

) is und Ct

- Note CEA-N-2840 -

CEA-N-2840

Centre d'Etudes de Saclay Direction des Réacteurs Nucléaires Département de Mécanique et de Technologie Service d'Etudes de Réacteurs et de Mathématiques Appliquées

# ÉTUDE DE L'INFLUENCE DES LIAISONS CHIMIQUES SUR L'ABSORPTION ET LA DIFFUSION DE NEUTRONS AUX ÉNERGIES DE RÉSONANCE.

par

Dimitri G. NABEREJNEV

# NOTE CEA-N-2840 - Dimitri G. NABEREJNEV

# **"ETUDE DE L'INFLUENCE DES LIAISONS CHMIQUES SUR L'ABSORPTION ET LA DIFFUSION DES NEUTRONS AUX ENERGIES DE RESONANCE."**

**Résumé** - De nos jours le problème de la prise en compte des liaisons cristallines dans le domaines des résonances des noyaux lourds n'est pas correctement résolu dans les codes d'analyse et dans les codes de traitement des évaluations et des données nucléaires.

Le présente thèse traite séparément l'absorption et le transfert des neutrons par les noyaux lourds dans le cadre du modèle cristallin harmonique.

Le modèle du cristal harmonique a été appliqué à l'étude des sections efficaces d'absorption résonante pour montrer l'inconsistance du modèle du gaz libre largement utilisé dans les codes fournissant les données nucléaires à l'usage des neutroniciens. Les erreurs dues à l'utilisation de ce modèle simplifié ne sont pas négligeables et peuvent être corrigées par l'introduction du modèle cristallin dans les codes d'analyse des résonances et les codes d'évaluation des données nucléaires.

Concernant la section de transfert dans le domaine des résonances les liaisons cristallines n'ont jamais été prises en compte. Dans le présent travail un formalisme (Approximation des Phonons Découplés) a été développé pour pouvoir estimer l'influence de la structure cristalline du combustible sur les sections de transfert. Ce formalisme est différent du modèle statique actuellement utilisé dans les codes de traitement des données nucléaires.

1999 – Commissariat à l'Energie Atomique – France

## NOTE CEA-N-2840 - Dimitri G. NABEREJNEV

# « STUDY OF THE INFLUENCE OF CHEMICAL BINDING ON RESONANT ABSORPTION AND SCATTERING OF NEUTRONS. »

**Summary** - At present time the problem of taking into account of the crystalline binding in the heavy nuclei resonance range is not correctly treated in nuclear data processing codes.

The present work deals separately with resonant absorption and scattering of neutrons. The influence of crystalline binding is considered for both types of reactions in the harmonic crystal frame work.

The harmonic crystal model is applied to the study of resonant absorption cross sections to show the inconsistency of the free gas model widely in use in reactor neutronics. The errors due to the use of the latter were found to be non negligible. These errors should be corrected by introducing a more elaborated harmonic crystal model in codes for resonances analysis and on the nuclear data processing stage.

Currently the influence of crystalline binding on transfer cross section in the resonance domain is taken into account in a naive manner using the model of the free nucleus at rest in the laboratory system. In this work I present a formalism (Uncoupled Phonon Approximation) which permits to consider in more detail the crystalline structure of the nuclear fuel. This formalism shows new features in comparison with the static model.

1999 – Commissariat à l'Energie Atomique – France

#### UNIVERSITE D'AIX-MARSEILLE I CENTRE DE SAINT-JEROME

## <u>THESE</u>

#### présentée pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE D'AIX-MARSEILLE I

Discipline :

#### Physique et Modélisation des Systèmes Complexes

soutenue publiquement

par

## Dimitri G. Naberejnev

le 30 novembre 1998

# Etude de l'influence des liaisons chimiques sur l'absorption et la diffusion des neutrons aux énergies des résonances

Directeur de thèse : Philippe Finck

## JURY

M. Louis Boyer M. John Rowlands M. Hans Georg Priesmeyer M. Paul Reuss M. Philippe Finck M. Jean-Louis Durand M. Richard Sanchez M. Claude Mounier (président) (rapporteur) (rapporteur) (examinateur) (directeur) (examinateur) (invité) (invité)) - Note CEA-N-2840 -

