expérimentales sont incontournables pour pouvoir évaluer la PDF de l'évaluation (moyenne, écart-type, gaussienne ou non...) et la matrice de covariances associées.

Inputs de l'évaluation

Néanmoins les modèles ne sont pas dispensés de ces mêmes questions. Un classement des différents modèles peut être fait dans cette démarche d'évaluation :

- modèles ab initio : qu'ils soient microscopiques ou phénoménologiques sans paramètre à fixer, la comparaison de ceux-ci avec les mesures est réalisée à travers un test statistique (cf. § 1.2.1.4). L'issue de cette comparaison est l'acceptation ou non du modèle.
- modèles paramétriques validés à l'« extérieur » : Il est possible d'avoir des modèles pour lesquels les paramètres ont été fixés sur d'autres expériences que celles à évaluer présentement. C'est typiquement le cas des densités de niveaux nécessaires pour évaluer les réactions mais qui sont « juste » utilisées en reprenant les valeurs de paramètres dans une base (e.g. RIPL3 [56]). Dès lors ces modèles sont indépendants des données expérimentales mais possèdent (ou devraient posséder) leur propre matrice de covariances¹⁰. Ces paramètres sont fixés avec leurs marges et offrent donc une plage de validité. Si ces paramètres doivent être de nouveau contraints, il est nécessaire de se placer dans le cas suivant.
- modèles paramétriques non-validés ou partiellement validés¹¹ : un modèle nécessitant la détermination de p paramètres impose une contrainte sur le nombre de degrés de liberté du test statistique. Celui-ci est défini par la relation :

$$r = n - p - 1 \tag{1.8}$$

Cette équation correspond à la définition d'un hyperplan de dimension r d'un hyperespace à $(n - p)$ dimensions.

Dès lors la question des degrés de liberté devient centrale. Pour un modèle ab initio ou « paramétrique validé », la matrice de covariances intervenant dans l'équation du χ^2 généralisé (eq. 1.6) correspond à la

9. Si des calculs microscopiques permettent de modéliser la section efficace de formation du noyau composé, la définition de barrière de fission, non-ab initio, pilote complètement la compétition entre les réactions (principalement (n, f) , (n, n') , (n, γ) , (n, xn)) et donc l'évaluation des sections efficaces.

10. e.g. section efficace en fonction de l'énergie du neutron incident ; un autre exemple est l'énergie d'excitation du fragment de fission

11. Tout l'intérêt de la méthode bayésienne discutée par la suite est d'utiliser la connaissance partielle déjà accumulée dans la détermination de ces paramètres pour en préciser leurs marges (cf. § 1.2.1.5).

matrice de covariances du vecteur $(\vec{T}h - \vec{E})$. Celle-ci s'écrit comme la somme des matrices de covariances des deux quantités en appliquant la théorie des perturbations [7] :

$$Cov((Th_i - E_i); (Th_j - E_j)) = Cov(Th_i; Th_j) + Cov(E_i; E_j) \quad (1.9)$$

Le nombre de degrés de liberté est obtenu en déterminant les valeurs propres de la matrice de corrélations. La manière de déterminer ces quantités est décrite dans le paragraphe suivant (cf. § 1.2.1.3). Dans certains cas, les corrélations entre les mesures ou les paramètres du modèle impliquent que le nombre de degrés de liberté r^* puisse varier. Dans tous les cas celui-ci est borné par la relation :

$$r^* = n^* - p^* - 1 \quad (1.10)$$

$$n^* - 2 \leq r^* \leq n^* - p - 1 \quad (1.11)$$

où n^* est le nombre de degrés de liberté associé aux n mesures et $p^* \geq 1$ le nombre de paramètres indépendants des modèles.

1.2.1.3 Degrés de liberté associés à une série de mesures - décomposition en composantes principales

Les degrés de liberté ou nombre de points indépendants d'une série de mesures sont déterminés en analysant la matrice de corrélations. Pour mémoire la corrélation de deux observables f_i et f_j est définie par la relation suivante :

$$Corr(f_i; f_j) = \frac{Cov(f_i; f_j)}{\sqrt{Var(f_i) \cdot Var(f_j)}} \quad (1.12)$$

où $Var(f_i)$, respectivement $Var(f_j)$, est la variance associée à f_i , respectivement f_j . Pour cela, il convient de déterminer les éléments diagonaux de la matrice de corrélations via la relation suivante :

$$Corr = U \cdot D \cdot U^t \quad (1.13)$$

où $Corr$, U , U^t et D sont de dimension $n \times n$ (n correspondant au nombre de mesures) et représentent respectivement la matrice de corrélations, la matrice des vecteurs propres, la transposée de la matrice des vecteurs propres et la matrice diagonale des valeurs propres de $Corr$. On désigne par d_i les éléments diagonaux de la matrice D . Le nombre de points indépendants est le rang de la matrice (la dimension de la matrice) égal à n si la matrice est régulière et $(n - k)$ si la matrice est irrégulière (à proprement parler singulière), k étant le nombre de valeurs nulles sur la diagonale de la matrice. Contrairement aux mathématiques, en physique une valeur propre non-nulle mais plus petite que la précision numérique dans le calcul de la corrélation n'a pas de sens. Dès lors, seules les valeurs propres supérieures à la précision ε du calcul ont une signification physique¹². Dans le cas où les valeurs diagonales ne sont pas réelles¹³, le recours à la décomposition en valeurs singulières s'impose¹⁴. Pour déterminer la matrice inverse, il faut nécessairement régulariser la matrice en

12. Dans le cadre de nos expériences, les incertitudes principales sont de l'ordre du % ce qui nous amène à ne pas considérer celles inférieures à 10^{-3} . Dès lors la précision sur la construction des corrélations est de l'ordre de $\varepsilon \sim qqe10^{-3}$, ce qui implique que l'on ne conserve que 2 décimales pour décrire cette quantité.

13. Certains algorithmes fournissent parfois des valeurs négatives pour une matrice définie positive et symétrique. Cela indique un biais numérique dans la détermination des valeurs propres.

14. Pour un grand nombre de « solvers » d'équations, numériquement la diagonalisation demande le calcul du déterminant de la matrice (et pour une matrice singulière, c'est un problème). Par conséquent il faut passer par une décomposition plus générale, la décomposition en valeurs singulières définie comme suit :

$$Corr = U \cdot D \cdot V^t \quad (1.14)$$

$$Corr^{-1} = V \cdot S^{-1} \cdot U^t \quad (1.15)$$

retirant les valeurs propres nulles (D_{reg}) et les vecteurs propres associés (U_{reg}). Cette opération est réalisée par la relation suivante :

$$Corr^{-1} = U_{reg} \cdot D_{reg}^{-1} \cdot U_{reg}^t \quad (1.18)$$

Interprétation

La détermination des valeurs propres et vecteurs propres correspond à une décomposition en composantes principales. Pour une matrice de corrélations diagonale correspondant à n mesures indépendantes, le rang de la matrice correspond au nombre de mesures (n) et la valeur propre est 1 avec une dégénérescence de n . Pour des données complètement corrélées, la matrice de corrélations correspond à l'unité (\neq identité) pour laquelle les valeurs propres sont 0 et n avec, respectivement, une dégénérescence de $n - 1$ et 1 (cf. Tab. 1.1). Le rang de la matrice de corrélations (et non covariances) fournit un estimateur de l'information apportée par une expérience.

Pour comprendre ce que veut dire cette décomposition en composantes principales, il faut regarder l'importance d'une valeur propre par rapport aux autres, ie l'importance d'un sous-espace par rapport à l'ensemble de l'espace exploré. Alors le poids cumulé P_i de l'information apportée par une composante (i.e. une valeur propre d_i) peut se définir de la sorte¹⁵ :

$$P_i = \sum_{k=0}^n d_k \quad (1.19)$$

Une illustration est donnée aux § 1.3.

1.2.1.4 Approche fréquentiste

Que la comparaison soit faite avec un modèle paramétrique ou non, il convient dans tous les cas d'évaluer l'adéquation entre les mesures et le modèle. C'est l'objectif de la quantité nommée « *P-value* », information usuellement fournie par la plupart des codes d'ajustement. Dans cette partie nous rappellerons les grandes lignes de cet indicateur important pour valider les analyses expérimentales et interprétations.

Dans le cas qui nous concerne, pour une distribution gaussienne des incertitudes des mesures, le calcul du χ^2 correspond à une somme quadratique d'une variable aléatoire gaussienne. Cette somme quadratique suit une distribution de χ^2 fonction du nombre de degrés de liberté. Pour la variable aléatoire X suivant une loi de χ^2 à r degrés de liberté, la densité de probabilité suit une relation :

$$X : x_{i=0,\dots,n} \rightarrow \sum_i^n \left(\frac{x_i - \mu_i}{\sigma_i} \right)^2 = \sum_i^k y_i^2 \quad (1.20)$$

$$\varrho(X; r) = \frac{1}{2^{\frac{r}{2}} \Gamma(\frac{r}{2})} \cdot X^{\frac{r}{2}-1} \cdot e^{-\frac{X}{2}} \quad (1.21)$$

Où V est la matrice de passage à droite associée à la matrice diagonale S de valeurs singulières, U matrice de passage à gauche. La transformation possède les propriétés suivantes :

$$U \cdot U^t = 1 \quad (1.16)$$

$$V \cdot V^t = 1 \quad (1.17)$$

avec les matrices U et V orthogonales.

15. Le terme d'importance statistique que je définis ici ne doit pas être confondu avec le poids statistique associé à une mesure (e.g. dans un calcul de moyenne ou de χ^2) qui est défini comme l'inverse d'un écart type au carré. Ici on discute de l'information apportée par la $i^{\text{ème}}$ mesure en fonction de son degré de corrélation avec les n autres mesures..

TABLE 1.1 – Présentation de cas limites de matrices de corrélations pour guider l'interprétation. Le tableau fournit pour quatre matrices type leur déterminant (\det), leur rang (rg), les valeurs propres (d_i) avec leur dégénérescence (d_g) et la somme des valeurs propres $\sum_i d_i$.

$\text{Corr} \begin{bmatrix} 1 & \dots & 0 \\ & 1 & \\ 0 & & \dots & 1 \end{bmatrix}$	$\begin{aligned} \det(\text{Corr}) &= 1 \\ \text{rg}(\text{Corr}) &= n \\ [d_i]^{d_g} &: [1]^n; \sum_i d_i = n \\ U &= \begin{bmatrix} 1 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & 1 & \dots & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & 0 & \dots & 1 \end{bmatrix} \end{aligned}$
$\text{Corr} \begin{bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \end{bmatrix}$	$\begin{aligned} \det(\text{Corr}) &= 0 \\ \text{rg}(\text{Corr}) &= 1 \\ [d_i]^{d_g} &: [0]^{n-1}; [n]^1; \sum_i d_i = 3 \\ U &= \begin{bmatrix} 1/\sqrt{6} & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{3} \\ 1/\sqrt{6} & -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{3} \\ -2/\sqrt{6} & 0 & 1/\sqrt{3} \end{bmatrix} \end{aligned}$
$\text{Corr} \begin{bmatrix} 1 & 0.5 & 0.5 \\ 0.5 & 1 & 0.5 \\ 0.5 & 0.5 & 1 \end{bmatrix}$	$\begin{aligned} \det(\text{Corr}) &= 0.5 \\ \text{rg}(\text{Corr}) &= 1 \\ [d_i]^{d_g} &: [0.5]^2; [2]^1; \sum_i d_i = 3 \\ U &= \begin{bmatrix} 1/\sqrt{6} & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{3} \\ 1/\sqrt{6} & -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{3} \\ -2/\sqrt{6} & 0 & 1/\sqrt{3} \end{bmatrix} \end{aligned}$
$\text{Corr} \begin{bmatrix} 1 & 0.5 & 0.5 & 0.5 \\ 0.5 & 1 & 0.5 & 0.5 \\ 0.5 & 0.5 & 1 & 0.5 \\ 0.5 & 0.5 & 0.5 & 1 \end{bmatrix}$	$\begin{aligned} \det(\text{Corr}) &= 0.75 \\ \text{rg}(\text{Corr}) &= 1 \\ [d_i]^{d_g} &: [0.5]^3; [2.5]^1; \sum_i d_i = 4 \\ U &= \begin{bmatrix} 0.788 & -0.211 & 0.288 & 0.5 \\ -0.211 & 0.788 & 0.288 & 0.5 \\ -0.577 & -0.577 & 0.288 & 0.5 \\ 0 & 0 & -0.866 & 0.5 \end{bmatrix} \end{aligned}$

Cette loi tend asymptotiquement vers une gaussienne de moyenne r et de variance $2r$. La p -value correspond à la probabilité que la variable X soit supérieure au χ^2 du test ou au χ^2_{min} de l'ajustement :

$$p - value = P(X > \chi^2_{min}) \tag{1.22}$$

La figure 1.2 représente le cas d'un ajustement de la variable θ . Le test est réalisé pour un niveau de confiance (CL) donné, généralement à 68%, 90%, 95% ou 99%. Si la p -value est supérieure à $1 - CL$, alors on ne peut rejeter le test pour ce niveau de confiance. Si la p -value est inférieure à $1 - CL$, alors on rejette le test avec une probabilité de $1 - CL$ de « se tromper » i.e. de rejeter un faux-négatif.

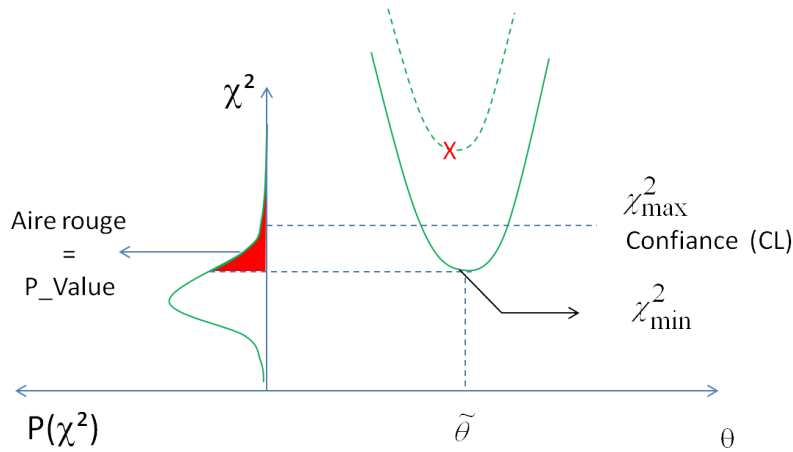


FIGURE 1.2 – Représentation graphique d’ajustement par la méthode du χ^2 et de la distribution de χ^2 associée pour réaliser le test de compatibilité.

Dans le cas d’un ajustement d’une variable $\vec{\theta}$ de dimension p , la détermination des intervalles de confiance, pour un niveau de confiance $CL = 1 - \alpha$ donné, est obtenue en sélectionnant toutes les valeurs de $\vec{\theta}$ pour des χ^2 suivant la relation : $\chi^2 \leq \chi^2 + \Delta(p)$. La valeur $\Delta(p)$ (voir Fig. 1.3) est obtenue de manière suivante :

$$P(X < \chi^2_{min} + \Delta(p)) = CL = 1 - \alpha \tag{1.23}$$

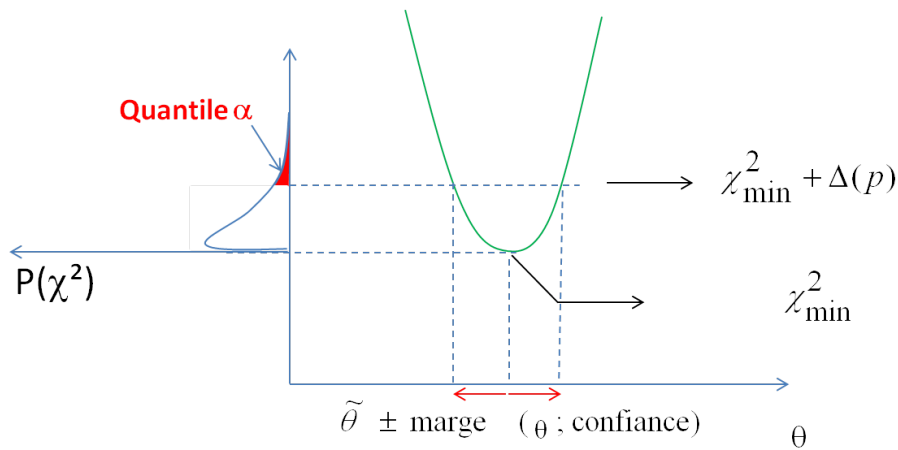


FIGURE 1.3 – Représentation graphique de la détermination des intervalles de confiance I_θ sur les paramètres θ par la méthode du χ^2 pour un niveau de confiance de $1 - \alpha$.

Dans le cadre de l'évaluation des probabilités de fission des $^{243}\text{Cm}^*$, $^{244}\text{Cm}^*$ et $^{242}\text{Am}^*$ [12], les incertitudes associées aux paramètres des barrières ont été fixées par cette méthode. Nous reviendrons dans le paragraphe § 1.4 sur l'utilité de ces outils pour qualifier les mesures réalisées.

1.2.1.5 Approche bayésienne

A la différence de l'approche fréquentiste, souvent qualifiée d'objective, ayant pour but de définir un contour sur les paramètres pour un niveau de confiance donné, l'approche Bayésienne propose de définir une distribution de probabilité associée à l'observable d'intérêt. Cette méthode s'appuie sur le théorème de Bayes permettant de définir la relation liant les probabilités conditionnelles. Ces probabilités s'expriment sur des ensembles usuellement notés A et B suivant la relation :

$$P(A|B) \cdot P(B) = P(B|A) \cdot P(A) \quad (1.24)$$

Appliquée à l'analyse de données et à l'inférence¹⁶, nous pouvons définir les ensembles A, respectivement B, comme l'ensemble des hypothèses $H : H_i \rightarrow P(H_i)$ (paramètres ou modèles) à définir et, respectivement, l'ensemble des données à évaluer $data : E_i \rightarrow P(E_i)$. Dès lors le théorème de Bayes permet de définir la probabilité d'une hypothèse suivant la relation :

$$P(H_i|data) = \frac{P(data|H_i) \cdot P(H_i)}{P(data)} \quad (1.25)$$

La probabilité de l'hypothèse sachant les données $P(H_i|data)$ est appelée *posterior* de l'analyse. Elle définit la densité de probabilité associée à l'hypothèse H_i sachant le lot de données utilisées $data$. Il reste alors à définir les différents termes de l'équation (eq. 1.25). Pour ce faire, il est naturel de vouloir utiliser la notion de *test* abordée précédemment afin de quantifier au mieux la probabilité conditionnelle $P(data|H_i)$. Cette quantité vise à définir une hiérarchie dans l'adéquation des données par rapport à une hypothèse H_i . La fonction de vraisemblance (cf. (eq. 1.1)) répond à cet objectif mais ne définit pas une probabilité (c'est un produit de probabilités et non une probabilité). Dès lors on suppose la relation suivante :

$$P(data|H_i) \propto L(data|H_i) \quad (1.26)$$

La probabilité $P(H_i)$ constitue la connaissance initiale dont on dispose sur cette hypothèse. Elle est appelée *prior* et constitue souvent un élément de discussion important. En effet, de l'objectivité de son évaluation dépend le résultat de l'analyse $P(H_i|data)$ nommé *posterior*. C'est la raison pour laquelle l'approche bayésienne est souvent qualifiée de *subjective*. Néanmoins cette méthode puissante permet de prendre en considération la connaissance et les contraintes déjà connues sur un modèle, un paramètre ou une hypothèse indépendamment de l'évaluation en cours.

Le dernier terme de cette discussion porte sur la probabilité des données. Celle-ci est complexe et difficile à appréhender. Néanmoins la définition de la probabilité totale permet de décrire celle-ci via l'équation suivante :

$$\sum_i P(H_i|data) \cdot P(data) = P(data) = \sum_i P(data|H_i) \cdot P(H_i) \quad (1.27)$$

On peut alors définir le *posterior* de l'analyse via les équations (eqs. 1.25, 1.26 et 1.27) :

$$P(H_i|data) = \frac{P(data|H_i) \cdot P(H_i)}{\sum_i P(data|H_i) \cdot P(H_i)} = \frac{L(data|H_i) \cdot P(H_i)}{\sum_i L(data|H_i) \cdot P(H_i)} \quad (1.28)$$

Néanmoins certaines réserves sont à émettre quant à l'utilisation de cette relation. Pour que la probabilité totale (eq. 1.27) soit correctement définie, il est nécessaire de s'assurer que toutes les hypothèses, utiles à défaut d'être complètes, ont été émises. En terme de physique, cela veut dire que l'on a exploré *suffisamment*

16. Def : déduction de caractéristiques inconnues d'une population à partir d'un échantillon issu de cette population.

l'espace des phases d'un paramètre pour pouvoir dire que l'apport de la région inexplorée ne perturbe pas la définition de la probabilité totale et donc le résultat nommé *posterior* (cf. Fig. 1.4).

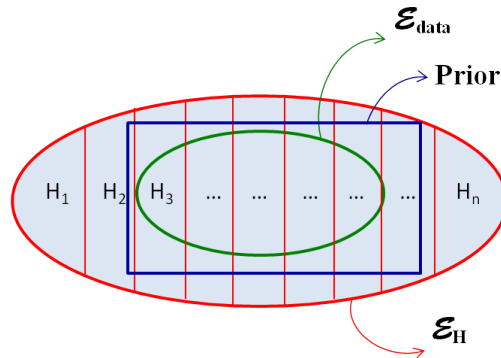


FIGURE 1.4 – Représentation graphique des ensembles des *data* et des hypothèses H_i . Pour extraire le *posterior* de l'analyse $P(H_i|data)$, il convient d'évaluer l'ensemble des hypothèses nécessaires à la description de $P(data)$ avec la précision requise.

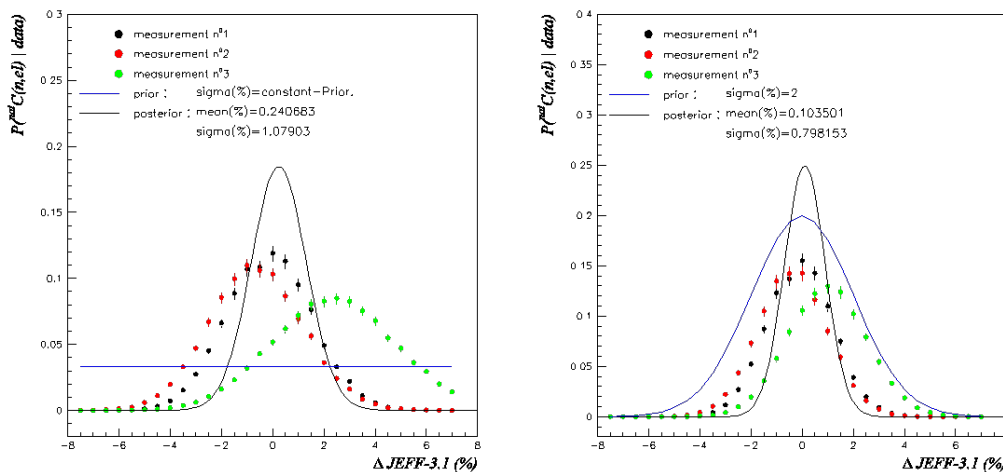


FIGURE 1.5 – Exemple d'analyse bayésienne sur la validation de la section efficace de diffusion élastique du graphite mesurée sur PEREN [57]. (A gauche) résultats pour un prior constant i.e. toutes les hypothèses sont équiprobables ; (à droite) résultats en intégrant comme prior les données expérimentales existantes i.e. la connaissance initiale sur la section efficace. On observe que le résultat global de l'analyse des trois mesures (courbes noires nommées posterior) présente une amélioration notable avec un gain en précision de 1.07 % à 0.80 % en utilisant comme prior la connaissance actuelle sur la section efficace.

La précision dépend de l'espace des hypothèses qui n'a pas été exploré et s'évalue comme la probabilité cumulée du *posterior*. Cette quantité est non-linéaire et peut avoir des conséquences drastiques dans l'évaluation des événements rares. Néanmoins la distribution a priori des hypothèses (*prior*) permet en général de limiter l'impact de ces hypothèses dans le résultat de l'évaluation du modèle (cf. Fig. 1.4). Utilisant un prior constant, cette méthode donne (et doit donner) des intervalles de confiance identiques à la méthode fréquentiste pour une précision demandée (68%(σ) ; 95%(2σ) ; 99.5%(3σ)). Néanmoins la force de la méthode

est de pouvoir intégrer une connaissance a priori à travers la distribution de probabilité du prior $P(H_i)$. Dès lors les contraintes imposées permettent de valider ou d'exclure des hypothèses ou modèles en faisant la synthèse des connaissances accumulées. On voit donc clairement que cette méthode constitue un avantage indéniable pour notre thématique puisqu'elle permet de tester des résultats expérimentaux et d'en extraire une nouvelle évaluation de la distribution de probabilité (*pdf*) d'un paramètre ou d'une observable évaluée. Un exemple de résultats sur la mesure de la section efficace de diffusion élastique du graphite avec et sans prior est donnée figure 1.5. Le principe de l'expérience consiste à mesurer le temps de ralentissement des neutrons dans un milieu homogène ou (partiellement hétérogène). Le spectre en temps de ralentissement des neutrons est comparé à des calculs par simulations (MCNP dans notre cas) tenant compte des sections efficaces de diffusion du milieu modérateur (milieu de ralentissement par collisions élastiques ou inélastiques). L'objectif de cette comparaison est d'en déduire la valeur de la section efficace intégrale dans un spectre de ralentissement¹⁷. Les résultats sont présentés relativement à l'évaluation JEFF3.1.1 sur la diffusion élastique du carbone naturel $^{nat}C(n,el)$. Pour chacune des trois mesures du temps de ralentissement, nous obtenons non pas une valeur de section efficace mais la distribution de probabilité associée à la mesure de section efficace. Ceci permet de définir tous les moments de la mesure et non seulement la moyenne et l'écart-type. La figure de droite illustre parfaitement la puissance de la méthode; considérant l'incertitude avant l'analyse, le résultat de l'analyse est une nouvelle évaluation tenant compte de l'ensemble de la connaissance existante.

17. En d'autres termes, on compare globalement les sections efficaces en ne supposant qu'un facteur de proportionnalité entre les différentes hypothèses. Ceci est justifié par le fait que les sections efficaces de diffusions élastiques sont quasiment constantes dans le spectre de neutrons qui nous intéresse $E_n < 1 eV$.

1.2.2 Origine des termes de covariances dans les données

En physique nucléaire, usuellement, deux sources d'incertitudes sont considérées : la première porte sur la statistique de détection i.e. le nombre d'évènements accumulés lors d'une expérience ; la seconde provient des corrections instrumentales que l'on qualifie d'incertitudes systématiques. Dans la logique des mesures de précision, nous sommes amenés à minimiser les incertitudes statistiques en dimensionnant les expériences ad hoc. Dès lors, la prédominance des incertitudes systématiques a conduit la communauté à travailler sur la définition des corrélations entre les mesures venant des corrections instrumentales. Néanmoins, le dimensionnement des détecteurs pour maximiser les efficacités nous a conduit à devoir évaluer la corrélation statistique des évènements jusqu'à lors négligée.

1.2.2.1 Covariance d'origine systématique

La problématique de la propagation des incertitudes systématiques est détaillée (entre autres) dans ma thèse de doctorat [7] pour ce qui concerne notre thématique ou dans des références spécifiques [10]. Celle-ci fait intervenir la théorie des perturbations qui est développée dans la limite gaussienne et linéaire. Pour des coefficients de sensibilité constants sur la plage de variation des paramètres, cette propagation est quasi exacte. Si ce n'est pas le cas, la méthode la plus utilisée actuellement est le recours à une propagation numérique via la méthode Total Monte-Carlo (TMC). Celle-ci permet de prendre en compte les non-linéarités du problème et d'estimer la fonction de densité de probabilité (PDF) associée à une observable.

Même dans un cas linéaire avec des paramètres distribués suivant une loi gaussienne, la PDF associée à une observable n'est pas nécessairement gaussienne. L'exemple type est celui d'un rapport de deux observables gaussiennes qui suit une loi de Cauchy dans le cas général. Néanmoins, seules quelques observables sont le résultat d'un rapport de seulement deux quantités. C'est le cas en particulier des mesures de rapports isomériques (§3.3) pour lesquelles cette approximation n'est pas toujours réalisée. Ce dernier point est traité en détail dans la thèse de doctorat d'A.Chebboubi [3]. Pour la plupart des observables d'intérêt pour la thématique, l'objectif est de définir des grandeurs absolues et non relatives. Par conséquent le nombre de variables impliquées dans le processus de normalisation de la mesure permet en général de tendre vers la limite gaussienne. Si le théorème central limite s'applique uniquement pour la somme de variables aléatoires (et non les produits ou quotients), il apparaît en général que le résultat converge vers une PDF de variance compatible avec la théorie des perturbations¹⁸.

Les travaux réalisés sur les mesures de sections efficaces de réactions et les mesures de rendements de fission ont montré qu'il n'existe pas une matrice de corrélations pour une observable mais qu'il existe autant de matrices de corrélations que d'analyses. Le choix de la normalisation, du type de correction, d'ajustement (etc...) implique un effet systématique que seul celui qui analyse est capable de propager de la prise de données à la valeur de l'observable. Le simple fait de déplacer le dispositif ou de changer de sources de particules¹⁹ implique une rupture dans les effets systématiques qui peut se concrétiser par une décorrélation par changement de référence ou au contraire une corrélation par normalisation croisée des données. Il est donc indispensable de faire un inventaire exhaustif des paramètres dans l'analyse, de leurs incertitudes et de leur propagation suivant la prise de données.

1.2.2.2 Covariance d'origine statistique : distribution de probabilité associée à un ensemble

Positionnement du problème :

La question posée est quasiment un cas d'école. Dans notre domaine, la mesure d'observables par la méthode de coïncidences nous amène à réaliser des rapports de grandeurs statistiques obtenues simultanément lors de la prise de données. Si usuellement on considère les variables statistiques indépendantes, dans l'absolu cela n'est pas toujours vérifié. C'est le cas en particulier pour les mesures de probabilités de réactions par fission [13, 12], de rapports isomériques [3, 11] ou de la mesure d'une efficacité d'un détecteur [14]. Pour

¹⁸. On peut bien sûr avoir deux PDF différentes mais de même variance, il en résulte que l'hypothèse gaussienne correspond à la réduction aux deux premiers moments de la PDF exacte obtenue par Total Monte-Carlo.

¹⁹. e.g. source D(d,n), T(p,n) T(d,n) pour les expériences sur accélérateur ou les cibles d'actinides sur le spectromètre Lohengrin

prendre un cas concret, je propose de discuter cette question sur l'analyse qui a mis en exergue ce problème, celui de la mesure de l'efficacité de la chambre à fission du CENBG pour les mesures des sections efficaces de fission et de capture de l' ^{233}U . Le problème se pose en ces termes : pour un nombre d'évènements fission générés par l'expérience N_{ev} , le principe consiste à vouloir identifier simultanément le nombre de fragments de fission détectés N_f et le nombre de neutrons prompts détectés N_n . Dès lors, Le rapport R du nombre de coïncidences « neutron-fragment » N_{coinc} et du nombre de neutrons détectés N_n aboutit à l'égalité suivante :

$$R = \frac{N_{coinc}}{N_n} = \frac{N_{ev} \cdot P_n \cdot P_f}{N_{ev} \cdot P_n} = P_f \quad (1.29)$$

où P_n est la probabilité de détecter un neutron i.e. l'efficacité du détecteur neutron et P_f la probabilité (ou efficacité) de détecter un fragment de fission. La figure 1.6 présente une représentation schématique des ensembles auxquels sont associées les observables de l'expérience.

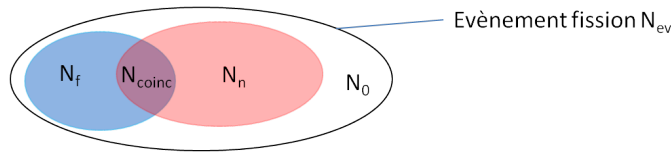


FIGURE 1.6 – Représentation schématique des ensembles auxquels sont associées les observables pour les mesures en coïncidence.

La précision de la méthode repose sur l'estimation de l'incertitude associée à la mesure du rapport R . En appliquant la théorie des perturbations, on obtient :

$$\frac{Var(R)}{R^2} = \left(\frac{\sigma_R}{R}\right)^2 = \frac{Var(N_{coinc})}{(N_{coinc})^2} + \frac{Var(N_n)}{(N_n)^2} - 2 \cdot \frac{Cov(N_n, N_{coinc})}{N_{coinc} \cdot N_n} \quad (1.30)$$

En utilisant l'hypothèse usuelle selon laquelle les incertitudes statistiques sont indépendantes, il en résulte que le terme de covariance est nul et l'incertitude sur le rapport R suit la relation suivante :

$$N_{coinc} \xrightarrow{P_f \rightarrow 1} N_n \quad (1.31)$$

$$\frac{Var(R)}{R^2} = \frac{Var(N_{coinc})}{(N_{coinc})^2} + \frac{Var(N_n)}{(N_n)^2} \xrightarrow{P_f \rightarrow 1} \frac{2 \cdot Var(N_n)}{N_n} > \frac{Var(N_n)}{N} \quad (1.32)$$

Ce dernier résultat est incohérent : si l'on s'approche d'une efficacité totale du détecteur fission $P_f \sim 1$, le rapport de R tend vers 1 mais l'incertitude sur la mesure est deux fois plus grande que l'incertitude statistique sur le nombre de neutrons détectés N_n . On arrive à une situation où l'on observe sans ambiguïté tous les fragments de fission mais la mesure de l'efficacité n'exprime pas cette certitude. Cette incohérence provient de l'application de méthodes inappropriées pour des probabilités de détection importantes $0 \ll P_f \lesssim 1$.

Interprétation statistique du problème :

Les détails de cette analyse sont décrits dans l'annexe A avec une illustration sur les résultats expérimentaux. Le premier constat à faire est le suivant : dans le cas général, la distribution associée à un nombre d'évènements détectés *par un détecteur simple* est une distribution binomiale et non poissonnienne. La distribution binomiale est définie par la relation suivante :

$$P(k) = C_{N_{ev}}^k p^k \cdot (1-p)^{N_{ev}-k} \quad (1.33)$$

où N_{ev} est le nombre d'évènements réalisés (dans notre cas le nombre de fissions), k le nombre d'évènements observés et p la probabilité de détecter un évènement. La valeur moyenne de cette distribution et sa variance sont définies par les relations suivantes :

$$\bar{N} = N_{ev} \cdot p \xrightarrow{N_{ev} \rightarrow \infty} \mu \quad (1.34)$$

$$Var(N) = N_{ev} \cdot p \cdot (1 - p) \xrightarrow{p \ll 1} N_{ev} \cdot p \xrightarrow{N_{ev} \rightarrow \infty} \mu \quad (1.35)$$

où μ est la limite de la valeur moyenne mesurée lorsque le nombre d'évènements tend vers l'infini.

Cette étude porte sur les distributions de probabilités que l'on doit associer aux ensembles statistiques avec un éclairage particulier pour les ensembles non-disjoints. Les conclusions d'annexe A nous conduisent à devoir toujours considérer les termes de covariances entre les observables puis d'en discuter leurs estimations suivant la loi de probabilité associée à un ensemble ou sous-ensemble. Dès lors, il est nécessaire de redéfinir précisément les variables aléatoires associées au problème en décrivant l'ensemble des évènements « fission » par les sous-ensembles suivants :

- «fragment » auquel est associée la variable aléatoire N_f ;
- «neutron» auquel est associée la variable aléatoire N_n ;
- «fragment seul» auquel est associée la variable aléatoire N_{fs} ;
- «neutron seul» auquel est associée la variable aléatoire N_{ns} ;
- «coïncidence» auquel est associée la variable aléatoire N_c ;
- «nul» correspondant à aucune détection de particules d'un évènement fission, on associe la variable aléatoire N_0 ;

Dans le cas général, on obtient la relation générale suivant la théorie des perturbations :

$$N_f = N_{fs} + N_c ; \quad N_n = N_{ns} + N_c \quad (1.36)$$

$$Cov(N_c; N_n) = E[\Delta N_n \cdot \Delta N_c] \quad (1.37)$$

$$Cov(N_c; N_n) = Var(N_c) + Cov(N_c; N_{ns}) \quad (1.38)$$

où $E[]$ correspond à l'opérateur de l'espérance mathématique sur l'argument susnommé.

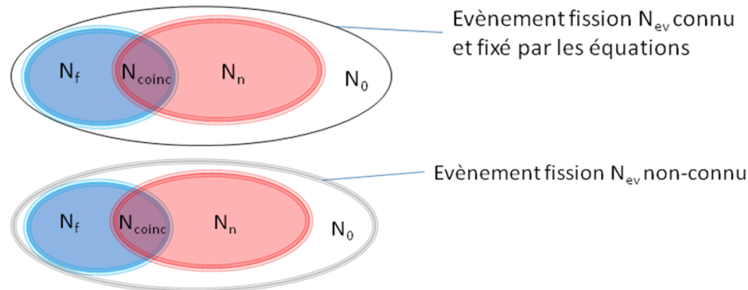


FIGURE 1.7 – Schémas illustrant la contrainte imposée par la connaissance du nombre total d'évènements N_{ev} . Les fluctuations sont illustrées par les traits dédoublés ; le trait plein illustre la contrainte sur le nombre total d'évènements. (Fig. haut) Dans ce cas, la règle de somme s'applique comme contrainte de l'ensemble $N_f + N_n + N_0 = N_{ev} = cte$. Dans ce cas, le nombre total d'évènements est fixé par l'expérience ou l'analyse. (Fig. bas) Schéma illustrant l'absence de contrainte imposée par la connaissance partielle du nombre total d'évènements détectés (et non pas produits) $N_f + N_n$. Les fluctuations sont illustrées par les traits dédoublés. Dans ce cas, la règle de somme qui s'applique de manière incomplète est $N_f + N_n = N_{ev} - N_0$. Dans ce cas, le nombre total d'évènements ne peut être fixé par l'expérience (voir Annexe A).

Dans cette partie, nous revenons sur l'interprétation physique de l'hypothèse considérant la valeur du terme $Cov(N_c; N_{ns})$ (cf. Chap. A, eqs.A.22 & A.23). Ce terme de covariance varie suivant que l'on se place dans un ensemble où le nombre d'évènements N_{ev} est connu (contraint) ou non :

- Si le nombre d'évènements N_{ev} est connu, on est sur une approche multinomiale et par conséquent une augmentation d'un sous-ensemble engendrera une diminution des autres sous-ensembles (cf. Fig. 1.7 en haut). Ainsi, la distribution multinomiale possède des termes de covariances négatifs entre sous-ensembles. L'interprétation physique correspond au fait que l'on travaille à un nombre total d'évènements fixé, N_{ev} , équivalent à un volume fixé. Une autre façon de voir le problème correspond au fait d'ajouter une contrainte supplémentaire car le nombre total d'évènements est connu : c'est la règle de somme $N_f + N_n + N_0 = N_{ev} = cte$. L'illustration parfaite correspond à l'analyse dans des expériences de physique des particules où le nombre de collisions considéré est sélectionné durant l'analyse des différents canaux de désintégrations. L'analogie à la physique statistique peut être faite en considérant le système comme *canonique* pour lequel le nombre de particules est fixé.

- Si au contraire on ne connaît pas le nombre d'évènements au total N_{ev} , alors on se place dans une approche où toutes les variables aléatoires doivent être a priori binomiales. Dans ce cas il est impossible d'avoir une certitude sur le nombre total d'évènements N_{ev} et donc de fixer une contrainte (règle de somme) sur ce nombre N_{ev} (cf. Fig. 1.7 en bas). Ainsi, on se place dans le cas où une fluctuation d'un sous-ensemble fait varier le nombre d'évènements détectés et le nombre total d'évènements N_{ev} . La règle de somme incomplète est la suivante $N_f + N_n = N_{ev} - N_0$. L'analogie physique correspond au fait que l'on ne contraint pas le volume du système. Différentes méthodes d'analyse sont proposées dans l'annexe A, la plus simple consiste à redéfinir des sous-ensembles N_{fs} , N_{ns} , N_c , N_0 et N_{ev} en les considérant comme indépendants suivant une loi binômiale. L'analogie à la physique statistique peut être faite en considérant le système comme *grand-canonique* pour lequel le nombre de particules n'est pas fixé.

Mise en application sur des cas concrets : Efficacité des chambres d'ionisation

Les calculs de la probabilité de détecter les fragments dans la chambre d'ionisation ont été réalisés suivant trois approches :

- méthode 1 : les quantités mesurées auxquelles sont associées des variables aléatoires sont N_f , N_n et N_c suivant une approche binomiale ; les variables déduites de l'analyse sont N_{fs} et N_{ns} ;
- méthode 2 : les quantités mesurées auxquelles sont associées des variables aléatoires sont N_{fs} , N_{ns} et N_c suivant une approche binomiale ; les variables déduites de l'analyse sont N_f , N_n ;
- méthode 3 : les quantités mesurées auxquelles sont associées des variables aléatoires sont N_{fs} , N_{ns} et N_c suivant une approche multinomiale ; les variables déduites de l'analyse sont N_f , N_n ;

Pour chaque méthode, le tableau 1.2 présente les incertitudes des variables aléatoires définies (cases blanches) et les grandeurs déduites de l'analyse (cases grises). Les résultats de chaque méthode sont aussi présentés dans l'approximation poissonnienne. La première remarque porte sur l'estimation de la probabilité de détection : suivant la méthode 1, ne pas considérer les corrélations entre les sous-ensembles revient à surestimer l'incertitude sur la probabilité de détecter un fragment P_f d'un facteur 4,5. Concernant l'incertitude sur la probabilité de détecter les neutrons P_n , la différence est de l'ordre de 1%. Cette différence vient directement de la valeur de probabilité. Pour de faibles probabilités de détection, les variables aléatoires sont faiblement corrélées ce qui implique une faible différence dans les méthodes ; pour des probabilités proches de l'unité, l'estimation des incertitudes suppose une attention particulière des corrélations.

Si maintenant on s'intéresse aux incertitudes des variables aléatoires elles-mêmes, plusieurs points sont à remarquer : i) l'approximation poissonnienne implique naturellement un large biais dans l'estimation des incertitudes lorsque les probabilités de détections s'écartent des valeurs négligeables. ii) Les incertitudes sur les variables déduites de l'analyse peuvent présenter des grands écarts : e.g. l'erreur de N_{fs} passe de 0.4% par la méthode 1 à 1.5% par les méthodes 2 & 3, soit une sous-estimation d'un facteur 3. De même l'incertitude sur N_f varie de $\sim 1.46\%$ par la méthode 2 à $\sim 1.01\%$ par la méthode 1 & 3. Ces résultats ont permis (entre autres) de réduire drastiquement les incertitudes sur les mesures d'efficacités de la chambre à fission dans le

cadre du programme des mesures des sections efficaces de capture et de fission de l' ^{233}U [14].

TABLE 1.2 – Tableau récapitulatif du calcul des incertitudes des différentes grandeurs mesurables dans l'analyse. Les résultats de chaque méthode sont proposés dans l'approche rigoureuse (binomiale ou multinomiale) ou dans l'approximation poissonnienne. Les cases blanches représentent les incertitudes calculées des variables aléatoires définies, les cases grises sont les incertitudes des observables déduites suivant la définition des variables aléatoires. Les nombres en rouge tentent de mettre en exergue les différences dans l'estimation des incertitudes (A).

Paramètres		Pf	Pn	Pc = Pf.Pn	Pfs = Pf(1-Pn)	Pns = Pn(1-Pf)	
		0,9	0,1	0,09	0,81	0,01	
Variables aléatoires	Nev	1000	900	100	90	810	10
	Nf						
Méthode 1	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ Poisson	0,0333	0,100	0,105	0,035	0,316	
	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ binomiale	0,0105	0,095	0,101	0,004	0,285	
Méthode 2	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ Poisson	0,0333	0,100	0,105	0,035	0,316	
	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ binomiale	0,0146	0,131	0,101	0,015	0,315	
Méthode 3	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ multinomiale	0,0101	0,128	0,101	0,015	0,315	

Pf	$\sigma(\text{Pf})/\text{pf}$		Pn	$\sigma(\text{Pn})/\text{Pn}$	
	Avec Cov	Sans Cov		Avec Cov	Sans Cov
mesurée			mesurée		
0,9	0,0333	0,1453	0,1	0,1000	0,1106
0,9	0,0302	0,1382	0,1	0,0906	0,1011
0,9	-	0,0333	0,1	-	0,1000
		0,0330			0,0915
0,9	0,0333	-	0,1	0,1000	-

Les conclusions de ces calculs montrent que la prise en compte des corrélations d'origine statistique est indispensable à l'évaluation correcte des incertitudes sur les mesures en coïncidence. De plus, les choix dans la définition des variables aléatoires de l'analyse ont un impact sur la précision des résultats. L'incertitude d'une expérience peut dépendre fortement de la prise de données (grandeurs enregistrées dans l'acquisition) et de la manière de construire les événements. Il est donc nécessaire de définir dans quel type d'ensembles l'analyse est faite. Pour les expériences utilisant des chambres à fission en coïncidence avec d'autres détecteurs, la connaissance du nombre moyen d'événements et de la probabilité de détection des fragments, est indispensable pour extraire l'incertitude sur le nombre de fragments détectés et le nombre d'événements fission N_{ev} qui se sont produits durant l'expérience : des valeurs moyennes des taux de comptage, on détermine les probabilités de détection (i.e. les efficacités) et de ces probabilités on déduit les variances des observables mesurées.

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{N}_f = E[N_f] \equiv N_{ev} \cdot p_f \\ p_f = \frac{N_c}{N_n} \equiv 1 - \frac{Var(N_f)}{\bar{N}_f} \end{array} \right\} \rightarrow \left\{ \begin{array}{l} Var(N_f) = \bar{N}_f(1 - p_f) \\ N_{ev} = \frac{\bar{N}_f}{p_f} \end{array} \right. \quad (1.39)$$

Ce qu'il faut comprendre, pour une efficacité totale de détection d'un des détecteurs, c'est que la distribution de probabilité tend vers une distribution de Dirac de variance nulle. Pour un nombre d'événements N_{ev} donné, il n'y a pas de fluctuation du nombre de particules détectées. Ce cas s'applique uniquement dans le cas où il est possible de dénombrer le nombre d'événements N_{ev} . Dans le cas où N_{ev} n'est pas fixé, l'exacte reproductibilité de l'expérience n'est pas assurée et par conséquent on voit apparaître une fluctuation du

nombre de particules détectées par la fluctuation de N_{ev} :

- A N_{ev} donné, N_f suit une distribution binomiale qui tend vers une distribution de Dirac pour une efficacité totale de détection ;
- A N_{ev} non-fixé par l'expérience, N_f suit la distribution de probabilité suivante :

$$P(N_f|N_{ev}) \cdot P(N_{ev}) \xrightarrow{P_f \rightarrow 1} P(N_{ev}) \quad (1.40)$$

Conclusion

L'objectif de cette étude est de vérifier les calculs sur les incertitudes statistiques dans un cas connu puisque les probabilités d'évènements sont définies. Les résultats obtenus montrent que les évaluations des écart-types statistiques selon les différentes méthodes sont cohérentes lorsque l'on se place dans le cas où les probabilités de détecter des évènements sont faibles devant l'unité. Ce dernier point valide l'utilisation d'une loi de poisson pour décrire ces évènements en coïncidence. Lorsque l'on s'écarte des probabilités faibles devant l'unité, le recours aux distributions binomiales et multinomiales est indispensable pour évaluer correctement les variances et les corrélations des paramètres statistiques. Le choix de la méthode d'analyse statistique doit être fait en parfaite adéquation avec les observables physiques mesurées et les observables reconstruites in fine. Nous verrons dans la suite que les mesures de rendements de fission (cf. Chap. 2) sont naturellement définies dans un ensemble fermé suivant une loi multinomiale.

1.3 Interprétation géométrique des covariances et méthode de propagation

Le but de cette partie est d'interpréter la décomposition en valeurs singulières afin de mettre en avant l'intérêt physique de ce travail. Pour faire le lien avec les notions développées dans les précédents paragraphes (cf. § 1.2.1.1 & 1.2.1.3), nous pouvons réécrire l'équation du χ_g^2 généralisé (eq. 1.6) de manière à faire apparaître la matrice de corrélations :

$$\chi_g^2 = \vec{C}^* \cdot \text{Corr}^{-1} \cdot \vec{C} \quad (1.41)$$

avec \vec{C} le vecteur associé à la comparaison²⁰ du modèle $T\bar{h}$ et des mesures \vec{E} réduit à l'écart type, d'élément $C_i = \frac{Th_i - E_i}{\sigma_i}$. En faisant apparaître la matrice de corrélations, il est possible alors d'interpréter cette quantité normalisée qui lève l'ambiguïté due à la différence de précision de chaque mesure.

Une illustration peut être faite sur les expériences de mesures de section efficace de fission de l' $^{243}\text{Am}(n, f)$ réalisées au CENBG durant ma thèse (Fig. 1.8). Pour mémoire, ces mesures de sections efficaces de réaction de fission ont été réalisées en référence à trois réactions standards : $^{235}\text{U}(n, f)$, $^{238}\text{U}(n, f)$ et $^1\text{H}(n, p)$. Le principe repose sur la juxtaposition de deux cibles placées dans le même flux de neutrons pour limiter les erreurs systématiques. Plusieurs expériences ont été réalisées soit à l'IRMM soit sur AIFIRA utilisant des sources de neutrons différentes. Les neutrons sont produits soit par la réaction $T(p, n)$ via des cibles solides de TiT soit par la réaction $D(d, n)$ via des cibles de deutérium gazeux. A chaque changement de sources de neutrons (pour changer de gamme d'énergie de neutrons produits), le dispositif est déplacé par rapport à la source. Par conséquent les incertitudes géométriques sont différentes et ne se propagent plus d'une série de mesures à une autre. La matrice de corrélations des mesures de section efficace est présentée Fig. 1.8. La question restée en suspens portait sur la corrélation entre l'angle solide de la (ou des) cible(s) d' ^{243}Am et l'angle solide de la cible de polypropylène, lieu de la diffusion (n, p) . Cette question n'est pas simple et n'avait pas été élucidée à l'époque. Les résultats ont été publiés en considérant les deux options quant à cette corrélation : la première considère la corrélation des angles solides nulle puisqu'un neutron interagissant avec un américium n'interagira pas avec un proton du polypropylène; la seconde option a pour but d'évaluer la corrélation maximale entre les angles solides pour que la corrélation entre les mesures de section efficace ne dépasse pas l'unité²¹. Le résultat aboutit à une corrélation maximale entre les deux angles solides de $\lambda_1 = 1$ pour les mesures avec une cible d'américium et $\lambda_2 = 0,61$ pour les mesures avec deux cibles d'américium. La figure 1.8 présente les résultats expérimentaux, les matrices de covariances associées suivant les valeurs extrêmes des paramètres ($\lambda_1; \lambda_2$) et les valeurs singulières associées aux matrices (Tab.1.3).

La décomposition des matrices de corrélations associées à ces mesures a permis de mettre une image sur ce travail. En observant les premiers vecteurs propres (cf. Fig. 1.8 (en haut à droite) & Tab. 1.4) correspondant aux valeurs propres les plus importantes, on peut considérer l'interprétation suivante :

- la première valeur propre correspond à la moyenne des mesures.
 $\sim -0,27.(D_AIFIRA + D_Geel + T_Geel)$
- la seconde valeur propre correspond principalement à la différence des mesures utilisant une source de neutrons $TiT(p, n)$ et celles utilisant $D(d, n)$ à AIFIRA :
 $\sim 0,32.T_Geel - 0,29.D_AIFIRA - 0,09.D_Geel$
- la troisième valeur propre correspond principalement à la différence des groupes de mesures via $D(d, n)$ réalisées à Geel en Belgique et celles via $D(d, n)$ réalisées sur AIFIRA à Bordeaux.
 $\sim 0,22.D_AIFIRA - 0,43.D_Geel + 0,1.T_Geel$

20. En statistique, le test du χ^2 est parfois vu comme la somme quadratique d'une variable gaussienne centrée réduite. L'argument de la somme est alors considéré comme un changement de variable pour se ramener à une gaussienne centrée réduite.