Centre d'Etudes de Saclay Direction des Réacteurs Nucléaires Département de Mécanique et de Technologie Service d'Etudes de Réacteurs et de Mathématiques Appliquées

# ÉTUDE DE L'INFLUENCE DES LIAISONS CHIMIQUES SUR L'ABSORPTION ET LA DIFFUSION DES NEUTRONS AUX ÉNERGIES DE RÉSONANCE.

par

Dimitri G. NABEREJNEV

# TABLE DES MATIERES

I POSITION DU PROBLEME	7
I A INTRODUCTION	8
I.B SCHEMA ACTUEL DE TRAITEMENT DES DONNEES NUCLEAIRES ET D'ANALYSE DES	0
LP 1 Point de sur des physiciens multipliers et de l'étet condensé	10 12
I.B.1 Point de vue des physiciens nucleaires et de l'anchuse des résonances	כו ז ו
I.D.2 Form de vie de la physique des reacteurs et de l'analyse des resonances	ر ۲ ۱۸
IC LA boardion récomante	14۱4 ۱۸
I.C.1 Ausorption résonnante	
ID ODIECTIES DDINCIDALLY	10
I.E REFERENCES	17 19
II MODELE DU GAZ LIBRE	23
ILA MODELE DI GAZ LIBRE	24
II B REFERENCES	26
III ABSORPTION RESONNANTE	
III.A INTERACTION NEUTRON-CRISTAL	28
III.B SPECTRE DES FREQUENCES PONDERE	33
III.C CAS LIMITE DU GAZ LIBRE, CAS DIVERS	35
III.D TEMPERATURE DE DEBYE, TEMPERATURE EFFECTIVE ET TEMPERATURE	
THERMODYNAMIQUE	37
III.E.I Generalites	⁄ <del>د</del>
III.E.2 Proprietes de la fonction S. Developpement en phonons	38
III.E.3 Calcul de la section à absorption	41
III.F REFERENCES	42
IV APPLICATIONS CONCERNANT L'ABSORPTION RESONNANTE	45
IV.A VIBRATIONS DES NOYAU DE L'238U: MODELE DE DOLLING	46
IV.B RESULTATS NUMERIOUES SUR LE DIOXYDE DE L' <sup>238</sup> U	50
IV.B.1 Sections efficaces	50
IV, B.2 Taux de capture	60
IV.C ANALYSE DES RESONANCES	64
IV.C.1 L'uranium <sup>238</sup> U	64
IV.C.2 Le plutonium <sup>240</sup> Pu	65
IV.C.3 Mesure des sections de <sup>237</sup> Np dans NpO <sub>2</sub>	70
IV.D ETUDE DU BIAIS SUR LES PARAMETRES DES RESONANCES DANS LE SCHEMA ACT	UEL
DE L'EVALUATION DES DONNEES NUCLEAIRES	75
IV.E VIBRATIONS ANHARMONIQUES ET MESURES A HAUTES TEMPERATURES	80
IV.F CONCLUSIONS	81
IV.G REFERENCES	83
V DIFFUSION RESONNANTE	84
	05
V.A GENERALITES SUR LES REACTIONS NUCLEAIRES INDUITES PAR LES NEUTRONS V D SECTION DE TRANSFERT DANS LE DOMAINE DES DESONANCES	כס מי
V.B SECTION DE LA DIEEUSION DOTENTIELLE	09
	וע רח
V.E. SECTION DE LA DIFFUSION RESONNANTE	נע נח
VE2 Amplitude de la diffusion résonnante dans la représentation de Union-base	נע ממ
V.E.2 Amplitude de la diffusion résonnance dans la représentation de rielsenderg	90 נמנ
V E A Sens physicane de la fonction de corrélation	נטו נחו
V E 5 Ouelques cas limites de la fonction W	כטו גחו
V F 6 Cas limite du gaz libre	104 105