21. Par définition, toute corrélation est bornée entre -1 et 1 (inégalité triangulaire). La valeur maximale des corrélations des angles solides est fixée par les limites possibles sur la matrice de corrélations des mesures de section efficace σ_i à l'énergie neutron E_i : $-1 \leq \text{corr}(\sigma_i; \sigma_j) \leq 1$.

- la quatrième valeur propre et les suivantes illustrent les structures entre les points qui ne sont pas considérées par les trois premières composantes décrivant les moyennes des trois séries de mesures.

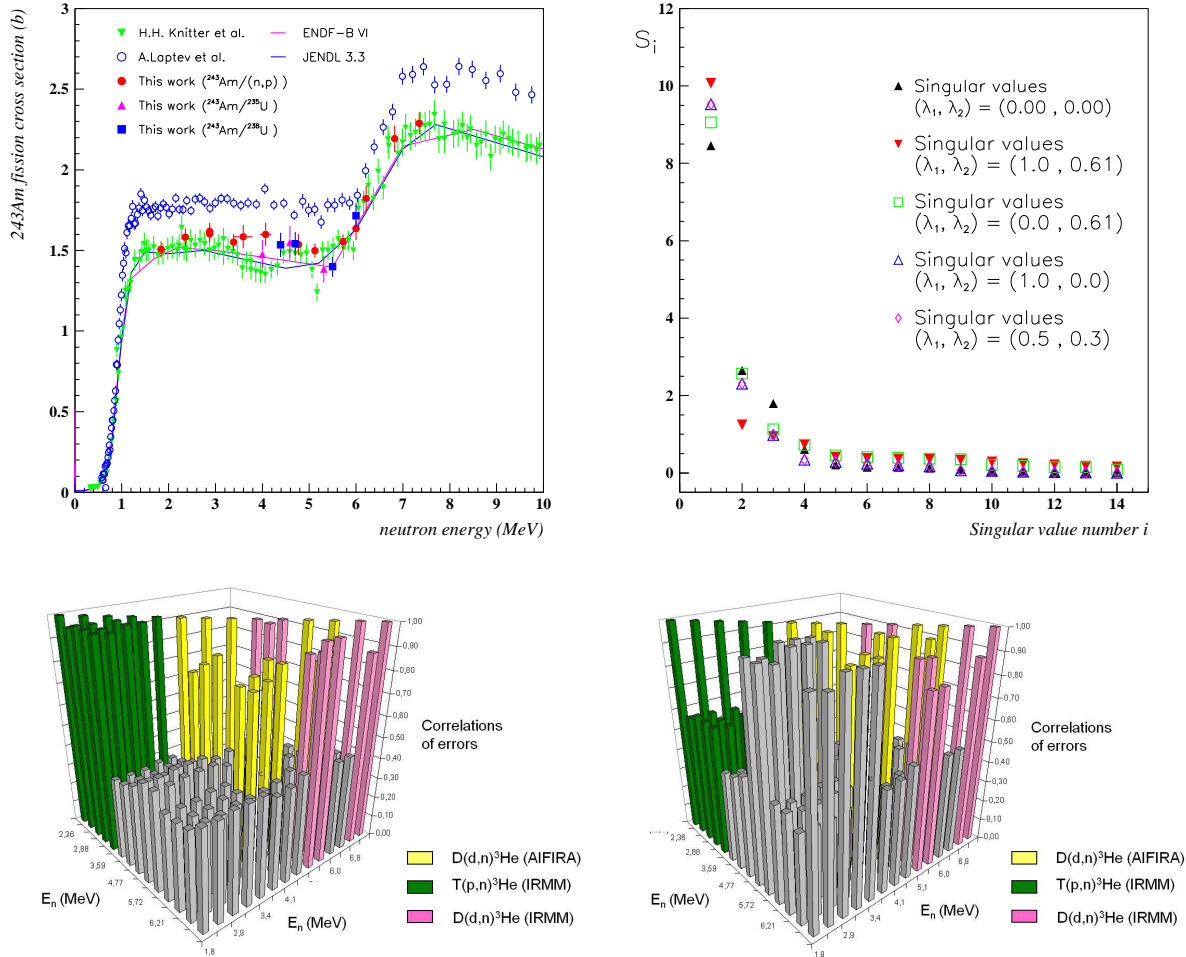


FIGURE 1.8 – (haut gauche) Résultats des mesures de section efficace de fission de ^{243}Am ; (haut droit) Valeurs singulières des matrices de corrélations suivant le degré de corrélation entre les angles solides; (bas gauche) matrice de corrélations des mesures de section efficace de fission de ^{243}Am en référence à la diffusion élastique $^1\text{H}(n,p)$ sans corrélation entre les angles solides; (bas droite) idem avec corrélations entre les angles solides. Le code couleur permet d’identifier les séries de mesures avec les sources de neutrons utilisées pour les différents points en énergie; les colonnes grises représentent les covariances entre les différentes séries de mesures.

La prise en compte des corrélations maximales entre les angles solides nous conduit au premier ordre à inverser les poids associés aux deuxième et troisième vecteurs propres (cf. Fig. 1.8 (en haut à droite)). Du fait de la normalisation de la corrélation à l’unité sur la diagonale de la matrice, il existe un effet de balancier entre les covariances : l’introduction d’une covariance positive entre les angles solides diminue les incertitudes systématiques au sein d’une série de mesures (colonnes vertes, jaunes ou roses). Dès lors la diminution des incertitudes (variances i.e. diagonale de la matrice) tout en concernant la part d’incertitude systématique entre les mesures de deux séries différentes (éléments hors diagonaux en gris) implique une augmentation de

la corrélation (un numérateur constant sur un dénominateur diminuant).

TABLE 1.3 – Résultats des mesures de section efficace de fission de ^{243}Am induite par neutrons [15]. Le nombre de points indépendants dans ce travail était présenté relativement aux 21 points de mesures. L'évaluation du nombre de degrés de liberté est dorénavant établie en valeur absolue (cf. texte)

E_n (MeV)	$\sigma_{(n,f)}$ (b)	Minimal standard deviation on $\sigma_{(n,f)}$ (%) $\lambda_1=1; \lambda_2=0.61$	Standard deviation on $\sigma_{(n,f)}$ (%) with $\lambda_1=\lambda_2=0$
Van de Graff, IRMM – in reference to H(n,p) – neutron source T(p,n) ^3He			
1.841	1.506	2.2	3.4
2.361	1.583	2.6	3.4
2.876	1.602	2.1	3.3
2.876	1.617	2.2	3.3
3.387	1.551	2.2	3.3
5.122	1.498	2.1	2.9
5.721	1.554	2.1	2.9
6.824	2.192	3.0	3.7
7.350	2.289	2.2	2.9
3.592	1.585	3.7	4.6
4.070	1.600	3.6	4.5
4.768	1.537	3.3	4.2
5.997	1.636	3.5	4.4
6.213	1.823	3.5	4.4
Number of independent points for measurements in reference to H(n,p)		14	12
Van de Graaff, CENBG – in reference to $^{235}\text{U}(n,f)$ – neutron source D(d,n) ^3He			
4.00	1.476	5.4	6.2
4.59	1.552	5.5	6.3
5.31	1.384	5.2	6.0
AIFIRA CENBG – in reference to $^{238}\text{U}(n,f)$ – neutron source D(d,n) ^3He			
4.39	1.534	4.4	4.8
4.70	1.541	4.2	4.6
5.50	1.399	3.8	4.3
6.00	1.715	3.9	4.4
Total number of independent points for all measurements		21	18

TABLE 1.4 – Vecteurs propres associés aux valeurs singulières des matrices de corrélations pour des corrélations nulles entre les angles solides ou maximales [7].

		$(\langle corr \rangle; corr(\Omega_n; \Omega_2)) = (0,00; 0,00)$				$(\langle corr \rangle; corr(\Omega_n; \Omega_2)) = (0,61; 1,0)$			
valeurs singulières s_i		8.46	2.65	1.79	0.61	9.47	2.59	1.10	0.74
E_n (MeV)		vecteurs singuliers droits $V_{i=1;4}$				vecteurs singuliers droits $V_{i=1;4}$			
T-Geel	1,84	-0.281	0.329	0.100	-0.003	0.270	-0.037	0.272	-0.002
T-Geel	2,36	-0.279	0.331	0.101	0.003	0.255	0.135	0.325	0.067
T-Geel	2,88	-0.282	0.338	0.097	0.016	0.262	0.185	0.378	0.087
T-Geel	2,88	-0.284	0.327	0.101	0.000	0.265	0.142	0.348	0.033
T-Geel	3,39	-0.283	0.331	0.103	0.008	0.262	0.140	0.348	0.044
D-AIFIRA	3,59	-0.248	-0.277	0.223	-0.294	0.236	-0.363	-0.100	-0.067
D-AIFIRA	4,07	-0.253	-0.277	0.225	-0.283	0.245	-0.358	-0.091	-0.033
D-AIFIRA	4,77	-0.266	-0.283	0.223	-0.261	0.265	-0.349	-0.070	-0.018
D-Geel	5,12	-0.270	-0.102	-0.436	0.564	0.318	0.242	-0.335	0.266
D-Geel	5,72	-0.255	-0.077	-0.416	-0.213	0.315	0.273	-0.390	0.124
D-AIFIRA	5,99	-0.270	-0.303	0.210	0.394	0.255	-0.353	-0.026	0.000
D-AIFIRA	6,21	-0.270	-0.302	0.211	0.393	0.255	-0.356	-0.028	0.000
D-Geel	6,82	-0.238	-0.098	-0.413	-0.208	0.202	0.223	-0.091	-0.938
D-Geel	7,35	-0.251	-0.074	-0.418	-0.215	0.308	0.293	-0.367	0.111

FIG. 3.18 – Vecteurs singuliers des principales valeurs singulières pour les deux matrices de corrélations des erreurs. La lettre T ou D indique que les mesures ont été réalisées avec une cible le tritium ou de deutérium.

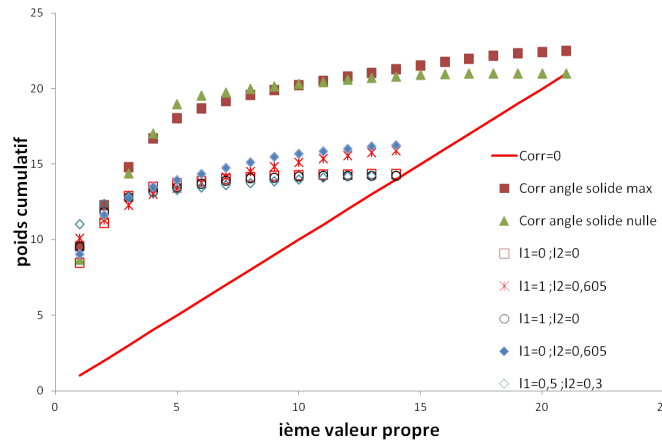


FIGURE 1.9 – Poids cumulé des valeurs singulières en fonction du nombre de mesures/valeurs propres considéré pour les expériences de mesures de section efficace de fission de l' $^{243}\text{Am}(n, f)$ en fonction des valeurs des corrélations des angles solides ($\lambda_1; \lambda_2$). Les carrés rouges pleins et les triangles verts présentent les valeurs singulières cumulées pour toutes les mesures. Les autres points correspondent uniquement aux mesures en référence à la diffusion (n,p).

La figure 1.9 présente les résultats de la décomposition en valeurs singulières en fonction de la corrélation des angles solides restés libres dans l'analyse. Si nos « mesures vraies » (i.e. valeurs expérimentales) étaient indépendantes (corrélations nulles) avec des incertitudes proches, chaque mesure aurait la même importance dans la détermination du nombre de degrés de liberté et toutes les valeurs singulières seraient égales à 1 (cf. droite rouge sur la figure 1.9). On pourrait en conclure que chaque mesure apporterait une information supplémentaire. Si maintenant on considère la corrélation des mesures, alors chaque valeur propre (ou singu-

lière) n'apporte pas la même information. La figure 1.9 présente le poids cumulé de l'information apportée en fonction du nombre de valeurs propres considérées pour deux expériences réalisées. L'interprétation fine des corrélations a été réalisée par la suite au LPSC en collaboration avec le CENBG.

Les vecteurs propres s'interprètent alors simplement comme la transformation d'un espace de mesures \vec{E} non-orthonormal en un espace de *pseudo-mesures*²² \vec{E}' orthonormal. La prise en compte des différentes pseudo-mesures par ordre décroissant de valeurs propres permet de décrire la complexité d'un hyper-espace en le détaillant élément par élément (ou plus exactement mode par mode). On comprend alors que les valeurs propres les plus petites apportent une information « locale » ou relative à de petites structures alors que les valeurs propres principales vont décrire les grandes structures de la réaction (à l'instar de l'analyse modale des images). Considérant la précision numérique dans l'évaluation des incertitudes, le nombre de degrés de liberté apparaît naturellement lorsqu'il est impossible de prétendre qu'une information supplémentaire est apportée compte tenu de la précision du calcul. Le tableau 1.3 indique la précision des mesures réalisées et le nombre de degrés de liberté déterminé dans les deux cas extrêmes où la corrélation entre les angles solides est négligée ou maximale. On remarque que le fait de fixer les corrélations entre les angles solides change notablement le poids cumulé des mesures (cf. Fig. 1.9) et le nombre de degrés de liberté associé aux mesures.

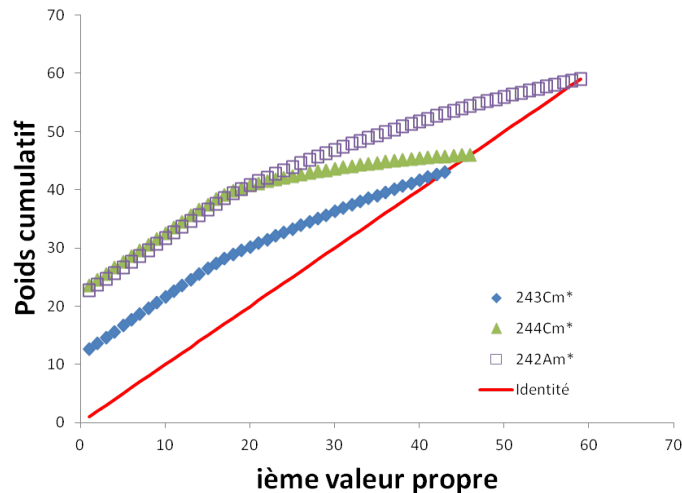


FIGURE 1.10 – Poids cumulés des valeurs propres en fonction du nombre de mesures/valeurs propres considérées pour les expériences sur les probabilités de fission mesurées par réactions de transfert.

À titre de comparaison, la figure 1.10 illustre le poids cumulé des mesures de probabilités de fission par mécanisme de transfert obtenues avec le CENBG [12, 13]. On observe deux grandes régions de mesures : la première colinéaire à la droite de corrélation nulle (en rouge) indique qu'une partie des données sont quasi-indépendantes, à l'erreur systématique près de la géométrie du détecteur de fission (seuil de fission). La seconde partie est toujours représentée par une droite mais de pente plus faible (plateau de première chance fission). Le fait que cette pente reste constante indique que l'apport des dernières données n'est pas négligeable et qu'une progression dans la précision de la méthode est possible. Pour les mesures sur le $^{244}\text{Cm}^*$, cette pente diminue lorsque le nombre de valeurs singulières augmente signant la quasi-impossibilité d'extraire davantage d'informations que ce qui a été fait. L'information apportée est limitée par l'incertitude systématique correspondant à la correction des réactions sur les contaminants légers de la cible.

22. Attention encore à la terminologie, ici le terme de pseudo-mesures est associé à la quantité déterminée par la diagonalisation de la matrice de corrélations. Ce même terme est aussi utilisé dans la problématique des méta-données sur laquelle nous reviendrons dans les perspectives de reconstruction de matrices de covariances des rendements de fission.

A l'inverse dans le cas des mesures de la réaction $^{243}\text{Am}(n, f)$, on observe sur la figure 1.9 que la pente du poids cumulé ne fait que décroître au fur et à mesure que l'on considère les valeurs singulières. Dans le cas où les corrélations sur les angles solides sont nulles ($\lambda_1 = 0; \lambda_2 = 0$), on observe une saturation de l'information extraite avec un nombre de degrés de liberté maximal identifié à 18. Dans le cas où les corrélations des angles solides prennent des valeurs maximales ($\lambda_1 = 1; \lambda_2 = 0,61$), le nombre de degrés de liberté est 22,5. A mon sens, ce nombre de degrés de liberté non-entier supérieur au nombre de mesures égal à 21 n'est pas lié à une fluctuation numérique, il indique que la matrice de corrélations porte une information en plus des mesures elles-mêmes

La différence entre les deux matrices de corrélations (Fig. 1.8 en bas) et in fine les incertitudes des mesures réalisées (Tab. 1.3) sont directement liées à l'évaluation de la corrélation entre les angles solides. Le fait que le paramètre λ_2 soit borné²³ ($\lambda_2 \leq 0,61$) indique que l'incertitude sur les angles solides est probablement surestimée ou que leur corrélation n'est pas réaliste. Les figures 1.11 présentent la corrélation des angles solides en fonction des incertitudes associées à ces derniers. La plage de représentation couvre les valeurs utilisées dans ce travail. Nous constatons que les angles solides sont nécessairement corrélés à plus de 50% avec une grande probabilité d'une corrélation proche de l'unité. On peut donc penser que même si l'évaluation des incertitudes associées aux angles solides n'est pas très précise, ceux-ci sont très corrélés. Par conséquent les incertitudes les plus réalistes sur les mesures de section efficace sont celles correspondant aux paramètres ($\lambda_1 = 1; \lambda_2 = 0,61$) dans le tableau des résultats (Tab. 1.3). Ce dernier paragraphe permet de finaliser l'interprétation des calculs de corrélations sur ces mesures tout en illustrant leur intérêt. Au final, ces considérations sur les corrélations des angles solides permettent de conclure à une diminution de près de 1% sur les incertitudes des résultats (cf. Tab. 1.3).

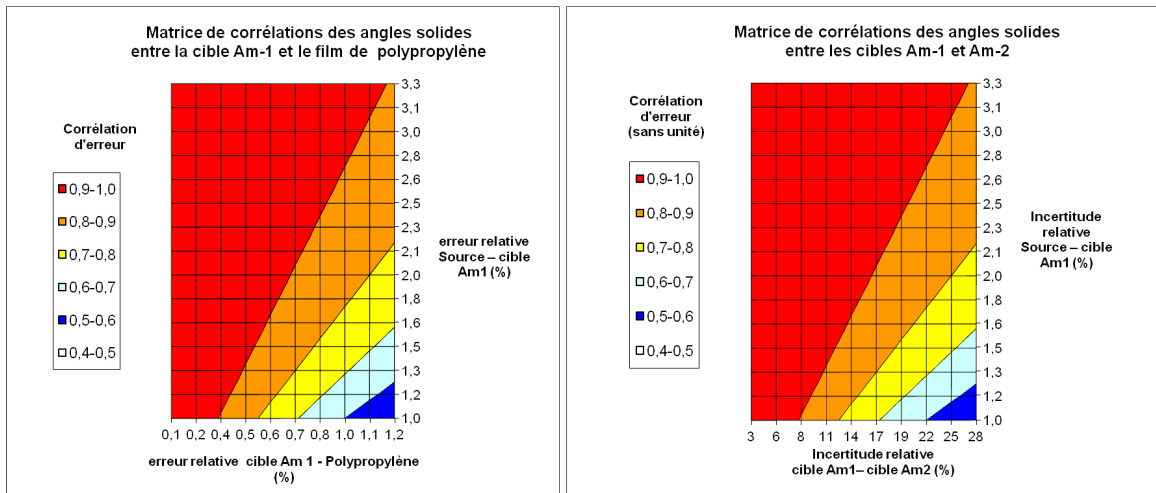


FIGURE 1.11 – Corrélations entre les angles solides des cibles d'Américium ^{243}Am (Am1 et Am2) et du film de polypropylène en fonction des incertitudes associées à la distance « source de neutrons-cible » et des distances « cible Am1 - cible Am2 » (figure de gauche) ou « cible Am1- film de polypropylène » (figure de droite).

23. pour respecter la limite admissible de la corrélation entre les mesures de sections efficaces

* Où cela nous conduit-il ?

Outre la régularisation des matrices de covariances et leur inversion, l'interprétation de cette quantité permet de la propager dans l'évaluation des incertitudes utilisant l'approche Monte Carlo. Cette méthode consiste à échantillonner les paramètres suivant une loi de probabilité appropriée afin de déterminer la distribution de probabilité (*pdf*) de l'observable. Dès lors, la matrice de covariances transforme un espace de variables aléatoires indépendantes $\vec{X} - \langle \vec{X} \rangle$ (en physique nous dirions isotrope) en un espace corrélé \vec{Y} :

$$\vec{Y} + \langle \vec{\mu} \rangle = [Cov]^{1/2} \vec{X} + \vec{\mu} \quad (1.42)$$

où \vec{Y} est le vecteur des variables aléatoires corrélées de dimension $(n \times 1)$, \vec{X} le vecteur des variables aléatoires indépendantes centrées réduites $N(0; 1)$ de dimension $(n \times 1)$, $\vec{\mu}$ le vecteur des valeurs moyennes de dimension $(n \times 1)$ et Cov la matrice de covariances de dimension $(n \times n)$. Celle-ci peut être décomposée en valeurs propres suivant la relation :

$$Cov = V.D.V^t \quad (1.43)$$

où V , V^t et D sont de dimension $n \times n$ correspondant à n mesures et représentent respectivement la matrice des vecteurs propres, la transposée de la matrice des vecteurs propres et la matrice diagonale des valeurs propres de Cov . Dès lors, considérant un ensemble de variables aléatoires indépendantes \vec{X} distribuées suivant une distribution centrée et normalisée, on obtient l'ensemble des variables aléatoires corrélées \vec{Y} centrées et non normalisées auxquelles on additionne les valeurs moyennes des variables aléatoires $\vec{\mu}$:

$$\vec{Y} + \langle \vec{\mu} \rangle = V.D^{1/2}.V^t.\vec{X} + \vec{\mu} \quad (1.44)$$

Cette démarche est la base de la propagation des incertitudes par la méthode *Total Monte Carlo* qui devient nécessaire dès lors que les sensibilités des observables aux paramètres ne sont pas constantes. Dès lors on atteint les limites de la théorie des perturbations (au premier ordre) et la méthode numérique devient (quasi-) incontournable. L'apport principal de cette méthode est dans le développement de méta-analyses ou la génération de *méta-données*. La logique est d'associer à chaque point de mesure « brute » une variable aléatoire pour « rejouer » l'expérience. A chaque tirage, une analyse complète est réalisée afin d'en déduire la distribution de probabilité associée à la mesure ou observable. A la différence de la méthode *Total Monte Carlo* où les paramètres sont échantillonnés, dans la meta-analyse, on échantillonne les prises de mesures elles-mêmes suivant la loi de distribution statistique des événements (Poisson, Gauss, binomiale, multinomiale...). Cet aspect a été développé dans la thèse de A.Chebboubbi (soutenance prévue le 28 oct. 2015) pour l'analyse des rendements en masse de ^{233}U dans la région de la symétrie. Néanmoins l'équipe n'abandonne pas l'analyse déterministe comme l'atteste l'analyse des mesures de rendements de fission du $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ par S.Julien-Laferrière et al. (Master 2, en thèse LPSC - CEA 2015-2018). Mon choix est de développer le plus grand nombre de méthodes d'analyse pour pouvoir comparer les résultats, mais aussi de laisser aux étudiants qui viennent travailler dans notre équipe le choix de la méthode qu'ils préfèrent et la liberté d'ouvrir de nouvelles voies.

1.4 Le futur des données nucléaires : pérennisation des données libres de toute normalisation

Si la terminologie « données nucléaires » a définitivement pris place dans les thématiques de l'IN2P3, l'activité n'est pas pour autant nouvelle : elle reste celle des réactions nucléaires et de la structure nucléaire des noyaux fissionnant. La structure nucléaire correspond à l'étude des propriétés des noyaux et celle-ci ne se résume pas au seul domaine de la spectroscopie nucléaire comme on l'entend trop souvent. Qu'on l'appelle Fission, Super/Hyper déformation, réactions nucléaires ou aujourd'hui Données Nucléaires, la physique sous-jacente reste identique. Le vrai changement est le contexte des études, opéré dans les années 1991-95 avec le groupement de recherche GEDEON puis GEDEPEON. D'aucuns pourraient penser que justifier le nom via le contexte signe une certaine légèreté scientifique mais il n'en est rien. Le contexte des études est justement ce qui fait la spécificité de la thématique. Dans des études de structure nucléaire ou de mécanisme de réactions, l'objectif est de signer une transition, un effet local. On pourra bien sûr penser aux seuils de réactions, aux résonances, aux distributions angulaires. Dans la plupart des cas, une mesure relative permet de signer l'effet. Je ne peux m'empêcher de penser au travail de Gérard Barreau et al. sur la signature de résonances au seuil de fission dans la région des thorium et protactinium. La différence de peuplement de ces résonances par réactions induites par neutrons ou par transfert permettait de signer à la fois les états de transition au-dessus de la barrière de fission et le moment angulaire transféré par la réaction.

Néanmoins les études de la thématique des Données Nucléaires se différencie du spectre des études passées pour plusieurs raisons. La première et la plus importante est la nature de la mesure. Pour être utilisable dans un code de calcul, les observables d'intérêt doivent être définies de manière absolue. C'est pour cette raison que ce premier chapitre propose de redéfinir les outils statistiques nécessaires à la thématique. Déterminer des mesures absolues pose la question des « standards » ou réactions de références afin de normaliser les observables. Il est clair que cette question est naturelle lorsque l'on étudie des réactions induites par neutrons. La mesure du flux et du spectre de neutrons (ou champ neutronique) est un sujet complexe qui demande de nombreuses études pour affiner la précision des réactions et notamment des standards. La seconde raison porte sur le spectre des noyaux à étudier. Celui-ci est bien sûr orienté vers la région des actinides puisqu'ils sont les seuls à avoir une barrière de fission comparable à l'énergie de liaison du neutron. On peut y voir une contrainte, mais en réalité la mise en lumière de noyaux « phares » permet d'exiger un raffinement sans précédent en physique nucléaire. Le but de la thématique n'est pas de savoir identifier un effet structurel afin de mettre en avant un mécanisme particulier ou innovant ; la question posée ici est la modélisation la plus précisément possible de la réaction en vue de pouvoir fournir aux physiciens des réacteurs des limites de fiabilité sur les observables utiles. La complémentarité entre la structure nucléaire et les réactions nucléaires, n'est pas seulement à souhaiter, elle est nécessaire pour l'étude des réactions. D'un côté, la structure nucléaire est nécessaire pour mettre à profit la spectrométrie gamma comme sonde d'un état ou d'un isotope ; de l'autre les observables déduites de différentes méthodes utilisant la structure nucléaire sont autant de tests de cohérence des schémas de niveaux et des mécanismes de peuplement des états nucléaires. A titre d'exemple, on peut voir les mesures de rapports isomériques comme une mémoire du moment angulaire emporté par l'isotope lors d'une réaction ; ces mesures sont aussi un test ou une « mesure intégrale » (dans le jargon de physique des réacteurs) permettant de tester l'ensemble du processus de production d'un isotope. Dans cette problématique, les études de spectroscopie nucléaire sont les « données nucléaires de bases » pour la physique des réactions nucléaires. Chaque domaine peut se revendiquer d'un caractère fondamental, mais ce fondamentalisme ne reflète que la non-connaissance des sujets connexes et la volonté de rester immergé dans son environnement.

L'utilisation de méthodes indirectes (e.g. réactions de transfert) est l'une des spécificités de la recherche académique (CNRS/Universités et par extension une partie du CEA) dans les données nucléaires. La recherche publique se doit de développer des méthodes nouvelles à la limite des connaissances actuelles. La mesure simple sans interprétation ne peut pas être l'objectif des organismes des recherches. L'interprétation

des mesures ne se veut pas une évaluation, mais elle correspond à un test de l'évaluation²⁴. Si les paramètres utilisés pour l'évaluation sont incompatibles avec ceux fixés par les réactions indirectes, cela permet de mettre en lumière les incompatibilités soit sur les données expérimentales, soit sur les modèles i.e. les hypothèses sous-jacentes. Une analogie peut être faite dans la thématique des scénarii. Pourquoi le CNRS développe son propre code de scénarii? Pour maîtriser et tester les hypothèses sous-jacentes à la modélisation d'un parc de réacteurs. La logique est exactement la même. S'il n'était pas nécessaire d'évaluer et de faire des « Benchmark » entre les modélisations, alors il ne serait pas nécessaire d'élargir les outils d'évaluation. Ce n'est clairement pas le cas. Les réactions de transfert restent une voie innovante, fondamentale et spécifique de la recherche publique à la thématique des données nucléaires. Elles sont à la fois un test global des évaluations et un test local du comportement de la matière nucléaire.

Pérennisation des données

A l'heure actuelle, la plupart des données mesurées sont dépendantes des évaluations passées, en particulier pour les sections efficaces des réactions. Il est donc nécessaire d'avoir un historique clair des normalisations pour faire évoluer des résultats présentés en valeur absolue. C'est particulièrement le cas pour les données obtenues par spectrométrie gamma. L'évolution des schémas de niveaux est nécessaire mais cette évolution peut être la cause dans la durée d'incohérences dans les résultats. Il en va de même de l'effet de somme, des corrections de conversion électronique ou des sections efficaces de références. Toutes ces données peuvent être des éléments apportant de la corrélation entre les résultats mais encore faut-il que ces corrélations soient bien évaluées. La pérennisation des données, c'est la conservation des données réduites d'analyse, libres des normalisations extérieures. Cela demande donc une structuration de l'analyse avec pour objectif de définir ce qui est intrinsèque à l'expérience ou à l'analyse et ce qui vient de l'extérieur (évaluations de réactions, données de structure nucléaire...). De ce fait, penser une expérience revient à penser l'analyse sous l'angle des corrélations. Pour des effets de structure, avoir des résultats avec des corrélations fortes mais néanmoins décorrélés des mesures antérieures est la bonne stratégie puisqu'elle permet de signer un effet physique avec une grande précision. C'est par exemple le cas des mesures de probabilités de fission ou des rapports isomériques qui constituent des mesures absolues par méthodes relatives auto-normalisées. C'est également le cas des mesures de rendements de fission pour peu que l'on mesure l'intégralité d'une région de masses (cf. Chap. 2).

Identifier et quantifier les limites accessibles pour l'évaluation : exemple sur les probabilités de fission

Dans ce processus de mesures de précision répondant à la demande de la physique des réacteurs [16], notre travail n'est pas seulement de faire des expériences les plus précises possibles mais il est de fournir les limites accessibles des mesures et de leur interprétation via des modèles. Il n'existe pas encore de modèle ab initio ou même de modèle phénoménologique permettant d'évaluer les noyaux d'intérêt ne serait-ce que dans la région des actinides. De nombreuses études ont été réalisées pour déterminer les propriétés des barrières de fission via la spectroscopie des noyaux super-déformés et notamment des isomères de forme de classe II [17]. Si l'approche de Strutinsky [58] joue un rôle prépondérant dans l'évaluation des sections efficaces, il n'en reste pas moins que l'on est uniquement capable de reproduire la forme générale des probabilités de fission mais toujours incapable de les prédire²⁵. De plus, les travaux réalisés sur les probabilités de fission dans la région des curiums par réactions de transfert [12] (Fig. 1.12) ont montré la présence de résonances bien en

24. NB : une évaluation est une modélisation des mesures différentielles qui valide un « benchmark » avec les mesures intégrales (réacteur, boule critique...). Par le jeu des compensations d'erreurs, ces évaluations peuvent ne pas toujours être la modélisation la plus crédible d'un point de vue physique. C'est tout l'enjeu de la thématique de faire le lien entre les données microscopiques et macroscopiques.

25. La modélisation de la section efficace de formation du noyau composé est obtenue indépendamment de la probabilité de réaction dans l'approche de Bohr. Dès lors toute la problématique repose sur la modélisation des barrières de fission afin d'en déduire les différentes probabilités de réactions.

dessous du seuil de fission. Par le passé, des résonances sous le seuil de fission ont été observées dans les $^{248}\text{Cm}^*$, $^{250}\text{Cm}^*$, $^{240}\text{Pu}^*$ et $^{242}\text{Pu}^*$ par B. B. Back et al. [18]. Dans le cas du $^{243}\text{Cm}^*$, ces résonances ont des intensités beaucoup plus importantes ne serait-ce que par rapport aux autres noyaux.

Si la modélisation de la première chance de fission ne pose pas de problème majeur en représentant la barrière de fission comme une classique double barrière, néanmoins les largeurs de celles-ci n'autorisent pas d'effet tunnel. Dès lors un test de χ^2 à partir des mesures au-delà du seuil de fission permet de valider la modélisation mais la présence même de résonances sous le seuil nous indique au mieux que la modélisation est incomplète, au pire qu'elle est caduque. Pour expliquer ces résonances, une hypothèse serait qu'il existe un autre chemin de fission à travers des barrières plus étroites permettant ces résonances sous le seuil via des états de transitions entre les barrières. Néanmoins cette voie ne semble pas nécessaire pour évaluer les mesures au delà du seuil. Est-ce alors le signe que cette voie « résonante » n'est pas la plus probable au-delà du seuil ? De plus sur le plateau de première chance fission, l'évaluation reproduit bien la tendance moyenne mais pas les potentielles structures entre 8 et 11 MeV d'énergie d'excitation, même si ces dernières restent encore compatibles avec les fluctuations statistiques. Si ces structures à haute énergie d'excitation semblent difficilement compréhensibles pour un noyau pair-impair entre 4 et 5 MeV d'énergie d'excitation au-dessus de la barrière, celles-ci pourraient être rapprochées d'une évaluation modélisant un double chemin de fission. On aurait donc un modèle passant de 6 paramètres (hauteurs et largeurs de barrières $E_A, E_b, \hbar\omega_A, \hbar\omega_B$ et corrections de couches au sommet des barrières) à un système avec au minimum 12 paramètres considérant le second chemin sans compter les états de transitions. Néanmoins, pour observer des résonances à si basse énergie sous le seuil, on s'attend nécessairement à des barrières étroites. Dans une vision « à la Strutinsky » où les corrections de couches modifient la structure de la barrière « goutte liquide », on imagine plutôt une succession de trois barrières dans le même esprit que celles trouvées dans la région des thoriums. Tout cela nous amènerait à devoir définir un modèle avec un nombre de paramètres trop important pour espérer trouver une solution unique et déterminer des propriétés des barrières indubitables.

À la question posée sur l'omniprésence des études sur la barrière de fission, la réponse est simple, sa description est centrale dans l'évaluation de toutes les réactions d'intérêt pour la thématique en particulier : (n, f) , (n, γ) , (n, xn) . Il est impossible d'évaluer correctement les réactions de désexcitation des noyaux fissionnant sans évaluer au préalable le canal fission. C'est cette voie qui fixe les paramètres de la barrière qui se répercutent sur l'ouverture des autres réactions e.g. $(n, 2n)$. Le problème à N corps, qui plus est dynamique, est incarné par la barrière de fission.

* Place du mécanisme dans les études sur les « données nucléaires »

Cette discussion précédente illustre parfaitement la nécessité des outils présentés dans ce chapitre et l'obligation pour la thématique d'extraire des données expérimentales les contraintes sur les hypothèses qui, seules, permettront de fiabiliser les modélisations phénoménologiques en attendant les approches microscopiques ou pourquoi pas *ab initio*. Pour fiabiliser les hypothèses, des mesures sur le mécanisme des réactions, complémentaires aux seules données demandées, sont nécessaires. C'est le cas en particulier des distributions de spin induites par la fission. Que ce soient les distributions des états peuplés au-dessus de la barrière ou celles induites aux fragments au moment de la scission, ces mesures constituent une source d'information indispensable à l'évaluation. Faire reposer la modélisation d'une réaction sur la seule observable d'intérêt est à long terme limitant compte tenu de la diversité des modèles de physique nucléaire à prendre en compte dans l'évaluation (densité de niveau, partage de l'énergie d'excitation, distribution de spin, fonction de force γ , états de transitions...). C'est la raison pour laquelle une part importante des projets proposés dans ce travail porte sur des « études du processus de fission dans de cadre des tests d'hypothèses pour les évaluations » (cf. Chap. 3).

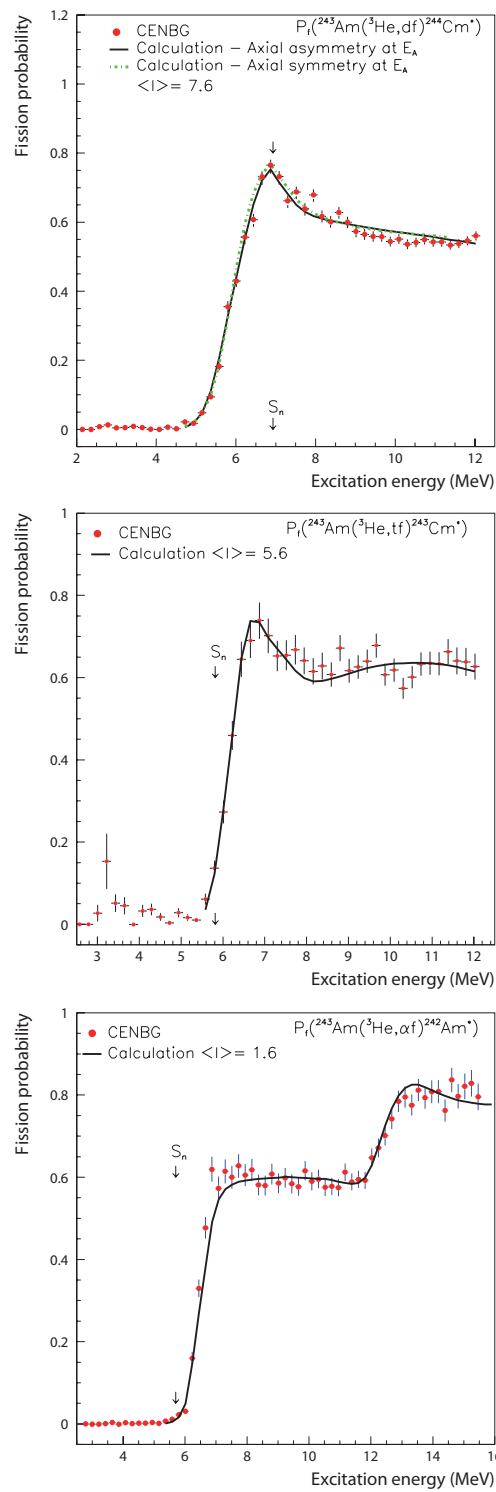


FIGURE 1.12 – Mesures et évaluations des probabilités de fission du $^{244}\text{Cm}^*$, $^{243}\text{Cm}^*$ et de $^{242}\text{Am}^*$ obtenues par réactions de transfert en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant [12].

Conclusion

On pourrait résumer la problématique de l'évaluation comme le test de l'ensemble des modèles compatibles avec les mesures afin d'évaluer au mieux une observable²⁶. L'idée n'est pas d'affirmer qu'une hypothèse est plus réaliste qu'une autre mais de tester et d'accepter, le cas échéant, les conséquences de l'indiscernabilité des hypothèses comme par exemple le débat sur l'aspect adiabatique ou non du processus de fission présenté dans la référence suivante [59]. La fiabilité du test repose sur l'estimation correcte des incertitudes, des corrélations et du nombre de degrés de liberté apporté par les mesures. Ces degrés interviennent explicitement dans l'analyse fréquentiste des marges sur les modèles et de manière implicite dans l'analyse bayésienne via l'utilisation du « chi2 généralisé » χ_g^2 . Les outils présentés dans ce chapitre seront mis en application dans les chapitres suivants sur l'étude des rendements de fission.

Dès lors nous pouvons conclure que si les mesures portent en elles-mêmes une part importante de l'incertitude des évaluations, deux faiblesses opposées dans la modélisation restent une difficulté majeure pour la question des incertitudes des évaluations : l'incompatibilité des modèles avec les mesures ou la multitude des choix permettant de modéliser ces mesures. La discussion faite sur les sections efficaces de réactions s'applique à toute la thématique des données. L'amélioration des évaluations doit passer conjointement par le test des modèles et la validation des hypothèses sous-jacentes sur le mécanisme de la réaction. Cette limitation par les modèles est particulièrement criante dans la problématique des rendements de fission. Dès lors les évaluations actuelles mettent un poids énorme sur les mesures qui ne sont pas nécessairement exemptes non-plus de biais.

26. ce qui serait une définition très bayésienne

Chapitre 2

Mesures de rendements de fission pour les cycles du combustible

Les mesures de rendements ont été une sonde du processus de fission largement étudiée dans les années 70. Toutes les techniques instrumentales ont été mises en œuvre pour sonder les propriétés des fragments et tenter d'éclairer la nature du processus de fission. Deux grandes techniques ont marqué leur époque : la mesure par temps de vol et la sélection d'un fragment par déflexion électromagnétique. Ces deux techniques ont été développées à l'ILL à travers, respectivement, les spectromètres *Così fan tutte* et *Lohengrin*. De ces deux instruments, seul le second reste en fonctionnement. Il est à la fois utilisé comme spectromètre pour mesurer les rendements de fission post-émission neutrons et comme séparateur pour réaliser la spectrométrie des noyaux riches en neutrons pour lesquels la fission reste la meilleure source. En trois chiffres, le spectromètre *Lohengrin* a une acceptation de l'ordre de 10^{-5} , un taux de fission de l'ordre de 10^9 fissions par seconde à la cible et un pouvoir de séparation supérieur à 400, i.e. la séparation des masses est réalisée théoriquement à 99,95% jusqu'à la masse 150. Il reste un lieu exceptionnel pour l'étude de la fission. Néanmoins, la technique du temps de vol¹ est encore aujourd'hui utilisée pour étudier l'émission des fragments en masse en fonction de l'énergie cinétique ou l'émission des neutrons prompts. Ces études sont primordiales pour comprendre la répartition de l'énergie d'excitation, la distribution en moment angulaire et les mécanismes à leur origine. Ces deux derniers sujets restent une question ardente dans la communauté. Dans ce chapitre nous aborderons principalement les problématiques des mesures de rendements de fission dans les régions des fragments lourds qui connaissent toujours un déficit de données pour les évaluations.

En 2010, le LPSC a intégré la collaboration formée autour d'Olivier Serot et Herbert Faust auprès du spectromètre *Lohengrin* de l'ILL. J'ai considéré l'opportunité de revenir vers la fission comme une chance en ayant pour objectif d'amener les outils statistiques acquis lors de mon ATER (sur les mesures de section efficace de diffusion élastique sur le ^{12}C , le ^{19}F et le 7Li) dans ce nouveau programme sur les rendements de fission. Nous terminons une étape intéressante au LPSC puisque le début du programme coïncidait au départ de Roger Brissot qui a œuvré de longues années sur le spectromètre *Lohengrin* dans le cadre de l'étude du processus de fission dans le groupe de l'ex-*ISN* dirigé par Hervé Nifenecker. Loin d'avoir la prétention de reprendre la suite de cette activité (nous sommes aujourd'hui seulement deux maîtres de conférences sur ce sujet), mon objectif est avant tout d'évaluer au mieux la précision des méthodes de mesures dans le cadre du test des modèles. Il me semble que l'heure est arrivée d'appliquer aux études de physique nucléaire les critères de la physique des hautes énergies pour limiter les luttes de chapelles qui nuisent à l'émulation intellectuelle. En effet la justesse des modèles est relative à leur capacité d'interpréter les mesures. Néanmoins la justesse des données demande une reproductibilité sans faille et une compréhension de l'information apportée par l'expérience et la méthode d'analyse. Selon moi, la logique du travail de recherche a quelque peu changé entre

1. Les projets en cours sont principalement STEFF à Manchester, Fallstaf au CEA Saclay, Verdi à l'IRMM, Spider à Los Alamos

la thématique de la fission et celle des données nucléaires. L'objectif n'est plus d'identifier le modèle de fission qui s'imposerait, l'idée est de sélectionner les seules approches permettant d'interpréter les données pour en discuter les hypothèses mais aussi estimer la dispersion des évaluations en conséquence de ces hypothèses.

2.1 Objectifs et Méthodologie des mesures de rendements de fission

* Contexte du projet : études des cycles de combustible actuels et innovants

La connaissance précise de la fission nucléaire des actinides est indispensable à la modélisation des réacteurs et aux études sur l'aval du cycle électronucléaire. Les distributions en masse et en charge de leurs fragments de fission influencent directement les prédictions de systèmes (empoisonnement du combustible), de chaleur de décroissance [Al10] et les études de sûreté des systèmes actuels ou innovants. Cette puissance résiduelle a des conséquences importantes à l'arrêt du réacteur et lors de la gestion du combustible usé, notamment dans le cadre de son retraitement. Les besoins sur l'amélioration de ces données sont bien documentés par la NEA/OCDE [JE06].

Une étude portée par le CEA/DEN [68] sur la sensibilité des produits de fission dans les systèmes actuels a permis de déterminer quantitativement l'impact des incertitudes des rendements de fission, des puissances β ou γ dégagées par isotope et des périodes radioactives sur la puissance résiduelle. L'utilisation de la bibliothèque de données européennes JEFF aboutit à une incertitude de 2,5 à 5% sur une échelle de temps de 10 s à 30 ans due aux seuls rendements. Le même calcul réalisé en supposant des corrélations maximales pour les rendements indique une incertitude de 16 à 8 % sur la même échelle de temps. Ces calculs permettent également de montrer que les rendements de fission sont 2,5 à 130 fois plus sensibles que les deux autres paramètres dans l'évaluation de la puissance résiduelle² suivant l'existence de corrélations dans les évaluations. Les rendements de fission sont donc les contributeurs majoritaires à l'incertitude globale. Une attention particulière doit être portée aux isotopes sensibles pour décrire la chaleur de décroissance : suivant l'échelle de temps considérée ($t > 1s$) les noyaux riches en neutrons proches des têtes de chaînes ainsi qu'au voisinage de la symétrie contribuent notablement à la chaleur dégagée sur une plage de quelques heures. Ces travaux récents [68] montrent que les contributeurs à la chaleur de décroissance ne correspondent pas seulement aux rendements majoritaires mais aussi aux masses au voisinage de la symétrie.

Les études sur des cycles du combustible innovants tels que des cycles U-Pu fermés avec multi-recyclage des plutoniums ou le cycle du thorium nécessitent des données fiables sur les actinides autres que l' ^{235}U ou le ^{239}Pu . Actuellement, pour ces autres noyaux, les données sont principalement manquantes dans la région des fragments lourds. Un point de comparaison entre les cycles est fourni par les calculs d'inventaires de fin de cycle ou de chaleur de décroissance. Il est actuellement difficile de caractériser ces cycles innovants tant l'enrichissement du vecteur isotopique des actinides, dû par exemple au multi-recyclage, rend les calculs sur l'inventaire ou la puissance résiduelle incertains. Un dernier point porte sur le rayonnement γ prompt émis par les fragments de fission. Ces rayonnements sont les premiers contributeurs à l'échauffement de la cuve du réacteur. La durée de vie des installations étant déterminée par la tenue dans le temps des matériaux des éléments irremplaçables, la prédiction de ces rayonnements est aujourd'hui un point important pour les études de sûreté dans un contexte de prolongement des périodes de fonctionnement des centrales nucléaires. Des mesures intégrales fiables de ces spectres n'existent que pour l'uranium ^{235}U . S'il est possible de remesurer ces spectres pour les actinides majeurs du cycle U-Pu, tous les actinides ne pourront être traités dans différents spectres de neutrons (thermique, rapide). Il apparaît donc nécessaire de pouvoir modéliser (e.g. GEF[27], Fifrelin [30, 60]) ces spectres de rayonnements γ prompts pour l'ensemble des cycles actuels ou innovants. La modélisation de ce rayonnement suppose une bonne connaissance des isotopes produits par la fission (avant décroissance β , ie les fragments de fission post-émission neutrons), de leur distribution en énergie cinétique (afin de déterminer leur énergie d'excitation) et de leur distribution de moment angulaire

2. Cette étude ne considère que les noyaux de période supérieure à 0.1s.

induit par la fission. Cela conduit à devoir déterminer les « rendements dynamiques » en masse A , charge nucléaire Z , énergie cinétique E_k et moments angulaires J , $Y(A, Z, E_k, J, \pi)$, pour les actinides d'intérêt.

Depuis fin 2010, le groupe de physique des réacteurs du LPSC a engagé un programme de recherche en collaboration avec le CEA et l'ILL sur la mesure précise des rendements de fission des actinides (majeurs et mineurs) dans le cycle Uranium-Plutonium et le cycle thorium. Ces études sont menées auprès du spectromètre Lohengrin de l'ILL [20, 61, 25, 26]. De nouvelles méthodes de prises de données et d'analyse ont permis d'obtenir des mesures absolues sur ^{233}U et les matrices de corrélations d'incertitudes associées aux mesures. Un programme de mesure sur ^{233}U , les $^{239, 241}\text{Pu}$ et ^{241}Am est en cours par la collaboration (thèse Soutenue : F.Martin (LPSC/CEA), C.Amouroux (2011-2014, CEA)). La thèse de A.Chebboubi (2012-2015, soutenance prévue 28 octobre 2015, LPSC-ILL) est orientée, entre autres, sur le développement de méthodes directes (particules promptes cf. § FIPPS) et indirectes (mesures des états isomères) d'études des distributions de spin dans la fission. Une nouvelle thèse commence en 2015 sur la poursuite du programme sur les $^{239, 241}\text{Pu}$ et le développement de Ffirelin pour l'interprétation des rapports isomériques.

Les rendements de fission sont des quantités nécessaires pour les applications et pour l'étude du processus de fission mais ces derniers restent difficiles à interpréter compte tenu des écarts très importants qui existent avec les modèles. Seules les mesures de rendements en fonction de la masse et de la répartition de l'énergie cinétique totale via des mesures 2E-2V (ou 2E) permettent une interprétation aisée en mode de fission selon le modèle phénoménologique de Brosa [33]. Que l'on considère les modèles (statiques) de fragmentation [62] ou les modèles microscopiques (HFB) considérant la dynamique du processus [35], leur utilisation comme *prior* d'entrée pour les évaluations n'est pas possible compte tenu des écarts existants.

Néanmoins toutes les mesures dans les bases sont loin d'avoir une résolution en masse d'une unité de masse atomique (à 3σ), ce qui limite l'interprétation aux seules évolutions moyennes des rendements et non aux structures apparaissantes. Ces structures dans les rendements en fonction de l'énergie cinétique ont été largement étudiées dans le pic léger pour comprendre le rôle de l'énergie d'excitation disponible au moment de la scission. Dans la région du pic lourd, ces études sont incomplètes. L'idée est de regarder les rendements en masse et en charge (Z) en fonction de la fraction d'énergie cinétique emportée. Il est alors possible de discuter l'apparition des structures au regard de l'énergie d'excitation disponible au moment de la scission.