V.E.7 Cas limite d'un noyau libre initialement au repos	107
V.E.8 Modèle cristallin harmonique	107
V.E.9 Cas d'un cristal à une fréquence	108
V.F APPLICATION ORIGINALE : NOYAU SEMI-LIBRE A L'ETAT INTERMEDIAIRE.	
APPROXIMATION DES PHONONS DECOUPLES (APhD) POUR LE TERME DE LA DIFFUSION	
RESONNANTE	109
V.G SECTION DE LA DIFFUSION D'INTERFERENCE	115
V.G.1 Section de la diffusion d'interférence	115
V.G.2 Approximation APhD pour le terme d'interférence	116
V.H SECTION DE TRANSFERT	117
V.I CAS LIMITES DIVERS DE L'APhD	117
V.I.1 Section nucléaire constante	117
V.I.2 Cas limite de la température zéro absolu	118
V.J SECTION TOTALE	118
V.K NOYAUX DE TRANSFERT	119
V.K.1 Noyaux de transfert dans le cadre de l'APhD	119
V.K.2 Modèles statique et du gaz libre des noyaux de transfert	119
V.L CONCLUSION	120
V.M REFERENCES	121
VI APPLICATION CONCERNANT LA DIFFUSION RESONNANTE	125
VI.A METHODE DE CALCUL	126
VI.B ETUDE DU DOMAINE DE VALIDITE DE L'APhD. CALCUL DE REFERENCE.	128
VI.C RESULTATS NUMERIQUES	130
VI.D CONCLUSIONS	133
VI.E REFERENCES	134
PERSPECTIVES	135
ANNEXES	137
Annexe A : Eléments sur la dynamique des réseaux cristallins	138
Annexe B : Section de transfert pour le modèle du gaz libre, calcul direct	139
Annexe C : Fonction de corrélation résonnante pour le modèle du gaz libre	140
Annexe D : Fonction de corrélation de Van Hove à deux point en temps	141

# LISTE DES FIGURES

Figure I.1 Schéma actuel de traitement des données nucléaires et d'analyse des résonances	12
Figure III.1Contribution des termes multiphonons Gn.	
Figure IV.1 Spectre de vibration de l'UO2.	
Figure IV.2 Capacités calorifiques.	
Figure IV.3 Intégrale de Debye-Waller.	49
Figure IV.4 Température effective.	49
Figure IV.5 Section efficace d'absorption de l' <sup>238</sup> U dans UO <sub>2</sub> . Première résonance à 6.674 courbe CH correspond à la section calculée avec le modèle cristallin, GL corresp avec le modèle du gaz libre, GLE correspond à celle du modèle du gaz libre effective Teff=119.577 K déduite selon III-14.	eV et à T=77 K. La pond à celle calculée avec la température 
Figure IV.6 Section efficace d'absorption de l' <sup>238</sup> U dans UO <sub>2</sub> . Première résonance à 6.674 La courbe CH correspond à la section calculée avec le modèle cristallin, GL calculée avec le modèle du gaz libre, GLE correspond à celle du modèle d température effective Teff=307.29K déduite selon III-14.	eV et à T=293.16K. correspond à celle lu gaz libre avec la 
Figure IV.7 Section efficace d'absorption de capture de l'238U dans UO2. Première résona T=973.16K. La courbe CH correspond à la section calculée avec le modèle crista à celle calculée avec le modèle du gaz libre, GLE correspond à celle du modèle température effective Teff=977.95K déduite selon III-14.	ance à 6.674 eV et à allin, GL correspond du gaz libre avec la 53
Figure IV.8 Loi de transfert S à 6.66 eV et à 77 K.	
Figure IV.9 Comparaison de modèles : résonance à 6.674 eV T=77K (Teff=119.577K)	56