*** Édification d'une bibliothèque de données complètes pour valider les outils d'évaluation : vers des études sur le processus de fission**

Le programme de recherche sur les cycles électronucléaires demande des évaluations complètes des rendements des actinides présents dans le cycle. Ainsi, une réévaluation complète des mesures incluant les matrices de corrélations des modèles et des mesures est nécessaire dans la perspective de développement des cycles U-Pu ou Th-U quel que soit le spectre de neutrons utilisé en réacteur. Actuellement la modélisation du processus de fission et en particulier des rendements se heurte au grand nombre de degrés de liberté intervenant dans ce processus. Depuis plusieurs décennies, différents aspects de la fission ont été étudiés : caractéristiques des barrières, des rendements, du moment angulaire emporté par les fragments, de l'émission de neutrons etc. . . Les nouveaux programmes de rendement de fission s'orientent vers des études multi-paramétriques afin d'appréhender au mieux la dynamique de fission. Les études portées par la collaboration sont prévues dans un premier temps sur des mesures induites par neutrons thermiques. Ainsi l'énergie d'excitation est voisine de l'énergie de déformation de la barrière de fission impliquant une faible densité de niveaux et un maximum d'effet des distributions de spin dans le processus de fission. Dans un second temps, les mesures de fission induites par neutrons rapides sont nécessaires pour valider l'effet de l'énergie d'excitation sur les rendements de fission, l'émission de particules secondaires (neutrons, γ) ou les distributions de moments cinétiques induites par fission ou encore la répartition de l'énergie d'excitation entre les fragments lourds et légers. Ce dernier point est indispensable dans l'évaluation de particules promptes émises par la fission rapide. Les développements microscopiques du processus de fission tendent à prendre en compte la dynamique de fission afin d'appréhender les phénomènes de polarisation de charges notamment dans la symétrie où le signe de cette polarisation s'inverse [Go08]. C'est aussi dans cette direction que les études sur la fission doivent s'orienter

si l'on souhaite pouvoir fonder les évaluations sur des modèles plus physiques (Codes GEF, FIFRELIN...) que la simple conservation de la densité de charge nucléaire après la scission (modèle de Wahl), hypothèse de base des évaluations actuelles. Ces travaux d'envergure reposent sur la comparaison des modèles et des évaluations à l'ensemble des données disponibles dans une bibliothèque de données complète pour déterminer la fiabilité des données évaluées introduites dans les codes de simulations.

2.2 Mesures absolues des rendements en masse et en charge dans la région des fragments lourds

Dans le cadre de la thèse de F.Martin (2010-2013), des mesures ont été initiées sur l' ^{233}U et le ^{241}Pu dans la région des fragments lourds auprès du spectromètre Lohengrin. Ce travail entre dans la continuité des travaux sur l' ^{235}U et le ^{239}Pu [19, 20]. Le spectromètre Lohengrin sélectionne les fragments suivant une double séparation magnétique puis électrique. Cette succession de filtres permet d'identifier des multiplets de masse A , charge ionique q et énergie cinétique E . Ces deux filtres se comportent comme deux lentilles, une magnétique puis une électrique, avec un grossissement de 1 de sorte qu'à la sortie du séparateur on obtienne une image de la cible placée dans le réacteur (cf. Fig. 2.1). Un détecteur placé au point focal de cette double lentille permet d'observer l'ensemble des multiplets $(A_1, q_1, E_1) \equiv (A_2, q_2, E_2) \equiv \dots \equiv (A_k, q_k, E_k)$ ayant la même optique ionique. L'identification de la masse est parfaitement obtenue en utilisant une double chambre d'ionisation à grille de Frisch pour mesurer l'énergie de la masse d'intérêt. Deux zones expérimentales sont prévues : une première en direction droite ayant le maximum de résolution en énergie et utilisée pour les mesures de rendements en masse ; une seconde position après l'aimant de refocalisation RED (en bleu sur la Fig. 2.1) permettant de réduire la dispersion en énergie du spectromètre afin de condenser le faisceau sur une bande magnétique ou une chambre d'ionisation à fenêtres minces pour réaliser la spectrométrie γ . Cette refocalisation ne change pas la résolution en masse du spectromètre.

Pour mesurer des rendements, il est donc nécessaire de reconstruire les distributions en charges ioniques et en énergie cinétique afin d'évaluer les taux de comptage N_A associés à une masse A . L'acceptance du Lohengrin est de l'ordre de 10^{-5} dont la valeur ne peut pas être mesurée précisément³. Dès lors tous les taux de comptage déterminés sont relatifs d'une masse à l'autre. On est donc dans un protocole de mesures relatives. Néanmoins, par définition les rendements de fission sont normalisés à 2 sur la gamme des fragments. Ainsi en réalisant une mesure sur toute la région de masses produites $\sim [60 - 160]$, il est possible de produire une mesure auto-normalisée et donc absolue. Contrairement à la quasi-totalité des mesures présentes dans les bibliothèques, nous avons donc choisi de mesurer l'intégralité du pic lourd pour assurer l'indépendance de nos résultats avec les évaluations ou mesures précédentes⁴. Dans notre cas, la fission induite par neutrons thermiques dans la région des actinides est asymétrique produisant un pic léger autour de la masse 95 et un pic lourd autour de la masse 140. Entre ces deux régions, les masses symétriques ont des rendements de l'ordre de $[10^{-4}; 10^{-3}]$ qui ne jouent aucun rôle dans la normalisation compte tenu des précisions obtenues de l'ordre de quelques pour cent.

3. Incertitude d'au moins 20% due à la position du collimateur mobile manipulée par des vérins pneumatiques.

4. Seuls les fragments lourds sont comptabilisés dans la normalisation considérant qu'une fission produit deux fragments. Les particules ternaires induisent donc un taux de productions de noyaux par fission légèrement supérieur à 2.

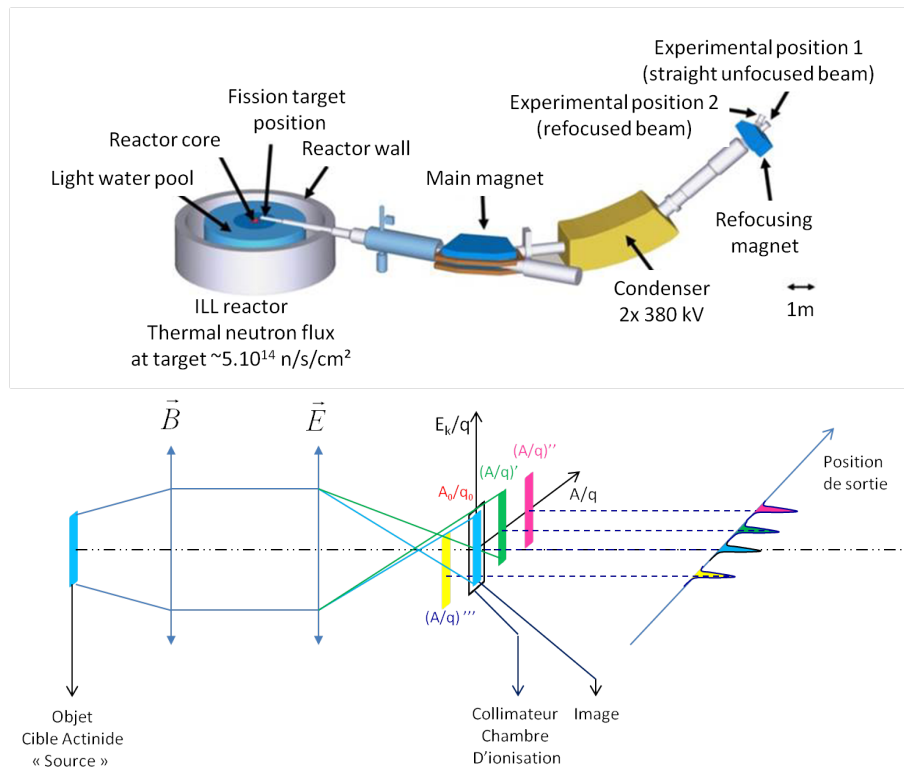


FIGURE 2.1 – (En haut) Schéma du spectromètre Lohengrin - (En bas) Représentation optique du spectromètre Lohengrin présentant les différentes images avec des rapports A/q différents. Toutes les masses présentant le même rapport A/q et E/q ont la même optique ionique et arrivent sur la même position au plan focal.

Un élément central et limitant dans la mesure des rendements de fission auprès du spectromètre Lohengrin porte sur la combustion de la cible, usuellement dénommée « burnup ». Celui-ci est évalué en mesurant l'évolution relative du taux de comptage de la masse 136 (masse de référence dans ce cas-ci). Si les noyaux suivent un burnup nucléaire, la tenue mécanique de la cible ne résiste pas à un taux de fission supérieur à 10^9 fission/s et à un échauffement de la cible de l'ordre de $800K$ [21]. Le phénomène de diffusion d'atomes de la cible d'actinides par les fragments de fission, appelé sputtering, implique une décroissance rapide du taux de fission de la cible en 24 à 48h au lieu de plusieurs semaines. Pour limiter cet effet, historiquement les cibles étaient recouvertes d'une couche de tantale par évaporation permettant de retarder l'usure prématurée de la cible. La figure 2.2 présente les burnup de deux cibles similaires d' ^{233}U ($\sim 120 \mu g/cm^2$) recouvertes de Tantale ($\sim 100 \mu g/cm^2$). On observe des évolutions très différentes, non-prédictibles, qui résultent vraisemblablement de la mise à l'équilibre thermique de la cible et de la fragilisation de la cible. Si les premiers moments de la combustion varient grandement d'une cible à l'autre, la fin de vie correspond à l'éjection de la quasi-totalité de la matière déposée et à la combustion lente suivant un profil exponentiel de l'actinide implanté sur le support de la cible (en Titane). Néanmoins il est impossible d'attendre cette phase de la cible pour réaliser nos mesures compte tenu de la forte diminution des taux de comptage (chute de plus de 70%) et du temps nécessaire pour couvrir toute une région de masse.

Depuis plusieurs années, les difficultés d'approvisionnement et les règles de radioprotection limitent l'entrée de cibles radioactives dans des évaporateurs (même si les cibles restent à température ambiante). Le recours à une feuille de nickel placée devant la cible permet de remplacer le rôle de l'évaporation de tantale mais dégrade les qualités spectroscopiques en énergie cinétique du spectromètre allant jusqu'à détériorer la capacité de mesure des rendements en masse. Ces couvertures permettent de prolonger la durée de vie de la cible entre 3 jours et 3 semaines; inutile de dire qu'il n'y a pas de science exacte dans ce domaine. Outre l'élargissement

de la distribution en énergie cinétique provoqué par la « couverture » de la cible, la technique de fabrication de ces feuilles de nickel pose aujourd'hui un problème majeur. En effet, pour fabriquer ces feuilles, le nickel est évaporé sur une feuille d'acrylique. Pour utiliser ces feuilles, il est nécessaire d'enlever ce substrat d'acrylique avec un bain d'acétone. Néanmoins depuis une dizaine d'années, ce substrat se décolle de manière aléatoire impliquant une perte d'énergie jusqu'à plusieurs dizaines de MeV. Il devient extrêmement difficile de réaliser des mesures précises par la suite. Cette discussion aboutit toujours à la même constatation : sans cible de qualité, les programmes de recherche sont largement mis à mal au delà du simple fait de générer des corrections difficiles sur les mesures.

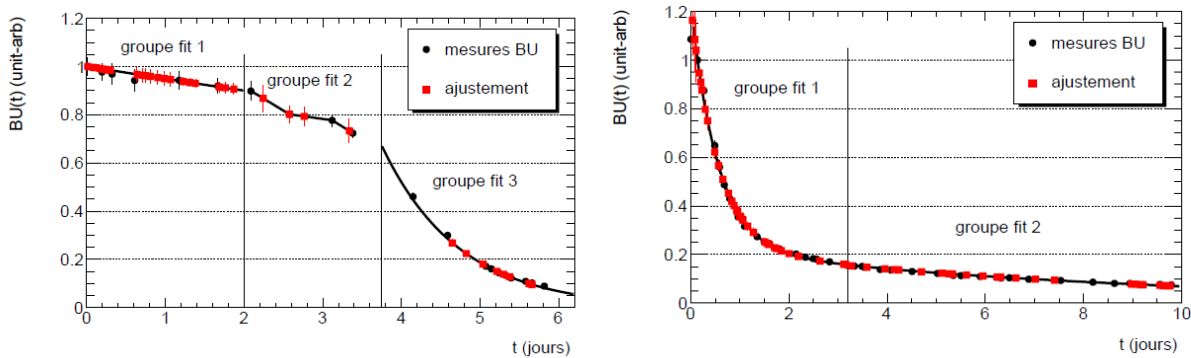


FIGURE 2.2 – Illustration de burnup de deux cibles similaires d' ^{233}U (recouverte d'une couche de tantale) sur le spectromètre Lohengrin. L'évolution est imprévisible et analysé a posteriori.

2.2.1 Principe de mesures de rendements en masse et en charge nucléaire : évolution apportée par la collaboration

Pour évaluer le taux de comptage N_A associé à la masse A (Fig. 2.3), le principe est théoriquement simple, il suffit d'intégrer la distribution en énergie cinétique E_k pour chaque charge ionique selon l'équation :

$$N_A = \frac{1}{\Delta t \cdot Bu(t)} \cdot \sum_q \int_{E_k} N(A, q, E_k, t) dE_k \quad (2.1)$$

où $N(A, q, E_k)$ est le taux de comptage à l'énergie E_k et à la charge ionique q associé à la masse A . Δt représente le temps de la mesure⁵ et $Bu(t)$ le *burnup* de la cible. Pour réaliser des mesures de distributions isotopiques, deux méthodes sont employées. Pour les charges nucléaires $Z < 40$, il est possible d'identifier des structures dans la perte d'énergie détectée par la double chambre d'ionisation à grille de Frisch. Dès lors l'intégrale d'une tache dans la représentation graphique de la perte d'énergie en fonction de l'énergie totale $\Delta E \times E_k$ permet d'obtenir le rendement en masse. La déconvolution des structures en ΔE permet d'identifier le poids de l'isotope $^A_Z X$ au sein des taux de comptage N_A de la masse A . Cette technique largement étudiée pour caractériser les rendements en masse et en charge nucléaire dans la région des fragments légers n'a jamais été appliquée précisément pour extraire les covariances entre les rendements en charge. Pour les charges $Z \geq 40$ correspondant approximativement aux masses $A \geq 100 \text{ uma}$, en cinématique directe, il ne reste principalement que la méthode de spectrométrie γ . Celle-ci a été mise en œuvre auprès du spectromètre Lohengrin dans le cadre de la thèse de A.Bail [19, 20]. Des travaux précédents avaient utilisé cette méthode de spectrométrie γ pour des mesures de rendements par neutrons rapides [23].

5. mesures de courtes durées au regard de l'évolution temporelle de la cible permettant une correction linéaire.

$$N_{A,Z} = \frac{1}{\Delta t \cdot Bu(t)} \cdot \sum_q \int_{E_k} N(A, Z, q, E_k, t) dE_k \quad (2.2)$$

$$N_{A,Z} = \frac{1}{\Delta t \cdot Bu(t)} \cdot \sum_q \int_{E_k} \frac{N(A, q, E_k, t|\gamma)}{I_\gamma \cdot f_\gamma \cdot \epsilon_\gamma} dE_k \quad (2.3)$$

où $N(A, q, E_k|\gamma)$ est le nombre de noyaux produits déduits de la raie γ associée à la l'isotope ${}^A_Z X$, I_γ est l'intensité gamma associée à la décroissance du noyau ${}^A_{Z-1} X$, f_γ est l'effet de somme dans le détecteur γ , ϵ_γ l'efficacité du détecteur γ .

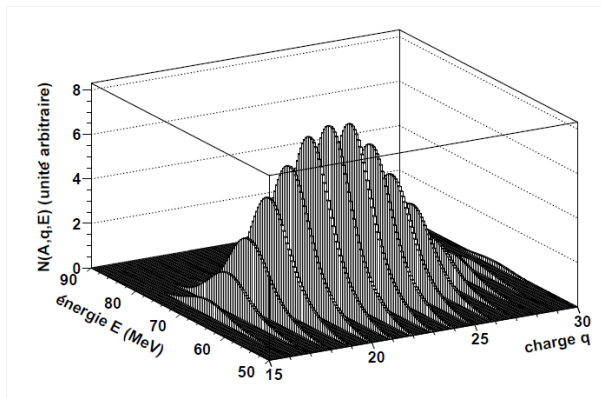


FIGURE 2.3 – Illustration d'un rendement dans le plan « énergie cinétique - charges ioniques » : la production d'un fragment de masse A est distribuée dans un espace à 2 dimension qu'il faut couvrir pour évaluer les taux de comptage $N(A)$.

Par le passé, l'objectif des mesures de rendements était d'observer des structures pour identifier les mécanismes à l'origine de la fission asymétrique. Compte tenu du temps de réglage manuel du spectromètre, seuls quelques points de chaque distribution étaient évalués afin de pouvoir couvrir une région de masse intéressante par cible. Néanmoins la réorientation de la thématique fission vers les données nucléaires ont quelque peu changé les logiques des prises de mesures. En effet la recherche de précision sur les méthodes expérimentales a nécessité une refonte de la méthode. Ce travail d'évaluation des incertitudes de la méthode expérimentale a été réalisé dans le cadre des thèses de Florence Martin [4] et A.Chebboubi [3]. Les principaux points d'améliorations de la méthode sont les suivants :

- **Prises de données** : corrélation (q, E_k)

Historiquement les corrélations charge ionique - énergie cinétique (q, E_k) , bien que connues, étaient négligées. Les expériences montrent que ces corrélations sont dépendantes de l'épaisseur de la cible et des pertes d'énergie qu'elle génère. La figure 2.4 présente une illustration de la corrélation entre la distribution en énergie du fragment et la charge ionique de celui-ci. Au terme de plusieurs campagnes de mesures pour identifier et quantifier ces effets, il apparaît que les corrections sont de l'ordre de 1 à 5% et l'incertitude associée à la correction est évaluée autour de 1%. Depuis 2012, il a été démontré que la mesure de rendement correcte demande la mesure *a minima* de trois distributions en énergie cinétique⁶ *et* de la distribution complète en charge ionique à l'énergie la plus probable. Cela nous amène à plus de 40 mesures, donc plus de 40 réglages du spectromètre. L'application de cette méthode pour les mesures de hauts rendements a été rendue possible uniquement par l'automatisation du Lohengrin et l'acquisition de données par le même logiciel *NOMAD* développé à l'ILL.

6. mesures à trois charges ioniques de part et d'autre de la charge la plus probable

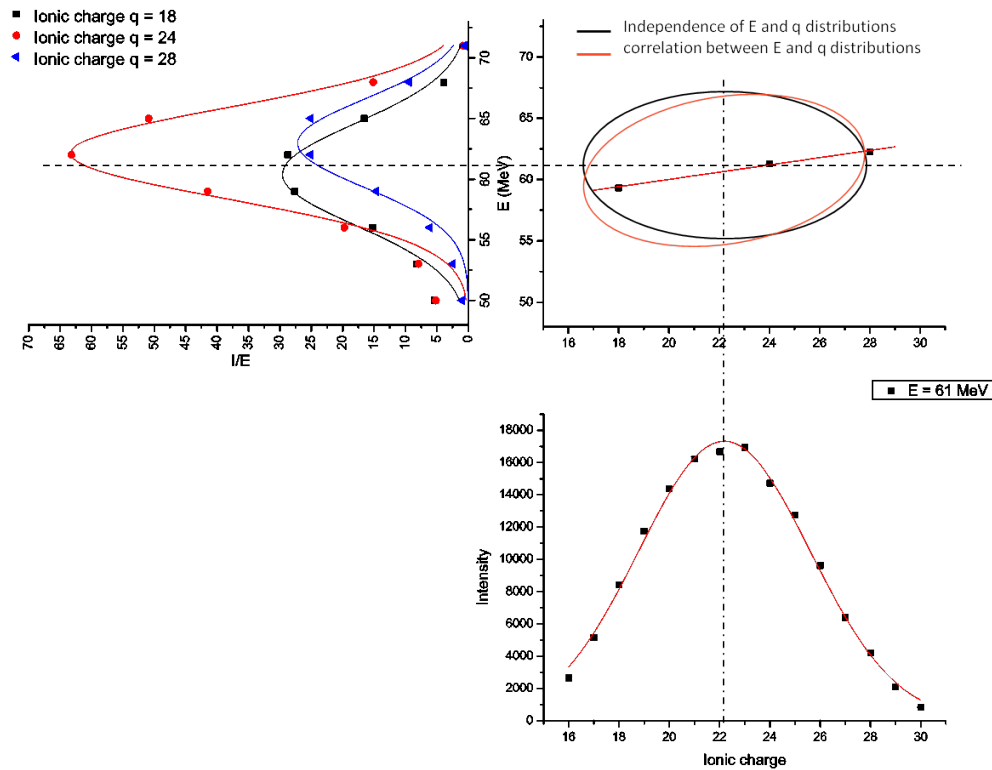


FIGURE 2.4 – Illustration de principe de la corrélation « énergie cinétique - charges ioniques » basée sur des données expérimentales : la figure de gauche présente les distributions en énergie cinétique pour trois charges ioniques différentes ; la figure du centre représente l'énergie moyenne du fragment en fonction de la charge ionique ; la figure du bas illustre la distribution en charge ionique à une énergie donnée.

- **Burnup** :

La mesure du burnup de la cible est le point crucial de l'analyse. Il est usuel de dire que celui-ci correspond à l'évolution de la cible. En réalité, celui-ci intègre l'évolution de la cible et la stabilité du spectromètre Lohengrin. En effet pour réaliser une mesure, il est nécessaire que l'image de la cible soit centrée sur le collimateur de la chambre d'ionisation. Dès lors il faut vérifier le centrage magnétique de l'image⁷. Pour observer l'évolution de la cible elle-même, il est nécessaire de regarder l'évolution relative d'une masse. Si historiquement les mesures de burnup utilisaient uniquement le maximum de la distribution de la masse 136 ou 98 à une charge ionique donnée⁸, il s'avère que ces distributions évoluent de plusieurs pourcents au cours de la durée de vie de la cible (entre 3 jours et 3 semaines). Aujourd'hui, la mesure de burnup consiste en la mesure complète des distributions en énergie et en charge (plus de 20 points de mesures) à chaque pas de temps. Entre deux mesures de la masse 136 ou 98, on suppose et espère une stabilité du Lohengrin pour mesurer la masse A d'intérêt. On vérifie a posteriori la stabilité de l'instrument et de la cible si les mesures associées au burnup sont ajustables par loi monotone type exponentiel (Fig. 2.2).

- **Complétude des distributions** :

Les mesures des distributions en énergie et en charge se doivent d'être complètes à la précision de la

7. Dans le jargon, on appelle cela un χ Scan en raison de la variable géométrique reliant la valeur du champ B à la masse souhaitée : $B = \chi A/q$.

8. Ces masses sont choisies car elles sont très faciles à identifier dans le graphique $\Delta E \times E_k$.

mesure escomptée sous peine d'être dans l'incapacité d'estimer l'incertitude de l'intégrale. En effet les distributions en énergie cinétique ne sont pas ajustables par des fonctions simples⁹ avec un test de χ^2 satisfaisant. Dès lors il est impossible d'accepter le fit et d'utiliser les incertitudes associées aux paramètres ajustés (l'intensité I , l'énergie moyenne \bar{E}_k , et l'écart type σ_E). Le besoin de précision nous a conduit à développer une méthode sans fit en évaluant le poids statistique de la distribution. Pour cela on échantillonne la distribution en énergie cinétique en s'assurant d'explorer les énergies ayant un poids supérieur à 0,5% de l'intégrale. De même, toutes les charges ioniques ayant un poids supérieur à cette limite sont mesurées.

- **Spectrométrie γ et biais :**

Dans le cadre des mesures de rendements isotopiques par spectrométrie γ , l'effet de somme est un phénomène non-linéaire qui perturbe de manière importante les mesures de rendement. Celui-ci correspond au cumul de plusieurs photons issus d'une même cascade de désexcitation. La sensibilité de l'effet de somme à l'efficacité du détecteur est très importante, pour un cristal de germanium avec une efficacité de 0,5% à 1MeV, le facteur de correction d'effet de somme f_γ évolue de 0,8 à 1,05 suivant la raie utilisée pour identifier l'isotope [4]. Cette correction est donc totalement indispensable pour ne pas biaiser l'analyse.

- **Mesures évaluées :**

La particularité du programme de la collaboration est de s'auto-normaliser, autant que faire se peut, afin de limiter les incertitudes systématiques et les corrélations avec les autres données ou évaluations. Dans ce cadre nous déterminons deux quantités : les mesures des taux de comptage non-normalisés N_i associés à la masse A avec leurs matrices de covariances $Cov(N_i; N_j)$ et les mesures auto-normalisées i.e. les rendements de masse Y_A avec la matrice associée $Cov(Y_A; Y_{A'})$. Ces deux matrices ne portent pas la même information puisque les taux de comptage N_i sont corrélés par les incertitudes systématiques liées à l'instrumentation et l'analyse des spectres alors que les rendements Y_A possèdent une corrélation d'origine statistique (cf. § 1.2.2) en plus des erreurs systématiques de l'instrument sur les taux de comptage N_i . Le fait que la somme des rendements soit égale à 2 (ou 1 pour le pic léger ou lourd) implique que l'on place l'ensemble des mesures des masses A dans un ensemble fermé suivant une loi multinomiale avec des corrélations négatives entre les sous-ensembles associés à ces mesures.

Pour l'ensemble des mesures N_i , on établit les incertitudes statistiques et systématiques afin de définir les corrélations expérimentales entre les taux de comptage N_i et N_j : $Corr(N_i; N_j)$. Il est alors possible de calculer le taux de comptage moyen associé à la masse A noté $\langle N_A \rangle$ et l'incertitude¹⁰ associée $\sigma_{\langle N_A \rangle}$ tenant compte des corrélations entre les taux de comptage [15, 7].

$$\frac{1}{\sigma_{\langle N_A \rangle}^2} = \frac{1}{Var(\langle N_A \rangle)} = \sum_{i \in A} \frac{1}{Var(N_i)} + 2 \cdot \sum_{j > i \in A} \frac{Cov(N_i; N_j)}{Var(N_i) \cdot Var(N_j)} \quad (2.4)$$

La définition de la norme des rendements implique une contrainte sur l'ensemble de travail (« masses du pic lourd ») auquel sont associées les variables aléatoires $\langle N_A \rangle$ et $\langle N_{A'} \rangle$:

$$\sum_{A \in Heavy Mass} Y_A = 1 \quad (2.5)$$

$$Y_i = \frac{\langle N_A \rangle}{\sum_{A' < N_{A'} > A'} \langle N_{A'} \rangle} \quad (2.6)$$

9. Gaussiennes, « Crystal-Ball » (gaussienne avec une queue de distribution exponentielle)...

10. De manière générale, on note l'écart type σ_k associé à une quantité k et sa variance $Var(k) = \sigma_k^2$. La covariance de deux quantités k et k' est notée $Cov(k; k')$; la corrélation de ces mêmes quantités est définie par $Corr(k; k') = \frac{cov(k; k')}{\sigma_k \cdot \sigma_{k'}}$.

Dès lors la sensibilité de Y_A à $\langle N_A \rangle$ notée S_{AA} et celle de $Y_{A'}$ à $\langle N_{A'} \rangle$ avec $A \neq A'$ notée $S_{AA'}$ sont non-nulles et se propagent par la théorie de perturbation :

$$\frac{Var(Y_A)}{(Y_A)^2} = S_{AA}^2 \cdot \frac{Var(\langle N_A \rangle)}{(\langle N_A \rangle)^2} + 2 \cdot \sum_{A'' > A'} S_{AA''} \cdot S_{AA'} \cdot \frac{Cov(\langle N_{A'} \rangle; \langle N_{A''} \rangle)}{\langle N_{A'} \rangle \cdot \langle N_{A''} \rangle} \quad (2.7)$$

$$\frac{Cov(Y_A; Y_{A'})}{Y_A \cdot Y_{A'}} = S_{AA} \cdot S_{AA'} \cdot \frac{Var(\langle N_A \rangle)}{(\langle N_A \rangle)^2} + S_{AA'} \cdot S_{A'A'} \cdot \frac{Var(\langle N_{A'} \rangle)}{(\langle N_{A'} \rangle)^2} \quad (2.8)$$

$$+ \sum_{A'' > A'''} (S_{AA''} \cdot S_{A'A''} + S_{AA'''} \cdot S_{A'A''}) \cdot \frac{Cov(\langle N_{A''} \rangle; \langle N_{A'''} \rangle)}{\langle N_{A''} \rangle \cdot \langle N_{A'''} \rangle}$$

$$S_{AA} = 1 - Y_A < 0 \quad (2.9)$$

$$S_{AA'} = -Y_{A'} > 0 \quad (2.10)$$

La sensibilité d'un rendement à un autre est négative du fait de la règle de somme, ce qui implique un contrebalancement des variances et des covariances des taux de comptage moyens. In fine le résultat de cette analyse est une « mesure évaluée » puisqu'elle est indépendante de toutes les autres mesures et génère l'incertitude de la mesure absolue $Var(Y_A)$ incluant les covariances expérimentales $Corr(N_i; N_j)$ et les covariances entre les rendements normalisés. Néanmoins dans la pratique, la covariance de deux taux de comptage moyen $Cov(\langle N_{A'} \rangle; \langle N_{A''} \rangle)$ est difficile à obtenir sans introduire de biais. L'analyse la moins biaisée consiste en une *méthode itérative* afin de générer le rendement Y_i associé à N_i puis d'en déduire la matrice de covariances $Cov(Y_i; Y_j)$. La diagonale de cette matrice nous fournit l'incertitude finale tenant compte de la normalisation $\sigma_{Y_i}^f$ en réutilisant l'équation (eq. 2.4). La corrélation entre les rendements $Corr(Y_A; Y_{A'})$ est obtenue en moyennant les $Corr(Y_i; Y_j)$ suivant la relation développée avec le CENBG [7, 12].

Le programme sur les rendements isotopiques par spectrométrie γ dans la région du pic lourd est développé pour répondre également à cette question d'indépendance des nouvelles mesures [25, 26, 4]. Du fait des périodes radioactives, des intensités γ ou des décroissances β pur (sans transition γ), tous les isotopes ne peuvent être identifiés. Usuellement les rendements partiels sont normalisés à une bibliothèque sur un isotope précis ou sur la somme des isotopes mesurés. Ces deux méthodes corrélient la mesure au résultat recherché. Si cet effet n'est pas pris en compte dans le processus d'évaluation, il devient alors difficile d'évaluer les biais d'analyse et de normalisation globale des rendements évalués. La méthode proposée est de décomposer le rendement isotopique de la manière suivante :

$$Y(A, Z) = Y(A) \cdot P(Z|A) \quad (2.11)$$

L'objectif est alors de déterminer la distribution de probabilité des isotopes par masse afin de renouveler la procédure d'auto-normalisation et de construction des incertitudes et corrélations intrinsèquement dues à la normalisation. Nous avons jusqu'à présent identifié deux masses pour lesquelles une fraction majoritaire (>99%) des isotopes sont mesurables. Il s'agit des masses 88 et 139. On pourrait croire que la méthode devient caduque. Néanmoins en couplant les mesures de masse réalisées indépendamment de toute normalisation et les mesures par spectrométrie γ et en supposant que tous les isotopes d'une même masse ont la même distribution en énergie cinétique¹¹, il est possible d'écrire la relation suivante :

$$Y(A, Z) = \frac{N(A, Z|E, \gamma)}{N(A_0, Z_0|E_0, \gamma)} \cdot \frac{P(E_0|A_0)}{P(E|A)} \cdot \frac{R_{loh}(E_0)}{R_{loh}(E)} \cdot Y(A_0) \cdot P(Z_0|A_0) \quad (2.12)$$

où $P(E_0|A_0)$ et $P(E|A)$ sont respectivement la densité de probabilité en énergie cinétique pour la masse de référence A_0 et la masse à mesurer A ; R_{loh} représente la résolution en énergie du Lohengrin; $N(A, Z|E, \gamma)$ et $N(A_0, Z_0|E_0, \gamma)$ correspondent au nombre d'isotopes mesurés pour la masse

11. Ce qui est prouvé pour des mesures utilisant des cibles de $150\mu\text{g}/\text{cm}^2$ par effet de moyenne dû à la perte d'énergie dans la cible.

de référence A_0 et la masse à mesurer A . Cette relation permet d'obtenir un rendement isotopique d'une chaîne de décroissance incomplète en se référant à un isotope de référence $(A_0; Z_0)$ pour lequel nous disposons des mesures du rendement en masse $Y(A_0)$ et de la distribution isotopique $P(Z_0|A_0)$ indépendamment de toute bibliothèque de données expérimentales ou évaluées. Ces masses références sont donc pour l'instant la masse 88 pour les produits de fission légers et la masse 139 pour le pic lourd. Les mesures de la distribution en énergie cinétique sont réalisées par une chambre d'ionisation (en direction droite) et la spectrométrie gamma est réalisée sur la distribution en charge à la sortie de l'aimant de focalisation (dit RED).

Pour réduire les incertitudes, il est possible de normaliser cette mesure relative à la somme des isotopes de la masse de référence A_0 .

$$Y(A, Z) = \frac{N(A, Z|E, \gamma)}{\sum_{Z_0} N(A_0, Z_0|E_0, \gamma)} \cdot \frac{P(E_0|A_0)}{P(E|A)} \cdot \frac{R_{loh}(E_0)}{R_{loh}(E)} \cdot Y(A_0) \quad (2.13)$$

Ce travail de méthodologie peut paraître fastidieux mais il est la raison d'être des mesures dites de précision. La recherche de précision nous a conduit à considérer des incertitudes ou des biais expérimentaux négligés par le passé avec pour conséquence paradoxale une augmentation des incertitudes annoncées trop souvent réduites aux seules incertitudes systématiques. Néanmoins ce travail est d'une importance extrême dans la logique de validation ou d'exclusion de modèles dans le cadre du processus d'évaluation des données nucléaires ou de la signature d'effet de structure en physique fondamentale.

2.2.2 Résultats de la collaboration

A ce jour, les mesures les plus complètes réalisées portent sur l' ^{233}U où la région du pic lourd a été complètement couverte en masse¹². Les figures 2.5 à 2.7 présentent les résultats sur les rendements en masse et en charge sur l' $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$ avec une illustration des matrices de corrélations obtenues. Néanmoins, comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, malgré tous les efforts pour définir les incertitudes sur les mesures, les résultats ne sont pas exempts de biais dus à l'instrument. Ces biais interviennent principalement dans deux régions : la région des masses symétriques (mais dont l'impact sur la normalisation des hauts rendements reste faible) et la région des fragments légers obtenus par normalisation sur le pic lourd. Pour le premier point, une méthode est proposée dans le cadre de la thèse de A. Chebboubi pour corriger les mesures dans la région des masses symétriques (cf. § 2.3). Concernant le second point, un approfondissement des analyses du burnup a montré l'existence de dérives non seulement en énergie moyenne mais aussi en charge ionique. Dans les nouvelles méthodes de mesures sur les $^{241, 239}\text{Pu}(n_{th}, f)$, la prise en compte de l'évolution des distributions en charge et en énergie à chaque pas de temps de burnup (Fig. 2.2) permet d'obtenir des résultats cohérents entre les normalisations des rendements lourds et légers [82]. Les corrélations obtenues pour les mesures de rendements Y_A (Fig. 2.6) sont difficiles à interpréter directement à cause du mélange des corrélations des taux de comptage N_A (Fig. 2.5) et de leur variance lors de la procédure de normalisation (cf. (eq. 2.8)). Il faut voir dans ces matrices de covariances l'image de l'analyse associée aux résultats expérimentaux. Tout autre choix d'analyse conduirait à une autre matrice de covariances qui illustrerait ce nouveau choix.

Dans le cas de l' ^{233}U , on observe un bon accord général avec les évaluations à l'exception des masses au voisinage de $A = 136$ pour lesquelles les résultats s'intercalent entre les évaluations européenne JEFF3.1.1 et américaine ENDF-B7. Dans cette région les masses importantes sont principalement les masses 135 et 137 pour « l'effet xénon » et la question de stockage des déchets. C'est pour cela que dans ce programme, ces masses ont été mesurées entre 2 et 5 fois avec des corrections burnup très différentes. Une seconde structure apparaît autour de la masse 141 en décalage avec les évaluations. Ces différences semblent surprenantes au premier abord mais il faut se rappeler que les évaluations JEFF intègrent non seulement des mesures de rendements

12. Le programme engagé par la collaboration LPSC - CEA Cadarache - CEA Saclay - ILL porte sur les noyaux suivants : l' $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$, les $^{239, 241}\text{Pu}(n_{th}, f)$, l' $^{241}\text{Am}(2n_{th}, f)$ et à venir le $^{245}\text{Cm}(n_{th}, f)$.

indépendants¹³ mais aussi les mesures cumulées en réacteur. La masse 136 a un rôle particulier puisque celle-ci ne possède pas d'isotopes qui décroissent via βn . Dès lors ce rendement cumulé reste identique au rendement en masse¹⁴. Il est donc probable qu'il existe des incompatibilités entre les mesures directes et cumulées qui soient responsables des différences entre les évaluations. Par effet de normalisation, la perturbation sur une masse touche directement les masses de hauts rendements. Pour la structure autour de la masse 141, il est probable qu'il existe un conflit entre les lots de données considérées dans les évaluations. C'est donc là que doit ou devrait prendre toute sa place l'analyse statistique discutée dans le premier chapitre de ce travail. S'il est clair qu'une évaluation doit répondre à un certain nombre de *benchmarks* pour être utile aux applications, l'identification d'incohérences devrait être la règle pour indiquer clairement les incompatibilités et fournir alors les différentes évaluations possibles suite à l'analyse.

C'est là que le travail engagé par la collaboration sur l'analyse statistique des rendements prend tout son rôle ici. Nous sommes aujourd'hui les seuls à proposer des « mesures évaluées » des rendements en masse (A) et en charge (Z) qui tiennent compte des systématiques expérimentales et de l'auto-corrélation due à la normalisation. Les travaux se concentrent sur les covariances provenant des hypothèses des évaluations et de la normalisation [69]. Nous sommes entrés dans le processus d'évaluation dès lors que nous avons eu l'ambition d'obtenir des mesures indépendantes de toute normalisation. On ne peut pas s'enorgueillir dans ce travail de révolutionner la physique mais il est incontestable que le programme et les outils développés servent pleinement la thématique des données nucléaires et en particulier de l'évaluation.

Ces quelques points non-exhaustifs illustrent la particularité des mesures dont le premier objectif est de quantifier la précision des méthodes expérimentales. Néanmoins nous verrons par la suite que la recherche de la précision demandée pour les applications servira largement en retour pour la physique fondamentale, en l'occurrence l'étude du processus de fission lui-même (cf. Chap. 3).

13. Les rendements indépendants ou parents sont considérés comme les produits de fission obtenus directement après émission des neutrons prompts.

14. Les rendements cumulés correspondent aux rendements en masse mesurés après irradiation du combustible lorsque les chaînes sont à l'équilibre. Ainsi l'inventaire en masse tient compte de l'émission des neutrons retardés et des captures neutroniques des produits de fission, ce qui change les proportions en masse.

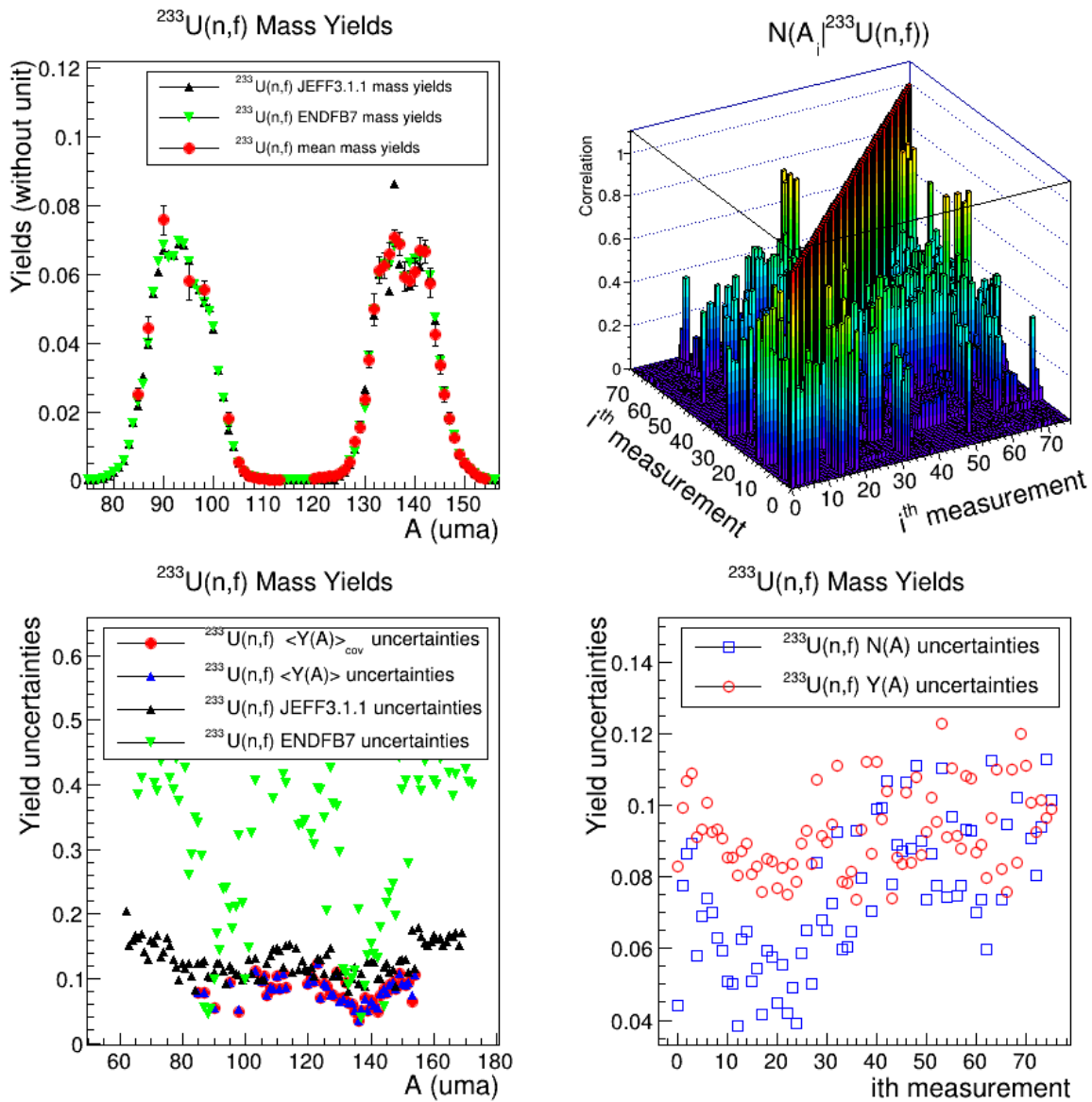


FIGURE 2.5 – Mesures des rendements de l' $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$: en haut, à gauche, comparaison des mesures avec les bibliothèques de données évaluées JEFF et ENDF ; à droite matrice de corrélations entre chaque mesure individuelle Y_i : les points de la cible 2 étant normalisés sur ceux de la cible 1, il apparaît un piédestal dans la matrice de covariances pour les dernières masses mesurées en plus de structures particulières liées à l'analyse. En bas, à gauche, incertitudes pour les rendements moyens en masse comparées à celles des bibliothèques. A droite, incertitudes des taux de comptage N_i et des rendements normalisés Y_i pour chaque mesure i .

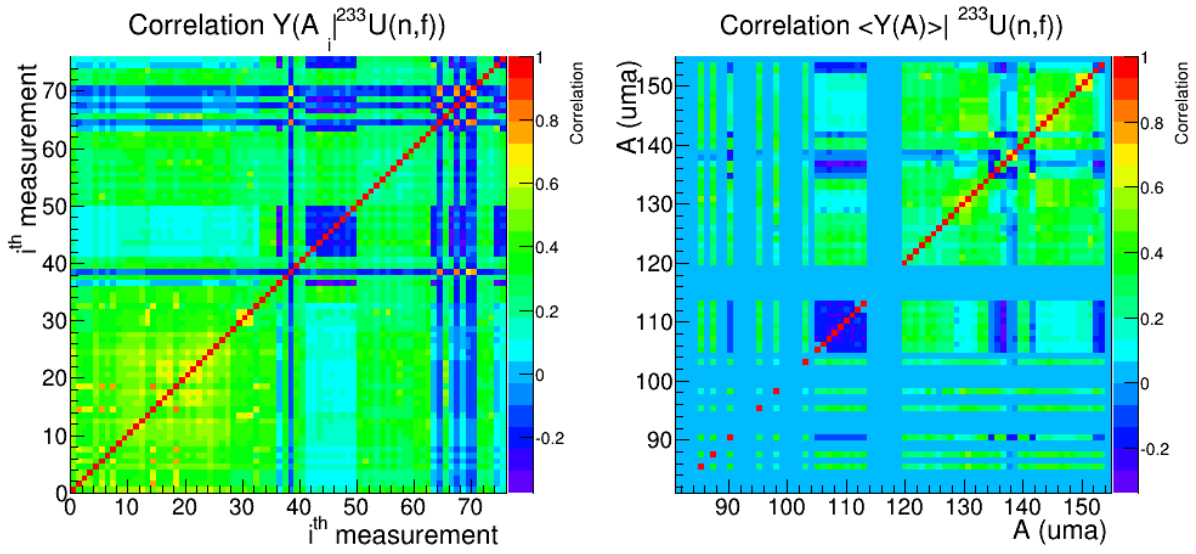


FIGURE 2.6 – Corrélations des mesures $Y(A_i) = Y_i$ (à gauche) et des mesures moyennes $\langle Y(A) \rangle$ (à droite) pour la réaction ${}^{233}\text{U}(n_{th}, f)$.

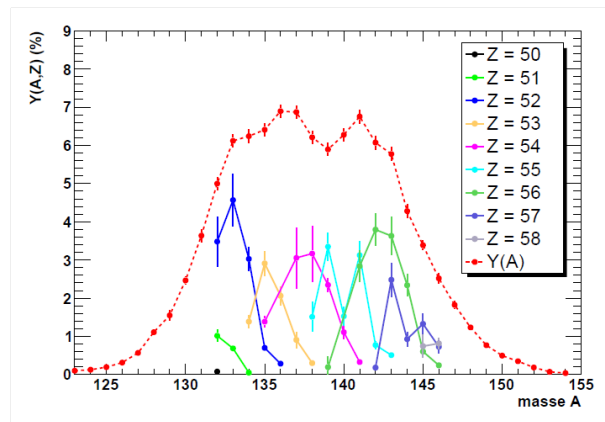


FIGURE 2.7 – Mesures des rendements isotopiques de ${}^{233}\text{U}(n_{th}, f)$ auto-normalisées sur les mesures des rendements absolues de la masse 139 suivant l'équation (eq. 2.12).

2.3 Descente vers les masses symétriques : la physique fondamentale se nourrit de la recherche appliquée

La recherche de précision dans les mesures nous a conduit à vouloir interpréter les structures apparaissant dans les distributions en énergie cinétique ou en charge ionique. En effet en dessous de la masse 128, il apparaît dans les premières études [4] un élargissement voire une seconde composante en énergie cinétique (Fig. 2.8). Cet élargissement néanmoins connu au voisinage de la région symétrique [34] s'accompagne ici d'un rendement bien plus important que l'évaluation. L'analyse des rendements par composantes gaussiennes a montré qu'en considérant uniquement la contribution à haute énergie, cela permettait d'obtenir un rendement de la masse 128 en accord avec la bibliothèque JEFF. Pour comprendre le sens physique de cette seconde composante, des mesures complémentaires en changeant les paramètres du Lohengrin et de la cible ont permis d'observer que celle-ci est fonction de la pression. De plus cette seconde composante correspond à la distribution en énergie cinétique de la masse 140 correspondant à un haut rendement. L'explication retenue s'appuie sur la possibilité de changement de charge ionique par collision des fragments avec les atomes de gaz du vide résiduel du spectromètre.

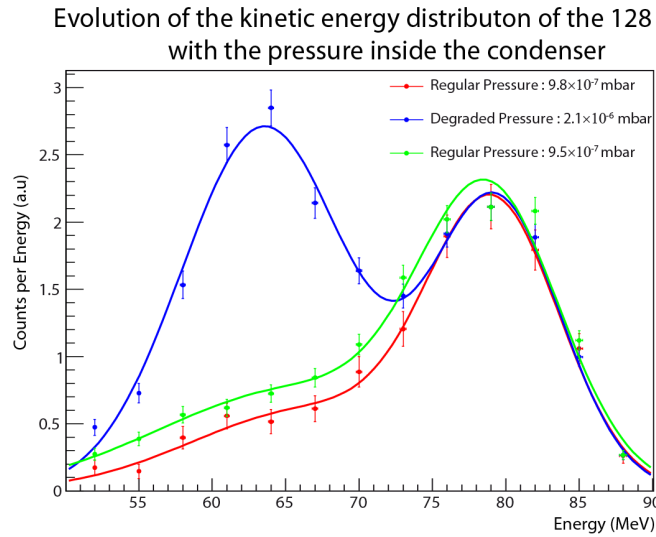


FIGURE 2.8 – Mesures de la distribution en énergie cinétique de la masse 128 produite par $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$ en fonction de l'énergie cinétique pour différentes pressions dans le condensateur. A cette étape, il n'est considéré que deux composantes gaussiennes pour modéliser la distribution en énergie : la composante 1 à haute énergie cinétique et la composante 2 à basse énergie cinétique.

Dès lors, la collaboration a travaillé sur l'hypothèse portant sur la contamination de la masse souhaitée A_0 par changement de charge ionique selon les étapes suivantes :

- l'aimant principal \vec{B} sélectionne les fragments de masses A_0 et A_1 suivant la rigidité magnétique : $\frac{A_0 V_0}{q_0} = \frac{A_1 V_1}{q_1}$
- par collisions atomiques, le fragment A_1 non-souhaité change de charge : $q_1 \rightarrow q'_1$
- le condensateur sélectionne les énergies suivant la relation : $\frac{E_0}{q_0} = \frac{E_1}{q'_1} \iff \frac{A_0 V_0^2}{q_0} = \frac{A_1 V_1^2}{q'_1}$

Etant donné que ce contaminant apparaît à la même énergie dans la chambre d'ionisation (IC), nous obtenons la condition suivante sur la charge : $E_1 = E_0 \iff q'_1 = q_0$.

In fine la masse du contaminant suit la relation ci-dessous :

$$IC : A_1 = \left(\frac{V_0}{V_1}\right)^2 A_0 \text{ \& } \vec{B} : \frac{V_0}{V_1} = \frac{A_1}{q_1} \cdot \frac{q_0}{A_0} \iff A_1 = \left(\frac{q_1}{q_0}\right)^2 A_0 \quad (2.14)$$

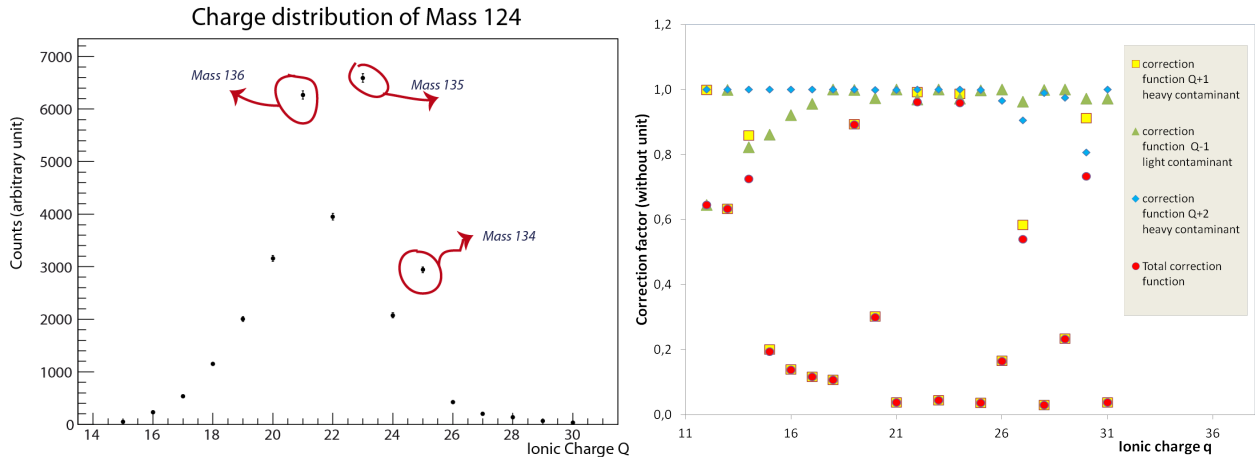


FIGURE 2.9 – (A gauche) Distribution en charge de la masse 124 avec l’indicateur de contamination. (A droite) Calcul de la masse contaminante et de l’indicateur de contamination pour la distribution en charge de la masse 124.