Figure IV.18 Erreur relative sur le taux de capture pour la première résonance de l' $^{238}$ U dans UO<sub>2</sub> à 6.674 eV et à la température de 293.16 K. Modèle WR. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH et le Figure IV.19 Erreur relative sur le taux de capture pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> à 6.674 eV et à la température de 973.16 K. Modèle WR. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH et le Figure IV.20 Erreur relative sur le taux de capture pour la deuxième résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> à 20.871 eV et à la température de 293.16 K. Modèle NR. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH et le Figure IV.21 Erreur relative sur le taux de capture pour la deuxième résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> à 20.871 eV et à la température de 973.16 K. Modèle NR. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH et le Figure IV.22 Section totale de l'238U dans UO2. Première résonance à 6.674 eV et à la température 23.6 K. La courbe HC correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique, la courbe Meister correspond Figure IV.23 Section totale de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub>. Première résonance à 6.674 eV et à la température 293.6 K. La courbe HC correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique, la courbe Meister correspond Figure IV.24 Section totale de l'<sup>238</sup>U (métallique). Première résonance à 6.674 eV et à la température 23.6K. La courbe HC (Debye) correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique et le spectre de Debye, la courbe Meister correspond aux résultats expérimentaux de Meister et al.,<sup>12</sup> la courbe GLE Figure IV.25 Section totale de l'<sup>238</sup>U (métal). Première résonance à 6.674 eV et à la température 293.6K. La courbe HC (Debye) correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique et le spectre de Debye, la courbe Meister correspond aux résultats expérimentaux de Meister et al.,<sup>12</sup> la courbe GLE Figure IV.26 Loi de transfert pour NpO<sub>2</sub> à 0.49 eV et 15 K ...... 70 Figure IV.27 Section totale du <sup>237</sup>Np dans NpO<sub>2</sub>. Première résonance à 0.49 eV et à la température 15 K. La courbe 'cristal' correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique, la courbe 'gaz' correspond au calcul avec le modèle du gaz libre, la courbe 'gaz(Teff)' correspond au calcul avec le Figure IV.28 Section totale du <sup>237</sup>Np dans NpO<sub>2</sub>. Première résonance à 0.49 eV et à la température 298K (vue d'ensemble). La courbe 'mesure' correspond aux résultats expérimentaux de Brusegan et al.,<sup>16</sup> la courbe 'cristal' correspond au calcul avec le modèle du cristal harmonique, la courbe 'gaz' correspond au calcul avec le modèle du gaz libre......73 Figure IV.29 Section totale du <sup>237</sup>Np dans NpO<sub>2</sub>. Première résonance à 0.49 eV et à la température 298K (zoom). La courbe 'mesure' correspond aux résultats expérimentaux de Brusegan et al.,<sup>16</sup> la courbe 'cristal' correspond au calcul avec le modèle du cristal harmonique, la courbe 'gaz' correspond au calcul Figure IV.30 Erreur relative sur les taux de capture de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> pour la première résonance à 6.674 eV et à la température 293.16 K. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température thermodynamique (avec les paramètres biaisés du Tableau IV:2). La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température effective (avec les paramètres biaisés du 

 Tableau IV:2).
 79

 Figure IV.31 Erreur relative sur les taux de capture de l'<sup>238</sup>U (métallique) pour la première résonance à 6.674 eV

 et à la température 293.16 K. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température thermodynamique (avec les paramètres biaisés du Tableau IV:4). La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température effective (avec les paramètres biaisés du 

Figure V.1 Réactions composées	89
Figure V.2 Sections efficaces	89
Figure V.3. Interaction d'un neutron avec un noyau lié dans un potentiel	94
Figure V.4 Intégration de l'équation V-11.	97
<ul> <li>Figure VI-1 Comparaison entre le noyau de transfert calculé avec le modèle APhD (calcul de référence) noyau statique pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> à 6.674 eV. L'énergie du no incident est E<sub>i</sub>=6.9 eV et la température thermodynamique du cristal est T<sub>c</sub>=300 K. La prop des remontées UPP=17.36%, la proportion des pertes d'énergie DOWN=82.64%.</li> <li>Figure VI-2 Comparaison entre le noyau de transfert calculé avec le modèle APhD (calcul de référence) noyau statique pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> à 6.674 eV. L'énergie du no des remontées LPP=17.36%, la proportion des pertes d'énergie DOWN=82.64%.</li> <li>Figure VI-2 Comparaison entre le noyau de transfert calculé avec le modèle APhD (calcul de référence) noyau statique pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> à 6.674 eV. L'énergie du no incident est E<sub>i</sub>=6 eV et la température thermodynamique du cristal est T<sub>c</sub>=300 K. La proportion remontées UPP=18.28%, la proportion des pertes d'énergie DOWN=81.72%.</li> </ul>	et le eutron ortion 131 ) et le eutron on des 131
Figure VI-3 Distributions angulaires pour l'énergie du neutron incident $E_i=6.9 \text{ eV}$ et	122
$a$ is temperature $1_c - 500 \text{ K}$	155