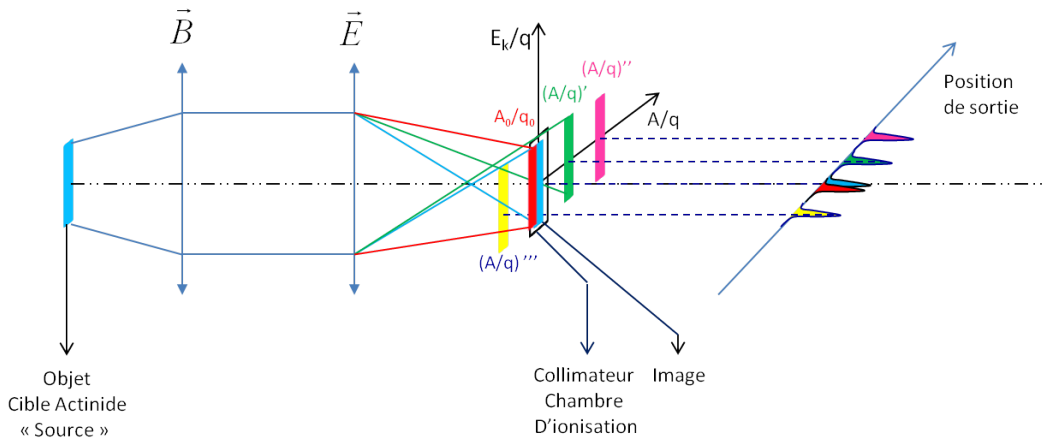


FIGURE 2.10 – Schéma illustrant le phénomène de contaminations (en rouge) mis en évidence sur la masse 128. Une image parasite se forme par changement de charge au voisinage du collimateur impliquant une correction non-linéaire en fonction de la position de celle-ci.

Pour valider cette hypothèse, plusieurs distributions en charge ionique ont été mesurées comme l’illustre la figure 2.9 (à gauche). Si cette question du changement de charge est réelle, celle-ci est dépendante du rapport masse sur charge sélectionné. Une masse contaminante a d’autant plus de chances d’entrer dans le collimateur si celle-ci est proche d’une valeur entière. Si ce n’est pas le cas, cela veut dire que « l’image parasite » de la cible est décalée par rapport à l’image normale et qu’une moindre contamination est attendue. Dans ces conditions une masse calculée demi-entière a le moins de chance d’être détectée à l’énergie sélectionnée

E_0 . Le principe est illustré sur la figure 2.10. Il est alors possible de construire un indicateur de contamination fondé sur la proportion de l'image parasite entrant dans le collimateur du détecteur (cf. Fig. 2.9 droite).

L'utilisation de cet indicateur permet de préparer les prises de données en choisissant la charge pour laquelle la mesure de la distribution en énergie va être la moins contaminée (Fig. 2.9). Il est alors nécessaire de ne sélectionner qu'une partie des données. L'idée naturelle serait de faire un ajustement de gaussienne pour ne garder que la partie utile. La difficulté rencontrée porte sur le fait que la distribution en énergie naturelle produite par la fission n'est pas gaussienne. Dès lors avec des mesures où la statistique n'est pas en défaut, il est impossible d'obtenir des critères de χ^2 satisfaisants. Par la suite, le choix de se passer des ajustements a nécessité de refondre la prise de données (cf. Chap. 3). Une méthode d'échantillonnage de la distribution en énergie cinétique permet d'attribuer un poids statistique à une distribution en choisissant un pas de mesure constant pour toute la durée de l'expérience quelle que soit la masse. Le second critère est de mesurer complètement la distribution jusqu'à des probabilités inférieures à 0,5%. Ainsi, on est certain que cette erreur systématique reste largement inférieure aux autres sources d'incertitudes (burnup, corrélation $(E_k, q)\dots$). La méthode de décontamination consiste à prédire la masse contaminante et à réaliser une soustraction de la distribution en énergie du contaminant.

La figure 2.11 présente une première correction de mesures de rendements par ajustement d'une double gaussienne (cf. Fig. 2.8). On observe un bon accord des données avec les bibliothèques dans la région de masse 131-113. Du point de vue des applications, cela est suffisant pour garantir une auto-normalisation sur tout le pic lourd de produits de fission. De ces travaux est née l'ambition d'aller plus bas vers la région des masses symétriques. En effet, cette région faiblement explorée constitue probablement une des régions les plus sélectives pour les hypothèses sur la fission. La question sur l'origine du mécanisme de peuplement de cette région reste ouverte et un programme complémentaire de mesures a été initié en 2012-2013.

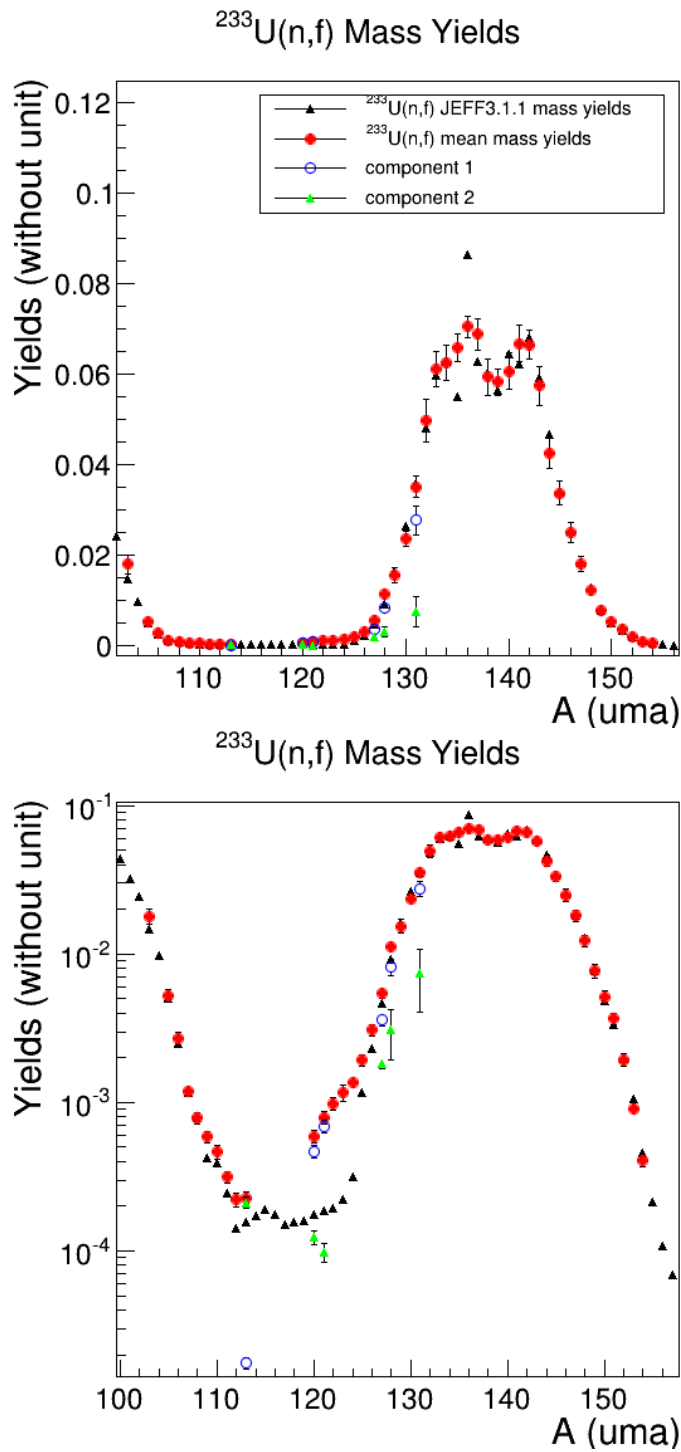


FIGURE 2.11 – (En haut) Rendements en masse dans la descente vers la symétrie en considérant ou non la correction : les points rouges correspondent à l’analyse usuelle du rendement, les points « composante 1 » et « composante 2 » correspondent aux rendements issus de la décomposition gaussienne des distributions en énergie (cf. Fig. 2.8). (En bas) figure identique à celle du haut en échelle logarithmique.

Conclusion

Dans ce travail, à l'issue de l'analyse nous obtenons deux quantités bien différentes. La première représente l'ensemble des mesures $\langle N_A \rangle$ qui doivent intégrer les bibliothèques de données. La seconde observable normalisée $\langle Y_A \rangle$ représente une évaluation des rendements avec leur matrice de covariances tenant compte des covariances expérimentales ($Cov(N_i; N_j)$) et des corrélations d'origine statistique. Cette dernière problématique est en tout point identique à l'analyse présentée dans le chapitre précédent (cf. § 1.2.2). Cette étape de normalisation ne doit en aucun cas être répétée plusieurs fois sous peine de cumuler les incertitudes dues à la normalisation. Il est donc nécessaire de conserver deux informations : les taux de comptage non-normalisés moyens $\langle N_A \rangle$ avec leurs covariances et les rendements moyens normalisés Y_A et leurs covariances. A chaque procédure d'évaluation où l'on complète l'ensemble mesuré (soit extension de la région de masse, soit ajouts de nouvelles mesures) il est indispensable d'établir les corrélations expérimentales entre les taux de comptage $\langle N_A \rangle$ puis dans un second temps de réaliser la normalisation afin de propager une seule fois l'effet de la normalisation sur l'incertitude.

Les perspectives de ce travail sur les rendements en masse portent essentiellement sur l'observation de l'évolution des structures en masse en fonction de l'énergie cinétique en tenant compte des corrélations « énergie cinétique - charge ionique ». La rotation des ellipses de masse dans le plan $(E_k; q)$ provient d'effets atomiques lors de la perte d'énergie dans la cible et de la présence d'isomères nanosecondes (cf. § 3.3.1). Cette corrélation $(E_k; q)$ pourrait avoir des conséquences notables sur l'évolution de ces structures en masse en fonction de la fraction d'énergie cinétique emportée par le fragment. Jusqu'à présent, aucune étude considérant la rotation de l'ellipse (E_k, q) n'a été réalisée. A l'issue de l'analyse de l' ^{233}U , la prise de données a été modifiée de manière à mesurer en une seule fois le rendement en masse et la corrélation $(E_k; q)$ de manière systématique. Cette méthode suppose de mesurer a minima trois distributions en énergie à des charges adéquates et une distribution en charge complète à l'énergie la plus probable. Une masse représente alors une cinquantaine de mesures mais permet d'évaluer complètement le plan $N(A, E_k, q)$. Les nouvelles mesures sur le $^{239}\text{Pu}(n_{th}, f)$ et le $^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$ ont été réalisées dans ce sens que ce soit pour les mesures en masse (A) ou en charge (Z). Une analyse bayésienne ou utilisant le concept de méta-données pour la reconstruction du rendement dans le plan $(E_k; q)$ est prévue dans le cadre de la thèse de Sylvain Julien-Laferrière (2015-2018) afin de redessiner la carte des structures en fonction de la fraction d'énergie cinétique. Ces résultats seront alors comparés au code GEF développé au CENBG. Nous reviendrons sur ce modèle dans le chapitre suivant.

Chapitre 3

Validation des modèles pour les évaluations :

Projets d'études sur le processus de fission dans le cadre des tests d'hypothèses pour les évaluations

Dans ce chapitre consacré aux nouveaux projets portés par le groupe au sein de la collaboration, l'objectif n'est pas de préparer une réorientation de nos activités mais bien d'affirmer les choix d'études au sein de la thématique « données nucléaires ». Le contexte des études sur les rendements pour les applications a été présenté dans le chapitre 2, § 2.1 et constitue la principale motivation de ce travail. L'objectif de ce travail n'est pas l'ambition de révolutionner le monde de la fission mais d'apporter une approche de validation de modèle. Trop souvent rangée derrière une « école » ou un dogme, l'unicité de l'interprétation reste imposée. Entre l'ambition d'avoir raison et le repos des croyances, le doute est aujourd'hui considéré comme une faiblesse alors qu'elle est la base de nos activités. Pour la thématique, l'utilisation de modèles basés sur des hypothèses est indispensable à la description complète des observables. Les projets présentés entrent complètement dans cette problématique. Plus que la question « est-on capable de modéliser la fission ? » la question se pose en ces termes : « est-ce que l'approche proposée est acceptable ? ». Et là encore l'outil statistique nous permet une quantification objective de l'adéquation « modèles-mesures ». Ce chapitre présente les projets de recherche et les preuves de leur faisabilité obtenues dans le cadre de la thèse d'A.Chebboubi (soutenance prévue le 28 octobre 2015).

3.1 Des hypothèses aux modèles pour les évaluations

La problématique de l'évaluation se veut être plus pragmatique que les études usuelles en physique nucléaire. L'objectif est d'estimer la pertinence des modèles afin de pouvoir extrapoler les manques de données. Les hypothèses sont alors discutées au second plan ce qui fait la différence avec les études fondamentales. Mais le second plan ne veut pas dire que cela n'a pas d'importance, cela veut simplement signifier qu'un modèle phénoménologique ou non constitue une aide à l'évaluation. En terme bayésien, dès lors que les hypothèses sont validées, ce modèle peut être considéré comme une information a priori, i.e. un *prior*, et permettre de réduire les incertitudes de l'analyse qui en découlent, i.e. le *posterior*. Bien entendu, le résultat est conditionné aux hypothèses mais celles-ci se traduisent par la matrice de covariances de l'évaluation, comme bilan des corrélations du modèle et des données. Ainsi, en utilisant plusieurs hypothèses, nous obtenons plusieurs évaluations avec leurs marges qui peuvent être comparées. La compatibilité des évaluations est un gage de fiabilité de l'observable évaluée mais elle signifie aussi une faible sensibilité de l'hypothèse à l'observable. Si cette situation est quelque part confortable pour l'évaluateur, elle l'est moins pour la physique sous-jacente.

Concernant les rendements en masse et en charge, la difficulté de l'évaluation porte sur l'incompatibilité des modèles microscopiques avec les données expérimentales. C'est le cas du « Finite Range Liquid Drop Model » [83] qui, partant d'un potentiel phénoménologique à 5 dimensions (élongation, asymétrie, déformations des fragments naissants et largeurs du col), évalue principalement la masse moyenne du pic lourd ou léger. Le « scission point model » correspond à une approche statique reposant sur l'hypothèse d'équilibre statistique entre les degrés de liberté collectifs [62, 84]¹. Les trois paramètres nommés température collective, température intrinsèque et diamètre du col entre les noyaux naissants sont des paramètres libres du modèle. A noter que ce terme de température correspond à une variable effective qui n'a pas (nécessairement) un lien avec la température thermodynamique du noyau (à supposer que l'on puisse définir un système à l'équilibre). Le modèle microscopique basé sur des calculs HFB du CEA/DAM considère l'interaction nucléaire DS1 qui permet de prendre en compte la dynamique du mécanisme, à savoir la descente du point selle au point de scission [35]. Outre l'élégance de la méthode, le résultat principal que je retiens porte sur l'impact de la dynamique sur le calcul des rendements en masse. Parmi les résultats discutés, celui-ci est l'illustration la plus emblématique de la direction à prendre dans les études sur la fission, mais là encore l'écart entre les résultats expérimentaux et ces calculs ne permettent pas de l'utiliser comme « input » de l'évaluation.

Les deux derniers modèles que j'évoquerai sont celui de Wahl [32], base actuelle des évaluations JEFF et le modèle de Brosa [33] à la base du code GEF [27]. Le premier se fonde sur la conservation de la densité de charge nucléaire (noté UCD) avant et après scission. Les distributions en charge et en masse sont modélisées par des gaussiennes contraintes par les lois de conservation des nucléons et l'hypothèse UCD. Si aujourd'hui il est acquis par toute la communauté que l'hypothèse UCD est caduque du fait de la polarisation de charges nucléaires de part et d'autre de la région des masses symétriques, ce modèle reste utilisé en considérant une correction sur la densité de charge. La faiblesse porte entre autres sur l'incapacité à prédire l'évolution de cette polarisation de charge en dehors des régions des fragments les plus probables (pics lourd et léger). Le second modèle (Brosa) porte sur l'attribution de modes au processus de fission. Historiquement seuls trois modes étaient introduits : modes standard I et II pour décrire les fragments les plus probables et le mode super-long correspondant à la région des fragments symétriques. Ces modes sont caractérisés dans le plan masse-énergie cinétique mais leurs intensités restent des paramètres libres du modèle. Pour ajuster ces paramètres, il faut mesurer les propriétés en masse et en énergie des deux fragments simultanément. Le succès de ce modèle porte sur sa capacité à interpréter les mesures en coïncidence² ; sa faiblesse est qu'il ne considère pas les effets de couches dans les fragments naissants. Le code GEF se base sur cette approche en ajustant ces paramètres (au nombre de 49 [27]) sur l'ensemble des évaluations dans la région des actinides. La particularité de ces

1. Le CEA Saclay a développé récemment en collaboration avec la DAM un code type « scission point model » utilisant les densités de niveaux déduites de calculs microscopiques (HFB) [84].

2. Une faiblesse de l'évaluation est qu'elle se base sur des mesures avec des résolutions de 2 ou 3 unités de masse qui lavent toutes structures particulières en masse.

deux approches est d'avoir des hypothèses faibles pouvant être utilisées comme bases pour les évaluations. Ce sont aujourd'hui les seules approches intégrables dans une évaluation moderne ne considérant pas uniquement la valeur moyenne comme seule « output » mais bien la distribution de probabilité (pdf) des observables.

La modélisation des spectres en énergie d'émission des particules promptes demande une validation des modèles de répartition de l'énergie d'excitation et du spin au moment de la scission. Ces sujets ont été évoqués dans les travaux récents autour des codes FIFRELIN [60, 70] (CEA Cadarache) et GEF (CENBG & NEA) [27]. En effet, ces travaux proposent une évaluation des spectres de neutrons et gamma prompts par noyau fissionnant. Ces outils sont une aide substantielle pour les évaluations de ces spectres en énergie par fission car seuls l' ^{235}U et le ^{252}Cf sont aujourd'hui correctement évalués. Pour les autres isotopes, jusqu'en 2012, les évaluations reprennent les données de ^{235}U . Des travaux expérimentaux ont été engagés entre autres par l'IRMM auprès de différentes installations (IRMM, LICORNE) [71]. Ces pistes de recherche théoriques et expérimentales sont exemplaires dans la manière d'aborder le problème. L'objectif est de faire une comparaison des outils de calculs avec des nouvelles données afin de valider les codes puis d'utiliser ces codes pour compléter les évaluations des actinides non-mesurés.

Quelle que soit l'approche pour modéliser l'émission de particules, les calculs demandent une description du fragment de fission en fonction de la masse A , la charge nucléaire Z , l'énergie d'excitation E^* et le spin parité $(J; \pi)$, noté $Y(A, Z, E^*, J, \pi)$. Expérimentalement, les observables mesurées sont l'énergie cinétique E_k , la production d'isomères via les rapports isomériques (IR) et l'émission statistique du spectre de particules promptes :

$$Y(A, Z, E^*, J, \pi) = Y(A) \cdot P(Z|A) \cdot P(E_k|A, Z) \cdot P(IR, \gamma_{stat}|A, Z, E_k) \quad (3.1)$$

La comparaison entre les modèles de fission et les observables expérimentales demande l'aide d'un code de désexcitation nucléaire en plus des modèles de génération de spin et de partage d'énergie d'excitation. La particularité de FIFRELIN est de considérer les schémas de niveaux discrets des bases de données (types ENSDF, RIPL3) en plus des états statistiques. L'idée développée est de compléter, au delà d'une énergie de coupure E_{cut} , le schéma de niveaux expérimental pour atteindre une densité de niveaux compatible avec les modèles statistiques (CTM³, CGCM⁴). Cette prise en compte des états discrets est une particularité du code FIFRELIN qui permet d'interpréter, entre autres, les états isomères en dehors de la bande d'Yrast. A noter que la partie désexcitation nucléaire est un des outils de FIFRELIN [30, 60, 70] et non la finalité puisque ce code phénoménologique a pour ambition de modéliser la fission du point de scission jusqu'au rendement post-émission neutron avec 5 paramètres libres relatifs à la température des fragments, leur spin cutoff et leur moment d'inertie. Un programme sur les isomères (au-delà des seuls états méta-stables) dans le but d'étudier les distributions de spin post-émission neutrons est en cours de développement par la collaboration formée par le LPSC, le CEA et l'ILL. Nous reviendrons plus en détails sur cette partie dans le paragraphe sur les isomères (cf. §3.3) où l'objectif est de développer une bibliothèque de données indirectes dans le but de tester les hypothèses des évaluations.

La question du partage de l'énergie d'excitation a été grandement discutée ces dernières années suite aux travaux de K. H. Schmidt et B. Jurado [29, 28]. Ce sujet difficile ne cesse de faire débat autour de la notion de température nucléaire et de sa relation avec l'énergie d'excitation. Entre les tenants de l'approche statistique, ceux des modèles hybrides considérant une énergie de déformation [31, 30] et les discussions sur le modèle CTM qui introduit une température effective⁵, il me semble que le point de crispation reste un point de sémantique. L'explication sur le partage de l'énergie d'excitation proposée en 2010 [29, 28] est en accord avec l'expérience sur l'augmentation de la fraction de neutrons prompts émis par les fragments du pic

3. Constant Temperature Model[72].

4. Composite Gilbert Cammeron Model [72].

5. Le terme effectif est utilisé pour qualifier la température de ce modèle puisque celle-ci est introduite comme paramètre ajusté sur les densités de niveaux. L'identification de ce paramètre à une température provient de l'utilisation du second principe de la thermodynamique reliant l'entropie à la densité d'états. Néanmoins pour que cette température effective soit une température réelle, encore faut-il que la densité d'états soit établie selon un modèle statistique, ce qui ne me semble pas le cas du modèle CTM qui reste plus une formulation empirique qu'une formulation statistique d'origine micro-canonique ou canonique [29, 28, 72].

lourd. Néanmoins cela indique que les hypothèses développées sont compatibles avec les observations mais ne prouvent en rien leur véracité ou leur nullité. Si cette modélisation est testée et validée sur l'ensemble des conséquences observationnelles, elle sera légitime pour modéliser les réactions même si philosophiquement cette explication n'emporte pas l'approbation de tous. C'est toute la différence entre exclure et prouver, un modèle en soi n'est jamais vrai, il est simplement non-exclu à la précision des mesures près. Ces deux questions sur le(s) mécanisme(s) de génération du moment angulaire et du partage d'énergie d'excitation sont l'un des objectifs d'études du projet FIPPS proposé principalement par l'ILL et le LPSC et discuté au §3.4.

La dernière problématique engagée porte sur les mesures de distribution en énergie cinétique. Cette région de masse est considérée comme une zone de test très importante pour comprendre les mécanismes à l'origine de ces phénomènes. La question centrale est la preuve de l'existence de modes dans la fission des actinides à basse énergie et de leurs impacts à l'instar de ceux observés à hautes énergies [74, 73] ou dans la région des masses 260 [75]. Celle-ci pourrait permettre une validation de l'approche utilisée dans le code GEF dans le cadre de l'utilisation comme a priori dans les régions présentant un manque de mesures. Nous présenterons dans le paragraphe suivant (cf. § 3.2) la faisabilité du programme proposé et les perspectives à moyen terme sur le spectromètre Lohengrin.

Il est à noter la place particulière de Lohengrin dans le paysage expérimental sur les rendements de fission. Les techniques actuellement mises en œuvre sont principalement en cinématique inverse avec les mesures au Ganil par faisceau d'uranium sur une cible de carbone ou au GSI par excitation coulombienne sur une cible de plomb. Ces expériences fournissent des résultats intéressants pour les rendements à haute énergie d'excitation (équivalents à des réactions par neutrons rapides). Néanmoins ceux-ci sont alors difficilement comparables aux mesures par neutrons thermiques tant les effets d'énergie d'excitation et de distribution de spin font varier les rendements, notamment dans la région des masses symétriques. La force de ces expériences est de pouvoir produire la cartographie complète des rendements en masse et en charge en une prise de données pour un ou plusieurs noyaux fissionnants. La force des expériences Lohengrin est de pouvoir sonder les propriétés spectroscopiques des fragments de fission que la fission induite par cinématique inverse interdit. Le second point fort de Lohengrin reste la production de fragments par neutrons thermiques permettant de produire les données pour le cycle actuel et les cycles innovants par neutrons thermiques. A noter également qu'aucune de ces expériences n'a véritablement approfondi la problématique des incertitudes systématiques pour aboutir à des « mesures évaluées ».

3.2 Projet d'étude de la région des fragments symétriques

L'étude de la région des fragments de fission symétriques fait suite aux mesures de rendements en masse dans la région du pic lourd. Pour rappel, dans la descente du pic lourd vers la symétrie correspondant aux masses [124; 129], les distributions en énergie cinétique apparaissent structurées à cause de la contamination des masses symétriques par celles de hauts rendements. Une difficulté supplémentaire provient du fait que la probabilité de changement de charge dépend de la pression⁶ et qu'elle est non localisée avec exactitude. Nos études indiquent que cette contamination correspond à une aberration chromatique du Lohengrin : si entre l'aimant principal et le condenseur, une masse change de charge et remplit les conditions de l'équation (eq. 2.14) alors une image parasite de la cible se forme au voisinage de l'image normale de la cible. Cette image n'est pas nécessairement centrée sur le diaphragme de sortie ce qui implique que le taux de contamination n'est pas constant entre toutes les charges. Cet effet est illustré Fig. 3.1 par les doubles taches apparaissant au voisinage de la symétrie.

6. La probabilité de changement de charge est caractérisée par le libre parcours moyen défini comme l'inverse du produit de la densité atomique et de la section efficace de collision totale.

Si cette contamination semble impliquer des corrections modérées dans la région des masses [124; 129] avec des rendements autour de 1%, ce n'est plus du tout le cas pour les masses [110; 120] avec des rendements de l'ordre de 10^{-4} . Pour valider l'identification du contaminant, nous pouvons nous appuyer sur trois mesures particulières :

- La mesure de la masse 125 a permis de prouver la présence du contaminant 136 grâce à l'identification de l'état isomère du ^{136}Xe . Pour cela, il faut trouver la combinaison de la masse A et de la charge ionique q qui permet de ne pas obtenir la masse 136 dans « l'image normale » du spectromètre Lohengrin (colonne filtre Lohengrin, même A/q) mais présente en tant que contaminant. Le réglage ($A = 125$; $q = 24$; E_k) réunit ces conditions pour toutes les énergies cinétiques. Le tableau 3.1 présente les contaminants avec leur importance pour différents changements de charge. La figure 3.2 (à gauche) montre les distributions en énergie mesurées par la chambre d'ionisation de la masse 125 (losanges bleus) et de la masse 136 (carrés verts). Les triangles roses représentent la mesure de la distribution en énergie de l'état μs isomère du ^{136}Xe qui se superpose parfaitement à la distribution en masse. Enfin les carrés bleus évidés correspondent à la mesure de l'état isomère du ^{136}Xe lors du scan de la masse ($A = 125$; $q = 24$; E_k). On observe clairement la présence du ^{136}Xe qui peut s'expliquer uniquement par l'existence du changement de charge ionique. Ce premier point constitue une étape de la justification du protocole de mesures qui suit. La figure 3.2 (à droite) présente la distribution de la masse 125 après soustraction pour deux distributions en énergie cinétique à deux charges différentes et donc deux corrections différentes.
- Le second point de l'analyse repose sur la mesure des coefficients de changements de charges ioniques pour les conditions « de vide » du spectromètre lors de la mesure ($P \sim 5.10^{-6} \text{ mbar}$). Ces mesures ont été réalisées en utilisant les états isomères μs de ^{98}Y , ^{132}Te et ^{136}Xe . Pour chaque isotope, une première mesure est réalisée comme référence pour la charge centrale choisie, puis dans un second temps le condenseur est réglé sur une charge voisine. Ainsi en faisant le rapport des raies γ , il est possible d'évaluer les coefficients de changements de charges relatifs à la charge centrale. Ces résultats sont présentés sur la figure 3.3. De manière générale, on observe que la double perte est plus probable que la double capture conformément aux travaux de H. D. Betz [40]. Au-delà de la quantification de ces coefficients, cela nous permettra aussi d'asseoir la méthodologie pour les études sur les spectromètres magnétiques gazeux (GFM) (cf. § 3.4). Par ailleurs, nous pouvons constater que ces coefficients sont non-négligeables et vont permettre d'expliquer le « peuplement » de la vallée de la symétrie par des masses de hauts rendements.
- Le dernier point porte sur l'analyse de la masse $A = 111$. Cette masse a pour particularité d'avoir des contaminants en masse pour lesquels les charges nucléaires moyennes \bar{Z} semblent suffisamment différentes pour permettre une séparation des taches dans les graphiques de pertes d'énergie en fonction de l'énergie totale ($\Delta E \times E_{tot}$). Le second atout porte sur la différence d'étalonnage de la chambre d'ionisation pour les fragments lourds et légers permettant un éclatement des taches. Dès lors pour cette seule masse parmi celles mesurées, nous avons été capables d'isoler les différentes taches des graphes ($\Delta E \times E_{tot}$) afin d'identifier les contaminants par comparaison des distributions en énergie cinétique. La figure 3.4 (à gauche) présente la distribution de l'ensemble des événements à l'énergie souhaitée $P(E|111)$, les résultats de l'analyse des différentes composantes isolées $P(E|111, \text{tache médiane})$ et les distributions en énergie associées aux taches périphériques $P(E|111, \text{résidus})$ comparées aux distributions des contaminants a priori. On observe une bonne adéquation entre la distribution « des résidus » et la distribution en énergie des masses 133 et 101. La figure 3.4 (à droite) présente la distribution en énergie $P(E|111, \text{tache médiane})$ comparée aux calculs de soustractions utilisant les coefficients de changements de charges mesurés précédemment. Ce résultat est à la base de la méthode d'analyse proposée ci-dessous. Les incertitudes statistiques sont plus petites que la taille des points. Les écarts entre les distributions sont dus aux incertitudes sur la séparations des taches.

TABLE 3.1 – Tableaux, de gauche à droite, des masses filtrées par Lohengrin (même A/q) avec une indication de leur importance pour une sélection ($A = 125; q = 24; E_k$), les masses contaminantes et leur importance relative pour une perte d'un seul électron ($q+1$), une double perte d'électrons ($q+2$) et une capture d'un électron ($q-1$).

q	A/q Lohengrin	multiplet Lohengrin	Filtre Lohengrin	A'(q+1)	Contaminant A'	A'(q+2)	Contaminant A'	A'(q+1)	Contaminant A'
12	62,5	62	0,00	147	1,00	170	1,00	105	0,79
13	67,7	68	0,00	145	0,90	166	1,00	107	1,00
14	72,9	73	0,76	143	1,00	163	1,00	108	0,99
15	78,1	78	0,46	142	0,71	161	1,00	109	0,98
16	83,3	83	0,00	141	0,49	158	1,00	110	0,98
17	88,5	89	0,00	140	0,41	156	1,00	111	1,00
18	93,8	94	0,02	139	0,69	154	1,00	111	1,00
19	99,0	99	0,98	139	1,00	153	1,00	112	1,00
20	104,2	104	0,46	138	0,35	151	1,00	113	1,00
21	109,4	109	0,00	137	0,28	150	1,00	113	1,00
22	114,6	115	0,00	137	0,94	149	1,00	114	0,99
23	119,8	120	0,36	136	0,13	148	1,00	114	1,00
24	125,0	125	0,99	136	0,87	147	1,00	115	1,00
25	130,2	130	0,46	135	0,24	146	1,00	115	1,00
26	135,4	135	0,00	135	0,24	145	0,99	116	1,00
27	140,6	141	0,02	134	0,99	144	0,99	116	0,99
28	145,8	146	0,76	134	0,12	143	1,00	116	1,00
29	151,0	151	0,99	134	0,25	143	0,98	117	1,00
30	156,3	156	0,46	133	1,00	142	0,98	117	1,00
31	161,5	161	0,01	133	0,17	142	1,00	117	0,99

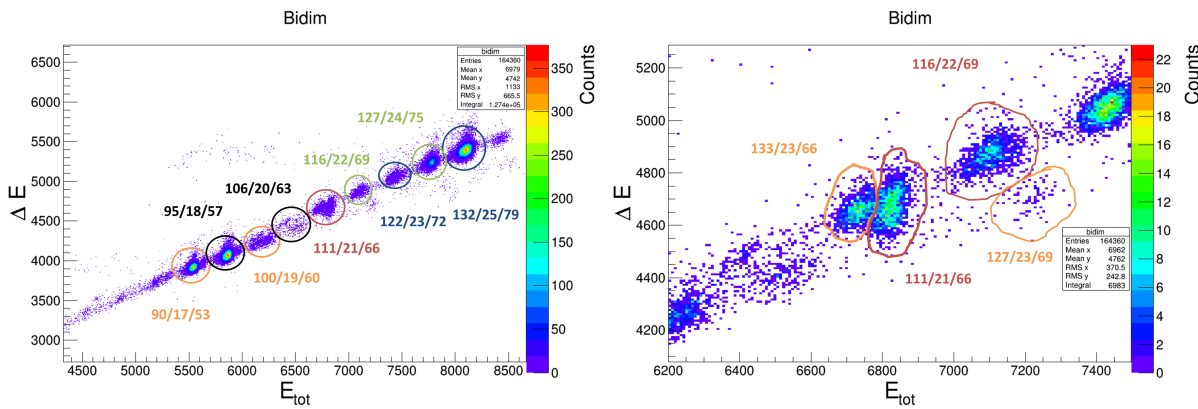


FIGURE 3.1 – Graphiques (en canaux) de perte d'énergie en fonction de l'énergie totale pour les réglages du Lohengrin ($A = 111/q = 21/E_k = 66$). On observera sur les graphiques la différence de calibration en énergie pour les fragments légers et lourds qui est un atout majeur dans l'analyse de la symétrie pour différencier l'origine des contaminants. Le second atout de l'analyse porte sur la différence de perte d'énergie ΔE , entre la masse symétrique recherchée et le contaminant potentiel, directement liée à l'écart des charges nucléaires moyennes \bar{Z} .

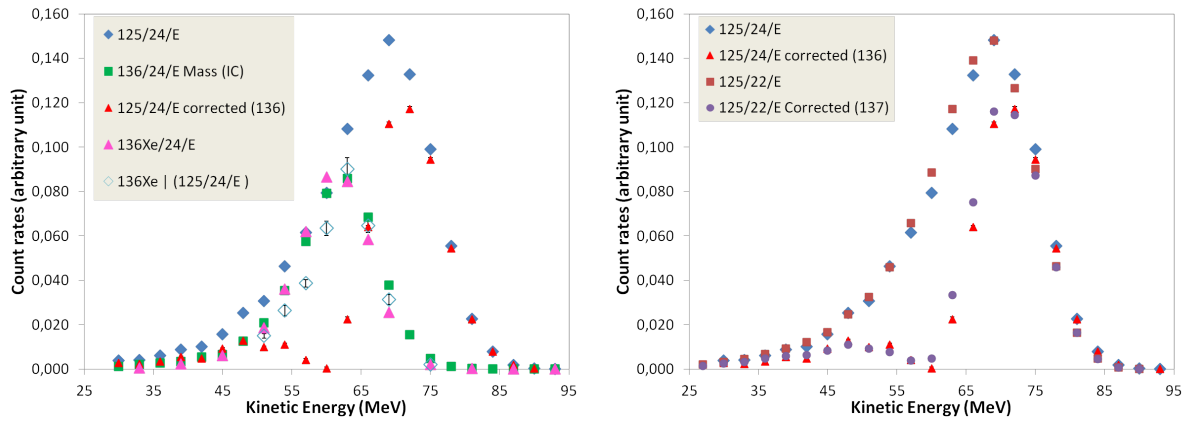


FIGURE 3.2 – (A gauche) Validation du contaminant ($A'=136$) par spectrométrie γ pour la mesure de la distribution en énergie de la masse 125 (scan : 125/24/E). (A droite) Comparaison des distributions résiduelles de la masse 125 pour deux contaminations différentes.

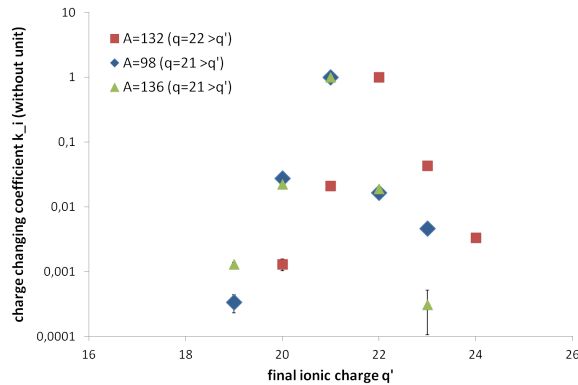


FIGURE 3.3 – Coefficients de changements de charges mesurés auprès du spectromètre Lohengrin pour les masses 98, 132 et 136 en référence à la charge $q = 21$ pour les deux premières masses et à la charge $q = 22$ pour la masse 136.

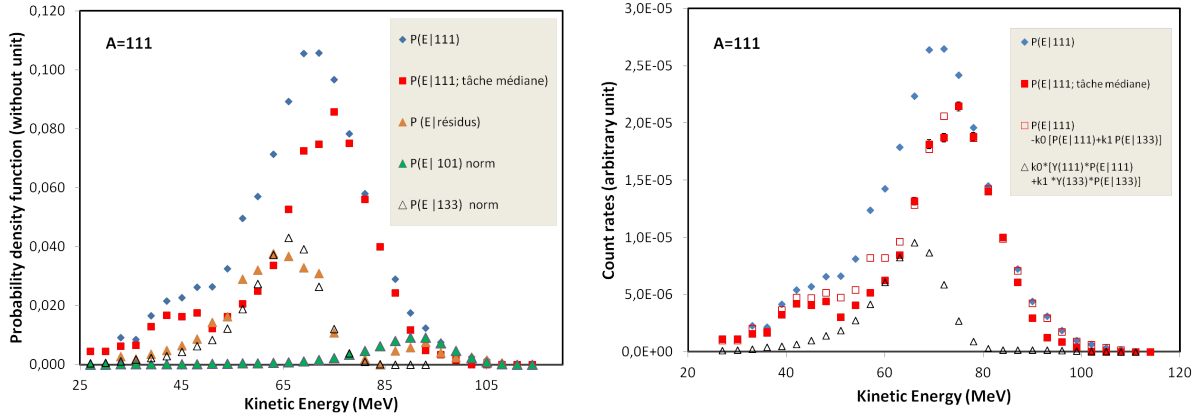


FIGURE 3.4 – (A gauche) distribution en énergie des différentes composantes du graphe ($\Delta E \times E_{tot}$) et comparaison aux distributions des contaminants a priori. (A droite) soustraction des contaminants par la méthode « soft » et comparaison à la distribution de la masse 111 isolée (nommée « tâche médiane ») dans les graphes ($\Delta E \times E_{tot}$).

* Méthodologie d'analyse

Faisant suite à l'identification des contaminants et de la vraisemblance du changement de charge ionique au sein du spectromètre Lohengrin, nous proposons une analyse par deux méthodes complémentaires :

- La première méthode, dite « méthode de la brute » consiste à réaliser une soustraction de ces contaminants en ajustant les coefficients de normalisation pour s'interdire des comptages négatifs. En associant cette distribution en énergie à un ajustement gaussien sur les charges les moins contaminées, nous reconstruisons un rendement en masse.
- La seconde méthode, dite « méthode soft » consiste à supposer dans un premier temps que les coefficients de changement de charge sont identiques pour toutes les masses en première approximation. Pour ce faire, il est nécessaire de calculer la probabilité que l'image parasite $P_{Im}(A_c^i|q+i)$ entre dans le collimateur, la probabilité en énergie de la masse parasite A_c^i et le coefficient de changement de charge $P_{q \rightarrow q+i}$ suivant la relation :

$$Y(A) \cdot P_{soft}(E|A, q) = Y(A) \cdot P_{mesurée}(E|A) - \sum_{i=-1}^{+2} P_{q \rightarrow q+i} \cdot Y(A_c^i) \cdot P_{Im}(A_c^i|q+i) \cdot P(E|A_c^i, q+i) \quad (3.2)$$

$$avec P_{q \rightarrow q+1} = k_0 \sim 0,02 \quad (3.3)$$

$$P_{q \rightarrow q+2} = k_0 \cdot k_1 \sim 0,02 \cdot 0,0013 \quad (3.4)$$

$$P_{q \rightarrow q-1} = k_0 \sim 0,02 \quad (3.5)$$

La distribution spatiale de l'image parasite est supposée gaussienne en bon accord avec la distribution de l'image mesurée sur le spectromètre Lohengrin (distribution en position de l'image mesurée en réalisant, pour une masse à une énergie donnée, un scan en champ magnétique de l'aimant principal). De même dans cette première approche, la distribution en énergie est considérée gaussienne en reprenant la moyenne et l'écart type de la distribution mesurée. Cette hypothèse est forte compte tenu de la présence d'une queue de distribution en énergie pour toutes les masses.

La distribution en charge peut également être corrigée de deux manières. La « méthode de la brute » ne considère que les charges faiblement affectées pour ajuster une distribution gaussienne. La méthode « soft » (eq. 3.2) est appliquée pour chaque charge ionique à l'énergie de la mesure. En négligeant les corrélations (E_k, q) dans la symétrie, la formulation du taux de comptage $N(A)$ (eq. 2.1) se simplifie selon l'équation suivante :

$$N_A = \frac{1}{\Delta t \cdot Bu(t)} \cdot \frac{1}{P(q_0|A, E)_q} \int_{E_k} N(E_k|A, q_0, t) dE_k \quad (3.6)$$

Du fait de l'utilisation de la distribution en charge normalisée, la sensibilité du rendement aux corrections sur les distributions en charge reste limitée conduisant à des incertitudes de l'ordre de 10%.

* Résultats expérimentaux

Les résultats de cette analyse sont présentés sur les figures 3.5, 3.6 et 3.7. Les distributions en énergie doivent être observées au regard des rendements en masse déduits. Des mesures, il ressort que les corrections dites « méthode de la brute » donnent des résultats cohérents avec JEFF3.1.1 dans la région de masses 125 à 129. Si un contrôle de la méthode « soft » est possible pour la masse 111 (Fig. 3.4) avec un très bon accord avec l'identification directe des taches du graphe $\Delta E \times E$, en revanche la région des masses 125 présente des résultats en accord avec la « méthode de la brute ». Entre ces deux masses l'analyse est faite en aveugle. Quelle que soit la méthode, on observe des structures dans les distributions en énergie. Ces structures sont renforcées avec la « méthode de la brute » et les rendements associés sont en accord avec JEFF3.1.1. En regardant uniquement les résultats de la méthode « soft », on observe une unique distribution pour la masse $117 = 234/2$ alors que les masses 116 et 119 présentent clairement un dédoublement de la distribution en énergie. Si ces résultats ne sont pas biaisés, ces mesures indiquent que la fission est bien modale dans la région des actinides pour une fission thermique. Ces résultats sont à comparer aux mesures induites par neutrons rapides où des distributions modales ont aussi été observées [73] et à la fission des Fermiums présentant un mode « Fragment-shell process » et un mode goutte liquide [75].

Les conclusions sur les structures en énergie observées ici sont néanmoins à prendre avec précaution compte tenu des corrections à apporter aux mesures. Ces observations restent valides dans l'hypothèse où tous les biais ont été identifiés. La méthode dite « de la brute » présente l'inconvénient majeur de « sur-corriger » les distributions puisque l'on s'attend à une queue de distribution de basse énergie due à la perte d'énergie dans la cible (Uranium + couverture de tantale évaporé) comme on peut le voir pour les masses 101 et 136. Cet effet n'est a priori pas à craindre pour la méthode « soft » puisque l'on ne force pas un minimum dans la distribution en énergie cinétique. Quoi qu'il en soit, dans les deux méthodes on corrige toujours les distributions dans la symétrie des distributions expérimentales pour tenir compte de l'asymétrie des distributions en énergie (voir distributions en énergie cinétique pour les masses 101 et 136, fig. 3.8). C'est la raison pour laquelle on ne réalise pas d'ajustement gaussien des distributions pour limiter ce biais. De plus ces ajustements auraient des *p-value* ou χ_{min}^2 n'autorisant que son rejet même pour des niveaux de confiances au-delà de 99.9%.

Les figures 3.9 présentent pour chaque mode leur énergie moyenne, écart type et intensité en fonction de la masse. Pour les deux méthodes de soustraction, on observe clairement pour chaque masse une composante 2 de haute énergie autour de 70 MeV et une composante 1 de basse énergie autour 40 MeV ou 50 MeV suivant la méthode de soustraction. Un calcul simple de répulsion coulombienne ponctuelle est tentant mais il nécessite de faire une hypothèse forte sur la distribution en charge nucléaire dans la symétrie. Pour fixer les idées deux calculs ont été faits : le premier suppose une évolution continue de la charge nucléaire des fragments légers vers les fragments lourds croisant alors la valeur de densité de charge nucléaire moyenne (Hypothèse Unchanged Charge Density, UCD, la densité de charge est fixée par le noyau fissionnant $\frac{A_f}{Z_f} \equiv \frac{A_L}{Z_L} \equiv \frac{A_H}{Z_H}$). La seconde hypothèse considère la polarisation de charge constante jusqu'à la masse 117 exprimant ainsi l'existence de deux distributions isotopiques dans la région symétrique (cf. Fig. 3.10). Après correction de la

perte d'énergie dans la couche de tantale ($\sim 10 - 12 \text{ MeV}$), dans les deux cas, on obtient une distance entre les deux barycentres à la scission de :

- de l'ordre de $d_2 = 19 \text{ fm}$ pour la composante 2 et $d_1 = 32 \text{ fm}$ pour la composante 1 par la méthode de la brute,
- de l'ordre de $d_2 = 19 \text{ fm}$ pour la composante 2 et $d_1 = 24 \text{ fm}$ pour la composante 1 par la méthode « soft ».

Si on compare aux ajustements de U. Brosa [33] ou aux calculs microscopiques de la DAM [35], pour la méthode de la brute la valeur d_2 est cohérente alors que la valeur d_1 est physiquement inenvisageable. Via la méthode « Soft », les deux distances entre les barycentres pour chacune des composantes semblent physiquement acceptables. Le questionnement de ces structures sera discuté par la suite.

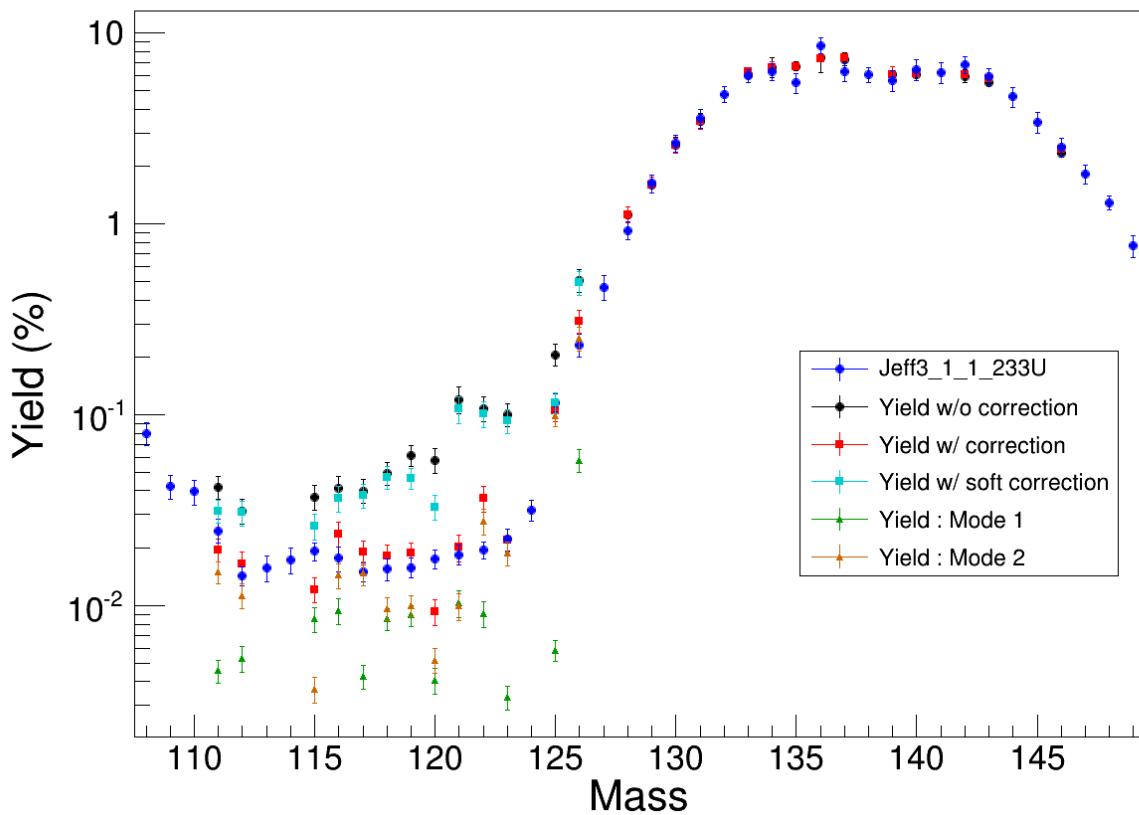


FIGURE 3.5 – Rendements de fission en masse de $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$ suivant la méthode de la brute (raw correction), la méthode « soft », sans correction. Les résultats des rendements sont aussi présentés par modes lorsque ceux-ci ont été identifiés.

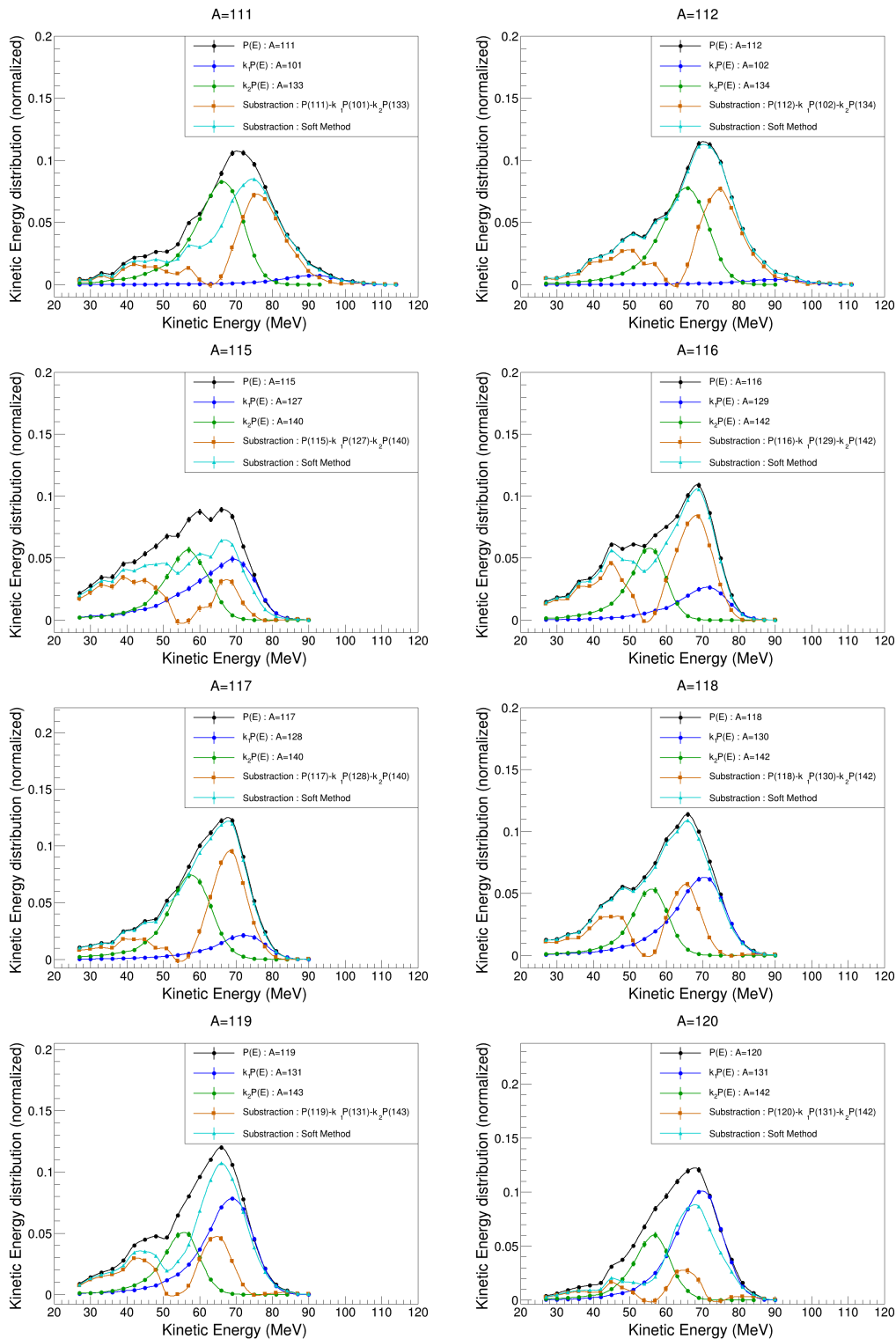


FIGURE 3.6 – Masses 111 à 121 : Distribution en énergie obtenue par les deux méthodes de soustraction dites « méthode de la brute » (points orange) et « méthode soft » (points bleu clair). Les composantes soustraites pour la méthode « de la brute » sont représentées en bleu foncé (correspondant au changement de charge $q \rightarrow q+1$) et en vert (correspondant au changement de charge $q \rightarrow q+2$). Les lignes sont ajoutées uniquement pour guider l’œil.