# LISTE DES TABLEAUX

Tableau IV:1 Vérification de la condition de Lamb pour les trois premières résonances de l'UO <sub>2</sub> :	aux différentes
temperatures.	
Tableau IV:2 Paramètres biaisés pour la cible de UO2 à T=293.16 K. Les paramètres initiau	ix de JEF2.2 :
$\Gamma_n = 1.493 \text{ meV}, \Gamma_y = 23 \text{ meV}, E_r = 6.674 \text{ eV}.$	76
Tableau IV:3 Paramètres biaisés pour la cible de UO2 à T=77 K. Les paramètres initiaux de JEF	$2.2: \Gamma_n = 1.493$
meV, $\Gamma_{r}=23$ meV, $E_{r}=6.674$ eV	
Tableau IV:4 Paramètres biaisés pour la cible de <sup>238</sup> U métallique à T=293.16 K. Les paramèt	res initiaux de
JEF2.2 : $\Gamma_n$ =1.493 meV, $\Gamma_r$ =23 meV, E <sub>r</sub> =6.674 eV	
Tableau IV:5 Paramètres biaisés pour la cible de PuO2 à T=293.16 K. Les paramètres initiau	ix de JEF2.2 :
$\Gamma_n$ =2.44 meV, $\Gamma_y$ =29.6 meV, E <sub>r</sub> =1.056 eV.	
Tableau IV:6 Paramètres biaisés pour la cible de NpO2 à T=293.16 K. Les paramètres initiau	ux de JEF2.2 :
$\Gamma_n = 3.291 \text{ meV}, \Gamma_y = 40 \text{ meV}, E_r = 0.49 \text{ eV}.$	77

I POSITION DU PROBLEME

#### I.A INTRODUCTION

L'étude de la population de neutrons dans un réacteur nucléaire se base sur l'équation de transport. La forme intégro-différentielle de cette équation est donnée par:

$$\left(\vec{\Omega}\vec{\nabla} + \Sigma_{t}\right)f(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) = S(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) + \int dE' d\vec{\Omega}' \Sigma_{s}(\vec{r}, E', \vec{\Omega}' \to E, \vec{\Omega})f(\vec{r}, E', \vec{\Omega}').$$
(I-1)

Explicitons les différents termes de cette équation. La fonction de distribution de neutrons (flux de neutrons) f est le nombre de neutrons par unité de volume de phase se trouvant autour du point  $(\bar{r}, E, \bar{\Omega})$  de l'espace de phases.  $\Sigma_t$  est la section macroscopique totale de l'interaction entre un neutron et les noyaux constituants les matériaux des différentes parties instrumentales d'un réacteur. Elle regroupe les sections microscopiques de toutes les réactions [fission (n,f), capture radiative (n, $\gamma$ ), diffusion (n,n) et (n,2n), etc.] pondérées par les concentrations des isotopes en question. La partie gauche de l'équation I-1 décrit alors la disparition des neutrons. Le premier terme de droite représente la source externe de neutrons. Le deuxième terme de droite est égal aux arrivées de neutrons par transfert. Dans ce terme  $\Sigma_s(\bar{r}, E', \bar{\Omega}' \rightarrow \bar{r}, E, \bar{\Omega})$  est la section de transfert de l'énergie E' vers l'énergie E, avec

le changement de la direction du neutron de  $\vec{\Omega}$ ' vers  $\vec{\Omega}$ .