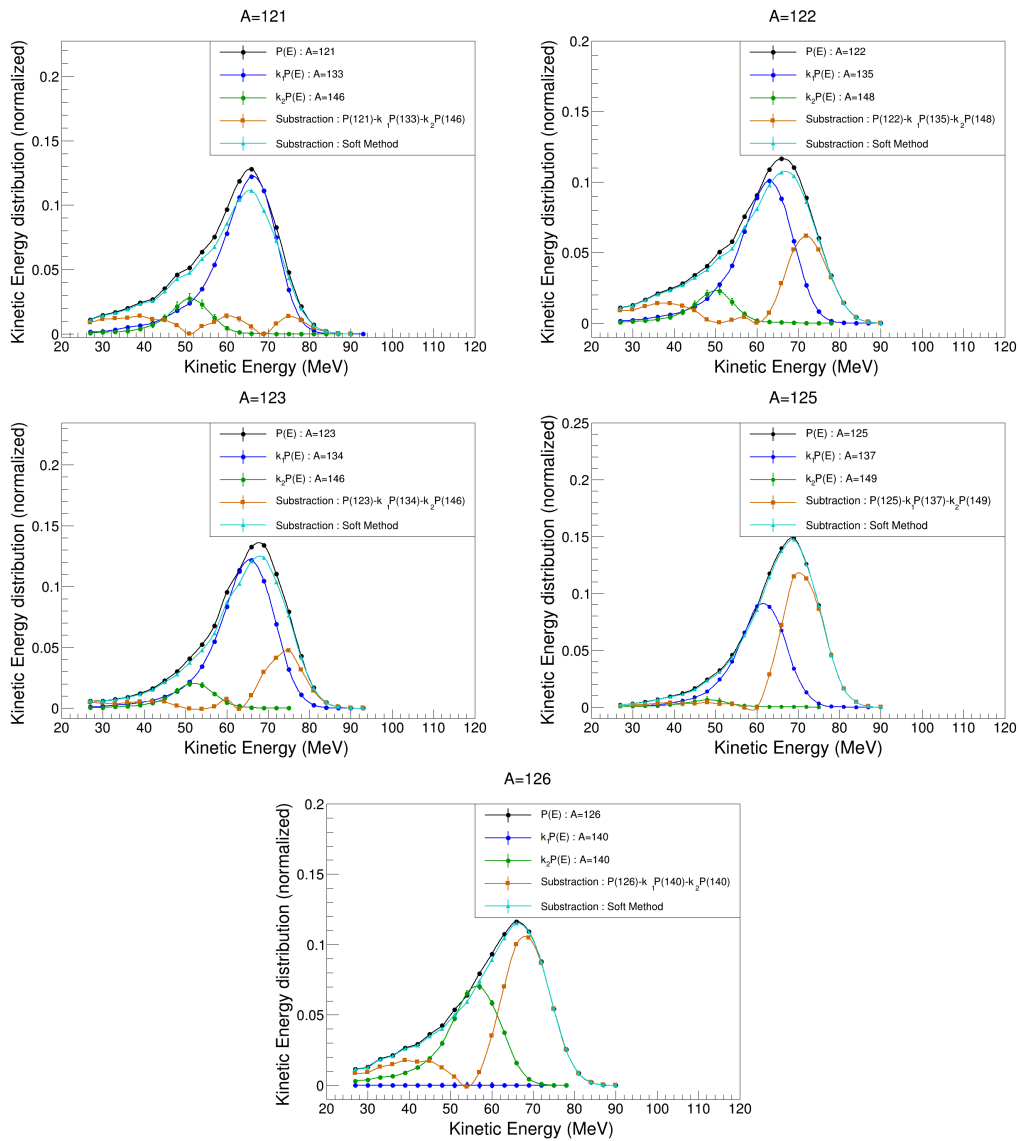


FIGURE 3.7 – Masses 121 à 126 : Distribution en énergie obtenue par les deux méthodes de soustraction dites « méthode de la brute » (points orange) et « méthode soft » (points bleu clair). Les composantes soustraites pour la méthode « de la brute » sont représentées en bleu foncé (correspondant au changement de charge $q \rightarrow q+1$) et en vert (correspondant au changement de charge $q \rightarrow q+2$). Les lignes sont ajoutées uniquement pour guider l'œil.

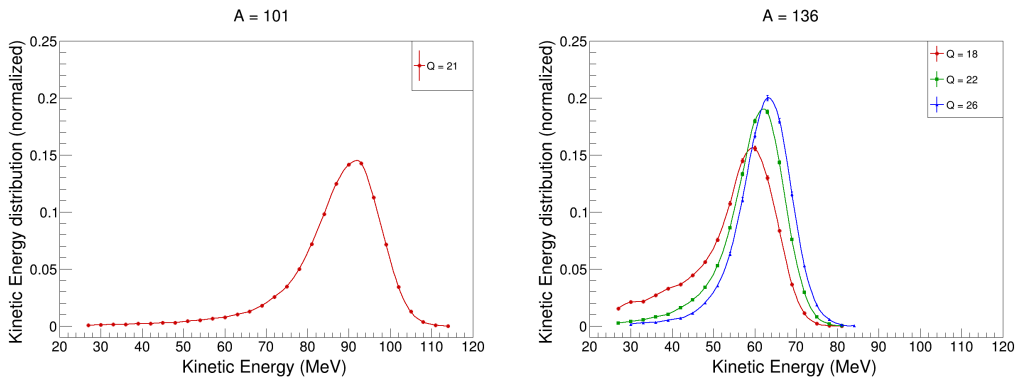


FIGURE 3.8 – Exemples de distributions en énergie cinétique pour des hauts rendements (masses 101 et 136) illustrant la forme des distributions attendues lorsqu’il n’y a pas de contamination. Pour ces deux masses, l’asymétrie de la distribution est principalement liée à la perte d’énergie des fragments dans la cible et la couche de tantale déposée.

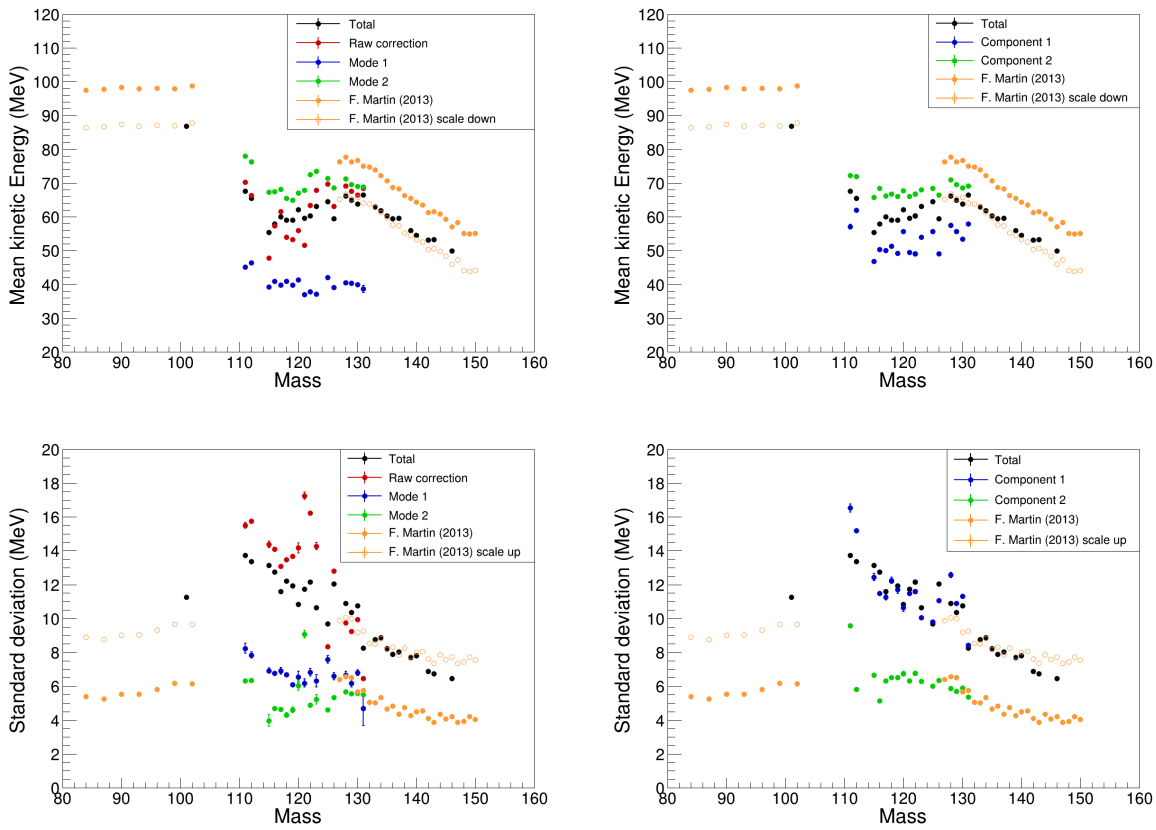


FIGURE 3.9 – De haut en bas, énergies moyennes associées aux modes en fonction de la masse et écart types des distributions en fonction de la masse (à gauche) pour la « méthode de la brute », (à droite) pour la méthode « soft ».

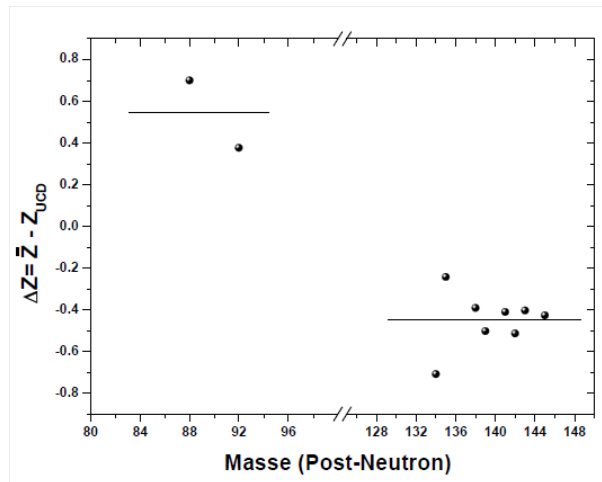


FIGURE 3.10 – Polarisation de charge nucléaire pour la réaction $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$ obtenue dans la thèse de F. Martin [4].

* *Conclusion : limites et perspectives*

Les perspectives de ce travail sont nombreuses, je dirai même que l'on a juste esquissé les possibilités du Lohengrin. Ces résultats sont l'aboutissement de 5 années de travail sur Lohengrin qui ont permis de comprendre le fonctionnement du spectromètre en profondeur avec des effets systématiques jamais discutés à ma connaissance. Néanmoins, il est difficile de crier victoire tout de suite. En effet, des mesures de l'isomère μs de ^{125}Sn montrent une incohérence entre la distribution en ion soustraite par la « méthode de la brute » et les mesures par spectrométrie γ (Fig. 3.11). Dans tout ce travail, on a considéré uniquement une image parasite identique à l'image normale du Lohengrin. Or cette image parasite provenant d'un changement de charge ionique entre l'aimant principal et le condenseur, on ne peut pas considérer que cette image soit nécessairement non déformée. La déformation de l'image d'un facteur $\sim 2-3$ permet d'obtenir par la méthode « brute » une très bonne adéquation entre les données de l'isomère et les ions. Dans ces conditions, il apparaît également la persistance de la structure en énergie de la masse 119. Pour la méthode « de la brute », la valeur d_2 associée à ces structures basses énergies tend à évoquer d'autres biais dans l'analyse. En revanche, cette valeur est intelligible pour la méthode « soft ».

Dans l'hypothèse de biais résiduels, plusieurs pistes peuvent être évoquées :

- Comme le changement de charge $q \rightarrow q+3$ pouvant amener des ions de la région de masse autour de 144 et qui pourrait avoir une distribution en énergie compatible avec les structures observées. Néanmoins, la faiblesse de la probabilité d'un tel changement de charge associée à la diminution drastique des rendements dans cette région nous pousse à croire que cette contamination reste peu probable.
- Une autre piste envisagée porte sur le recouvrement des images normales du spectromètre. Lohengrin est conçu pour observer un rapport A/q et cette image possède une dispersion dépendant de la taille de l'objet i.e. la cible. Cet objet d'un profil rectangle est convolué par les aberrations géométriques du spectromètre pour aboutir à une image quasi gaussienne pour ces cibles étroites (largeur voisine de $\sim 5\text{ mm}$). Ainsi pour un collimateur de la chambre d'ionisation de 10 mm de large, 99,4 % de l'image entre dans le collimateur. L'image voisine correspondant au A/q le plus proche est toujours à une distance supérieure à 2,16 cm pour la masse inférieure à $A=150$. Ainsi la fraction de l'image voisine qui entre dans le collimateur est inférieure à 10^{-7} pour un profil gaussien. Néanmoins, la validation

du profil à un tel niveau de précision n'a jamais été faite et n'est pas faisable.

- Il est également connu qu'il existe un fond résiduel entre deux images lorsque l'on regarde le profil magnétique du spectromètre. Cette question du fond reste compliquée à étudier compte tenu de l'incapacité d'aligner le faisceau extrait du spectromètre Lohengrin sans la présence d'une cible⁷, ce qui est un sérieux frein à l'étude du fond ou du halo périphérique probablement dus à la présence d'actinides par diffusion en périphérie des éléments du canal. La présence de collimateur neuf à chaque cible est censée empêcher de voir autre chose que l'actinide de la cible. Cette question reste ouverte.

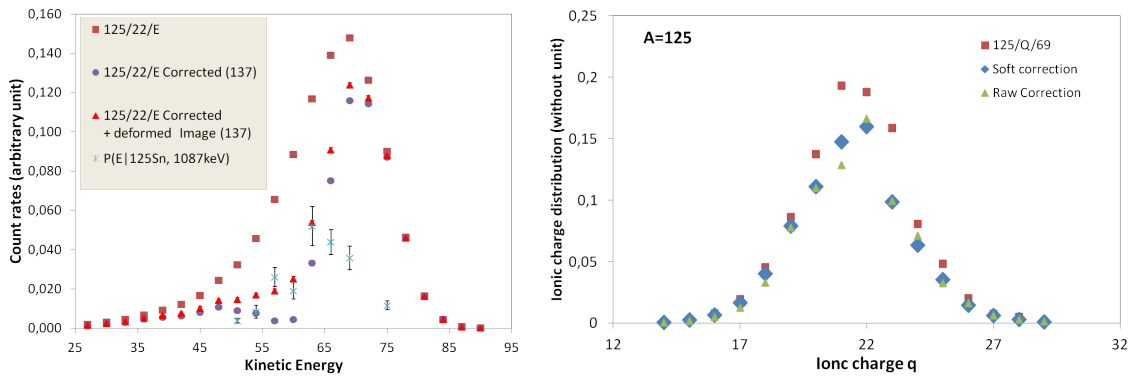


FIGURE 3.11 – (A gauche) distribution en énergie de la masse 125 à la charge ionique $q=22$ en considérant ou non la déformation de l'image du contaminant. (A droite) Distributions en charge de la masse 125 à 69MeV en considérant la déformation de l'image.

Un travail substantiel portant sur la systématique de l'analyse est à faire. La méthode Bayésienne est plus que jamais intéressante pour prendre en compte la confiance des paramètres de la méthode « soft » et quantifier la robustesse de l'interprétation en mode des distributions en énergie. Ce travail entre complètement dans la ligne de l'évaluation qui demande de fixer le degré de confiance des hypothèses des modèles en vue de produire des bases de données avec des incertitudes réalistes. De plus ces mesures sont appuyées par un rapport de la NEA [76] de 1987 préconisant des mesures dans la région des masses symétriques de l' ^{235}U . Aujourd'hui le groupe a la possibilité de développer des codes « intelligents » qui apprennent des résultats en reconsidérant les *prior* de l'analyse au vu des données et de leur cohérence. On s'approche doucement des méthodes de « machine learning » ou d'apprentissage permettant à la fois de fiabiliser les hypothèses et de réduire les incertitudes sur les évaluations sortantes.

Les perspectives expérimentales de ce travail sont la construction d'une ligne de temps de vol à la suite de Lohengrin pour réaliser une triple coïncidence $\Delta E \times E \times ToF$. Si une telle ligne a existé par le passé, seule une double coïncidence $E \times ToF$ avait été réalisée [34] nécessitant une déconvolution gaussienne du spectre en temps pour séparer les masses normalement filtrées par le Lohengrin et non les contaminants. Cette déconvolution serait difficile en considérant les contaminants. La triple coïncidence aura l'avantage de réaliser un spectre en temps uniquement pour la tache à l'énergie souhaitée du graphe $\Delta E \times E$. Le spectre en temps sera utilisé pour séparer des contaminants de la coupure $\Delta E \times E$. La preuve expérimentale des modes permettrait de valider l'approche macroscopique de Brosa utilisée dans le code GEF. Ce code pourrait devenir un *prior* de l'évaluation pour les régions de masse où il n'y a pas de données.

Actuellement la comparaison avec GEF montre des désaccords importants dans la symétrie (Fig. 3.12). Le rapport du calcul fourni par GEF indique une prédominance du standard I pour évaluer la réaction $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$ au détriment des modes standard II et Super-long. On note une structure autour de 136 et 141 plus prononcée par rapport à nos mesures mais qui reste compatible à 2σ . Cette différence s'accroît notablement dans

7. Cela n'est pas si évident que cela paraît.

la symétrie autour de la masse 110 si l'on se réfère aux résultats de F. Martin et al. pour lesquels aucune contamination majeure n'a été constatée (distribution en énergie mono-modale). Concernant la symétrie côté masse lourde, suivant le mode de correction, une incompatibilité est flagrante ou non. La comparaison à JEFF3.1.1 n'est pas significative vu que le raisonnement est basé sur cette comparaison. Pour mémoire, les évaluations fondent principalement les rendements dans la symétrie sur les mesures radiochimiques avec des effets systématiques complètement différents. Si on considère les mesures radiochimiques comme une référence, on devrait alors considérer les résultats de la « méthode de la brute » ; mais au regard des probabilités de changement de charge et aux calculs sur les distances entre les fragments au moment de la scission, la méthode « soft » semble plus acceptable. Si tel était le cas, on observerait une incompatibilité totale entre nos résultats et JEFF ou GEF.

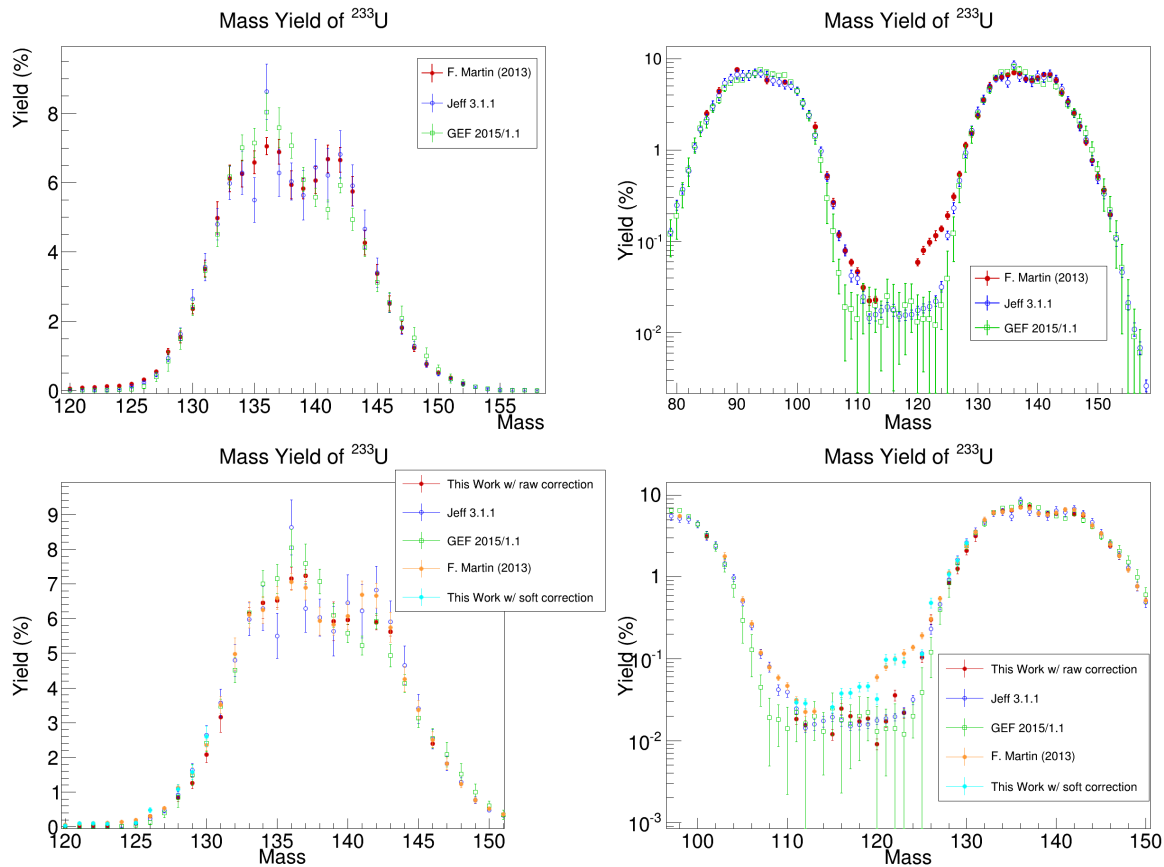


FIGURE 3.12 – (En haut) Résultats de F. Martin [4] comparés à GEF. On observe des différences notables tant au niveau des hauts rendements du pic lourd que de la symétrie côté masses légères a priori exempts de contamination.

(En bas) Résultats de A. Chebboubi [3] comparés à GEF et JEFF3.1.1. Suivant les méthodes appliquées, des désaccords importants existent avec GEF.

De plus, il est nécessaire de faire attention à la méthode d'évaluation. Les paramètres de GEF étant fixés sur l'ensemble des évaluations JEFF ou ENDF, les résultats de ce code ne doivent pas être réutilisés impunément dans l'évaluation. On peut se servir de GEF comme connaissance a priori uniquement pour évaluer des nouvelles données complètement indépendantes de JEFF et donc de GEF. Ce qui est proposé ici, c'est la réalisation de β – évaluations pour pouvoir intégrer plus rapidement les nouvelles données dans les bibliothèques de données. Ces nouvelles évaluations doivent par la suite être validées sur les données intégrales

(benchmark) pour intégrer la bibliothèque. Il convient d'être rigoureux dans la gestion de l'information pour ne pas conduire à une auto-cohérence des *priors* et des *posteriors* de l'analyse et générer des biais dans les résultats et leurs incertitudes. A l'instar des « mesures évaluées » présentées au § 2.2, il ne faut pas confondre données d'entrée et résultats de la mesure ou de l'évaluation. Pour les rendements comme les sections efficaces, les données d'entrée les moins biaisées sont les taux de comptage non normalisés à une référence.

Le programme à venir porte sur les mesures du $^{241}\text{Pu}(n_{th}, f)$ et du $^{245}\text{Cm}(n_{th}, f)$ dans la région symétrique très peu connue pour ces noyaux. Pour le premier, une première tentative de mesures a été réalisée en 2014 mais la méthode de soustraction n'était pas encore finalisée. Ces données seront plus difficiles à corriger du fait de l'absence de mesures systématiques des contaminants. Pour mémoire, l'asymétrie naturelle des distributions en énergie ne permet pas de réaliser des corrections par déconvolution gaussienne. Le travail sur ces deux noyaux en lien avec le développement d'une ligne de temps de vol dédiée au Lohengrin constitue le projet de thèse qui sera proposé pour l'année 2016-2017.

3.3 Projet d'étude des rapports isomériques produits dans la fission – distribution de spin induite par la fission

Le programme proposé ici est la suite logique du programme de mesures de distributions isotopiques par spectrométrie γ . Les études des populations des états isomères métastables se font depuis des décennies et ont été compilées par H. Naik et al. [36]. Sur le spectromètre Lohengrin, lorsque le chemin de désexcitation des noyaux le permet, les isomères sont usuellement extraits par spectrométrie γ simple [20]. Des études sur les états isomères μs ont été développées à l'ILL principalement par J. A. Pinston, J. Genevey et G. Simpson et beaucoup d'états ont pu être identifiés. Dans certains cas, des rapports isomériques sont extraits des expériences de structure [37]. Néanmoins, un protocole non-nécessairement adapté produit des résultats entachés d'incertitudes qui ne permettent pas d'en déduire une forte contrainte sur les distributions de spin emportées par le fragment. Dans le cadre de la thèse d'A. Chebboubi [3, 11], un premier objectif a été de reprendre les méthodes expérimentales pour en comprendre les systématiques et proposer des méthodes de mesures et d'analyse permettant de limiter les effets systématiques sur les observables mesurées. Le second objectif a été de rediscuter de l'évaluation du moment angulaire (spin cutoff) emporté par les fragments à partir des rapports isomériques afin de le comparer aux modèles utilisés dans les évaluations.

3.3.1 Mesures directes de Rapports isomériques

La mesure de population d'isomères sur Lohengrin suppose des états de durée de vie supérieure à la microseconde afin de traverser les 23 m du spectromètre. Deux types de mesures peuvent être réalisées suivant la durée de vie des états.

* *Mesures d'isomères métastables* ($T_{1/2} \gtrsim 100\ \mu s$)

Pour les états isomères avec une durée de vie supérieure à la centaine de microsecondes, usuellement la mesure consiste à réaliser des mesures cumulatives en déposant le faisceau sur une bande magnétique pour extraire les raies γ identifiant l'isomère soit par transition interne soit par décroissance β, γ . La limite de cette méthode est l'assignation des raies à la production de l'état isomère ou de l'état fondamental et la correction de la décroissance de filiation radioactive. En effet le spectromètre Lohengrin sépare en masse et non en isotope. C'est bien cette propriété qui permet de réaliser des mesures de rendement isotopique sans avoir à corriger de l'acceptance entre les isotopes. L'évolution dans les temps des filiations radioactives implique la correction des équations de Bateman pour atteindre la population des états produits par fission uniquement. Que ce soit pour les mesures isotopiques ou les mesures isomériques, la dépendance aux fichiers de structure nucléaire est totale. Une erreur d'assignation d'une transition ou une multiplicité incomplète des alimentations des états biaisent les mesures. Pour limiter ces effets de structures, une nouvelle procédure de mesure est en cours de validation sur le spectromètre. Cette technique s'appuie sur l'automatisation du pilotage du spectromètre (NOMAD développé à l'ILL) et du contrôle de l'acquisition (CAEN) par NOMAD. Ainsi, via cette automatisation, il est possible de faire un séquençage des prises de données pour faire varier les populations en fonction du temps. Le protocole de mesures des rendements isotopiques/isomériques devient le suivant :

1. Mesures de la distribution en énergie et en charge via la chambre d'ionisation en direction droite.
2. Mesures par spectrométrie γ de la distribution en charge ionique à l'énergie la plus probable pour extraire les distributions isotopiques.
3. Pour chaque charge ionique, mesures par alternance d'accumulation ou de décroissance via le chopper de l'aimant RED permettant de dévier le faisceau : méthode « BeamCut ». La figure 3.13 présente le principe de la mesure. Lors de la partie où l'on accumule les fragments, nous mesurons la production totale de l'isotope (zone bleue = gs + m) ; dans la seconde partie de la mesure on détecte uniquement la décroissance de l'état de plus longue durée de vie, en général l'état fondamental. Toutes ces données doivent être corrigées des équations de Bateman pour en déduire les populations de noyaux mesurées.

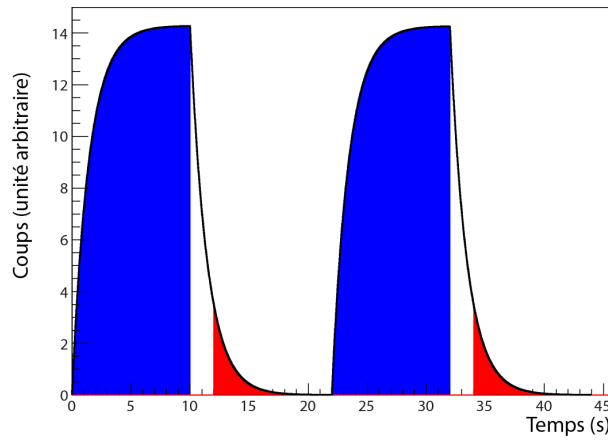


FIGURE 3.13 – Séquençage de la prise de données par spectrométrie γ pour chaque point de mesures (A, q, E_k) en présence d'états isomères métastables.

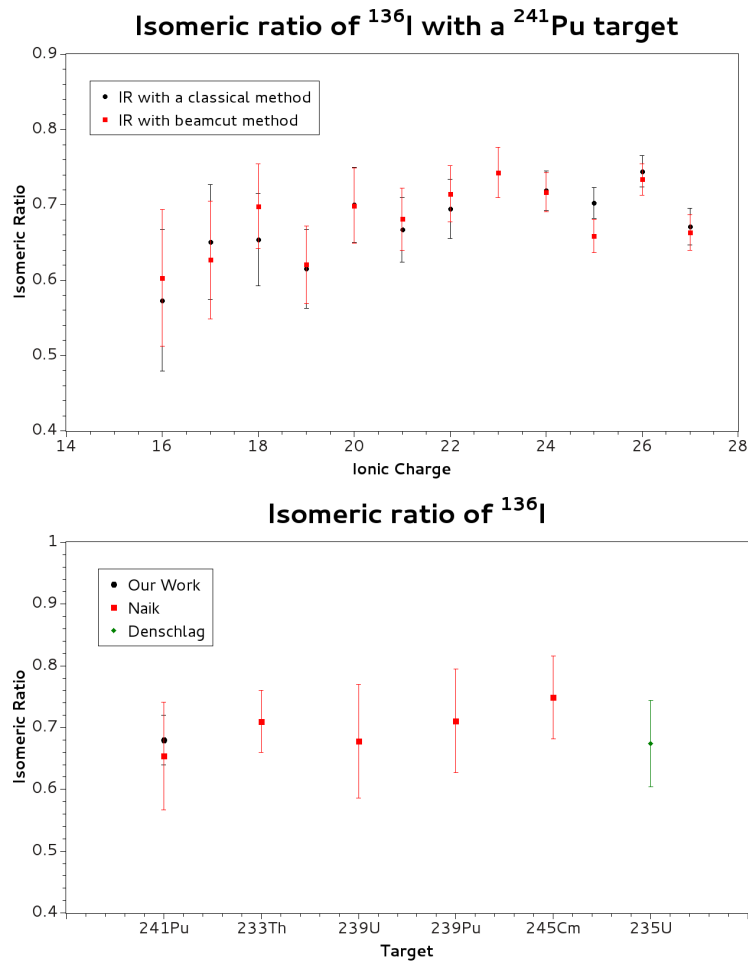


FIGURE 3.14 – (En haut) Analyse du rapport isomérique de l'Iode ^{136}I par la méthode cumulative et la méthode « beamCut ». (En bas) comparaison du résultat avec les valeurs trouvées dans la littérature [36, 49].

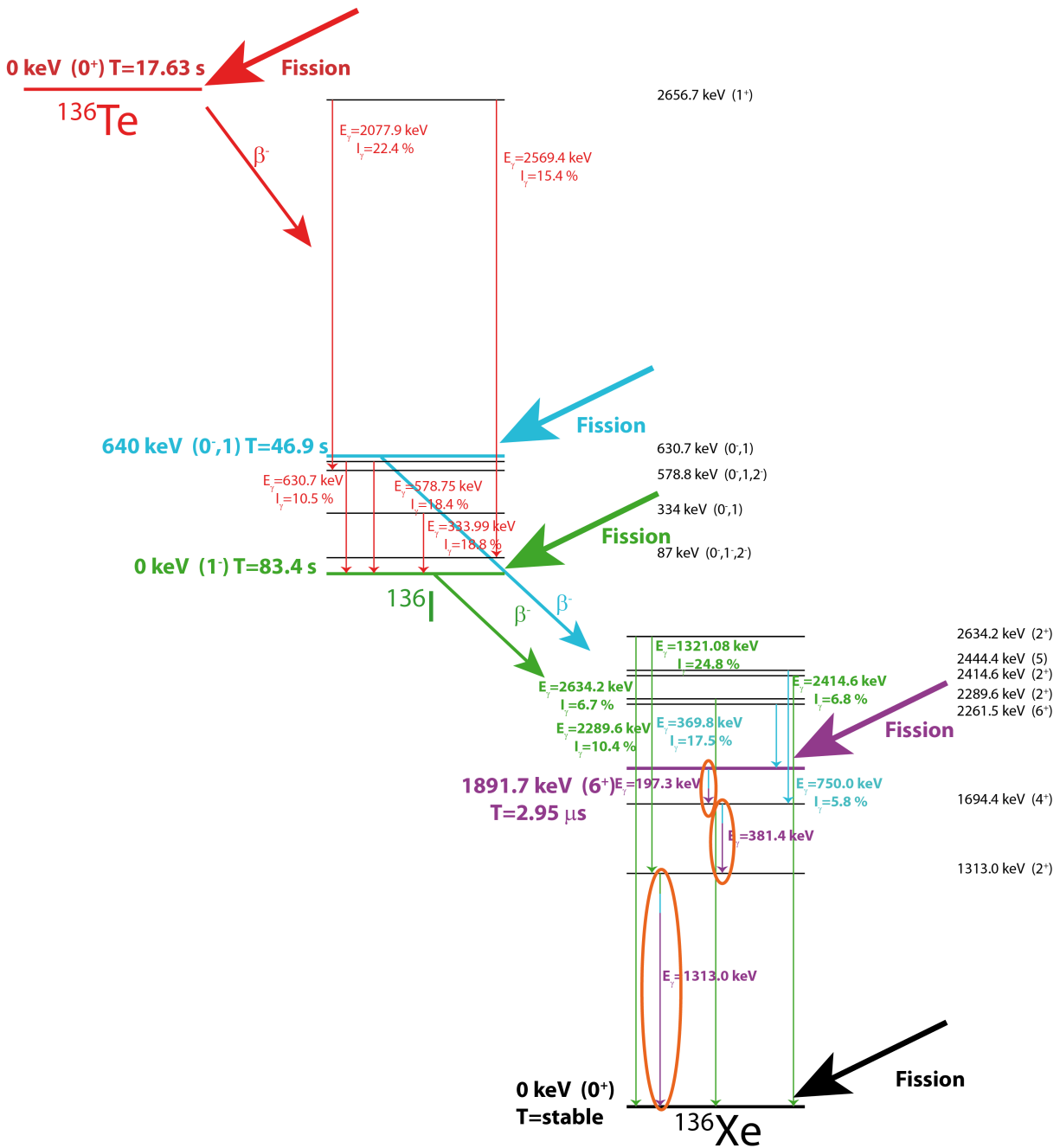


FIGURE 3.15 – Schéma de structure nucléaire simplifié correspondant à l’analyse de l’état isomère et de l’état fondamental de l’ ^{136}I . La figure présente les différentes alimentations des états par le processus de fission, la décroissance β ou la désexcitation γ et les différentes raies analysées pour extraire le rapport isomérique de ^{136}I .

L’illustration de la méthode est réalisée sur l’iode ^{136}I en raison de la possibilité de faire une double analyse. En effet, cet isomère a des transitions propres qui permettent de mesurer sa population indépendamment de l’état fondamental ou de la décroissance de la filiation. La figure 3.15 présente la filiation radioactive produite par la fission et les raies utilisées dans l’analyse [3]. Les résultats sont présentés sur les figures 3.14

en fonction de la charge ionique du fragment et le résultat moyen est comparé aux valeurs trouvées dans la littérature [36, 49]. On constate dans un premier temps une évolution de ce rapport en fonction de la charge. Ceci n'est pas étonnant si l'on se rappelle que l'énergie cinétique moyenne varie avec la charge ionique (corrélation (E_k, q) , c.f. § 2.2.1). Ces résultats seront discutés au § 3.3.4.

* *Mesures d'isomères μs ($T_{1/2} > 0,5 \mu s$)*

La méthode de mesure des isomères μs reste une méthode de coïncidence très classique (Fig. 3.16). La difficulté majeure ne porte pas tant sur la mesure de la population de l'isomère (spectre en coïncidence) que sur l'estimation du nombre de noyaux dans l'état fondamental (spectre γ total) mesurée par décroissance β, γ . En effet plusieurs difficultés se présentent pour exploiter le spectre γ total. La première est le rapport signal/bruit provenant du Lohengrin. Il faut avoir en tête que le spectromètre ne sélectionne pas une masse mais filtre un multiplet (A, q, E_k) en plus du bruit de fond γ du réacteur. Dès lors le fond γ s'accumule avec une fréquence d'environ $200 Hz$ dans le spectre. Le second point porte sur « l'immobilisation » des nucléides. Malgré les précautions prises pour arrêter complètement le faisceau sur la bande magnétique, on a observé une période effective du Tellure ^{132}Te beaucoup plus courte que sa période radioactive de $76,3 h$. Due au laminage d'isobutane dans la chambre d'ionisation, une période effective de l'ordre de $150 s$ est observée. Dès lors les mesures d'isotopes de périodes supérieures à cette limite posent de réelles difficultés alors même que le Tellure n'est par un isotope réputé très volatile.

L'innovation porte sur la prise en compte de l'ensemble des sources d'incertitudes de l'analyse et de leur propagation. Nous avons choisi la définition suivante du rapport isomérique :

$$IR(E_k) = \frac{\tau_{\text{isomer}}(E_k)}{\tau_{\text{gs}}(E_k) + \tau_{\text{isomer}}(E_k)} \quad (3.7)$$

où τ_{isomer} et τ_{gs} représentent les taux de production de l'isomère ou de l'état fondamental (gs) en fonction de l'énergie cinétique. La figure 3.17 présente deux fonctions de densité de probabilité (PDF) de mesures pour deux « statistiques » accumulées très différentes. Pour des statistiques faibles ($1/\sqrt{N} \gtrsim 0,2$) on observe une distribution du résultat non-gaussienne et asymétrique. En effet la PDF d'un rapport de deux gaussiennes n'est pas gaussienne. Néanmoins la comparaison de la moyenne et de l'écart type est en bon accord avec la théorie de perturbation généralement appliquée. Outre le fait de propager les incertitudes systématiques et de construire la matrice de covariances, vérifier l'hypothèse gaussienne de la PDF se révélera vital pour l'interprétation des résultats (cf. § 3.3.3).

Des mesures ont été réalisées en considérant différentes épaisseurs de cibles et de « surface de recouvrement » (feuille de Nickel ou évaporation de Ta ou cible nue). La figure 3.18 présente les résultats sur le ^{88}Br en fonction de l'énergie cinétique. Ce sujet étudié de manière parcellaire par le passé [48, 49] et repris plus récemment dans le cadre de l'évaluation des modèles de génération de spin [31] présente des disparités dans les résultats que l'on peut expliquer par les effets de perte d'énergie dans la cible. Cette perte d'énergie lisse les structures sans en changer la valeur moyenne pour autant comme l'atteste la Fig. 3.18 de gauche. L'interprétation de ces résultats et leur discussion au regard des modèles seront présentées au § 3.3.3.

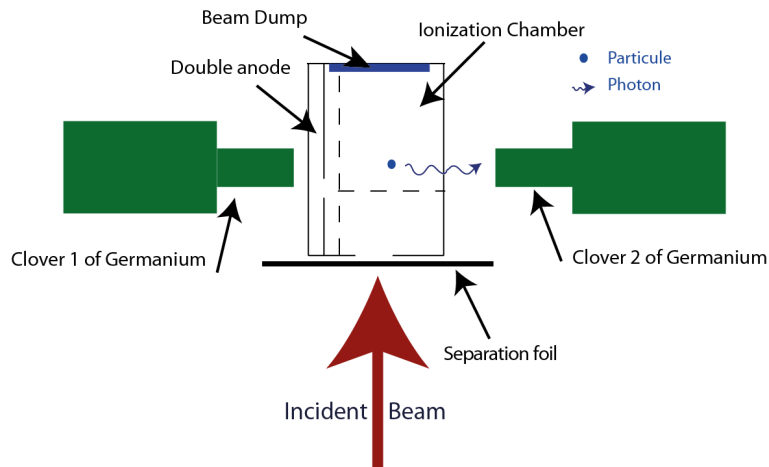


FIGURE 3.16 – Mesure par méthode de coïncidences $Ions - \gamma$ pour identifier les transitions des états isomères μs .

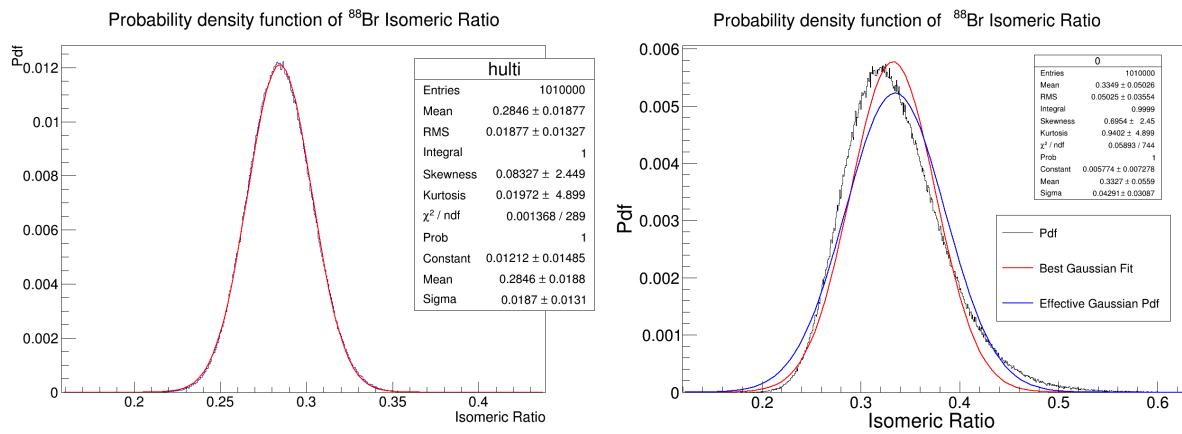


FIGURE 3.17 – Fonctions de densité de probabilité des résultats de mesures du rapport isomérique de ^{88}Br pour deux taux de comptage différents.

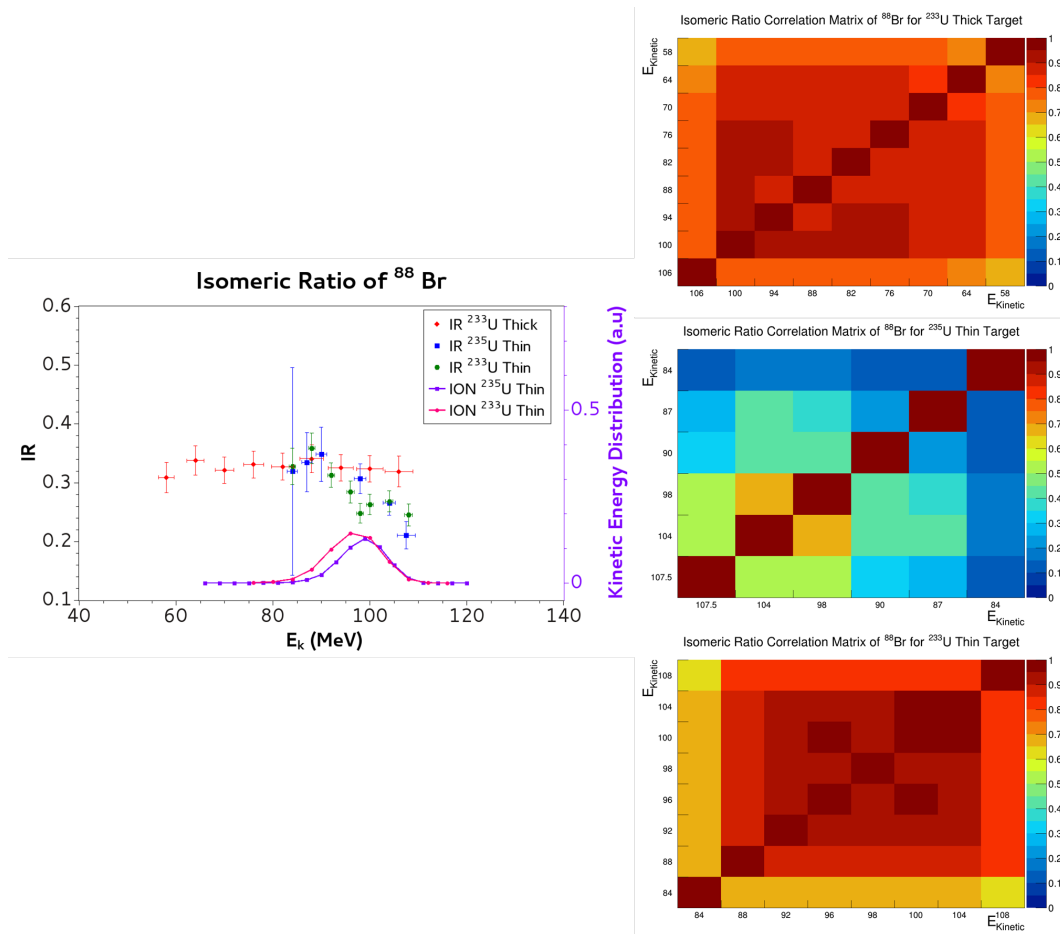


FIGURE 3.18 – Rapport isomérique du ^{88}Br pour différentes épaisseurs de cibles et deux noyaux fissionnant ($^{234}\text{U}^*$ et $^{236}\text{U}^*$) en fonction de l'énergie cinétique des fragments. Pour chaque série de mesures, la matrice de corrélations a été déterminée [3].

3.3.2 Mesures indirectes de la population d'isomères ns par effet de conversion électronique

Les mesures de rendements isotopiques sont obtenues via l'évaluation des distributions en charge ionique pour chaque isotope. Après correction des équations de Bateman, ces distributions associées à un nucléide (A, Z) donné présentent des distorsions importantes d'un isotope à l'autre au sein d'une même masse. L'origine de ces distorsions est connue [46, 47, 19] et provient d'états isomères ns de très faible énergie d'excitation (quelques centaines de keV) pouvant avoir une probabilité non-négligeable de désexcitation par conversion interne. Cette désexcitation génère un trou sur la couche électronique K (principalement) de l'ion, suivi par une cascade Auger qui perturbe notablement l'équilibre de la charge ionique établi à la sortie de la cible d'actinide. La gamme de sensibilité du spectromètre Lohengrin à ces états isomères est de quelques centaines de ps à $\sim 300 ns$ pour les isotopes lourds (cf. Fig. 3.19).

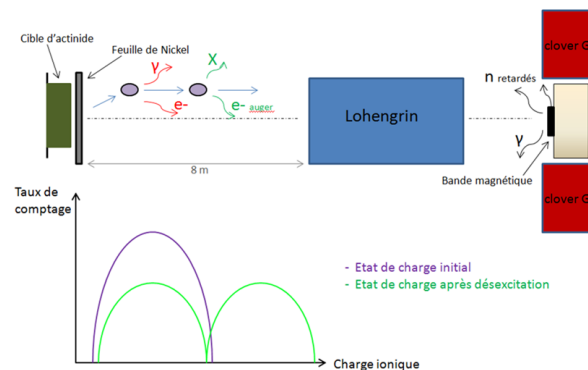


FIGURE 3.19 – Principe physique de base à l'origine de la déformation des distributions en charge ionique.

Une analyse bayésienne par composantes gaussiennes⁸ de ces distributions en charge a permis d'extraire un rapport de populations entre le nombre de noyaux qui se sont désexcités sans conversion interne et ceux ayant subi un réarrangement électronique [38, 44]. La figure 3.20 présente les résultats des déconvolutions gaussiennes (à écart type constant ou non) avec la représentation de la probabilité de Bayes extraite de l'analyse (*posterior*) et la P -value des ajustements (cf. § 1.2.1.4 & 1.2.1.5). Les analyses des isotopes de ^{137}Cs , d' ^{138}I et de ^{142}Ba sont présentées en annexe B. La force de la méthode Bayésienne est de pouvoir quantifier donc comparer la pertinence de l'ajustement afin de prendre en compte la dispersion éventuelle des résultats i.e. la pluralité des solutions possibles. C'est ce qui est observé sur l'avant dernier graphique de la figure 3.20. Juste à côté, la P -value de l'analyse fréquentiste indique qu'il n'est possible de rejeter aucun ajustement sans comparaison des résultats (une P -value est supérieure au quantile fixé ou non sans aucune autre interprétation possible cf. § 1.2.1.4). Dans cette approche il est alors possible d'estimer l'incertitude sur la méthode en tenant compte des incertitudes propres à chaque ajustement et la dispersion des résultats par méthode en pondérant par le *posterior* de l'analyse. Dans le cas présenté, les méthodes 2 et 4 sont retenues avec des « probabilités de vraisemblance » similaires.

8. On se permet une restriction gaussienne à la déconvolution en s'appuyant sur les travaux de H. D. Betz[40] prévoyant une distribution ionique à l'équilibre suivant une loi normale. Dans ce travail, nous nous intéressons uniquement à la différence entre le nombre de noyaux n'ayant pas subi de conversion interne (avec a priori un profil gaussien) et le total de la distribution.