De nombreuses approches physiques et de nombreuses méthodes numériques ont été développées pour résoudre cette équation. Pourtant les modèles physiques servant à décrire les composantes de l'équation de transport n'ont peut-être pas atteint le degré suffisant de précision. Pour l'étude du transport des neutrons dans un milieu macroscopique la description adéquate des sections efficaces, figurant dans I-1, est essentielle. L'adéquation signifie que chaque section microscopique n'est pas une propriété spécifiquement nucléaire mais dépend aussi des propriétés du milieu dans lequel se trouvent les noyaux. Il existe alors deux types d'effets à prendre en considération pour décrire correctement les composantes de l'équation de transport : l'effet de l'interaction nucléaire proprement dit et l'effet du milieu macroscopique. Le premier ne dépend que des forces nucléaires, tandis que le deuxième dépend des interactions d'un noyau avec son environnement. Dans la physique des réacteurs nucléaires on fait recours à différentes approximations du formalisme de la matrice R (telles que Breit-Wigner simple niveau, Breit-Wigner multi-niveaux ou le formalisme de la matrice réduite de Reich-Moore) pour décrire l'interaction nucléaire. Ce formalisme, étant quantique, se montre adéquat quant à l'interaction nucléaire. L'influence du milieu, à son tour, est décrite avec des modèles classiques simplifiés (le modèle statique pour les sections de transfert  $\Sigma_{\epsilon}(\vec{r}, E', \hat{\Omega}' \rightarrow \vec{r}, E, \hat{\Omega})$  et le modèle du gaz libre pour la section efficace totale  $\Sigma_{\epsilon}$  et les partielles de celle-ci). Ces modèles simplifiés peuvent représenter une source d'erreur sur les sections efficaces et sur des calculs neutroniques. L'inconsistance de ces modèles avec la réalité est d'autant plus nette quand il s'agit du domaine des résonances des noyaux lourds. Les réactions résonnantes passent par un état intermédiaire appelé noyau composé. Le temps de vie de ce dernier peut être de l'ordre de la durée caractéristique des vibrations. Ce fait nécessite une description plus détaillée de l'interaction neutron-milieu diffuseur. L'objectif de ce travail est donc d'introduire la description quantique de l'influence du milieu sur l'interaction entre les neutrons et le milieu diffuseur.

Les forces nucléaires étant de courte portée, il est clair qu'un neutron interagit avec un seul noyau quelque soit le milieu dans lequel se trouve lié ce dernier. Toutefois, du fait de la conservation d'énergie, la probabilité de la collision neutronnoyau sera largement affectée par la nature des états quantiques disponibles aux noyaux. La nature de ces états est déterminée par la dynamique du système macroscopique. La probabilité de l'interaction dépendra également de la répartition des noyaux dans l'ensemble de ces états disponibles, autrement dit du peuplement de ces états. Or l'influence du milieu sur une section efficace se décompose en deux effets principaux. Les effets liés à la nature des états disponibles sont souvent désignés comme "effets des liaisons"; ceux dépendant des probabilités du peuplement des états à une température donnée sont appelés "effet Doppler". L'ensemble de ces deux composantes est appelé "l'effet des liaisons chimiques".

Dans la physique des réacteurs nucléaires le problème de la dépendance de la section efficace d'un noyau avec son environnement et la température est un phénomène bien connu sous le nom d'effet Doppler tout court. Cet effet se traduit en pratique par un changement non négligeable des sections efficaces. Les liaisons chimiques affectent largement le calcul neutronique. En particulier, il est important de pouvoir estimer l'influence des effets chimiques sur les réactions entre les neutrons et le combustible nucléaire. On citera l'exemple du coefficient Doppler du combustible, qui, bien entendu si sa valeur est négative, conditionne la stabilité d'un réacteur: toute augmentation de la puissance du réacteur tend, avec l'augmentation de la température, à s'opposer à l'augmentation de la puissance.

Pour prendre en compte les effets des liaisons chimiques il est nécessaire de pouvoir trouver un lien entre la dynamique des noyaux (liés dans une structure cristalline, liquide ou autre) et une section efficace. Dans ce travail on s'intéressera en particulier aux interactions des neutrons avec le combustible nucléaire, dans la suite on parlera donc des structures cristallines uniquement.