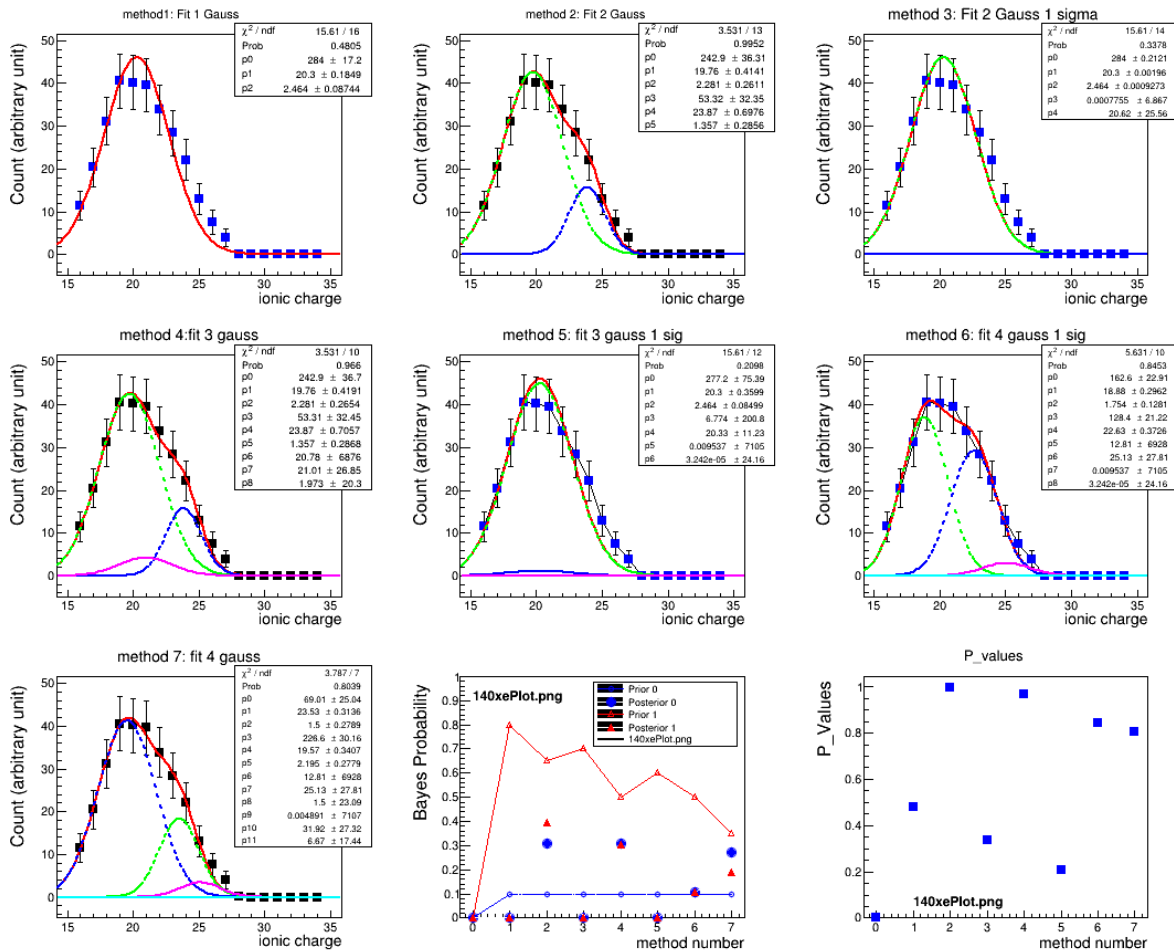


FIGURE 3.20 – Principe physique de base à l’origine de la déformation des distributions en charge ionique. Les deux derniers graphiques présentent les résultats de la comparaison bayésienne (posteriors) pour deux priors différents (un équiprobable et un autre fonction du nombre de degrés de liberté) et les résultats de l’analyse fréquentiste (P -value).

Interprétation de la distribution en charge ionique du ^{140}Xe : La figure 3.20 présente le résultat de la déconvolution de la distribution en charge ionique du ^{140}Xe [38]. On obtient un état de charge moyen le plus bas de $19,38 \pm 0,38$ à comparer à $18,68$ selon V. S. Nikolaev et al. De plus, la largeur de ce premier mode est de $2,1 \pm 0,2$ à comparer à $1,96$ selon le même modèle. Dans la base de données évaluées ENSDF, si l’on cherche les désexcitations par conversion interne dont la probabilité est supérieure à 1 %, on trouve seulement deux états responsables de ces transitions de charge : l’isomère à $834,3$ keV (16 ps) et celui à $376,7$ keV (70 ps). La multiplicité des cascades pour ces transitions est égale à 2, ce qui se traduit par la prédiction de trois charges ioniques moyennes différentes (trois modes) :

- la charge de l’ion correspondant à l’état fondamental,
- la charge correspondant à une seule transition par conversion interne,
- la charge correspondant à deux transitions par conversion interne.

L’analyse des différents ajustements montre que les déconvolutions les plus probables correspondent à deux et trois modes gaussiens sans pouvoir mettre une priorité sur l’une des solutions.

Ces rapports de populations dépendent fortement de la distribution en moment angulaire induite par la fission et de l'état de spin-parité de l'état isomère. À l'issue de la cascade de désexcitation promptes d'un noyau, pour des états excités faiblement peuplés, on s'attend à ce que la déformation de la distribution en charge ionique soit faible. À l'inverse un rapport de population en faveur de l'état isomère aura de grandes chances de déplacer les distributions vers les grandes charges si la désexcitation se fait par conversion interne. La figure 3.21 présente les charges moyennes déconvoluées pour 18 isotopes du pic lourd. Ces résultats ont été obtenus sans imposer aucune contrainte sur l'ajustement gaussien. On constate une très bonne adéquation entre les charges ioniques calculées par V. S. Nikolaev et al. [39] ou H. D. Betz [40] et l'état de charge le plus faible (points rouges). Cet état de charge est associé à la désexcitation du fragment (post-neutron) par transition électromagnétique. Seuls quatre isotopes ne présentent pas un état de charge prévu par les modèles. Cela peut s'interpréter comme une très faible production de ce noyau dans l'état fondamental par la fission thermique. Ces résultats permettent de conclure que les travaux de V. S. Nikolaev ou H. D. Betz sur la modélisation de la charge ionique de l'état fondamental des noyaux lourds sont crédibles et de rejeter les autres modèles effectifs tentant de modéliser la charge moyenne des fragments de fission (entre autres, K. Shima et al. [43], I. S. Dmitriev et al. [41], Y. Baudinet-Robinet [42]).

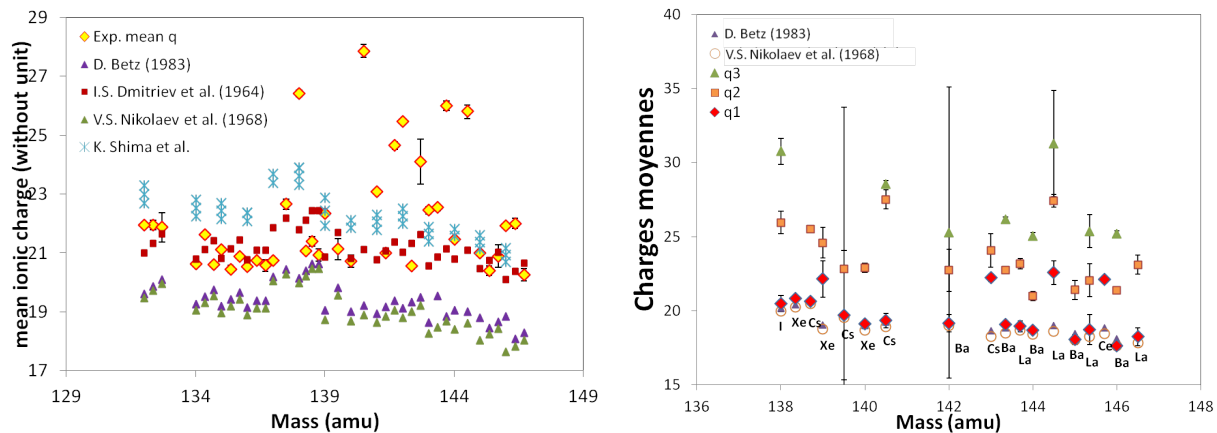


FIGURE 3.21 – (à gauche) comparaison des charges moyennes mesurées avec les différents modèles précités (cf. texte). (A droite) Résultats de la déconvolution comparés aux modèles de H. D. Betz et de V. S. Nikolaev et al.

De cette analyse, il est possible d'extraire le rapport de populations entre le nombre de noyaux ayant subi une conversion interne lors de leur désexcitation et ceux restés dans l'état de charge initiale (Fig. 3.22). Ces rapports de populations converties (RPC) constituent un test pour évaluer la compatibilité avec les modèles de générations de spin « sachant » le schéma de niveaux. Dans cette évaluation, l'importance de la connaissance du schéma de niveau est cruciale et constitue une « nuisance » (i.e. une source d'incertitude) au sens de l'analyse bayésienne. Une collaboration avec The Australian National University, ACT 2601 est en train de se monter pour réaliser des calculs de cascades atomiques dans l'optique d'évaluer la forme des distributions en charge des ions convertis [45]. L'objectif est de pouvoir extraire les populations par état isomère afin de définir véritablement des rapports isomériques. Néanmoins, dans ces calculs, la même hypothèse gaussienne pour les ions n'ayant pas subi de conversion interne (correspondant à l'équilibre statistique en accord avec les travaux de H. D. Betz [40]) est réalisée; cela implique que les RPC tels que définis précédemment restent non-biaisés.

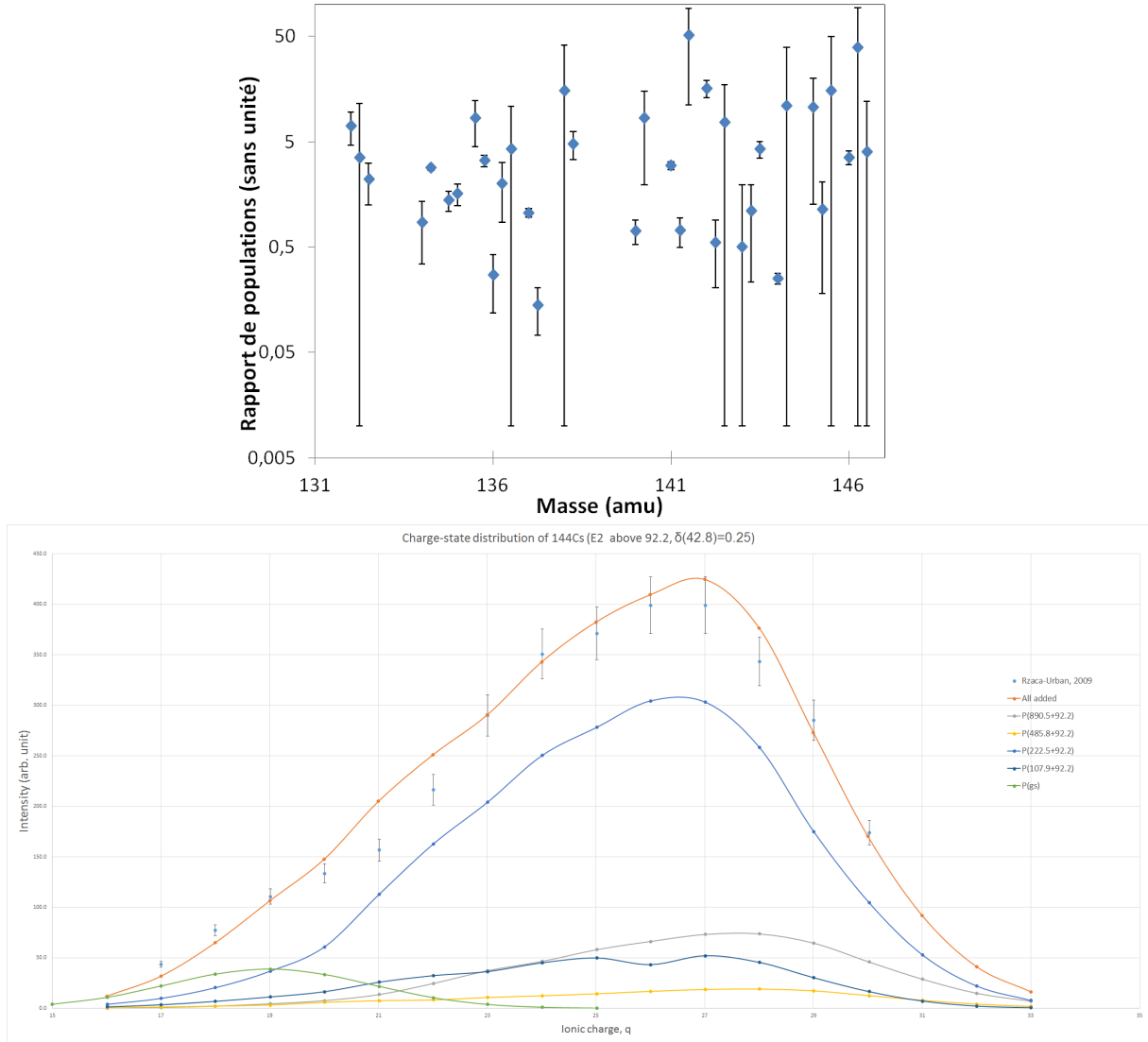


FIGURE 3.22 – (En haut) rapports de populations converties (RPC) extraits des distributions en charge ionique des isotopes produits par la réaction $^{233}\text{U}(n_{th}, f)$. (En bas) Illustration d'un calcul des distributions en charge après conversion interne pour des transitions correspondant à différents états isomères [45].

3.3.3 Interprétation par inférences bayésiennes

Pour mémoire, l'objectif des mesures de rapports isomériques est d'en déduire le moment angulaire emporté par les fragments de fission afin de valider les hypothèses utilisées dans les évaluations. Les efforts engagés pour définir le plus précisément possible les observables expérimentales à travers les *matrices de corrélations* ou les *pdf* vont être mis en valeur dans cette partie. Pour déduire le moment angulaire des fragments post-émission neutrons, il est nécessaire de comparer les données à une hypothèse : e.g. la valeur du paramètre de spin cutoff. En considérant la distribution de spin :

$$P(J) = (2J + 1) \cdot \exp\left(-\frac{(J + 1/2)^2}{B^2}\right) \quad (3.8)$$

où $B \approx J_{RMS}$ est le paramètre de spin cutoff, voisin de la largeur de la distribution en moment angulaire J_{RMS} . Pour extraire le paramètre de spin cutoff, il est nécessaire de disposer d'un code de désexcitation nucléaire permettant d'estimer le rapport isomérique par pas d'énergie d'excitation et de moment angulaire, $IR_{cal}(E^*, J)$. Dans notre cas, nous utilisons les données du code FIFRELIN qui considère les transitions discrètes en plus des état statistiques. Cette particularité est indispensable pour prendre en compte de manière réaliste la pluralité (et les contraintes) des chemins de désexcitation du noyau. Ces calculs du « rapport isomérique différentiel » $IR_{cal}(E^*, J)$ ne sont bien sûr soumis à aucune hypothèse sur le spin initial. Pour réaliser cette comparaison, nous allons reprendre la formulation de Bayes définissant la probabilité de l'observable ou posterior (cf. Chap. 1 (eq. 1.25)). Le résultat recherché s'écrit comme suit en reprenant les notations du chapitre 1 :

$$P(E^*, J_{RMS}|E_k, data) = \frac{P(data|H_i) \cdot P(H_i = J_{RMS})}{\sum_i P(data|H_i) \cdot P(H_i)} \quad (3.9)$$

$$P(data|H_i) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}\chi^2\right) \quad (3.10)$$

$$\begin{aligned} P(H_i = J_{RMS}) &= cte \\ \chi^2 &= \vec{C}^* \cdot Corr^{-1} \cdot \vec{C} \end{aligned} \quad (3.11)$$

$$\vec{C}(E^*|E_k) = \overrightarrow{IR_{cal}(E^*|J_{RMS})} - \overrightarrow{IR_{mes}(E_k)} \quad (3.12)$$

$$IR_{cal}(E^*|J_{RMS}) = \sum_J P(J|J_{RMS}) \cdot IR_{cal}(E^*, J) \quad (3.13)$$

$$P(J|J_{RMS}) \propto (2J+1) \cdot \exp\left(\frac{(J+1/2)^2}{J_{RMS}^2}\right) \quad (3.14)$$

Nous illustrons cette démarche sur les mesures du rapport isomérique de ^{132}Sn qui ont été réalisées auprès du spectromètre Lohengrin (Fig. 3.23). Le choix de l'illustration sur les résultats du ^{132}Sn n'est pas anodin. En effet pour la première fois, le rapport isomérique d'un noyau doublement magique a été mesuré (cf. Fig. 3.23 en haut). La particularité de cet étain est de posséder un isomère de $2,03\mu s$ à une haute énergie d'excitation de $4,848 MeV$ (spin $(8+)$) pour une énergie de liaison de neutron de $S_n = 7343 keV$. On observe une évolution monotone décroissante du rapport isomérique en fonction de l'énergie cinétique. La figure 3.23 en bas à droite représente le diagramme d'exclusion des moments angulaires emportés par ^{132}Sn à l'énergie cinétique $E_k = 75 MeV$ en fonction de l'énergie d'excitation $P(E^*, J_{RMS}|E_k, data)$ sachant le schéma de structure nucléaire utilisé. Ce graphique indique les valeurs de J_{RMS} (compatibles avec les mesures $IR(E_k)$) en fonction de l'énergie d'excitation du noyau afin de comparer au modèle. Pour chaque point de mesure, on déduit de la probabilité $P(E^*, J_{RMS}|E_k, data)$ la valeur de spin cutoff la plus probable et sa valeur moyenne.

Les valeurs de J_{RMS} déduites pour ^{132}Sn sont comprises entre $4\hbar$ et $5\hbar$ contrairement à ce que l'on s'attend pour ce noyau. En effet, le modèle usuel de génération de spin fonde le mécanisme sur la déformation du noyau au moment même de la scission via deux modes : bending & wrigle modes [50]. Néanmoins nous pouvons considérer que ^{132}Sn est sphérique au moment de la scission. Dès lors, selon ce mécanisme, celui-ci ne devrait pas emporter de moment angulaire (puisque non déformé). De plus les travaux de L. Bonneau et al. et I. N. Makhailov et al. [51, 52] sur le « orientation pumping mechanism » via des calculs microscopiques indiquent qu'un noyau sphérique à la scission doit emporter un moment angulaire proche de zéro, comme son partenaire par application de la relation d'Heisenberg. L'application du modèle thermodynamique [53, 54], au delà de la difficulté d'estimer le paramètre de densité de niveau inconnu pour ce noyau, présente une différence dans l'évolution du moment angulaire emporté en fonction de l'énergie cinétique. Un travail précédent sur le ^{132}Te par F. Gönnewien et al. [31] présente une évolution non-monotone du rapport de deux isomères avec une diminution des populations sur les bords de la distribution en énergie cinétique. L'auteur défend l'idée que cette diminution du rapport isomérique à très basse et très haute énergie d'excitation est la preuve de l'existence d'un autre mécanisme que le « Bending and wrigle modes » et conclut sur la

nécessité du mécanisme d'excitation thermique des états single-particules. Cette dernière conclusion n'est qu'une conjecture qui pourrait être validée par nos résultats sur l' ^{132}Sn . Ces mesures représentent donc un cas d'école pour discuter de l'origine du spin dans les fragments de fission. Si un noyau sphérique ne peut acquérir un moment angulaire non-nul au moment de la scission, celui-ci pourrait provenir de la descente du point selle au point de scission, ce qui serait une preuve directe de l'obligation de tenir compte de la dynamique dans la modélisation du processus de fission.

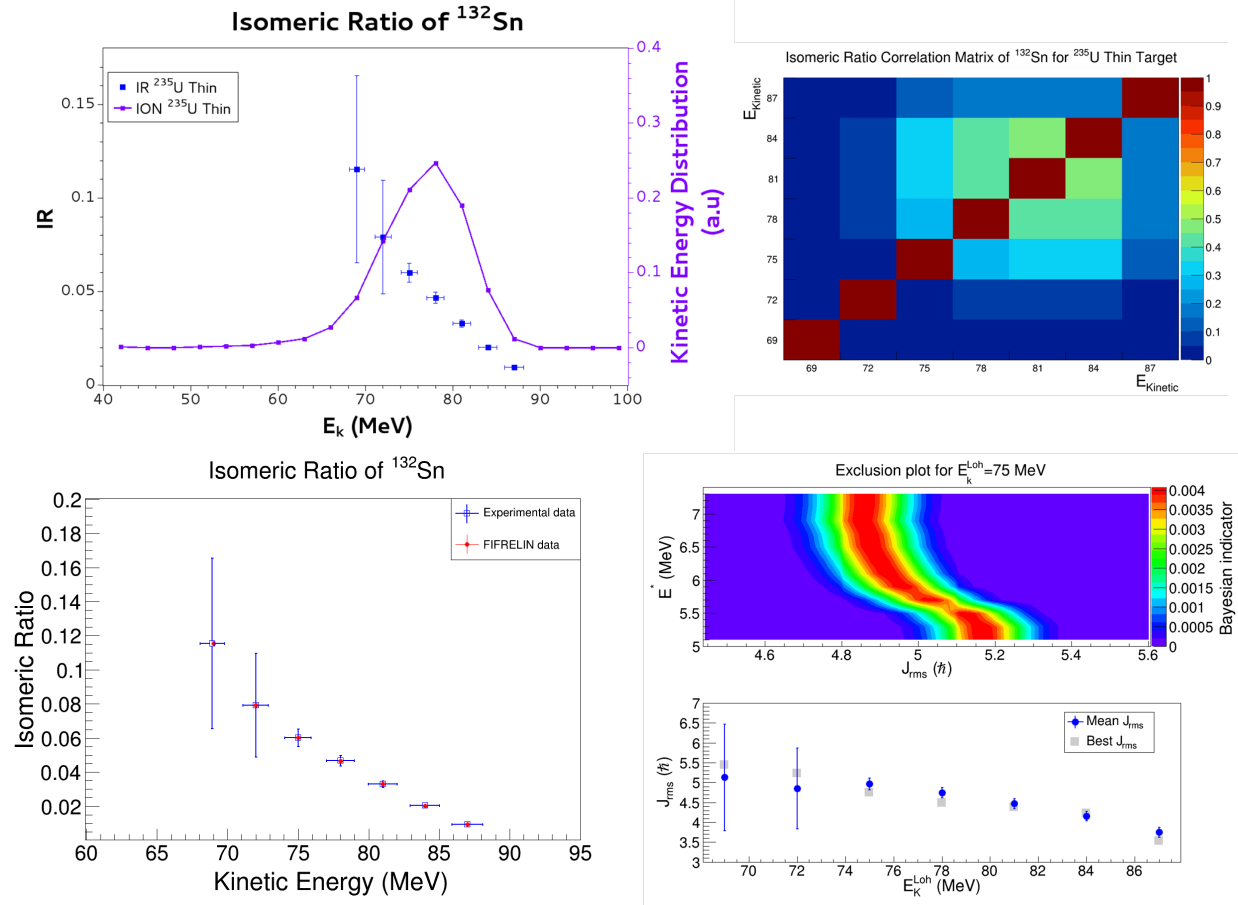


FIGURE 3.23 – (En haut) Mesures du rapport isomérique du ^{132}Sn avec la matrice de covariances associée. (En bas à gauche) mesures du rapport isomérique du ^{132}Sn comparées aux résultats de l'ajustement. (En bas à droite) Distribution de probabilité à deux dimensions (E^* , J) (i.e. posterior) déduite des mesures de rapports isomériques en tenant compte des corrélations d'incertitudes entre les mesures; valeur la plus probable et valeur moyenne de spin cutoff J_{RMS} en fonction de l'énergie cinétique des fragments.

3.3.4 Conclusions sur les mesures de rapports isomériques : limites et perspectives

Dans cette section, nous avons présenté les outils expérimentaux et d'analyses développés par la collaboration. Un travail important sur l'évaluation de la précision des méthodes expérimentales nous permet aujourd'hui de proposer un ensemble de techniques validées sur des expériences indépendantes. L'objectif de ce travail est de constituer une bibliothèque de mesures de rapports isomériques sur toute la dynamique en temps accessible auprès du Lohengrin (de la ns à la ms) afin d'extraire les distributions de spin compatibles avec les données de manière cohérente. En effet, la première limitation dans l'évaluation de ces distributions provient de la très grande dépendance des résultats aux données de structure nucléaire, aux densités de niveaux et aux fonctions de force γ intervenant dans les calculs produits par FIFRELIN. Prévoir la conservation des mesures de rapport isomérique et non seulement des valeurs de spin déduites est indispensable afin de pouvoir réévaluer les résultats avec l'évolution des données de structure nucléaire et l'amélioration des codes de calculs. Dans toutes ces études par spectrométrie gamma, plus que jamais, les données nucléaires de base sont bien celles sur la structure des noyaux riches en neutrons. Ce sont bien ces noyaux qui sont utilisés comme sonde des mécanismes de réactions et en particulier la fission.

Concernant la méthode sur les isomères ns, le biais actuel porte sur la prise de données. Pour évaluer correctement les rapports de populations convertis (RPC) il est nécessaire de mesurer la distribution en charge en tenant compte des corrélations entre l'énergie cinétique et la charge ionique des fragments. Le programme de mesure sur le ^{241}Pu constitue un des éléments du projet de thèse de S. Julien-Laferrrière (oct. 2015-2018). Deux autres proposals d'expériences ont été acceptés par l'ILL concernant la poursuite du travail sur les isomères en fonction de l'énergie cinétique (3 semaines sur Lohengrin pour 3 noyaux fissionnant) et une étude sur l'évolution des distributions isotopiques en fonction de l'énergie cinétique (1 semaine). Le premier type de mesures devrait pouvoir quantifier l'effet de la déformation sur la génération de moments angulaires alors que le second met en jeu l'énergie d'excitation intrinsèque au moment de la scission. Ces informations sont importantes et permettront une meilleure compréhension de la non-évolution des rapports isomériques en fonction du paramètre de fissilité (Z^2/A), comme l'atteste la figure 3.14 (en bas) alors qu'il est bien connu que les effets de parité en charge (Z) diminuent avec la fissilité, ce qui est interprété comme une dépendance à l'énergie d'excitation intrinsèque [77]. On pourrait y voir une indication pour interpréter l'origine du moment angulaire à une énergie de déformation et une indépendance à l'énergie d'excitation intrinsèque.

3.4 Les projets à venir autour des spectromètres magnétiques gazeux (GFM)

Les études des spectromètres magnétiques gazeux (GFM) dédiés aux produits de fission ont été initiées à l'ILL par H. Faust dans le cadre du proposal d'un nouvel instrument, FIPPS⁹ à la conférence Vision 2020 organisé par l'ILL en 2010 [63]. De cette idée est née un programme de recherche sur les GFM pour vérifier leur pouvoir de séparation. Pour ce faire, nous avons pu reconvertir temporairement l'aimant de focalisation en énergie du spectromètre Lohengrin (dit RED) en GFM. Le but initial de cet aimant est de réduire la dispersion spatiale des ions sur l'axe en énergie (E_k) du Lohengrin (cf. Fig. 2.1) pour venir déposer le faisceau extrait sur une bande magnétique pour des mesures de spectrométrie γ (mesures de structure nucléaire ou de fission).

Ici, nous allons utiliser Lohengrin comme une source unidirectionnelle de fragments de fission en utilisant la multiplicité des masses extraites $(A_1, q_1, E_1) \equiv (A_2, q_2, E_2) \equiv \dots \equiv (A_k, q_k, E_k)$ comme sonde de la résolution en masse des GFM. Pour ce faire, l'aimant RED est isolé du Lohengrin via une feuille de polypropylène de 0,5 à 0,7 μm et rempli de gaz (He , N_2 , Ar , isobutane...). Dès lors, l'objectif est de mesurer la séparation spatiale des masses afin de quantifier les performances de ce type de spectromètre et de les comparer à la littérature [64, 65]. Principalement ces spectromètres sont utilisés pour étudier des noyaux légers produits par réaction de fusion-évaporation ou les noyaux super-lourds. Seules quelques études portant sur l'utilisation de ce type d'instrument pour l'étude des fragments eux-mêmes ont été réalisées par le passé [64]. L'objectif ici est d'évaluer les propriétés des GFM pour la dynamique « naturelle » en énergie des fragments de fission et non-post-accélérés. Dans la suite de cette section, nous présenterons les propriétés générales des GFM pour les fragments de fission puis discuterons de la faisabilité de deux projets autour de cet instrument. Le premier peut être vu comme un upgrade du Lohengrin (de manière non-permanente), le second propose un nouvel instrument pour l'étude des particules promptes, le projet FIPPS.

Ces travaux ont conduit à l'organisation en 2014 par le LPSC et l'ILL d'un workshop intitulé : Workshop on Gas Filled Magnets for Nuclear Fission and Fission Product Spectroscopy, ILL Grenoble - LPSC Grenoble - CEA Cadarache – CEA Saclay Grenoble, May 20-22, 2014 (lpsc.in2p3.fr/gfm).

3.4.1 Résultats de la caractérisation des GFM dédiés aux fragments de fission

Dans cette partie, seuls les principaux résultats sont présentés. Les techniques expérimentales, d'analyses et de simulations sont présentées en détail dans la thèse d'A.Chebboubi [3]. La figure 3.24 présente un schéma de principe de l'installation. Les fragments, par collision dans le gaz du GFM, vont tendre vers un équilibre en charge ionique le long de la trajectoire. Dès lors, la rigidité magnétique s'exprime comme une moyenne en vitesse et en charge suivant la relation :

$$B \cdot \langle \rho \rangle = A \cdot \left\langle \frac{V}{q} \right\rangle \quad (3.15)$$

où B est le champ magnétique appliqué, ρ le rayon de déviation, A la masse sélectionnée et $\frac{V}{q}$ le rapport instantané de la vitesse de l'ion sur la charge ionique. Cette dernière quantité est « quasi-indissociable » du fait des relations liant la charge moyenne et la vitesse de l'ion dans le gaz [40]. C'est donc la moyenne de ce rapport qui établit les performances des GFM. La dispersion en masse recherchée va dépendre de la dispersion du rapport $\left\langle \frac{V}{q} \right\rangle$. Les résultats du spectromètre Joseph [64] ont observé la dépendance de la rigidité en fonction de la masse et de la charge nucléaire suivante :

$$B \cdot \langle \rho \rangle \propto \frac{A}{Z^\alpha} \quad (3.16)$$

avec $\alpha \approx 2/3$.

9. Fission Product Prompt γ ray Spectrometer (FIPPS)

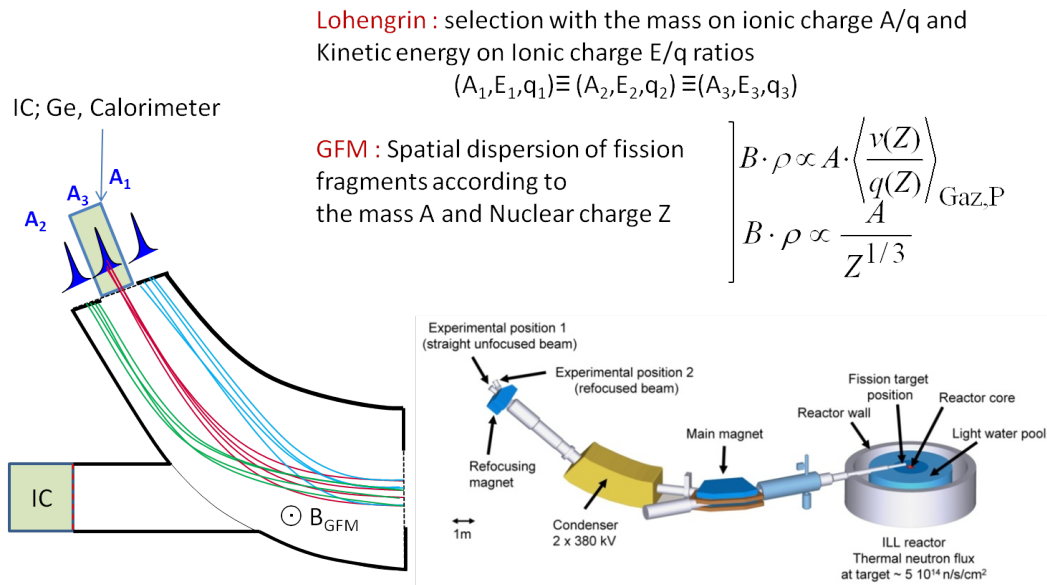


FIGURE 3.24 – Principe de la reconversion de l’aimant RED en GFM : une feuille de polypropylène ($0.5\mu\text{m} - 0.8\mu\text{m}$) est placée à la sortie du spectromètre (sous vide secondaire) pour isoler l’aimant RED (refocusing magnet).

Un premier test a été initialement réalisé avec de l’hélium en raison du faible straggling induit lors des collisions dans ce gaz. Les résultats sont présentés sur la figure 3.25 pour une pression de 40 mbar. Le spectromètre Lohengrin est réglé sur le rapport $A/q = 5$ pour avoir la série de masses 85, 90, 95, 100, 105. Lorsqu’il n’y a pas de gaz dans le dernier aimant, ces masses de même rapport A/q ont la même optique ionique, elles sont donc à la même position dans le plan focal. En présence de gaz dans le RED (donc en mode GFM), on observe que ces masses sortent du spectromètre pour des champs magnétiques du RED/GFM différents. On observe donc un éclatement du multiplet en position correspondant à une séparation isobarique du faisceau de produits de fission par Lohengrin. Nous observons dans des conditions qui ne sont pas les meilleures (cinq masses potentiellement dans la même image) que nous obtenons une séparation en position de l’ordre de 95% pour un faisceau extrait d’un centimètre de large.

La figure 3.26 présente les résultats de la mesure de la résolution en champ magnétique et donc en masse des GFM : $\Delta B/B = \Delta A/A$. Des mesures ont été réalisées avec différents gaz et les résultats sont présentés en fonction de la densité électronique en référence à l’azote. Ce graphique présente la comparaison entre trois gaz de masses très différentes. Nous constatons une grande cohérence des résultats contrairement à ce qu’on aurait déduit spontanément de la littérature [40, 64, 65]. Ces résolutions ont été mesurées par masse en utilisant une chambre d’ionisation ou par isotope en utilisant la spectrométrie γ sur l’état isomère μs du ^{98}Y . Les résultats présentent trois régions : la première à basse pression, décroissante, que l’on interprète comme une zone de fluctuation statistique des collisions. La seconde, pour une densité électronique entre $d_{el} \sim 0,5$ et $d_{el} \sim 1,5$ où les résolutions par masse et par isotope sont similaires. Cette zone correspond au maximum de séparation en masse dans le spectromètre. Au-delà d’une densité électronique de $d_{el} \sim 1,5$, on observe un élargissement de la résolution en masse alors que celle en isotope semble constante. Nous concluons que cette zone correspond au régime de séparation en charge nucléaire. Au delà d’une densité de 1.7, correspondant à une pression d’azote de $\sim 13\text{mbar}$, les ions ne sortent plus du spectromètre compte tenu de la perte d’énergie. Pour cette géométrie d’aimant, nous avons donc la limite expérimentale en pression.

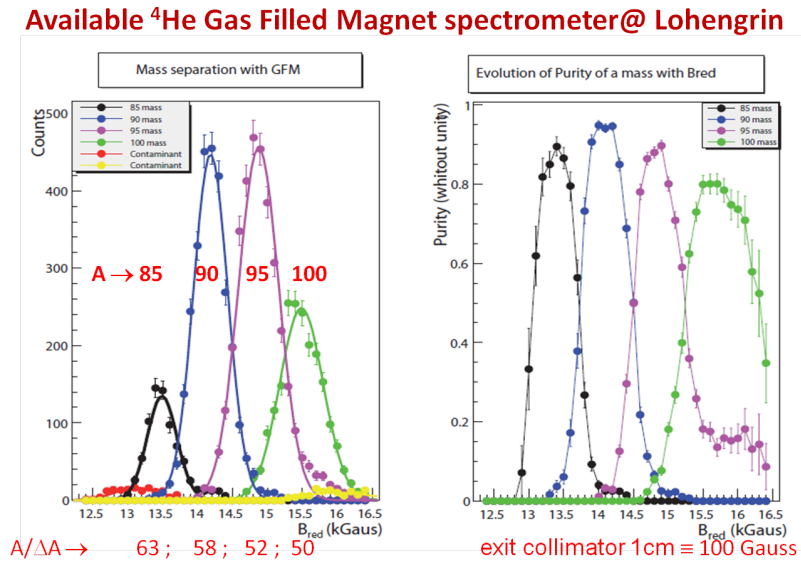


FIGURE 3.25 – Illustration du pouvoir de séparation d’un GFM : le graphique de gauche présente la distribution des ions extraits en fonction du champ magnétique appliqué dans le RED ; à droite la figure présente la pureté du faisceau extrait en fonction du champ magnétique appliqué pour un rapport $A/q = 5$ (non-idéal pour obtenir un maximum de pureté).

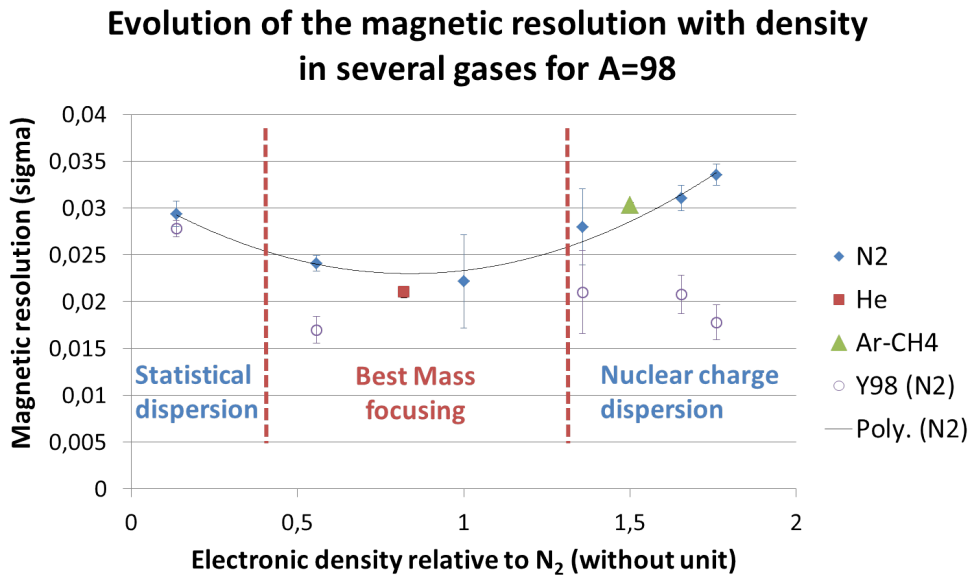


FIGURE 3.26 – Résolution magnétique des GFM pour trois gaz différents en fonction de la densité électronique relative à l’ N_2 . La résolution en masse a été mesurée avec $A=98$ dans l’azote (N_2), l’hélium (He) et l’argon-méthane (90%-10%) (Ar-CH4). La résolution isotopique a été mesurée avec ^{198}Y dans l’azote (N_2). La courbe « Poly. (N_2) est là pour guider l’oeil et correspond à l’ajustement d’un polynôme d’ordre 2 pour les mesures de résolution en masse ($A=98$) dans l’azote.

Un code de calcul de trajectoire de produits de fission a été développé au LPSC. Celui-ci est de type Monte Carlo et prend en compte la capture et la perte d'électrons des ions par collisions, la perte d'énergie par collisions atomiques et nucléaires et les incertitudes sur les paramètres afin de définir la plage de confiance du calcul à 1σ (68%). Pour des mesures dans l'azote, la littérature ne fournit pas la section efficace de double perte d'électrons. Selon Betz [40], celle-ci peut être approximée comme proportionnelle à la section efficace de perte d'un seul électron, mais ce coefficient de proportionnalité k_0 n'est pas fixé. Il sera donc un paramètre libre du code. Le second paramètre libre porte sur l'offset en pression de l'instrumentation. En effet, la mesure de pression autour du mbar par des jauges reste moins précise que les mesures de perte d'énergie par ions. Dès lors, nous nous sommes autorisés à recalculer les pressions dans un écart limité de 0,5 mbar (une seule fois pour toutes les mesures, bien évidemment). En pratique, ces deux paramètres ont été ajustés sur les données de la masse 98 à 90 MeV sur 12 points de mesures (Fig. 3.27 à gauche). La même figure à droite présente les résultats de la comparaison pour des masses et énergies différentes en fonction de la pression. On observe un très bon accord entre les calculs et les mesures pour la gamme des fragments légers. La limite de validation du code aux pressions inférieures à 11 mbar s'explique par le temps moyen entre deux collisions. Considérant la section efficace de collision et la vitesse de l'ion à chaque instant, il est possible d'en déduire le temps moyen entre deux collisions. Si celui-ci est plus petit que le temps de désexcitation de l'ion, on devrait alors considérer dans le calcul les sections efficaces en tenant compte de l'énergie d'excitation. Cette différence est donc assignée à un biais dans la modélisation de ces sections efficaces de collisions, ce qui limite la plage de validité du programme.

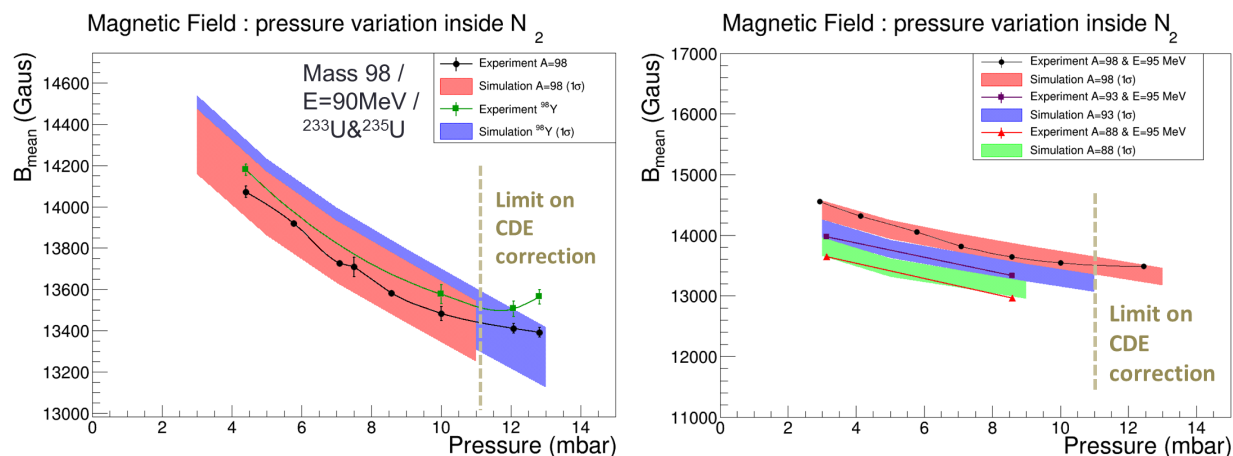


FIGURE 3.27 – (à gauche) Graphique illustrant la comparaison des mesures avec les calculs (à 1σ) après ajustement des paramètres libres du code. (à droite) Comparaison des calculs et de nouvelles mesures (indépendamment de l'ajustement).

Des mesures du champ magnétique moyen nécessaire pour extraire le faisceau sont présentées en fonction de l'énergie cinétique sur la figure 3.28 à gauche. Pour une direction d'entrée fixée par le Lohengrin, on observe que le faisceau est extrait avec quasiment le même champ magnétique pour toute la plage d'énergie des produits de fission. On peut alors conclure que le GFM est focalisant dans l'espace des phases ($\vec{P}; X$) en accord avec les mesures réalisées ($E_k + direction \vec{e}_x; B$) (cf. Fig. 3.28 à droite).

La dernière figure de ce paragraphe (Fig. 3.29) présente l'ajustement de la loi empirique (eq. 3.16) sur des mesures du $^{88}Br^m$, $^{98}Y^m$ et le $^{109}Ru^m$ qui a permis de déterminer l'exposant de cette loi : $\alpha \approx 0.64 \pm 0.02$. Nous obtenons une valeur en accord avec la littérature [64]. Ces mesures ont été réalisées à 7.2 mbar d' N_2 pour des ions à 90MeV. On observe un bon accord entre les mesures et les calculs pour la zone des fragments légers. Un dernier point de comparaison fait avec l' $^{123}Sn^m$ indique un décalage notable entre le calcul et la mesure. Cette différence n'est pas sans rappeler l'écart de calibration entre les fragments lourds et légers dans une chambre d'ionisation. On peut penser que la charge ionique des fragments lourds est bien évaluée compte

tenu des résultats obtenus sur la déconvolution des distributions en charge ionique (cf. § 3.3.2 & Fig. 3.21) qui illustre l'adéquation du modèle de H. D. Betz [40] avec nos mesures. Ce graphique 3.29 permet d'obtenir à la fois un indicateur de champ magnétique pour le pilotage de l'instrument et la multiplicité des masses filtrées pour l'utilisation du GFM sans la séparation du spectromètre Lohengrin en amont ce qui est indispensable pour le projet FIPPS.

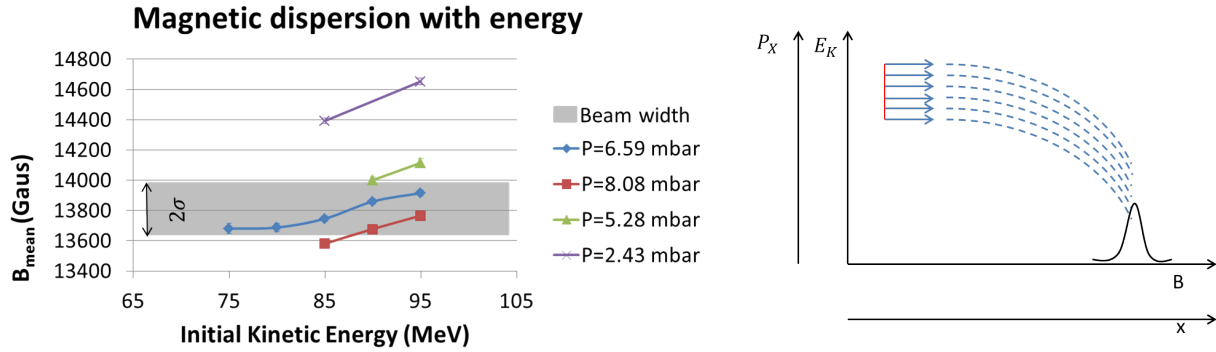


FIGURE 3.28 – (A gauche) Évolution du champ magnétique moyen en fonction de l'énergie des fragments. (A droite) Représentation des trajectoires dans l'espace des phases ($\vec{P}; X \equiv (E_k + \text{direction } \vec{e}_x; B)$).

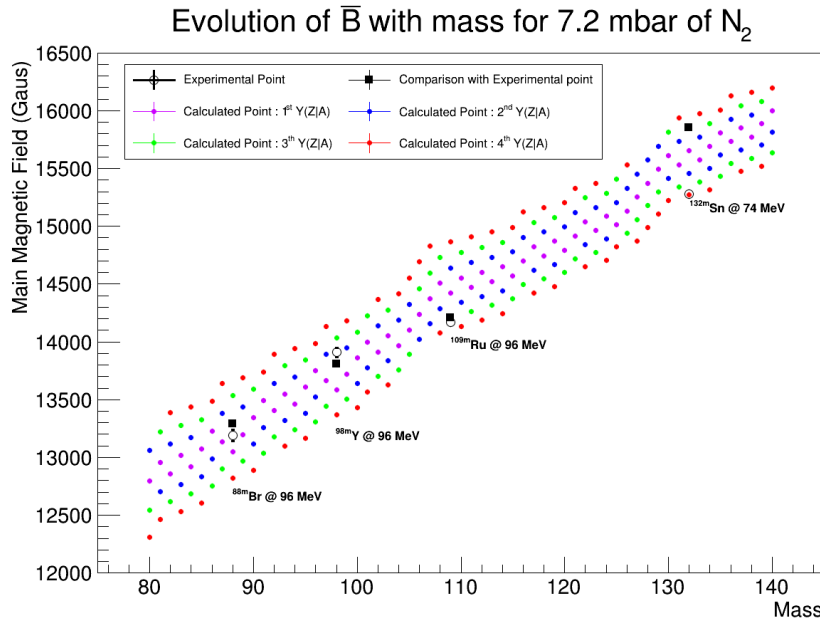


FIGURE 3.29 – Indicateur du champ magnétique en fonction de la masse pour le pilotage de l'instrument et la quantification de la multiplicité des masses filtrées pour l'utilisation du GFM sans le filtre en masse initial du spectromètre Lohengrin en amont.

3.4.2 Projet de ligne isobarique pour l'étude de la puissance résiduelle

Un premier projet porte sur l'utilisation du couplage de *Lohengrin* \otimes *GFM* pour l'étude de la puissance résiduelle. Ce projet pourrait aussi s'intituler « De l'anomalie neutrino à l'anomalie réacteur » ou pourquoi l'hypothèse du neutrino stérile est faible compte tenu de la validation récente du modèle standard, mais surtout de la faiblesse des bases de données nucléaires pour les noyaux riches en neutrons. La collaboration est bien placée pour observer le manque de données de structure nucléaire pour les « têtes de chaînes » des produits de fission pour lesquelles on ne connaît même pas les Branching Ratio β . Pour extraire les spectres d'anti-neutrinos, une des méthodes utilisées consiste à évaluer le spectre β via des états effectifs pour ajuster au mieux les spectres d'émissions connus [66, 67]. Les spectres d'anti-neutrinos sont obtenus par conversion des spectres effectifs. Cette méthode demande à avoir une parfaite mesure des spectres β sans distorsion en énergie. Que cette conversion soit faite pour le spectre β total d'un fissile ou par isotope puis convolué par les rendements, l'imprécision sur les mesures d'émission β, γ (appelée puissance résiduelle en physique des réacteurs) pourrait probablement expliquer ces différences de l'ordre de 6%. En effet les calculs de puissance résiduelle réalisés au CEA Cadarache [68] indiquent que l'incertitude sur la puissance résiduelle au premier instant après l'arrêt du réacteur varie de 2,5% à 16% si l'on ne fait varier que les corrélations entre les rendements. Pour ce calcul, les auteurs ne considèrent que les isotopes ayant une durée de vie non-négligeable devant 0,1 s, dimension de temps physiquement mesurable. Si l'on doit tenir compte de tous les isotopes de très courtes durées de vie, souvent à grand Q_β , l'incertitude attendue est encore plus importante. Il est donc peu probable que l'incertitude corresponde à l'estimation maximale, mais la confiance sur l'incertitude estimée est faible, remettant en cause la fiabilité de l'estimation de spectre β et donc des spectres d'anti-neutrinos. Les mesures intégrales de puissance libérée par isotope fissile, ou courbe élémentaire de fission, possèdent le même type de biais compte tenu du temps d'irradiation, des isotopes mesurés après arrêt du faisceau, des corrections de bruits de fond et de captures neutroniques sur le fissile lui-même ou sur les structures durant l'irradiation.

Néanmoins des travaux sur ^{233}U , il ressort que la matrice de corrélations des rendements est constituée de structures autour de valeurs nulles. Ces corrélations ont donc un impact non-négligeable sur la précision du spectre obtenue et compte tenu du nombre d'isotopes en jeu, l'incertitude sur le spectre β déduit ne peut être moindre de quelques %. Ce projet consiste en la mesure de deux types d'observables :

- la première consiste à réévaluer les rendements en masse (A) et en charge (Z) de $^{235}\text{U}(n, th)$ pour les deux pics en utilisant nos méthodes d'analyse et d'estimation de biais afin de générer une nouvelle « mesure évaluée » complètement indépendante de toutes mesures et évaluations ;
- le second point consiste à réaliser des mesures différentielles de spectres β et γ masse par masse en utilisant les faisceaux isobariques obtenus par le couplage *Lohengrin* \otimes *GFM*. Dès lors, moyennant un effort important pour caractériser un calorimètre β, γ dans un environnement difficile comme l'est Lohengrin, il serait possible de faire un Benchmark entre les calculs et les expériences de la puissance résiduelle libérée par masse.

Pour ce projet, il ne manque que la volonté d'amener le calorimètre adéquat avec les personnes ayant la compétence de ce type d'instrument pour réaliser ce programme.

3.4.3 Proposition de projet d'un nouvel instrument : FISSION Prompt Particule Spectrometer (FIPPS)

Le second objectif en lien avec l'étude des GFM porte sur le projet d'un nouvel instrument nommé FIPPS pour FISSION Product Prompt gamma ray Spectrometer [63]. Ce projet combine un spectromètre de masse à une spectrométrie γ de haute résolution (HPGE) et des détecteurs neutrons. Cet instrument permettra de mesurer sur une ligne de neutrons collimatés les cascades des rayonnements γ et neutrons prompts (énergie, multiplicité, distribution angulaire) du premier fragment en coïncidence avec l'identification en masse du second fragment. Pour cela l'instrumentation gamma ou neutron doit être placée au niveau de la cible d'actinide, ce qui n'est pas possible sur le spectromètre Lohengrin (puisque celle-ci est dans le réacteur). Pour ce faire, un fragment (A_1, Z_1) est arrêté dans le support de la cible alors que le second (A_2, Z_2) est potentiellement détecté par le filtre en masse. La méthode expérimentale est basée sur une triple coïncidence :

- une première coïncidence entre les spectres gamma et la masse filtrée doit permettre de réaliser une coupure dans les spectres gamma afin d'identifier des transitions discrètes de l'isotope ;
- sur les éléments sélectionnés, une seconde coïncidence est réalisée avec une raie discrète de (A_1, Z_1) entre les détecteurs Germanium, deux à deux, sur une fenêtre de temps de quelques ns.