Pour les neutrons à basses énergies (neutrons thermiques) la solution d'un tel problème est donnée en termes des fonctions de corrélation introduites par Van Hove.<sup>1</sup> Ces fonctions ont permis de relier directement certaines propriétés dynamiques du milieu avec une section efficace. Elles contiennent une information détaillée sur les corrélations en temps et en espace entre différents noyaux et, par conséquent, sur la dynamique de ceux-ci. Il existe deux paramètres indépendants décrivant les sections de transfert dans ce cas : le transfert d'énergie et le transfert d'impulsion. Dans le domaine thermique les effets des liaisons et l'effet Doppler sont importants. La symétrie du milieu (périodicité du réseau cristallin) peut aussi affecter fortement les valeurs des sections efficaces. Un exemple de l'influence de la symétrie du milieu sur une section efficace est la diffusion de Bragg dans des cristaux. La présence de la diffusion de Bragg à basse énergie est liée au fait que les longueurs d'onde des neutrons sont proches des distances entre les atomes. Dans le cadre de la modélisation par les fonctions de Van Hove la section efficace a été obtenue supposant que l'amplitude de l'interaction ne dépend pas de l'énergie du neutron incident.

Les fonctions de corrélation dépendent directement de la modélisation choisie pour décrire le mouvement des noyaux dans une structure cristalline. Depuis les années trente plusieurs modèles de mouvement des noyaux ont été proposés. Un des premiers modèles, qui jusqu'à présent reste dominant dans les applications neutroniques dans le domaine épithermique, est le modèle du gaz libre. Dans le cadre de ce modèle on suppose que les noyaux n'interagissent pas entre eux et sont libres avec une distribution des vitesses donnée par une Maxwellienne. En conséquence ce modèle est une approche contradictoire en soi. D'un coté on essaye d'expliciter l'influence du milieu sur la section efficace d'un noyau, de l'autre on néglige cette influence en supposant que les noyaux n'ont aucune interaction entre eux. Une telle approximation n'est pas toujours satisfaisante. Pourtant, sous certaines conditions, ce modèle se montre valide et adéquat. On note également que dans le domaine thermiques des modèles cristallins sont employés.

La situation est bien différente si on se tourne vers l'étude des sections dans le domaine des résonances. La forte dépendance énergétique de la matrice de transition (l'amplitude de la diffusion résonnante) nous amène à considérer les réactions composées à durée de vie inversement proportionnelle à la largeur totale de la résonance. Cette dépendance énergétique fait en sorte que des corrélations d'ordre plus élevé que dans le cas précédent interviennent dans la section de transfert. Or dans ce cas il peut y avoir un fort couplage entre la dynamique des noyaux et l'interaction nucléaire. Effectivement, après avoir absorbé un neutron le noyau peut effectuer plusieurs oscillations pendant son temps de vie et l'état du cristal peut être affecté par ces oscillations. Ce couplage *dynamique du milieuinteraction nucléaire* modifie fortement la distribution des neutrons secondaires. Une partie de cette thèse sera consacrée au traitement de ce couplage.

Pour les neutrons d'énergies encore plus élevées l'influence des effets des liaisons devient moins importante et l'influence du milieu sur une section efficace sera déterminée uniquement par l'effet Doppler.

Dans ce travail on s'intéressera essentiellement à la considération quantique de l'influence des effets des liaisons chimiques sur une section efficace dans le domaine des résonances des noyaux lourds du combustible nucléaire. On considérera cette influence sur différentes composantes de l'équation de transport telles que la section de l'absorption résonnante, la section totale et la section de transfert. Ayant pour sujet d'étude l'estimation des sections d'absorption et de diffusion aux énergies des résonances, il est nécessaire de résumer la situation actuelle et l'état des codes fournissant les données nucléaires à l'usage des neutroniciens pour des réactions résonnantes.

## I.B SCHEMA ACTUEL DE TRAITEMENT DES DONNEES NUCLEAIRES ET D'ANALYSE DES RESONANCES.

Nous décrivons à présent schématiquement toute la chaîne de l'évaluation des données nucléaires à l'usage des neutroniciens : en partant de la mesure et en finissant par les sections multigroupes. Il est utile de commenter ce schéma, présenté sur la figure I.1.