Le spectre obtenu correspond alors au spectre de gamma prompts du couple (A_1, Z_1) & (A_2, Z_2) après correction des événements fortuits. Les deux limites de l'expérience sont le taux de comptage en lien avec la distribution de la réponse en temps des détecteurs (largeur en temps de la coïncidence) et le bruit de fond dû aux rayonnements ambiants et à l'accumulation de produits de fission dans la cible. Ainsi, l'interprétation de ces spectres obtenus doit se faire avec un code de désexcitation nucléaire prenant en compte les transitions discrètes comme le permet FIFRELIN. L'objectif est d'évaluer la distribution $P(J|E^*)$ via des méthodes similaires à celles développées pour les rapport isomériques.

Néanmoins, pour que ce dispositif soit réalisable, il est nécessaire d'avoir une identification en masse correcte couplée à une bonne efficacité de détection. Plusieurs solutions sont utilisables mais il faut se rappeler que dans notre cas, nous souhaitons arrêter un des deux fragments dans la cible pour limiter l'effet Doppler. Dès lors les solutions type $2E.2V$ (Spider [79], Falstaff [78], Steff [80]) sont à exclure et il est nécessaire de comparer les dispositifs utilisant un seul bras de détection. Il reste alors deux solutions envisagées :

- une identification EV via une mesure de l'énergie cinétique et du temps de vol du fragment. Obtenir une grande efficacité nécessite d'ouvrir les angles solides. Cela implique des corrections de perte d'énergie qui dépendent grandement de l'angle d'émission. En supposant une résolution en temps de 200ps, une mesure de l'énergie à 1% et une distance de vol de 50 cm, la résolution en temps ne peut être meilleure que 1.2% sans les incertitudes sur les corrections de la perte d'énergie et du straggling en énergie (dans les feuilles des détecteurs de temps de vol ou la fenêtre de la chambre). L'efficacité de détection d'un fragment pour un seul bras EV serait autour de $\varepsilon_f = 0,95\%$ pour un détecteur en énergie (chambre d'ionisation) de $15 \times 20 \text{ cm}^2$. Pour un tel angle solide, sans correction de la trajectoire des ions, la résolution ne peut être meilleure que $\sigma > 2\%$.
- une identification avec un GFM permet de focaliser le faisceau entrant au point focal du spectromètre. Pour une distance de 10 cm entre la cible et l'entrée du spectromètre, nous obtenons une efficacité de détection d'un fragment de l'ordre de $\varepsilon_f = 1.2\%$ pour une section d'entrée de $15 \times 20 \text{ cm}^2$ et une acceptation intrinsèque de 0.5. La résolution en masse est de $\sigma = 1.5\%$ conformément aux résultats précédents sur les GFM. Néanmoins pour avoir cette résolution en masse, il est nécessaire de connaître la direction d'entrée du fragment dans le spectromètre. Pour cela il est possible d'utiliser une chambre axiale avec une identification de la position (x, y) d'entrée dans le GFM via deux grilles orthogonales. Dans cette logique, la chambre axiale et la chambre d'ionisation à la sortie du GFM permettant d'identifier le fragment doivent idéalement fonctionner sans fenêtre (cf. Fig. 3.30).

A première lecture, on remarque une grande similarité entre les deux techniques. Néanmoins on remarquera que le GFM peut facilement être dimensionné pour une entrée de $15 \times 40 \text{ cm}^2$ suivant les études réalisées au LPSC par Emmanuel Froidefond (service accélérateur du LPSC). Cela double alors l'efficacité du dispositif. Pour la technique de temps de vol, cela est nettement plus compliqué d'augmenter l'angle solide sans détériorer la résolution. Le second point porte sur la propriété de focalisation des GFM qui permet de réaliser la spectrométrie des fragments sortants afin d'étudier, entre autres, les isomères ns directement. Cette possibilité serait un avantage notable pour le programme sur les rapports isomériques prévus par la collaboration.

A titre d'illustration, les taux de comptage prévus auprès des lignes de neutrons thermiques de l'ILL avec un flux minimum de $10^9 \text{ n}/(\text{cm}^2\text{s})$ et estimés avec un fissile de section efficace moyenne de 70b, une cible de 1 mg, une efficacité de 0.25% par cristal et une multiplicité gamma de 5 aboutissent aux taux de comptage suivants :

- 180 000 fissions par seconde dans la cible
- 2×3585 déclenchements par le GFM pas seconde

- 2x350 coïncidences (γ & ion) / clover / s
- 2x3.5 coïncidences (γ & ion) / clover / s par rendement de 1%

Les résultats du programme EXILL (Exogam@ILL) attestent déjà de la faisabilité du projet. La particularité de FIPPS porte sur le remplacement d'une triple coïncidence γ par une coïncidence $\gamma, \gamma, \text{ion}$. Celle-ci est indispensable pour les expériences sur la fission afin de pouvoir identifier l'énergie cinétique du fragment (via les chambres d'ionisation axiale et au point focal) et remonter aux distributions en énergie d'excitation-spin post émission neutron masse par masse. Un couplage de l'instrument avec des détecteurs neutrons permettrait d'extraire des mesures d'émission neutron par masse avec des incertitudes systématiques différentes des mesures usuelles type ($2E$) en coïncidence avec des détecteurs de neutrons [81].

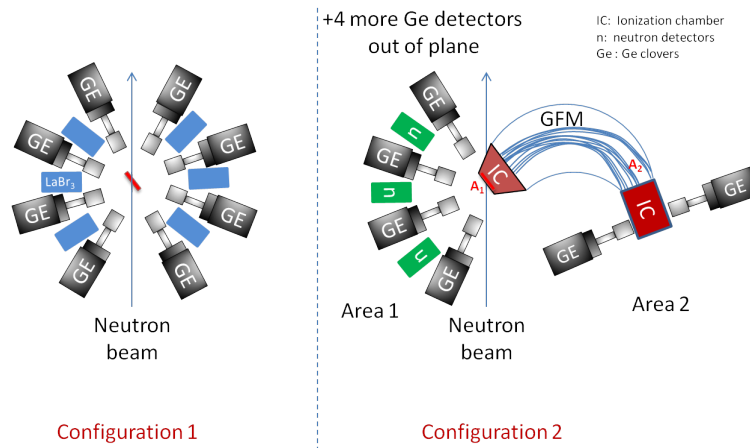


FIGURE 3.30 – Configuration envisagée pour le projet FIPPS. Les expériences dédiées à l'étude de la fission nécessitent l'usage d'un spectromètre de masse.

Le dimensionnement s'appuie sur la validation du programme de simulation développé au LPSC. Une première étude magnétique a été réalisée au LPSC permettant d'affirmer la faisabilité d'un champ magnétique de 2 Tesla sur un GAP d'aimant de 40 cm. Pour des raisons d'encombrement, ce projet nécessite des bobines supraconductrices. La stabilité souhaitée de 0,5% est garantie via des bobines complémentaires de part et d'autre de l'entrefer. Cette résolution est suffisante compte tenu de la dispersion naturelle dans les GFM de l'ordre de 1,5%

Si des mesures en spectres de neutrons thermiques à l'ILL permettent d'apporter de nouvelles informations sur le processus de fission pour les isotopes fissiles, le couplage de ce nouvel instrument à une source de neutrons rapides ouvrirait les études de fission à l'ensemble des actinides présents dans les cycles actuels ou innovants : U, Pu, Am, Cm. A côté de NFS ou NTOF, Grenoble pourrait offrir un positionnement intéressant. Le LPSC, à travers PEREN, dispose d'une des sources de neutrons rapides mono-énergétiques (3 MeV et 14 MeV) les plus intenses en France. Les études sur la protection neutronique de l'instrumentation sont en cours afin d'ouvrir la plateforme PEREN à cette thématique.

Conclusion

Ce mémoire sur la problématique des données nucléaires, développée à Grenoble dans le groupe de physique des réacteurs, présente le savoir faire acquis depuis fin 2010 sur les mesures de fragments de fission. Le premier chapitre s'intéresse aux besoins et aux particularités demandées par la thématique « énergie » à la description des observables usuelles de la physique nucléaire. En effet, si l'objectif premier des études de physique fondamentale est de comprendre les processus mis en œuvre via les méthodes et observables de choix, l'objectif des données nucléaires est non-seulement de comprendre et d'interpréter ces observables, mais de *qualifier* les évaluations à différentes échelles afin d'assurer qu'*en valeur absolue* celles-ci ne soient pas biaisées et que les incertitudes représentent une réalité. Cette particularité vient du fait que la physique des réacteurs se base sur les connaissances de ces données évaluées pour étudier la faisabilité de concepts comme la transmutation, le multi-recyclage, les cycles régénérateurs, etc... Ces données évaluées représentent la synthèse des connaissances tant du point de vue des expériences que des modèles. Le recours à des outils de métrologie n'est pas un refuge dans lequel les expérimentateurs souhaitent s'isoler, ces outils correspondent à des besoins pour évaluer la confiance des données et tester quantitativement les hypothèses des modèles. Ce premier chapitre met en évidence l'importance des variances-covariances dans cette démarche et propose des méthodes pour les estimer. Un point particulier est consacré aux covariances d'origine statistique illustrant l'importance d'identifier l'ensemble statistique dans lequel est réalisée la mesure. Ce dernier point est spécifiquement le cas dans la problématique des rendements de fission, objet principal de ce manuscrit.

Le deuxième chapitre est consacré à la problématique des mesures de rendements. L'accent a été mis sur le savoir-faire acquis auprès du spectromètre Lohengrin. Celui-ci est avant tout le résultat de la collaboration fructueuse avec le CEA et l'ILL qui nous ont mis le pied à l'étrier. Le cœur du travail porte sur le développement de méthodes d'analyses pour estimer les biais expérimentaux et les incertitudes systématiques. Ce travail reste nécessairement le préalable pour découvrir et appréhender un nouvel environnement, qui plus est dans le cas d'un séparateur hors du commun comme le Lohengrin.

De cette collaboration est née l'envie de développer des programmes nouveaux autour des rendements pour tester le processus de fission. Le chapitre 3 n'est pas la présentation de nos résultats, il est la démonstration de la faisabilité de ces projets. Pour l'instant rien n'est acquis, je dirais que l'on doit maintenant savoir faire quelque chose de propre et d'utile. Trois projets sont présentés.

Le premier propose de ré-explore la région symétrique comme sonde du processus de fission. Une analyse des distributions en énergie cinétique est discutée au regard des rendements de fission. L'apparition d'une double structure en énergie cinétique, robuste aux corrections et aux biais envisageables, semble prouver pour la première fois l'existence de modes dans la fission induite par neutrons thermiques des actinides (région des uraniums), comme cela avait été montré à haute énergie de neutrons ou dans la région des Fermiums. Ce résultat permet de valider une interprétation modale de la fission et d'initier une nouvelle génération d'évaluations incluant les modèles comme *prior* de l'analyse, ce qui n'est pas actuellement le cas pour les rendements. L'ajout d'un temps de vol auprès du Lohengrin permettra une identification par triple coïncidences $(\Delta E \times E) \times TOF$ afin d'exclure tous les doutes sur l'analyse et élargir ces études aux autres actinides

d'intérêt pour le cycle du combustible (isotopes d'uranium, plutonium, américium et curium) mesurables sur Lohengrin.

Le deuxième projet s'oriente vers un nouveau programme de mesures de rapports isomériques dans le but de redéfinir le moment angulaire emporté par les fragments de fission. L'objectif est de constituer une bibliothèque de données élargies afin de fournir des tests aux modèles utiles pour les évaluations. Ce programme entre dans le cadre de la modélisation des spectres de particules promptes (gamma et neutrons) émis par le combustible, modélisation pour laquelle la question du moment angulaire est centrale. Une analyse statistique permet d'extraire les distributions de probabilité (*pdf*) dans le plan moment angulaire - énergie d'excitation associées à chaque rapport isomérique. Cela permet d'analyser les chemins de désexcitation possibles et de mettre une contrainte forte sur le moment angulaire emporté par les fragments post-émission neutrons. Une discussion sur le cas de ^{132}Sn a permis d'illustrer des limites des modèles existants.

Le dernier projet représente les perspectives des travaux engagés sur les spectromètres magnétique gazeux (GFM). Deux axes s'ouvrent alors. Le premier axe propose le couplage d'un GFM au spectromètre Lohengrin afin de produire des faisceaux isobariques. L'objectif est de segmenter les mesures de puissance résiduelle dégagée par les produits de fission en réalisant des mesures par chaîne isobarique. L'augmentation du nombre d'observables (autant que le nombre de masses produites) et la modélisation des chaînes isobariques ne devraient permettre d'améliorer la précision de l'analyse en évitant les compensations d'erreurs afin d'identifier les noyaux pour lesquels les données de structure nucléaire et de décroissance sont incohérentes avec les mesures. Cela revient à faire une analyse semi-intégrale comme test de l'ensemble des données nécessaires à la thématique (structure, décroissance et de fission), à l'image de ce que est fait à l'échelle des réacteurs expérimentaux. Le second axe porte sur le développement d'un nouveau spectromètre (FIPPS) prévu pour étudier, entre autres, les spectres en énergie des particules promptes par fragment de fission. Celui-ci prévoit le couplage de détecteurs Germanium à un spectromètre GFM. Les connaissances et les outils développés pour ce type d'instrument ont permis de démontrer les conditions de faisabilité du projet. La complémentarité avec les mesures de rapports isomériques sera idéal pour tester et valider à la fois les modèles de générations de spin, de physique nucléaire et les connaissances en structure nucléaire.

L'accompagnement de doctorants dans ces réalisations est sans conteste la clé de la réussite. En tant que maître de conférences, l'ajustement du calendrier aux contraintes expérimentales est un effort de tous les instants. Durant les travaux de thèse d'Abdelaziz Chebboubi, nous avons réussi le tour de force d'effectuer, par deux fois, près de cent jours d'expériences par an (week-end compris) pour lesquels plus de la moitié des données ont été analysées ou le seront par le LPSC. Il est indéniable que l'adéquation encadrant-doctorant est un préalable pour garantir à la fois le confort et la puissance de travail nécessaire à ces programmes de données nucléaires de grande ampleur. La suite de ce programme me semble toute tracée et aujourd'hui nous pouvons nous satisfaire d'avoir ouvert suffisamment de portes pour nous laisser le choix dans l'orientation de nos activités durant les prochaines années.

Annexe A

Mesure d'une observable par méthode de coïncidence

- Analyse de l'incertitude associée - Distribution de probabilité associée à un ensemble

A.1 Méthodologie d'analyse

A.1.1 Calcul d'une observable par méthode de coïncidences

La mesure d'efficacité d'une chambre à fission est obtenue par la détection en coïncidence des fragments et des neutrons de fission : une chambre d'ionisation identifie les fragments de fission et un détecteur C6D6 détecte les rayonnements gamma et les neutrons. L'identification des neutrons est obtenue par une discrimination de forme des signaux (PSD). Le nombre de fragments de fission N_f (ou le nombre de neutrons N_n) détecté est donné par la relation suivante :

$$N_f = N_{ev} \cdot P_f \quad (\text{A.1})$$

où P_f (P_n) est la probabilité de détecter un fragment (neutron) i.e. son efficacité et N_{ev} le nombre d'événements de fission lors de l'expérience. Le nombre de coïncidences s'écrit alors :

$$N_c = N_{ev} \cdot P_n \cdot P_f = N_{ev} \cdot P_c \quad (\text{A.2})$$

où P_c est la probabilité de faire coïncidence neutron – fragment. L'efficacité de la chambre à fission ie sa probabilité de détecter le fragment s'écrit :

$$P_f = \frac{N_c}{N_n} \quad (\text{A.3})$$

Cette probabilité correspond au rapport de deux variables aléatoires associées des ensembles non-disjoints comme le montre la figure A.1.

A.1.2 Incertitude associée à ce type de mesures : distribution de probabilité associée à un ensemble

A.1.2.1 Positionnement du problème

Le calcul de l'incertitude sur la probabilité de détecter un fragment (ici identique à l'efficacité du détecteur dans ce problème) est obtenu en appliquant la théorie des perturbations généralisées [10] :

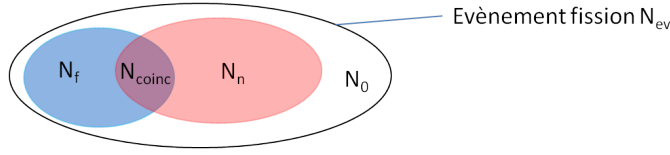


FIGURE A.1 – Ensembles représentant les évènements fission, fragments détectés, neutrons détectés. N_0 correspond aux évènements non détectés.

$$\frac{Var(p_f)}{(p_f)^2} = \frac{Var(N_c)}{(N_c)^2} + \frac{Var(N_n)}{(N_n)^2} - 2 \cdot \frac{Cov(N_c; N_n)}{N_c \cdot N_n} \quad (\text{A.4})$$

Pour déterminer l'incertitude sur la probabilité de détecter un fragment, il faut tout d'abord définir la loi de distribution associée aux différentes variables aléatoires correspondant au problème. Pour chaque détecteur pris isolément, on peut considérer qu'il y a deux issues au problème : soit la détection de l'évènement avec une probabilité p soit la non-détection avec une probabilité $(1-p)$. Dès lors la distribution associée à la variable aléatoire N_f (ou N_n ou N_c) est une distribution binomiale et la probabilité $P(k)$ de détecter k évènements s'écrit :

$$P(k) = C_{N_{ev}}^k p^k \cdot (1-p)^{N_{ev}-k} \quad (\text{A.5})$$

où N_{ev} est le nombre d'évènements réalisés (dans notre cas le nombre de fissions). La valeur moyenne de cette distribution et sa variance sont définies par les relations suivantes :

$$\bar{N} = N_{ev} \cdot p \xrightarrow{N_{ev} \rightarrow \infty} \mu \quad (\text{A.6})$$

$$Var(N) = N_{ev} \cdot p \cdot (1-p) \xrightarrow[p \ll 1]{N_{ev} \rightarrow \infty} N_{ev} \cdot p \xrightarrow{N_{ev} \rightarrow \infty} \mu \quad (\text{A.7})$$

où μ est la limite de la valeur moyenne mesurée lorsque le nombre d'évènements tend vers l'infini. Les relations (eq. A.7) permettent de retrouver dans le cas des faibles probabilités d'évènements, l'égalité de la variance et de la moyenne \bar{N} et donc la relation « classique » de l'écart-type en $\sqrt{\bar{N}}$. Dans ce cas, la loi binomiale tend vers une loi de Poisson d'où vient cette propriété usuellement utilisée. Dans la logique d'une mesure, en supposant que la probabilité de détecter un évènement soit faible devant l'unité, on considère que le taux de comptage mesuré est compatible avec la valeur moyenne μ à plus ou moins un (respectivement deux, trois...) écart type $\sigma = \sqrt{\bar{N}}$ dans $x\%$ (respectivement $y\%$, $z\%$...) des cas. Cette probabilité x que la mesure soit compatible avec la valeur limite μ à un sigma près dépend de la loi de distribution, a priori la loi de Poisson. Toutefois pour des temps de mesure longs et des statistiques importantes (\sim milliers), le théorème central limite permet de montrer que la loi de distribution des évènements tend vers une gaussienne de moyenne \bar{N} et d'écart-type $\sqrt{\bar{N}}$, héritage de la faible probabilité de détection. Pour une gaussienne, on obtient les niveaux de confiance bien connus :

$$P(\mu - \sigma \leq N \leq \mu + \sigma) \approx 68,3\% \quad (\text{A.8})$$

$$P(\mu - 2\sigma \leq N \leq \mu + 2\sigma) \approx 95,5\% \quad (\text{A.9})$$

$$P(\mu - 3\sigma \leq N \leq \mu + 3\sigma) \approx 99,7\% \quad (\text{A.10})$$

A.1.2.2 Ensembles d'évènements ne suivant pas une loi binomiale a priori

Si l'on s'intéresse aux évènements « fragment seul » (N_{fs}) ou « neutron seul » (N_{ns}), alors la loi de distribution n'est plus une binomiale puisque l'on écrit le dénombrement de ces évènements simples comme le produit de probabilités :

$$N_{fs} = N_{ev} \cdot p_f \cdot (1 - p_n) \quad (\text{A.11})$$

$$N_{fs} = N_{ev} \cdot p_n \cdot (1 - p_f) \quad (\text{A.12})$$

On se ramène à l'expression d'une binomiale en définissant la probabilité de « fragment seul » ou « neutron seul » comme suit :

$$N_{fs} = N_{ev} \cdot p_{fs} \quad (\text{A.13})$$

$$N_{fs} = N_{ev} \cdot p_{ns} \quad (\text{A.14})$$

Pour retomber sur une solution simple, on admet que **pour des probabilités faibles devant l'unité**, les événements simples suivent une loi de Poisson avec un écart-type en $\sqrt{\bar{N}}$. **Nota bene** : fondamentalement la *distribution n'est pas binomiale* et, par conséquent, pour des probabilités de détection non-négligeables devant l'unité, la loi de distribution est une loi multinomiale (donc pas simple) avec des corrélations non-négligeables entre les ensembles. Pour des probabilités $p_{fs} \ll 1$ & $p_{ns} \ll 1$, on pourra considérer les ensembles « fragment seul » ; « neutron seul » et coïncidence comme des ensembles disjoints et indépendants.

A.1.2.3 Approche a priori exacte : distribution multinomiale

Pour décrire correctement l'ensemble des événements N_f , N_c , N_n , il faut utiliser les distributions multinomiales. On définit un nombre m d'issues possibles au problème (au lieu de deux dans le cas binomial) correspondant aux possibilités de détection suivant le dispositif expérimental. Ainsi, dans le cas présent, quatre issues ($m=4$) nous intéressent pour décrire le problème :

- détection d'un fragment seul avec une probabilité : $p_{fs} = p_f \cdot (1 - p_n)$
- détection d'un neutron seul avec une probabilité : $p_{ns} = p_n \cdot (1 - p_f)$
- détection d'un événement coïncidence avec une probabilité : $p_c = p_f \cdot p_n$
- aucune détection de particule avec une probabilité : $p_0 = (1 - p_f) \cdot (1 - p_n)$

Pour chacune de ces issues, une variable aléatoire N_i est associée à chaque probabilité P_i avec $i = 1; \dots; m$. L'ensemble de ces probabilités et de ces événements vérifie les règles de sommes suivantes :

$$\sum_{i=1}^m p_i = 1; \quad \sum_{i=1}^m N_i = N_{ev} \quad (\text{A.15})$$

La probabilité d'avoir le multiplé (N_1, \dots, N_m) s'obtient par la relation suivante :

$$p(N_1, \dots, N_m) = \frac{N_{ev}!}{N_1! \dots N_m!} \cdot p_1^{N_1} \dots p_m^{N_m} \quad (\text{A.16})$$

Chacune des variables reste une variable binomiale dont les moyennes, les variances et les covariances sont définies ci-dessous :

$$\bar{N}_i = E[N_i] = N_{ev} \cdot p_i \quad (\text{A.17})$$

$$Var(N_i) = N_{ev} \cdot p_i \cdot (1 - p_i) \quad (\text{A.18})$$

$$Cov(N_i; N_j) = -N_{ev} \cdot P_i \cdot P_j \quad (\text{A.19})$$

La corrélation entre deux variables aléatoires s'écrit alors :

$$Corr(N_i; N_j) = \frac{Cov(N_i; N_j)}{\sqrt{Var(N_i) \cdot Var(N_j)}} = \frac{-P_i \cdot P_j}{\sqrt{p_i \cdot (1 - p_i) \cdot p_j \cdot (1 - p_j)}} \quad (\text{A.20})$$

Celle-ci dépend uniquement des probabilités partielles et non du nombre total d'évènements N_{ev} considéré.

A.1.2.4 Comparaison des différentes approches pour le calcul des incertitudes statistiques

Trois méthodes vont être proposées pour appréhender l'analyse des évènements correspondant à la figure (Fig. A.1). Le but de cette démarche est de définir les fluctuations statistiques expérimentales attendues partant d'un cas où les probabilités de détections des évènements sont connues.

* Première méthode : analyses des ensembles fragment et neutron

On vient de voir que la distribution des nombres de fragments N_f ou de neutrons N_n suivait strictement une loi binomiale. Par conséquent, quelles que soient les probabilités de détection, on peut calculer les écart-types respectifs. Toutefois, les deux ensembles n'étant pas disjoints, il existe une corrélation entre ces deux variables aléatoires. On peut écrire le nombre de fragments comme la somme des « fragments seuls » et des coïncidences :

$$N_f = N_{fs} + N_c \text{ \& } N_n = N_{ns} + N_c \quad (\text{A.21})$$

Dans le cas général, on obtient la relation générale suivant la théorie des perturbations :

$$Cov(N_c; N_n) = E[\Delta N_n \cdot \Delta N_c] = E[(\Delta N_c)^2] + E[\Delta N_c \cdot \Delta N_{ns}] = Var(N_c) + Cov(N_c; N_{ns}) \quad (\text{A.22})$$

Dans un premier temps, nous allons faire l'hypothèse que les sous-ensembles « coïncidence » et « neutron seul » sont indépendants. Nous verrons que la méthode 3 : analyse multinomiale, prend le contre-pied de cette analyse. On reviendra sur cette hypothèse d'indépendance (ou de non-corrélation) dans la partie « interprétation physique ». Dès lors, le terme de covariance entre N_c et N_n n'est formellement jamais nul :

$$Cov(N_c; N_n) = Var(N_c) \quad (\text{A.23})$$

Pour déterminer la variance du nombre de coïncidences, on se retrouve dans la discussion précédente sur la loi de distribution des variables aléatoires. Dans le cas où la loi de distribution des variables aléatoires suit une loi de Poisson, i.e. **pour des probabilités faibles d'évènements**, alors selon les équations (eq. A.4), (eq. A.7) et (eq. A.22) on obtient :

$$\frac{Var(p_f)}{(p_f)^2} = \frac{Var(N_c)}{(N_c)^2} + \frac{Var(N_n)}{(N_n)^2} - 2 \cdot \frac{Var(N_c)}{N_c \cdot N_n} \quad (\text{A.24})$$

$$\frac{Var(p_f)}{(p_f)^2} = \frac{1}{N_c} - \frac{1}{N_n} \text{ s.si Distribution Poisson} \quad (\text{A.25})$$

Dans le cas où les probabilités de détection sont non-négligeables devant l'unité et que les variables aléatoires suivent nécessairement une loi binomiale, alors l'incertitude sur la détection des fragments de fission devient selon les équations (eq. A.4), (eq. A.7) et (eq. A.22) :

$$\frac{Var(p_f)}{(p_f)^2} = \frac{(1-p_n)}{N_n} + \frac{(1-p_c)}{N_c} - 2 \cdot \frac{(1-p_c)}{N_n} \quad (\text{A.26})$$

* Deuxième méthode : analyses des ensembles fragment seul N_{fs} et neutron seul N_{ns}

Si l'on suppose les ensembles « fragment seul » N_{fs} , « neutron seul » N_{ns} , coïncidence N_c , ces ensembles ne suivent pas une distribution binomiale. Ces ensembles sont disjoints et il est possible de réécrire les ensembles fragments et neutrons comme une composition de ces derniers :

$$N_{ev} = N_{fs} + N_{ns} + N_c \quad (\text{A.27})$$

$$N_n = N_{ns} + N_c \text{ et } Var(N_n) = Var(N_{ns}) + Var(N_c) + 2 \cdot Cov(Var(N_{ns}; N_c)) \quad (\text{A.28})$$

$$N_f = N_{fs} + N_c \text{ et } Var(N_f) = Var(N_{fs}) + Var(N_c) + 2 \cdot Cov(Var(N_{fs}; N_c)) \quad (\text{A.29})$$

Dès lors, les termes de covariances entre N_{fs} , N_{ns} et N_c sont nuls :

$$Cov(Var(N_{ns}; N_c) = E[\Delta N_{ns}; \Delta N_c] = 0 ; \quad (\text{A.30})$$

$$Cov(Var(N_{fs}; N_c) = E[\Delta N_{fs}; \Delta N_c] = 0 ; \quad (\text{A.31})$$

$$Cov(Var(N_{ns}; N_{fs}) = E[\Delta N_{ns}; \Delta N_{fs}] = 0 ; \quad (\text{A.32})$$

et la variance de la probabilité de détecter un fragment (**ici l'efficacité de la chambre d'ionisation**) s'écrit selon l'équation suivante :

$$p_f = \frac{N_c}{N_n} + \frac{N_c}{N_{ns} + N_c} = \frac{1}{1 + \alpha} \text{ avec } \alpha = \frac{N_{ns}}{N_c} \quad (\text{A.33})$$

$$\frac{Var(p_f)}{(p_f)^2} = \left(\frac{\alpha}{1 + \alpha} \right)^2 \cdot \frac{Var(\alpha)}{\alpha^2} \quad (\text{A.34})$$

$$\frac{Var(\alpha)}{\alpha^2} = \frac{Var(N_{ns})}{(N_{ns})^2} + \frac{Var(N_c)}{(N_c)^2} = \begin{cases} \frac{1}{N_{ns}} + \frac{1}{N_c} & \text{si distributions de Poisson} \\ \frac{1-p_{ns}}{N_{ns}} + \frac{1-p_c}{N_c} & \text{si distributions binomiales} \end{cases} \quad (\text{A.35})$$

* Troisième méthode : distribution multinomiale

En décrivant l'ensemble fission par les sous-ensembles :

- «fragment seul» auquel est associée la variable aléatoire N_{fs} ;
- «neutron seul» auquel est associée la variable aléatoire N_{ns} ;
- «coïncidence» à auquel est associée la variable aléatoire N_c ;
- «nul» correspondant à aucune détection de particule d'un évènement fission on associe la variable aléatoire N_0 ;

alors les nombres de neutrons et de coïncidences et leur variance associée permettant de définir la probabilité de détecter un fragment de fission (**ici l'efficacité de la chambre d'ionisation**) s'obtiennent par les relations suivantes :

$$N_{ev} = N_{fs} + N_{ns} + N_c \quad (\text{A.36})$$

$$N_n = N_{ns} + N_c \text{ et } Var(N_n) = Var(N_{ns}) + Var(N_c) + 2 \cdot Cov(Var(N_{ns}; N_c)) \quad (\text{A.37})$$

$$Var(N_n) = N_{ev} \cdot p_{ns} \cdot (1 - p_{ns}) + N_{ev} \cdot p_c \cdot (1 - p_c) + 2 \cdot (-N_{ev} \cdot P_{ns} \cdot P_c) \quad (\text{A.38})$$

La probabilité de détecter un fragment et sa variance s'écrivent selon les équations ci-dessous :

$$p_f = \frac{N_c}{N_n} + \frac{N_c}{N_{ns} + N_c} = \frac{1}{1 + \alpha} \text{ avec } \alpha = \frac{N_{ns}}{N_c} \quad (\text{A.39})$$

$$\frac{Var(p_f)}{(p_f)^2} = \left(\frac{\alpha}{1 + \alpha} \right)^2 \cdot \frac{Var(\alpha)}{\alpha^2} \quad (\text{A.40})$$

$$\frac{Var(\alpha)}{\alpha^2} = \frac{Var(N_{ns})}{(N_{ns})^2} + \frac{Var(N_c)}{(N_c)^2} - 2 \cdot \frac{Cov(N_c; N_n)}{N_c \cdot N_n} \quad (\text{A.41})$$

$$\frac{Var(\alpha)}{\alpha^2} = \frac{N_{ev} \cdot p_{ns} \cdot (1 - p_{ns})}{(N_{ev} \cdot p_{ns})^2} + \frac{N_{ev} \cdot p_c \cdot (1 - p_c)}{(N_{ev} \cdot p_c)^2} - 2 \cdot \frac{-N_{ev} \cdot P_{ns} \cdot P_c}{N_{ev}^2 \cdot p_{ns} \cdot p_c} \quad (\text{A.42})$$

$$\frac{Var(\alpha)}{\alpha^2} = \frac{(1 - p_{ns})}{N_{ev} \cdot p_{ns}} + \frac{N_{ev} \cdot p_c \cdot (1 - p_c)}{N_{ev} \cdot p_c} + \frac{2}{N_{ev}} \quad (\text{A.43})$$

*Analyse des méthodes

Le tableau A.1 présente trois calculs d'incertitudes sur les probabilités de détection des fragments (Pf) pour trois probabilités différentes de détection dans la chambre d'ionisation. L'objectif est de montrer l'importance des hypothèses sur les variables aléatoires associées aux mesures dans l'évaluation des incertitudes statistiques. Pour les probabilités définies sur les deux premières lignes de chaque tableau (Tab. A.1), les taux de comptage attendus et leurs incertitudes sont calculés suivant les différentes méthodes. Les cases blanches correspondent aux valeurs associées aux variables aléatoires utilisées pour décrire le problème; les cases grisées correspondent aux variables reconstruites. Sur la partie de droite des tableaux, les valeurs de probabilités de détection des fragments (p_f) et leurs incertitudes relatives $\sigma(p_f)/p_f$ sont déterminées suivant les méthodes détaillées précédemment. Les valeurs d'incertitudes dans les cases jaunes représentent les calculs de référence *a priori* (méthode 3 - multinomiale) correspondant à la prise en compte exacte de la nature multinomiale des variables aléatoires N_{fs} , N_{ns} et N_c . Ces variables aléatoires ne sont pas nécessairement associées aux observables physiques¹ : dans notre cas, nous mesurons le nombre de fragments N_f , le nombre de neutrons N_n et le nombre de coïncidences N_c .

Incertainces sur les paramètres : Pour chacune des méthodes, les incertitudes associées aux paramètres ont été calculées que ce soient des observables d'analyses (cases blanches) ou des observables reconstruites (cases grises) : e.g. N_f n'est pas une variable aléatoire utilisée pour l'analyse multinomiale; cette variable est donc reconstruite à partir des variables N_{fs} et N_c en tenant compte des covariances définies par la distribution multinomiale. Pour une même variable aléatoire et une même valeur moyenne, suivant la méthode utilisée, on observe des différences entre les écart-types allant jusqu'à un facteur 9. Dans le cas où l'on s'intéresse au nombre de fragments détectés N_f avec une efficacité de détection de 0,9 (probabilité de détection $P_f = 0,9$), on observe que les analyses binomiales ou multinomiales² sont indispensables pour ne pas surestimer les incertitudes statistiques. Concernant le nombre de fragments seuls N_{fs} , on observe une grande dispersion des incertitudes suivant les méthodes. Un des biais de la méthode 1 est probablement issu de l'estimation ad hoc des corrélations entre les variables aléatoires N_f , N_n et N_c . Le tableau A.2 présente les corrélations entre les variables aléatoires définies dans l'analyse : (N_f, N_n, N_c) pour la méthode 1 et (N_{fs}, N_{ns}, N_c) pour les méthodes 2 et 3. Si l'on regarde les différences entre les écart-types calculés suivant les trois méthodes, on observera qu'il existe des différences notables uniquement lorsque les probabilités de détection sont non-négligeables et que les termes de corrélations divergent entre ces méthodes.

Incertainces sur les probabilités mesurées : Les deux premières méthodes dans l'approximation « poissonnienne » donnent, étonnamment, les mêmes résultats que la méthode multinomiale si l'on tient compte des covariances entre les paramètres. La méthode binomiale prévoit systématiquement une incertitude inférieure aux autres méthodes (dans le cas où les covariances entre les paramètres sont prises en compte). On observe une compensation d'erreurs qui est propre à cette analyse mais qui ne peut en aucun cas être généralisée. L'interprétation des corrélations est donc indispensable pour comparer les méthodes.

Interprétation des covariances des paramètres : Les définitions des termes des covariances dans le tableau A.2 pour la méthode 1 (eq. A.22) et pour la méthode multinomiale (méthode 3) (eq. A.17) aboutissent à des valeurs de covariances différentes mais surtout de signes opposés. Cette différence de signes vient du positionnement du problème physique par rapport aux modèles statistiques. La méthode 2, quant à elle, annule les corrélations par la construction d'ensembles disjoints auxquels sont associées les variables aléatoires N_{fs} , N_{ns} et N_c . Dans la loi multinomiale, la description des nombres de fragments seuls, de neutrons seuls et de coïncidences est étudiée pour un nombre d'événements fission N_{ev} donné. Autrement dit, en reproduisant un grand nombre de fois une expérience avec exactement N_{ev} événements fission, les répartitions des nombres de fragments, de neutrons et de coïncidences suivent chacune une loi binomiale (eq A.17) mais

1. Il est cependant à noter que la mesure en coïncidence et avec un veto permettrait de mesurer N_{fs} , N_{ns} et N_c et donc d'associer une variable aléatoire à chaque observable physique.

2. Dans le cas d'une distribution multinomiale, chaque variable reste une variable binomiale avec les mêmes relations pour les variances des variables aléatoires. La seule différence porte sur les covariances qui sont explicitement définies dans la loi multinomiale.

TABLE A.1 – Calculs des incertitudes suivant les différentes hypothèses avec des probabilités définies pour la détection des fragments (p_f) et des neutrons (p_n). Les cases blanches correspondent aux valeurs associées aux variables aléatoires utilisées pour décrire le problème; les cases grises correspondent aux variables reconstruites. A faible probabilité (tableau du haut), comme prévu, les incertitudes sont similaires; à probabilité de détection de fragment élevée (efficacité de la chambre d'ionisation autour de 90%) l'écart type sur le résultat varie énormément suivant les approximations réalisées. Le chiffre en rouge dans le tableau de droite donnant l'incertitude sur la probabilité de fission (ici l'efficacité de la chambre d'ionisation) est l'incertitude la plus crédible car a priori aucune approximation n'est réalisée.

Paramètres		Pf	Pn	Pc = Pf.Pn	Pfs = Pf(1-Pn)	Pns = Pn(1-Pf)
		0,1	0,1	0,01	0,09	0,09
Variables	Nev	Nf	Nn	Nc	Nfs	Nns
aléatoires	1000	100	100	10	90	90
Méthode 1	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ Poisson	0,100	0,100	0,316	0,105	0,105
	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ binomiale	0,095	0,095	0,315	0,099	0,099
Méthode 2	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ Poisson	0,100	0,100	0,316	0,105	0,105
	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ binomiale	0,100	0,100	0,315	0,101	0,101
Méthode 3	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ multinomiale	0,095	0,099	0,315	0,101	0,101

Pf mesurée	$\sigma(\text{Pf})/\text{Pf}$	
	Avec Cov	Sans Cov
0,1	0,3000	0,3317
0,1	0,2970	0,3286
0,1	-	0,3000
0,1		0,2973
0,1	0,3000	-

Paramètres		Pf	Pn	Pc = Pf.Pn	Pfs = Pf(1-Pn)	Pns = Pn(1-Pf)
		0,5	0,1	0,05	0,45	0,05
Variables	Nev	Nf	Nn	Nc	Nfs	Nns
aléatoires	1000	500	100	50	450	50
Méthode 1	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ Poisson	0,045	0,100	0,141	0,047	0,141
	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ binomiale	0,032	0,095	0,138	0,032	0,130
Méthode 2	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ Poisson	0,045	0,100	0,141	0,047	0,141
	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ binomiale	0,034	0,117	0,138	0,035	0,138
Méthode 3	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ multinomiale	0,031	0,115	0,138	0,035	0,138

Pf mesurée	$\sigma(\text{Pf})/\text{Pf}$	
	Avec Cov	Sans Cov
0,5	0,1000	0,1732
0,5	0,0949	0,1673
0,5	-	0,1000
		0,0975
0,5	0,1000	-

Paramètres		Pf	Pn	Pc = Pf.Pn	Pfs = Pf(1-Pn)	Pns = Pn(1-Pf)
		0,9	0,1	0,09	0,81	0,01
Variables	Nev	Nf	Nn	Nc	Nfs	Nns
aléatoires	1000	900	100	90	810	10
Méthode 1	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ Poisson	0,033	0,100	0,105	0,035	0,316
	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ binomiale	0,011	0,095	0,101	0,004	0,285
Méthode 2	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ Poisson	0,033	0,100	0,105	0,035	0,316
	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ binomiale	0,015	0,131	0,101	0,015	0,315
Méthode 3	$\sigma(\text{Ni})/\text{Ni}$ multinomiale	0,010	0,128	0,101	0,015	0,315

Pf mesurée	$\sigma(\text{Pf})/\text{Pf}$	
	Avec Cov	Sans Cov
0,9	0,0333	0,1453
0,9	0,0302	0,1382
0,9	-	0,0333
		0,0330
0,9	0,0333	-

TABLE A.2 – Comparaison des corrélations des variables aléatoires suivant les différentes méthodes d'analyse pour deux jeux de probabilités différentes : $(p_f; p_n) = (0, 1; 0, 1)$ en haut, $(p_f; p_n) = (0, 9; 0, 1)$ en bas. Dans la colonne de droite du second tableau, la variation de la corrélation entre les nombres de fragments et de coïncidences vient directement de l'évaluation de l'incertitude sur le nombre de fragments N_f (voir Tab. A.1).

	covariances des variables utilisées		covariances des variables utilisées	
Méthode 1 Poisson	corr (Nn;Nc)	0,32	corr (Nf;Nc)	0,32
Méthode 1 Binomiale	corr (Nn;Nc)	0,33	corr (Nf;Nc)	0,33
Méthode 2	corr(Nns;Nc) défini égale à 0		corr(Nns;Nc) défini égale à 0	
Méthode 3	corr (Nns;Nc)	-0,03	corr (Nfs;Nc)	-0,03
	covariances des variables utilisées		covariances des variables utilisées	
Méthode 1 Poisson	corr (Nn;Nc)	0,95	corr (Nf;Nc)	0,32
Méthode 1 Binomiale	corr (Nn;Nc)	0,95	corr (Nf;Nc)	0,95
Méthode 2	corr(Nns;Nc) défini égale à 0		corr(Nns;Nc) défini égale à 0	
Méthode 3	corr (Nns;Nc)	-0,03	corr (Nfs;Nc)	-0,65

la variation d'un paramètre à N_{ev} constant implique une variation opposée des autres paramètres, ce qui se traduit par des termes de covariances négatifs comme définis dans cette loi statistique (eq A.17). Dans la méthode 1, la construction des variables aléatoires est réalisée sur les observables physiques détectées ie le nombre de fragments N_f , de neutrons N_n et de coïncidences N_c . Dans cette méthode, on suppose qu'une variation d'une des observables, par exemple N_f , entraîne une variation du nombre d'évènements fission N_{ev} . Par conséquent, une variation du nombre de fragments détectés peut entraîner une variation du nombre de coïncidences et donc du nombre de neutrons; cela implique une covariance définie positive dans cette interprétation (eq A.22). La différence sur les valeurs des corrélations (eq A.20) vient de l'évaluation des variances des paramètres suivant une distribution binomiale ou poissonnienne (Tab. A.2). Dans une analyse où on choisit de sélectionner un nombre d'évènements N_{ev} donné, c'est une loi multinomiale qu'il faut appliquer. C'est typiquement le cas pour les mesures relatives (eg : l'analyse en physique des particules ou plus généralement des mesures en coïncidence). La méthode d'analyse adaptée est donc naturellement la méthode multinomiale.

Dans les mesures réalisées dans notre domaine, la reproductibilité des expériences ne passe pas par la sélection de plusieurs groupes d'évènements fission N_{ev} mais par la sélection de N_f , N_n ou N_c en vue de définir la distribution du nombre d'évènements fission N_{ev} estimé. L'observable N_{ev} est dès lors une observable reconstruite qui ne suit pas a priori une loi de distribution binomiale mais qui est le résultat de la convolution de la distribution du nombre moyen de particules détectées (N_f , N_n ou N_c) et de la probabilité de détecter cette particule (p_f , p_n ou p_c). Dans ce cas-ci, l'analyse suivant la méthode 1 semble plus en adéquation avec la méthode expérimentale pour réaliser des mesures absolues. Autrement dit, les mesures à N_f ou N_n ou N_c fixé (ie physiquement le trigger de l'acquisition) diffèrent dans leur analyse statistique et leur interprétation des mesures réalisées à $N_{fs} + N_{ns} + N_c = N_f + N_n - N_c = N_{ev}$ fixé. Il est donc nécessaire de fixer les variables aléatoires du problème aux observables physiques mesurées.

Méthodologie d'analyse :

La première constatation qui n'a été qu'à peine évoquée est la nécessité absolue de prendre en compte les covariances des paramètres sous peine de biaiser l'évaluation des écart-types même à faibles probabilités. Pour des détecteurs de faible efficacité, le calcul le plus simple et le plus proche du calcul exact correspond au cas où l'on associe/considère une *distribution de Poisson* aux variables aléatoires associées aux taux de comptage « simples » (Nfs, Nns et Nc) (méthode 2) en supposant ces distributions *indépendantes*. Pour des détecteurs de grande efficacité, il est indispensable d'utiliser la loi exacte de la variable aléatoire associée à une observable donnée. Le choix des observables expérimentales doit être judicieux afin de limiter l'impact des corrélations dans l'estimation des paramètres (cf. Tab. A.1 différences des variances de N_f et N_{fs} suivant les méthodes) :

- par exemple, pour l'évaluation des taux de comptage nécessaires à l'analyse des sections efficaces (nombre de fragments N_f , nombre de neutrons N_n , etc...), l'utilisation de l'analyse binomiale est indispensable pour estimer au plus juste les incertitudes statistiques. Dès lors, pour une expérience avec des détecteurs de grande efficacité non-segmentés, il faut être en mesure d'évaluer non seulement les taux de comptage (N_i) utiles à l'analyse mais aussi la probabilité (p_i) de détecter les événements afin d'extraire l'incertitude sur les résultats obtenus. L'électronique du dispositif doit donc être prévue pour mesurer in situ ces probabilités avec la géométrie et les cibles d'actinides qui serviront in fine à l'expérience.
- dans le cas de mesures relatives comme l'est la mesure d'une probabilité de détecter une particule par méthode de coïncidence, les différentes méthodes donnent un même résultat par le jeu des compensations d'erreurs via les termes de covariances. Dans ce cas, La méthode 2 ne présente pas de biais dès lors que les variances binomiales sont respectées. En annexe, un calcul identique au tableau A.1 pour un nombre d'évènements $N_{ev} = 10\,000$ est présenté.

Pour les expériences menées sur le ^{233}U à Geel avec la multi-chambre d'ionisation de grande efficacité, il est nécessaire de faire les calculs en ne faisant pas d'hypothèses erronées sur les lois de distribution des variables aléatoires associées aux observables sachant que la probabilité de détection des fragments est proche de l'unité. Le calcul des variances par la méthode 1 suivant la loi binomiale est incontournable. Dans le cas général, les équations suivantes indiquent le lien entre les grandeurs mesurées (moyenne et variance) et le nombre d'évènements fission ainsi que la probabilité de détection des fragments [1] :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{N}_f = N_{ev} \cdot p_f \\ \text{Var}(N_f) = N_{ev} \cdot p_f \cdot (1 - p_f) \end{array} \right\} \rightarrow \left\{ \begin{array}{l} p_f = 1 - \frac{\text{Var}(N_f)}{\bar{N}_f} \\ N_{ev} = \frac{\bar{N}_f^2}{\bar{N}_f - \text{Var}(N_f)} \end{array} \right. \quad (\text{A.44})$$

Pour ces expériences, la connaissance du nombre moyen et la probabilité de détection des fragments, est indispensable pour extraire l'incertitude sur le nombre de fragments détectés et le nombre d'évènements fission N_{ev} qui se sont produits durant l'expérience :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{N}_f = E[N_f] \equiv N_{ev} \cdot p_f \\ p_f = \frac{N_c}{N_n} \equiv 1 - \frac{\text{Var}(N_f)}{\bar{N}_f} \end{array} \right\} \rightarrow \left\{ \begin{array}{l} \text{Var}(N_f) = \bar{N}_f(1 - p_f) \\ N_{ev} = \frac{\bar{N}_f}{p_f} \end{array} \right. \quad (\text{A.45})$$

Interprétation physique de l'ensemble de travail pour une expérience donnée :

Dans cette partie, nous revenons sur l'interprétation physique de l'hypothèse $\text{cov}(N_c; N_{ns}) = 0$ des équations (eq. A.22) et (eq. A.23). Ce terme de covariance varie si l'on se place dans un ensemble où le nombre d'évènements N_{ev} est connu (contraint) ou non :

- si le nombre d'évènements N_{ev} est connu, on est sur une approche multinomiale et par conséquent une augmentation d'un sous-ensemble engendrera une diminution des autres sous-ensembles. Ainsi, la distribution multinomiale possède des termes de covariances négatifs entre sous-ensembles (cf. Fig. A.2 en haut). L'interprétation physique correspond au fait que l'on travaille à un nombre total d'évènements fixé, N_{ev} , équivalent à un volume fixé. Une autre façon de voir le problème correspond au fait que l'on peut rajouter une contrainte supplémentaire car l'on connaît le nombre total d'évènements : c'est la règle de somme $N_f + N_n + N_0 = N_{ev} = \text{cte}$. L'illustration parfaite correspond à l'analyse dans des expériences de physique de particules où il est possible de définir le nombre de collisions réalisées durant l'expérience afin d'analyser les différents canaux de désintégration.

- si dans un autre cas, on ne sait pas le nombre d'évènements au total, alors on se place dans une approche où toutes les variables aléatoires sont binomiales (cf. Fig. A.2 en bas). Ce faisant, il est possible d'avoir le nombre d'évènements détectés mais il est impossible d'avoir une certitude sur le nombre total d'évènements N_{ev} . Par conséquent il n'est pas possible de fixer une contrainte (règle de somme) sur ce nombre N_{ev} . Ainsi, on se place dans le cas où une fluctuation d'un sous-ensemble fera augmenter le nombre d'évènements détectés et le nombre total d'évènements N_{ev} . La règle de somme incomplète est la suivante $N_f + N_n = N_{ev} - N_0$

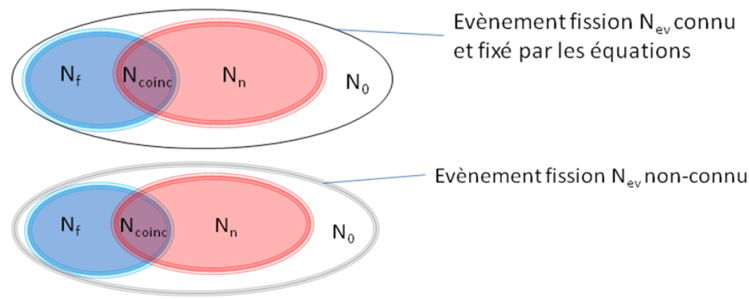


FIGURE A.2 – (en haut) Schéma illustrant la **contrainte imposée** par la connaissance du nombre total d'événements N_{ev} . Les fluctuations sont illustrées par les traits dédoublés; le trait plein illustre la contrainte sur le nombre total d'événements. Dans ce cas, la règle de somme s'applique pour la méthode 1 ($N_f + N_n + N_0 = N_{ev} = cte$) est complète ou de manière identique pour les méthodes 2 et 3 $N_{fs} + N_{ns} + N_c + N_0 = N_{ev} = cte$. Dans ce cas, le nombre total d'événements est fixé par l'expérience (si on utilise cette information).

(en bas) Schéma illustrant **l'absence de contrainte** imposée par la connaissance partielle du nombre total d'événements détectés (et non créés) $N_f + N_n$. Les fluctuations sont illustrées par les traits dédoublés. Dans ce cas, la règle de somme qui s'applique pour la méthode 1 ($N_f + N_n = N_{ev} - N_0$) est incomplète (ou de manière identique pour les méthodes 2 et 3, $N_{fs} + N_{ns} + N_c = N_{ev} - N_0$). Dans ce cas, le nombre total d'événements ne peut être fixé par l'expérience.

et on fait l'hypothèse de ne pas la fixer. L'analogie physique correspond au fait que l'on ne contraint pas le volume du système, ce qui revient à définir les sous-ensembles comme indépendants.

Dans les deux cas, on modélise par des hypothèses différentes l'ensemble de travail. A mon sens, dans nos expériences, on ne connaît pas le nombre de fission mais uniquement le nombre de fragments détectés pour les expériences induites par neutrons. Pour les expériences en transfert (voir ci-dessous), on connaît certes le nombre de particules légères détectées nommées « singles », mais le sous ensemble "coïncidence" dépend de l'ensemble fragment détecté, ensemble qui n'est pas inclus dans l'ensemble "Singles". Par conséquent, on doit placer le problème dans l'ensemble des événements « transfert » totaux qui n'est pas accessible car on ne mesure pas les « Singles » dans 4π stéradian avec une efficacité de 1. On est encore une fois dans une série de sous-ensembles sans pouvoir contraindre le nombre total d'événements; ie le volume de l'ensemble global de travail n'est pas contraint. Tout le problème revient à écrire l'équation de l'analyse et d'analyser les contraintes. Après, il « suffit » de propager les incertitudes dans le schéma imposé.

Conclusion

L'objectif de cette étude est de vérifier les calculs sur les incertitudes statistiques dans un cas connu puisque les probabilités d'événements sont définies. Les résultats obtenus montrent que les évaluations des écart-types statistiques selon les différentes méthodes sont cohérentes lorsque l'on se place dans le cas où les probabilités de détecter des événements sont faibles devant l'unité. Ce dernier point valide l'utilisation d'une loi de poisson pour décrire ces événements. Lorsque l'on s'écarte des probabilités faibles devant l'unité, le recours aux distributions binomiales et multinomiales est indispensable pour évaluer correctement les variances et les corrélations des paramètres statistiques. Le choix de la méthode d'analyse statistique doit être fait en parfaite adéquation avec les observables physiques mesurées et les observables reconstruites in fine. L'utilisation aveugle d'une règle de propagation des incertitudes est à l'origine de biais dans l'évaluation des incertitudes statistiques. Ceci peut générer « des cohérences » ou des « régularités » dans les matrices de covariances comme on l'a observé dans les mesures de section efficace de fission de ^{243}Am . Ces régularités s'expriment par des déterminants nuls associés aux matrices de covariances des données qui nécessitent une « régularisation » pour les utiliser dans l'évaluation des données. Il est cependant aussi probable que ces «

régularités » soient le résultat d'une construction ab initio de ces covariances.

Nous noterons par ailleurs que ces notions d'ensemble fermé par définition s'appliquent exactement aux mesures de rendements de fission normalisés à 2 par définition.

A.2 Illustration sur les mesures de probabilités de fission par réactions de transfert

Ce même calcul est réalisé pour les expériences en transfert avec cette fois-ci une probabilité de fission du noyau suivant la relation :

$$P_f = \frac{N_c}{N_{part} \cdot \epsilon_f} \quad (\text{A.46})$$

où ϵ_f est l'efficacité du détecteur fission, N_{part} le nombre de particules légères détectées et N_c le nombre de coïncidences fragments - particules légères mesuré dans l'expérience. Dans le tableau A.3, les calculs analogues au tableau A.1 sont présentés pour cette expérience. On observe un très bon accord entre le calcul suivant la loi binomiale et l'approximation poissonnienne en supposant ces variables aléatoires indépendantes. Ceci vient du fait que les probabilités de détecter une particule légère ou de faire une coïncidence sont extrêmement faibles.

Les tableaux Tab. A.3 & Tab. A.4 présentent les résultats sur les incertitudes des variables aléatoires associées aux quantités mesurées constituant un des éléments dans la détermination des matrices de covariances de ce type d'expérience [12].

TABLE A.3 – Calcul de l'incertitude statistique associée à la mesure de probabilité de fission par réaction de transfert. Là encore, l'approximation de la loi binomiale associée aux variables aléatoires par une loi de Poisson en considérant l'indépendance de ces variables aléatoires (pas de terme de covariance) reste la méthode approximée la plus juste. On retrouve la loi de propagation des incertitudes qui présuppose une indépendance des variables statistiques y compris dans le cas d'évènements en coïncidence.

Paramètres	Proba-fission	efficacité det fission Eff	Pp	Pc = Pf.Pp.Eff	Pfs = Eff(1-Pp)	Pps = Pp(1-Pf)
	0,6	0,457	0,0012	0,00033	0,2739	0,0009

Variables aléatoires	Nev	Nf	Npart	Nc	Nf_s	Npart_s
	1000000	4570000	12205	3347	2738653	8859

Méthode	σ(Ni)/Ni	σ(Pf)/pf	
		Avec Cov	Sans Cov
Méthode 1	Poisson	0,0147	0,0195
	binomiale	0,0147	0,0195
Méthode 2	Poisson	-	0,0147
	binomiale		0,0147
Méthode 3	multi-nomiale	0,0147	-

TABLE A.4 – Calcul de termes de corrélations entre les paramètres de l'analyse.

	covariances des Variables utilisées		covariances des Variables utilisées	
Méthode 1 poisson	corr (Npart;Nc)	0,52	corr (Nf;Nc)	0,03
Méthode 1 Binomiale	corr (Npart;Nc)	0,52	corr (Nf;Nc)	0,04
Méthode 2	corr(Nns;Nc) défini égale à 0		corr(Nns;Nc) défini égale à 0	
Méthode 3	corr (Nns;Nc)	0,00	corr (Nfs;Nc)	-0,01

Annexe B

Exemples de distributions en charges ioniques par isotope

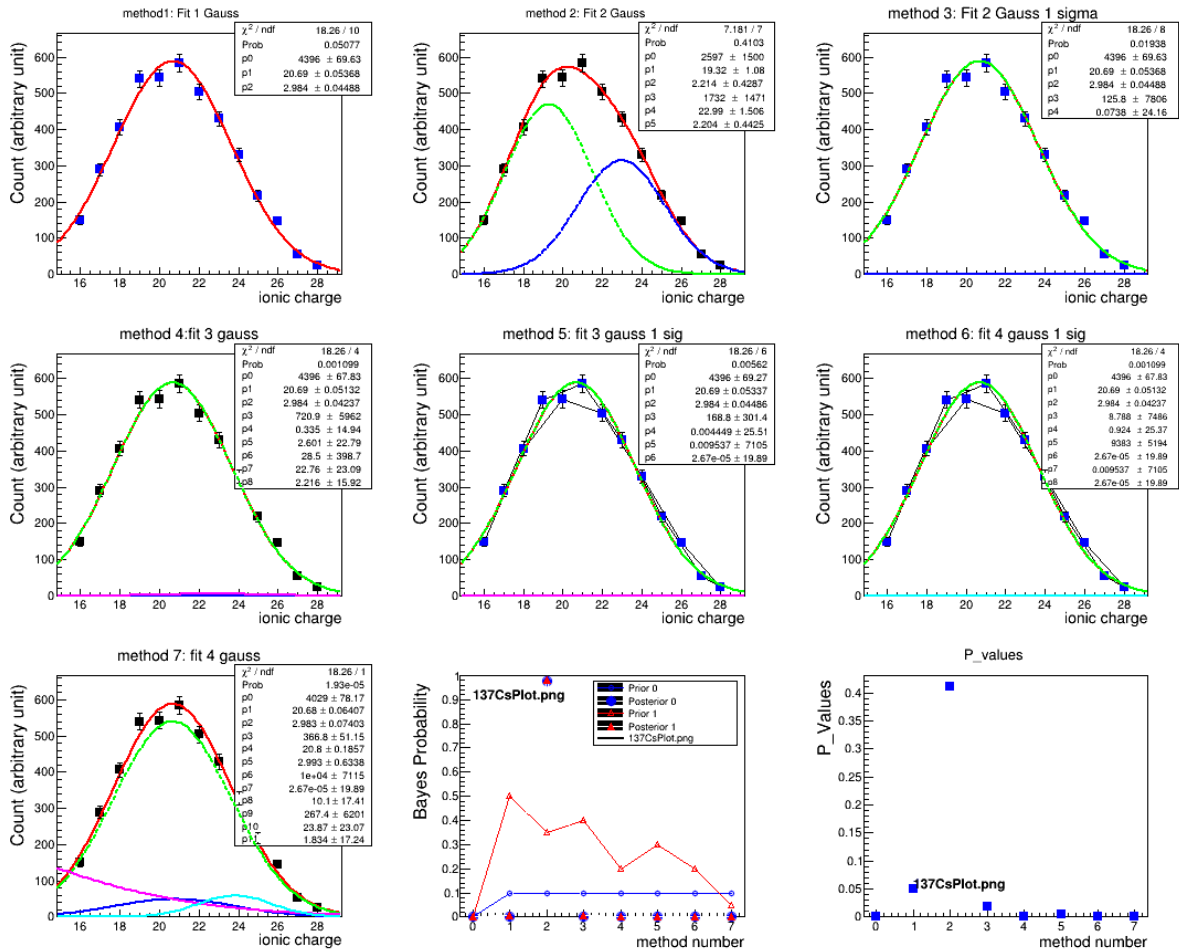
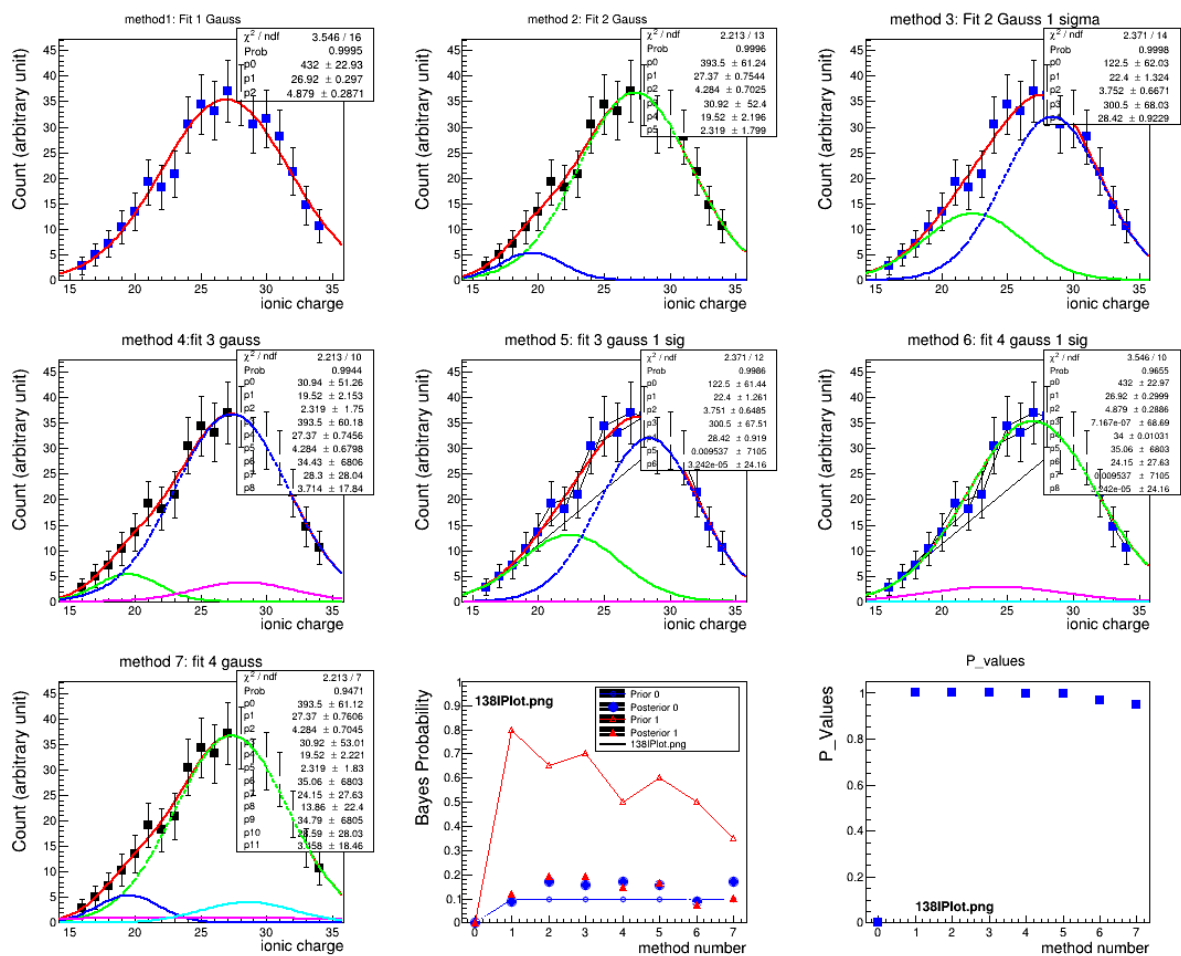


FIGURE B.1 – Déconvolution de la distribution en charge ionique du ^{137}Cs .

FIGURE B.2 – Déconvolution de la distribution en charge ionique du ^{138}I .

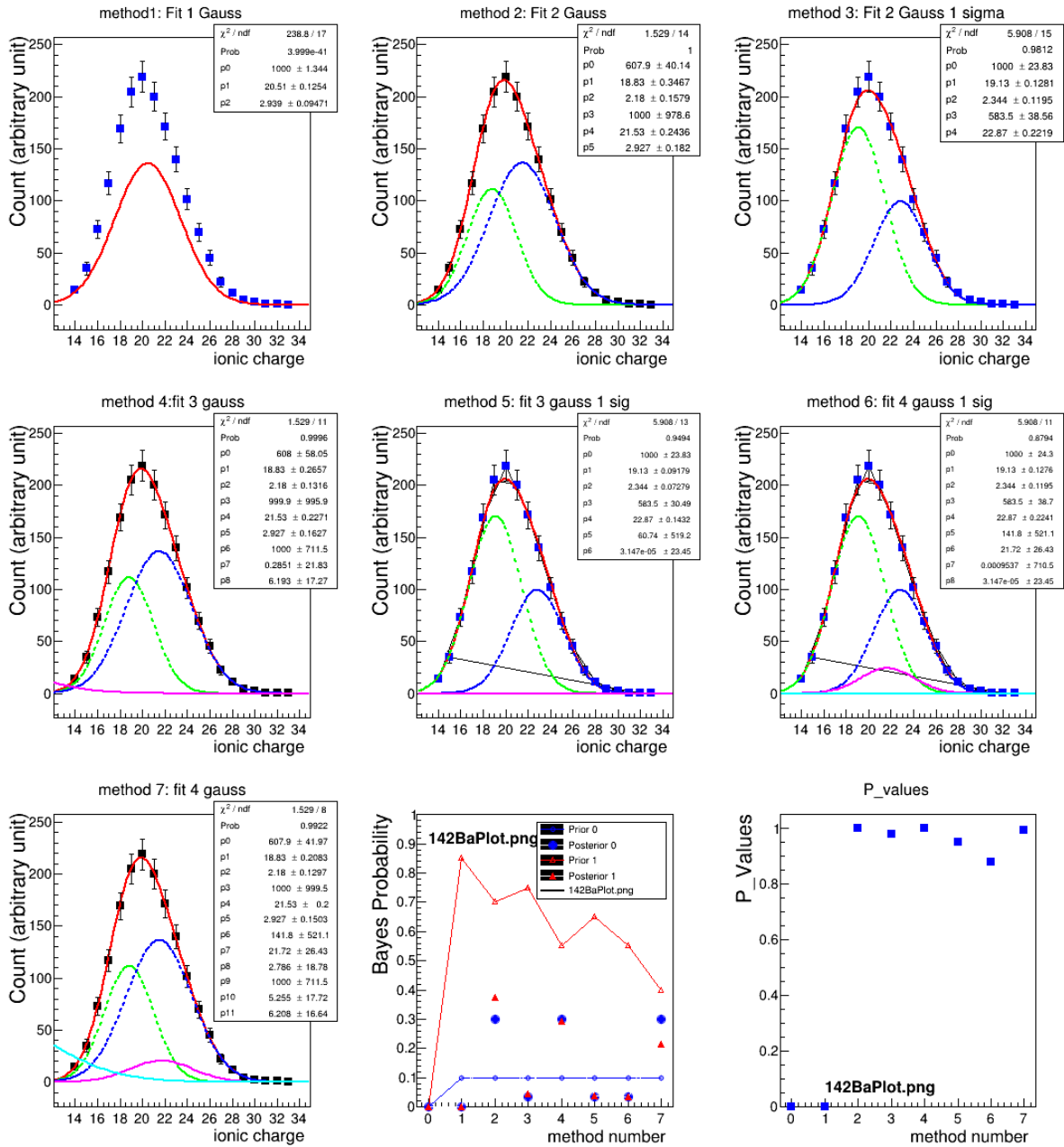


FIGURE B.3 – Déconvolution de la distribution en charge ionique du ^{142}Ba .

Annexe C

Curriculum Vitae

Grégoire Kessedjian
kessedjian@lpsc.in2p3.fr
04 76 28 40 47
Nationalité : français
Né le 03/07/1980

Grenoble INP/CNRS-LPSC
53, rue des Martyrs, 38026 Grenoble

Maître de Conférences

1- Formation et cursus

2005-2008

- Doctorat de physique à l'université de Bordeaux I – Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux-Gradignan ; sujet : « mesures de sections efficaces d'actinides mineurs d'intérêt pour la transmutation »
- Encadrement d'étudiants de licence (groupes de 20 étudiants en tutorat) (80h)
- Vacation à l'université Bordeaux I, cours/TD mathématiques appliquées, licence (35h)

2008-2009

- ATER à l'INP de Grenoble – PHELMA / LPSC groupe de physique des réacteurs nucléaires ; enseignements en TP/TD de licence et master.

Classé premier aux postes de maître de conférences de ParisVII à l'IPN Orsay, de l'université de Strasbourg à l'IPHC, de l'Institut National Polytechnique de Grenoble à ENSE3/Phelma ; second à Grenoble INP/Phelma et à l'université de Nantes

Depuis 2009 : Enseignant-chercheur à Grenoble INP/LPSC, grade : Maître de Conférences

2- Activités de recherche et d'enseignements

Activités de recherche :

Le groupe de physique des réacteurs du LPSC est engagé depuis 2009, en collaboration avec le CEA (Cadarache et Saclay) et l'ILL, sur un programme de mesures de rendements de fission d'actinides d'intérêt pour les cycles des combustibles. Ces expériences sont réalisées auprès du spectromètre Lohengrin de l'ILL. L'objectif est de réaliser des mesures de précision des rendements isobariques et isotopiques (analyse des covariances) et d'extraire des observables d'intérêt pour l'étude du processus de fission (F.Martin - thèse soutenue). Ces études servent à la validation des modèles de fission et de structures nucléaires afin de fiabiliser les méthodes d'évaluations des données nucléaires et ainsi de limiter les effets de compensations d'erreurs. Celles-ci sont à la base de biais dans la propagation des incertitudes des applications nucléaires. Le groupe s'est spécialisé dans l'analyse des incertitudes systématiques, la construction des matrices de covariances expérimentales et l'analyse statistique des hypothèses des modèles (A.Chebboubi - thèse en cours).

Parallèlement à ces mesures, des expériences de caractérisations des spectromètres magnétiques gazeux pour l'étude des rendements de fission ont débuté en 2010. Cette dernière étude entre dans le cadre du développement d'un nouvel instrument à l'ILL, le projet FIPPS (Fission product Prompt gamma ray Spectrometer) dédié à la mesure des particules promptes (neutron et gamma) émises par la fission (thèse en cours A.Chebboubi). Ce nouvel instrument permettra d'étudier la structure des noyaux riches en neutrons et les observables liées à la caractérisation de dynamique de fission.

En complément, je continue de collaborer avec le CENBG sur la thématique des mesures de sections efficaces de réactions d'intérêt pour le cycle du combustible et l'interprétation de ces mesures pour décrire les paramètres des barrières de fission.

Mots clés : fission, rendements, isotope, analyse statistique, barrière de fission, spectromètre magnétique gazeux, FIPPS, particules promptes.

Activités d'enseignements :

- Cours de physique nucléaire et d'interaction rayonnements-matière niveau M1 ENSE3 (32h) depuis 2009
- Cours - TD - TP d'instrumentation nucléaire niveau M1 ENSE3 (8+2+16 h) depuis 2009
- Cours de « Relativité et Physique nucléaire 1 » niveau L3 Phelma (26h) 2009-2013
- TD de « Physique nucléaire 2 » niveau M1 Phelma (14h)
- Cours de « Réactions nucléaires » niveau M1 Phelma (8h) en 2013 reprise prévue en 2015
- Cours/TD de Mécanique quantique niveau L3 Phelma (2012, 2013), reprise prévue en 2015

- Demi-délégation CNRS en 2014 et 2015

- Service d'enseignements :
2014-2015 : prévisionnel = 192 - 96 (délégation CNRS) = 96 heqTD
2013-2014 : 211,6 – 96 (délégation CNRS) = 115,6 heqTD
2012-2013 : 286,81 heqTD
2011-2012 : 294,5 heqTD
2010-2011 : 294,5 heqTD
2009-2010 : 226 heqTD
2008-2009 : 189,43 heqTD (11mois ATER)

3- Responsabilités pédagogiques

- Membre élu du CNU section 29 depuis 2012
- Membre de l'équipe pédagogique de la filière Ingénierie de l'Energie Nucléaire à Grenoble INP/ENSE3
- Responsable des UE « Nucléaire 1 » et « Nucléaire 2 » à Grenoble INP/ENSE3 ;
- Co-responsable de la plateforme de TP d'instrumentation nucléaire Phelma/Univ J.Fourier/LPSC de 2009 à 2012

4- Responsabilités scientifiques

- Représentant de l'équipe « Expériences Réacteurs » du groupe de physique des réacteurs
- Responsable de la thématique « données nucléaires » au sein du groupe de physique des réacteurs/Expériences Réacteurs
- « Proposer » d'un programme d'études expérimentales et simulées sur les spectromètres magnétique gazeux dans le programme européen CHANDA « *Development of an isobaric beam at ILL for fission and decay heat measurements in the framework of the fuel cycle studies* »
- Co-proposer du projet FIPPS (LPSC-ILL)

Au cours des 6 dernières années, j'ai initié au LPSC un programme expérimental sur la détermination des rendements de fission (thèse soutenue F.Martin). Parallèlement à ces mesures, des expériences de caractérisations des spectromètres magnétiques gazeux dans le cadre du projet FIPPS (thèse en cours A.Chebboubi). J'ai obtenu une demi-délégation au CNRS en 2014, renouvelée en 2015, afin de réaliser le programme expérimental puis de finaliser les « Technical Design Report » sur ce projet de nouvel outil. Le LPSC a pris en charge l'étude technique du spectromètre magnétique (dimensionnement de l'aimant et de la mécanique) pour laquelle je suis responsable scientifique. Un *Memorandum of Understanding* est en cours de rédaction avec l'ILL.

Encadrements de thèses :

F.Martin : co-encadrement (70%) de thèse LPSC-CEA Cadarache sous la direction de O.Serot (2010-2013) (Actuellement CDI chez MSIS)

Sujet : Etudes des distributions en masse, charge nucléaire et énergie cinétique des produits de fission de l' $^{233}\text{U}(\text{nth},\text{f})$ et du $^{241}\text{Pu}(\text{nth},\text{f})$ mesurées auprès du spectromètre de masse Lohengrin (ILL), soutenue le 18 dec. 2013

A.Chebboubi : co-encadrant de thèse LPSC (90%) sous la direction de H.Faust (2012-2015 en cours)

Sujet : Contribution à l'étude de la dynamique de fission auprès du spectromètre Lohengrin de l'ILL

Encadrements de stages :

- Stage M2 S. Julien-Laferrière (2015) : Analyse de rendements isotopiques et isomériques induits par la fission du ^{241}Pu .
- Stage M2 A. Siblani (2014) : Analyse de rendements isotopiques et isomériques induits par la fission du ^{241}Pu .
- Stage M2 A. Chebboubi (2012) : Etude des distributions de moments cinétiques induites par la fission de l' ν et développement d'un spectromètre magnétique gazeux (GFM) couplé au spectromètre de masse Lohengrin de l'ILL.
- Stage M2 F. Drouet (2011) : Caractéristiques de dispersion et de focalisation des produits de fission dans un aimant rempli de gaz
- Stage M2 F. Martin (2010) : Mesures de la distribution en masse de l'uranium 233
- Stage M1 R. Da Silva (2015) : Etude des effets de l'inhomogénéité de champ magnétique sur le pouvoir de séparation des produits de fission.
- Stage M1 Th. Lacaze (2014) : Caractérisation de l'instrumentation Germanium pour les mesures des rendements de fission sur le spectromètre Lohengrin
- Stage M1 K. Scannapieco (2013) : Développement d'une méthode de mesures de population d'états isomères produits par la fission de l' ^{233}U
- Stage M1 P. Raymond (2012) : Validation de calculs de simulations par mesures expérimentales pour le design d'une protection neutronique dans le cadre du projet FIPPS
- Stage M1 N. Pautot (2011) : Etude d'une protection neutronique dans le cadre du projet FIPPS

« Porte-parole d'expériences » :

Je suis « Main proposer » des expériences portées par le groupe de physique des réacteurs auprès du spectromètre Lohengrin de l'ILL depuis octobre 2009

**** Accepted proposals as main proposer (n° proposal + sujet)***

- 3-01-631 : Excitation energy dependence of fission induced isomeric ratios
- 3-01-622 : Accurate studies of symmetric fission yields
- 3-01-617 : ^{233}U isotopic fission yield measurements
- 3-01-604 : Accurate study of ^{233}U symmetric fission yields
- 3-01-597 : ^{233}U fission yield measurements: Correlation of charge and kinetic energy distributions in the heavy mass region
- 3-01-592 : ^{233}U fission yield measurements

3-01-561 : ^{233}U (n,f) fission yield measurements
3-01-557 : ^{233}U (n,f) fission yield measurements

*** Accepted proposals as co-proposer (n° proposal + sujet)**

3-01-623 : Mass yield measurements in the symmetric and very asymmetric mass regions of the ^{241}Pu (nth,f) reaction
3-01-624 : Isotopic and Isomeric Yields Measurement in the Near Symmetric Mass Region of the ^{241}Pu (nth,f) Reaction
3-01-625 : Isotopic yields of the compound system $^{243}\text{Am}^*$
3-01-620 : Innovative detector solutions for the FIPPS project at ILL
3-01-621 : Ternary ^6He : the solution to the tritium excess in nuclear waste?
3-01-601 : Isotopic yields of the compound system $^{243}\text{Am}^*$
3-01-603 : Reduction of systematic uncertainties of low fission yields due to “artefact ions”
3-01-595 : Test of the equivalence of the effective charge of heavy ions for the stopping power and the deflection in a magnetic field
3-01-596 : Fission product yield measurements in the heavy mass region for the ^{241}Pu (nth,f) reaction
3-01-581 : Mass and isotopic yields of the compound system $^{243}\text{Am}^*$
3-01-586 : Dispersive and focalizing characteristics of the gas filled RED magnet on LOHENGRIN
3-01-587 : Fine structure of fission yields in ^{239}Pu (nth,f) around Z=54, A=136
3-01-588 : On the validity of the statistical model on fragment spin distribution in nuclear fission
3-01-576 : Determination of mass, kinetic energy and charge of fission fragments in the heavy mass region from the ^{241}Pu (n,f) reaction
INTER-214 : Internal time on PN1
3-01-563 : Yield and kinetic energy distribution functions in symmetric fission in neutron induced : fission of the uranium isotopes
3-01-570 : Measurement of Pn values with the Lohengrin long-counter
3-01-571 : Indirect identification of nanosecond isomers in the heavy mass region (A=138-145)
3-01-560 : Decay of microsecond isomer(s) in ^{131}In

5- Participation à des jurys de thèse

- Examinateur de la thèse de D.Reigner, Contribution à l'étude des gammas prompts de fission, soutenue le 07/10/2013, Université de Grenoble.
- Examinateur de la thèse de J.Ch. Benoit, Développement d'un code de propagation des incertitudes des données nucléaires sur la puissance résiduelle dans les réacteurs à neutrons rapides, soutenue le 24/10/2012, Université Paris XI.

6- Publications

Articles à comité de lecture international (3 en premier auteur / 9)

G. Kessedjian, B. Jurado, M. Aiche, G. Barreau, A. Bidaud *et al.*
Neutron-induced fission cross sections of short-lived actinides with the surrogate reaction method
Physics Letters B, Elsevier, 2010, 692, pp.297-301. <10.1016/j.physletb.2010.07.048>

G. Kessedjian, G. Barreau, M. Aïche, B. Jurado, A. Bidaud *et al.*
 ^{243}Am neutron-induced fission cross section in the fast neutron energy range

Physical Review C, American Physical Society, 2012, 85, pp.044613.
<10.1103/PhysRevC.85.044613>

A. Blanc, A. Chebboubi, H. Faust, M. Jentschel, G. Kessedjian *et al.*
Fission Product Prompt γ -ray spectrometer: Development of an instrumented gas-filled magnetic spectrometer at the ILL
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Elsevier, 2013, 317, pp.333-337. <10.1016/j.nimb.2013.07.052>

Martin F., Sage C., Kessedjian G., Bidaud A., Billebaud A. et al
Measurements of the mass and isotopic yields of the - $^{233}\text{U}(\text{nth},\text{f})$ reaction at the Lohengrin spectrometer
Nuclear Data Sheets, Volume 119, May 2014, Pages 328–330 (2014)

Serot O., Litaize O., Amouroux C., Letourneau A., Materna T. et al.,
Fission activities around the Lohengrin mass spectrometer
Nuclear Data Sheets, Volume 119, May 2014, Pages 320–323 (2014)

L. Mathieu, I. Companis, M. Aiche, P. Schillebeeckx, J. Heyse *et al.*,
Development of ionisation chambers for the simultaneous measurement of the neutron-induced capture and fission cross section of ^{233}U
Nuclear Data Sheets, Volume 119, May 2014, Pages 368–370 (2014)

G. Kessedjian, B. Jurado, G. Barreau, M. Aiche, S. Czajkowski, L. Mathieu et al.
Fission probabilities of ^{242}Am , ^{243}Cm and ^{244}Cm induced by transfer reactions
Phys. Rev. C 91, 044607 (2015)

A.Chebboubi, G.Kessedjian , O.Litaize et al.
“Unambiguous kinetic energy dependence of fission fragment isomeric ratios for spherical and near spherical nuclei”
Submitted to *Physical Review*, May 2015

A.Chebboubi, G.Kessedjian , O.Litaize et al.
Development of a Gas Filled Magnet within the FIPPS project
Accepted by EMIS 2015, submitted to NIM B

Communications internationales avec actes (4 présentations / 24)

Use of Prompt Fission Neutrons for Measuring the Fission Efficiency
I. Companis, L. Mathieu, M. Aïche, P. Schillebeeckx, J. Heyse, G. Barreau, S. Czajkowski, Q. Ducasse, F. Gunsing, B. Jurado, G. Kessedjian, J. Matarranz, I. Tsekhanovich, *Physics Procedia*, Volume 59, 2014, Pages 167-172

H. Faust, U. Koester, A. Chebboubi, A. Blanc, G. Kessedjian *et al.*
Verification of the thermodynamic model in nuclear fission: the new spectrometer FIPPS
International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND2013), Mar 2013, New York, United States

Ch. Amouroux, A. Blanc, A. Bidaud, N. Capellan, S. Chabod *et al.*

Measurement of fission yields from the $^{241}\text{Am}(n_{\text{th}},f)$ reaction at the Lohengrin Spectrometer
Fifth International Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, May 2013, Caen, France. 62, pp.06002, <10.1051/epjconf/20136206002>

Companis, M. Aïche, L. Mathieu, P. Schillebeeckx, J. Heyse *et al.*
Development of an experimental set-up for the measurement of neutron-induced fission and capture cross sections of radioactive fissile nuclei.
Fifth International Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, May 2013, Caen, France. 62, pp.05007, <10.1051/epjconf/20136205007>

H. Faust, A. Chebboubi, G. Kessedjian, C. Sage, U. Köster *et al.*
Principles of a gas filled magnetic spectrometer for fission studies
Fifth International Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, May 2013, Caen, France. 62, pp.05004, <10.1051/epjconf/20136205004>

F. Drouet, G.S. Simpson, A. Vancraeynest, G. Gey, G. Kessedjian *et al.*
Prompt γ -ray spectroscopy of $N=50$ fission fragments
Fifth International Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, May 2013, Caen, France. 62, pp.01005, <10.1051/epjconf/20136201005>

A. Vancraeynest, G.S. Simpson, G. Gey, P.T. Greenlees, F. Drouet *et al.*
Prompt γ -ray spectroscopy of the neutron-rich ^{124}Cd
Fifth International Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, May 2013, Caen, France. 62, pp.01004, <10.1051/epjconf/20136201004>

T. Materna, C. Amouroux, A. Bail, A. Bideau, S. Chabod *et al.*
Fission fragment studies by gamma-ray spectrometry with the mass separator Lohengrin
J.H. Hamilton; A.V. Ramayya. *5th International Conference on Fission and Properties of Neutron-Rich Nuclei (ICFN5)*, Nov 2012, Sanibel Island, Florida, United States. World Scientific, Fission and Properties of Neutron-Rich Nuclei Proceedings of the Fifth International Conference on ICFN5 Sanibel Island, Florida, USA, 4 – 10 November 2012, pp.218-224, Fission and Properties of Neutron-Rich Nuclei. <10.1142/9789814525435_0023>

C. Amouroux, S. Panebianco, A. Bidaud, N. Capellan, S. Chabod *et al.*
Measurement of mass yields from the $^{241}\text{Am}(n_{\text{th}},f)$ reaction at the Lohengrin spectrometer
3rd International Workshop on Nuclear Data Evaluation for Reactor Applications (WONDER 2012), Sep 2012, Aix-en-Provence, France. 42, pp.01006, <10.1051/epjconf/20134201006>

H. Faust, G. Kessedjian, C. Sage, U. Koester, A. Chebboubi.
Evaluation of excitation energy and spin in fission fragments using the statistical model, and the FIPPS project
3rd International Workshop on Nuclear Data Evaluation for Reactor Applications (WONDER 2012), Sep 2012, Aix-en-Provence, France. 42, pp.06004, <10.1051/epjconf/20134206004>

G. Kessedjian, A. Chebboubi, H. Faust, U. Köster, T. Materna *et al.*
Development of a gas filled magnet spectrometer coupled with the Lohengrin spectrometer for fission studies
3rd International Workshop on Nuclear Data Evaluation for Reactor Applications (WONDER 2012), Sep 2012, Aix-en-Provence, France. 42, pp.01007, <10.1051/epjconf/20134201007>

C. Sage, F. Martin, G. Kessedjian, A. Bidaud, A. Billebaud *et al.*
Measurements of the Mass and Isotopic Yields of the $^{233}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ Reaction at the Lohengrin Spectrometer

7th International Conference on Dynamical Aspects of Nuclear Fission (danf), Oct 2011, Slomenice, Slovakia.

Companis, M. Aïche, L. Mathieu, G. Kessedjian, P. Schillebeeckx *et al.*

Measurement of neutron capture and fission cross sections of ^{233}U in the resonance region
Third International Workshop on Compound Nuclear Reactions and Related Topics (CNR11), Sep 2011, Prague, Czech Republic

Materna T., Mathieu L., Köster U., Faust H., Serot O. *et al*

Indirect identification of nanosecond isomeric states in neutron-rich nuclei with mass in $A=138-145$ range using the fission fragment separator Lohengrin
Advances in Radioactive Isotopic Science (ARIS 2011), Belgique (2011)

F. Martin, C. Sage, G. Kessedjian, C.O. Bacri, A. Bidaud *et al.*

Measurements of the mass and isotopic yields of the $^{233}\text{U}(n,f)$ and $^{241}\text{Pu}(n,f)$ reactions at the Lohengrin spectrometer

Second International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation, Measurement Methods and their Applications (ANIMMA), Jun 2011, Ghent, Belgium. IEEE, pp.1-7, <10.1109/ANIMMA.2011.6172920>

G. Kessedjian, O. Méplan, A. Billebaud, R. Brissot, S. Chabod *et al.*

^7Li neutron-induced elastic scattering cross section measurement using slowing-down spectrometer

Measurements and Models of Nuclear Reactions (EFNUDAT), May 2010, Paris, France. 8, pp.07005, <10.1051/epjconf/20100807005>

B. Jurado, G. Kessedjian, M. Petit, M. Aïche, G. Barreau *et al.*

Neutron-induced fission cross sections of short-lived actinides with the surrogate reaction method

*CNR*09 - Second International Workshop on Compound Nuclear Reactions and Related Topics*, Oct 2009, Bordeaux, France. 2, pp.06004, <10.1051/epjconf/20100206004>

M. Aiche, G. Barreau, G. Boutoux, S. Czajkowski, D. Dassié *et al.*

Neutron-induced cross sections measurements via surrogate reactions: a way to determine new transmutation nuclear data for minor actinides

Olivier SEROT. *Second International Workshop on Nuclear Data Evaluation for Reactor Applications, Wonder 2009*, Sep 2009, Saint-Paul-lez-Durance, France. pp.20-23

M. Aïche, G. Barreau, B. Jurado, S. Czajkowski, D. Dassié *et al.*

Measurement of the ratio between the capture and the fission cross sections of ^{233}U

Hambsch F.J. *EFNUDAT Fast Neutrons – Scientific Workshop on Neutron Measurements, Theory & Applications*, Apr 2009, Geel, Belgium. pp.1-4, <10.2787/23116>

S. Czajkowski, G. Boutoux, G. Kessedjian, M. Aïche, G. Barreau *et al.*

Neutron-induced cross sections of short-lived nuclei via the surrogate reaction method

EFNUDAT Fast Neutrons – Scientific Workshop on Neutron Measurements, Theory & Applications, Apr 2009, Geel, Belgium

G. Kessedjian, M. Aïche, G. Barreau, A. Bidaud, S. Czajkowski *et al.*

^{243}Am fission cross section of measurements – variance-covariance analysis

Hambsch F.J. *EFNUDAT Fast Neutrons – Scientific Workshop on Neutron Measurements, Theory & Applications*, Apr 2009, Geel, Belgium. pp.79-84, <10.2787/23116>

B. Jurado, G. Kessedjian, M. Aiche, G. Barreau, A. Bidaud *et al.*

Fission Cross Sections and Fission-Fragment Mass Yields via the Surrogate Reaction Method
International Workshop on Compound-Nuclear Reactions and Related Topics - CNR 2007*; Oct 2007, Yosemite, United States. 1005, pp.90-95, <10.1063/1.2920753>

B. Jurado, G. Kessedjian, M. Aiche, G. Barreau, A. Bidaud *et al.*
Minor-actinides fission cross sections and fission fragment mass yields via the surrogate reaction technique

C. Wagemans, J. Wagemans, P. D'hondt. *Seminar on Fission*, Sep 2007, Corsendonk Priory, Belgium. World Scientific, pp.47-54

G. Kessedjian, M. Aïche, G. Barreau, A. Bidaud, S. Czajkowski *et al.*

Quasi-absolute neutron-induced fission cross section of ^{243}Am

A.J.M. Plompen. *The 3rd Workshop on Neutron Measurements, Evaluations and Applications*, Oct 2006, Borovets, Bulgaria. pp.81-85

Communications internationales sans actes (5 présentations / 8)

Working principle of a gas filled magnetic device for fission products

Kessedjian G., *Workshop on Gas Filled Magnets for Nuclear Fission and Fission Product Spectroscopy*, France

Development of a gas filled magnet spectrometer at the ILL for fission studies

Chebboubi A., Kessedjian G., Sage C., Faust H., Köster U. *et al* *JEFF-NEEDS Workshop on Nuclear Data Measurements, NEA Nuclear Data Week*, France (2013) [in2p3-00910696 - version 1]

A. Chebboubi. Measurement of fission product yields of actinides needed for fuel cycle studies : use of gas filled magnet spectrometer at the Lohengrin spectrometer of ILL

JEFF-NEEDS Workshop on Nuclear Data Measurements, Nov 2014, Issy-les-Moulineaux, France

A. Chebboubi, G. Kessedjian, C. Sage, O. Meplan, H. Faust *et al.* Development of a Gas Filled Magnet spectrometer for the measurement of fission yields at LOHENGRIN

JEFF-NEEDS Workshop on Nuclear Data Measurements, NEA Nuclear Data Week, Nov 2013, Issy-les-Moulineaux, France

G. Kessedjian *et al.* Fission yields measurements @ Lohengrin

JEFF/GEDEPEON Nuclear Data Workshop, Nov 2012, Issy-les-Moulineaux, France

G. Kessedjian *et al.* Fission yield measurements at ILL/Lohengrin

JEFF- GEDEPEON Workshop on Nuclear Data Measurements, Nov 2011, Issy-les-Moulineaux, France

G. Kessedjian *et al.* Minor actinide fission measurements, experience with the building of experimental covariance matrices

NEA JEFF/EFF Meeting, Jun 2009, Manchester, United Kingdom

G.Kessedjian *et al.* EUROTRANS ITC7 : Impact of new nuclear data on the design of transmutation experiments, dec.2008, Strasbourg, France,

7- Communications orales nationales (13 présentations / 13)

- Cours invité en école d'été pour doctorants et post-doctorants

Fondamental concepts Kessedjian G., IN2P3 School of Statistics 2010, Autrans, France (2010) :
« Analyse des corrélations des mesures expérimentales - Interprétation des erreurs systématiques-
Application aux données nucléaires d'intérêt pour l'aval du cycle électronucléaire »

- G. Kessedjian, O. Serot et al. *Mesures de rendements de fission Cm243 et Cm245*
Atelier GEDEPEON, Dec 2012, Paris, France

- G. Kessedjian et al. *PEREN: ligne de neutrons rapides*
Atelier GEDEPEON, Dec 2012, Paris, France

- G.Kessedjian et al. *Bilan des activités du groupe ACEN du CENBG : Mesure du rapport α de $l^{233}U$
& Transmutation d'actinides mineurs*
Atelier GEDEPEON, dec.2007, Paris,

- Séminaire : Subatech Nantes, 9 mars 2009, France, G.Kessedjian et al.

- Séminaire : IPN Orsay, 5 mars 2009, France, G.Kessedjian et al.

- Séminaire : GANIL Caen, 24 février 2009, France, G.Kessedjian et al.

- Séminaire : IPHC Strasbourg, 19 février 2009, France, G.Kessedjian et al.

- Séminaire : LPSC Grenoble, 22 janvier 2009, France, G.Kessedjian et al.

- Séminaire : CEA Bruyères-le-Châtel, fev. 2008, France, G.Kessedjian et al.

- Séminaire : Subatech, dec. 2007, Nantes, France, G.Kessedjian et al.

- Société Française de Physique (SFP), Juil. 2007, Grenoble, France, G.Kessedjian et al.

- Rencontres Jeunes Chercheurs (RJC) dec. 2006, les Houches, France, G.Kessedjian et al.

Bibliographie

- [1] P. Dagnelie, Statistique théorique et appliquée, tome 1, 2^{ème} édition, De Boeck Université (2007)
- [2] R. A. Fischer, F. Yates, Statistical tables for biological, Harlow, Longmann (1982)
- [3] A. Chebboubi, Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, soutenance prévue le 28 octobre 2015
- [4] F. Martin, Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes (2013)
- [5] SOS'08, IN2P3 School of Statistics, EPJ Web of Conferences, volume 4 (2010)
- [6] G. Kessedjian, Cours à l'école SOS (2010)
- [7] G. Kessedjian, Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1 (2008)
- [8] Y. Avni, Astrophys. J., 210, 642 (1976)
- [9] Numerical recipes, William H. Press et al., Cambridge University Press (1986)
- [10] D. L. Smith, Probability, statistics, and data uncertainties in nuclear science and technology, vol. 4, OECD (1991)
- [11] A. Chebboubi, G. Kessedjian et al., Unambiguous kinetic energy dependence of fission fragment isomeric ratios for spherical and near spherical nuclei, Soumis à Phys. Rev. avril 2015
- [12] G. Kessedjian, B. Jurado, G. Barreau et al., Phys. Rev. C 91, 044607 (2015)
- [13] G. Kessedjian, B. Jurado, G. Barreau et al., Physics Letters B, Elsevier, 692, pp. 297-301 (2010)
- [14] L. Mathieu, I. Companis, M. Aiche, P. Schillebeeckx, J. Heyse et al., Nuclear Data Sheets, Volume 119, Pages 368–370 (2014)
- [15] G. Kessedjian, B. Jurado, G. Barreau et al., Phys. Rev. C 85, 044613 (2012)
- [16] M. Salvatores et al., International Evaluation Collaboration, Vol 26, NEA N° 6410, OECD (2008)
- [17] G. Barreau, cours de l' Ecole Joliot-Curie (1996)
- [18] B. B. Back et al, PRC Volume 9 (1974)
- [19] A. Bail, thèse de doctorat, Université de Bordeaux I (2009)
- [20] A. Bail et al., Phys. Rev. C 84, 034605 (2011)
- [21] U. Köster et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 613 (2010) 363–370
- [22] O. Litaize, O. Serot, Phys. Rev. C 82 (2010)
- [23] J. Galy, thèse de doctorat, université Aix-marseille (1999)
- [24] J. Galy, B. Fogelberg, F. Storrer et H. Mach, EPJ A, 8, p. 331–354, (2000)
- [25] F. Martin, C. Sage, G. Kessedjian et al., Nuclear Data Sheets, Volume 119, May 2014, Pages 328–330 (2014)
- [26] O. Serot, O. Litaize, C. Amouroux, A. Letourneau, T. Materna et al., Nuclear Data Sheets, Volume 119, May 2014, Pages 320–323 (2014)
- [27] K. H. Schmidt, B. Jurado, GEF code, www.cenbg.in2p3.fr/GEF
- [28] K. H. Schmidt et B. Jurado, Phys. Rev. C 83, 014607 (2011)

- [29] K. H. Schmidt, B. Jurado, *Phys. Rev. Lett.* 104, 212501 (2010)
- [30] O. Litaize, O. Serot, *Phys. Rev. C* 82 (2010)
- [31] F. Gönnewein, I. Tsekhanovich, V. Rubchenya, *Int. J. Mod. Phys. E* 16, 410 (2007).
- [32] A. C. Wahl, *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 39, p. 1–156, 1988. 48
- [33] U. Brosa, S. Grossmann, A. Müller, *Physics Report*, 197 N4, p. 167–262, 1990. 40
- [34] R. Brissot et al. *Proceedings of a symposium*, Jülich, May 1979
- [35] H. Goutte, J. F. Berger, P. Casoli, and D. Gogny, *Phys. Rev. C* 71, 024316 (2005)
- [36] H. Naik et al., *Nuclear Physics A587 (1995)* 273-290
- [37] J. Genevey et al., *Phys. Rev. C*, vol. 59, pp. 8289, 1999
- [38] K. Scannapieco, rapport de stage de Master 1, 2013, LPSC, Université Grenoble-Alpes
- [39] V. S. Nikolaev, I. S. Dimitriev, *Physics letters*, vol 28A, (1968)
- [40] H. D. Betz, *Applied Atomic collision physics*, vol4, Academic Press.Inc. (1983), ISBN 0-12-478804-1
- [41] I. S. Dmitriev, V.S. Nikolaev, *Zh. Theor. i Eksp Fiz.* 47(1964) 655
- [42] Y. Baudinet-Robinet, *Phys. Rev. A*, vol. 26, pp. 6271 (1982)
- [43] K. Shima et al., *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, vol. 34, pp. 357391 (1986)
- [44] G. Kessedjian et al., *OECD/NEA, NEEDS/JEFF meeting*, 25-29 Nov.2013
- [45] B. Q. Lee, S.Q. Lim, G. Kessedjian, A. Chebboubi, C. Sage, U. Köster, T. Kibedi, A. E. Stuchbery, *HIAS 2015, Canberra in September (2015)*
- [46] T. Rzaca-Urban, J. Genevey, T. Materna et al., *PR C* 80, 064317 (2009)
- [47] T. Materna, A. Bail, L. Mathieu et al., *AIP Conference Proceedings* 1175, 367 (2009)
- [48] J. Bocquet, F. Schussler, E. Monnard, K. Sistemich, in *Physics and Chemistry of Fission 1979*, edited by IAEA (1980) pp. 179–191
- [49] H. O. Denschlag, H. Braun, W. Faubel, *Physics and Chemistry of Fission 1979*, edited by IAEA (1980) pp. 153-177
- [50] J. R. Nix, W. J. Swiatecki, *Nucl. Phys.* 71, 1 (1965)
- [51] L. Bonneau, P. Quentin, I. N. Mikhailov, *Phys. Rev. C* 75, 064313 (2007)
- [52] I. N. Makhailov, Ph. Quentin, *Phys. Lett. B* 462 (1999)
- [53] P. Fong, *Phys. Rev.* 102, 434 (1956)
- [54] H. R. Faust, Z. Bao, *Nucl. Phys. A* 736, 55 (2004)
- [55] *Kendall's Advanced Theory of Statistics : Distribution Theory*, A.Stuart and K.Ord (1994)
- [56] Base de données RIPL3, <https://www-nds.iaea.org/RIPL-3/>
- [57] G. Kessedjian, O. Méplan, A. Billebaud, R. Brissot, S. Chabod et al., *EFNUDAT Conference*, Paris, France (2010)
- [58] V. Strutinsky, *Nucl. Phys. A* 95 (1967) 420
- [59] R. Vandenbosch, J. R. Huizenga, *Nuclear Fission*, Academic Press New-York and London (1973)
- [60] D. Regnier, O. Litaize, O. Serot, *Phys. Proc.* 47, 47 (2013)
- [61] L. Mathieu et al., *JINST* 7 (2012)
- [62] B. D. Wilkins, E. P. Steinberg, R. R. Chasman, *Phys. Rev.C*, 14, p. 1832–1863 (1976)
- [63] H. Faust et al., *ILL Endurance program*, 15-17 September 2010, Proposal FIPPS
- [64] H. Lawin et al., *NIM* 137 (1976) 103-117
- [65] M. Paul et al., *NIM A277 (1989)* 418-438
- [66] K. Schreckenbach et al., *Phys. Lett. B* 99, 251 (1981)

- [67] A. A. Hahn et al., Phys. Lett. B 218, 365 (1989)
- [68] J. C. Benoit, thèse de doctorat, Université Aix-Marseille 2012
- [69] N. Terranova, O. Serot et al., Nuclear Data Sheets 123 (2015) 225–230
- [70] D. Regnier, thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes (2013)
- [71] S. Obersteds et al., Phys.Rev. C 87 (2013)
- [72] A. Gilbert et A. G. W. Cameron, Can. J. Phys., 43(8), p.1446-1496 (1965)
- [73] E. Pfeiffer, Z. Physik 240,403 (1970)
- [74] H. G. Börner, T. Gönnerwein, The neutron, World Xcientific Publishing Co.Pte. Ltd (2012)
- [75] E. K. Hulet et al., PRL Volume 56, Number4 (1986)
- [76] M. Lammer, International Atomic Energy Agency, Vienna (Austria), RN :20017732 (1987)
- [77] C. Wagemans, The nuclear fission process, CRC Press (2000)
- [78] D. Doré et al. NDS, Volume 119, p. 346–348 (2014)
- [79] K. Meierbachtola, F. Tovessona, et al., NIM A Volume 788, Pages 59–66 (2015)
- [80] A. J. Pollitt et al., EPJ Web of Conferences 93 (2015)
- [81] N. Nishio et al., Nucl. Scien. & Techn., vol. 32 (1995)
- [82] S. Julien-Lafferrière, Rapport de stage de M2, Université Grenoble Alpes (2015)
- [83] P. Möller, A. J. Sierk, A. Iwamoto, Phys. Rev. Lett. 92 (2004)
- [84] S. Panebianco et al., PR C 86, 064601 (2012)