Les points expérimentaux sortant des mesures différentielles sont premièrement analysés à l'aide des codes comme REFIT<sup>2</sup> ou SAMMY.<sup>3</sup> En utilisant la méthode des moindres carrés ces codes ajustent les paramètres théoriques de façon à avoir le meilleur accord avec les données expérimentales. Le formalisme nucléaire de la matrice R et ces diverses approximations (telles que Breit-Wigner simple niveau, Breit-Wigner multi-niveaux ou le formalisme de la matrice réduite de Reich-Moore) permet d'en déduire les paramètres des résonances ( $\Gamma_n$ ,  $\Gamma_{\gamma}$ ,  $E_r$ ). Le modèle de l'élargissement Doppler utilisé dans les codes REFIT et SAMMY est celui du gaz libre.

L'anomalie de ce modèle apparaît clairement à la température du zéro absolu où la prise en compte de l'effet des liaisons chimiques est nécessaire. En effet au zéro absolu, pour un cristal harmonique, l'énergie de l'état fondamental du cristal n'est pas nulle et est donnée par  $\hbar\omega/2$ ). Pour des températures beaucoup plus hautes, le défaut de ce modèle est moins évident mais il existe. La preuve expérimentale a été apportée avec l'obtention d'une température ajustée  $T_A$  inférieure à la température réelle.

Incidemment l'analyse des résonances faite avec le modèle du gaz libre entraîne l'obtention de paramètres des résonances biaisés. Ce biais introduit, comme on le montrera par la suite, des erreurs non négligeables aussi bien sur les sections efficaces que sur les taux de réaction. Cette source d'erreurs peut être évitée si l'on incorpore un modèle plus élaboré, celui du cristal harmonique, dans les codes d'analyse.

Par la suite les paramètres des résonances déduits à l'étape précédente servent à reconstruire les sections efficaces point par point avec l'aide du code NJOY.<sup>4</sup> A ce stade la modélisation des effets des liaisons chimiques est la même qu'au niveau de l'analyse des résonances, c'est-à-dire le modèle du gaz libre. Pourtant les différents types de sections sont calculés différemment. Pour l'absorption résonnante le môdèle du gaz libre est employé. Il est aussi physiquement justifié d'appliquer le même modèle à la section de fission. Cependant le même modèle sans aucune justification physique est appliqué sur la section totale de diffusion résonnante. Quant à la section de transfert, cette dernière est calculée avec un modèle encore plus sommaire : le modèle statique. Dans ce modèle les noyaux sont supposés être au repos dans le système du laboratoire, c'est-à-dire tout mouvement des noyaux est négligé. Pour conclure soulignons que le modèle du gaz libre n'est qu'une approximation de la réalité physique: le combustible nucléaire étant sous la forme solide.

Les modèles simplifiés de l'élargissement Doppler au niveau du code NJOY peuvent introduire des erreurs dans les calculs neutroniques par intermédiaire des bibliothèques utilisées par les codes de transport comme APOLLO2.<sup>5</sup> Les remarques importantes à faire sont les suivantes.

Premièrement, il est nécessaire de chiffrer les erreurs intervenant dans les schémas de calcul à cause de l'utilisation du modèle du gaz libre au lieu du modèle cristallin.

Deuxièmement, il est indispensable de traiter correctement la section de transfert, qui actuellement est décrite d'une manière incohérente par rapport aux autres types de sections. Des études, consacrées à l'application du modèle du gaz libre à la section de transfert, ont été menées depuis les années soixante. On parlera de ces études dans la revue de la littérature. Cependant on peut avancer ce fait qu'aucune estimation numérique de l'influence des liens cristallins sur les sections de transfert doublement différentielles en angle et en énergie n'a été faite à présent.

Il est clair que la prise en compte de la dépendance de la section efficace d'un noyau avec son environnement et la température est un sujet d'études interdisciplinaire qui intéresse des physiciens de différents domaines, de la science fondamentale aux applications les plus diverses. On se propose d'expliciter les différents point de vue sur le problème.



Figure I.1 Schéma actuel de traitement des données nucléaires et d'analyse des résonances

## I.B.1 Point de vue des physiciens nucléaires et de l'état condensé

En effet, ceux-ci cherchent en général à accéder à une grandeur nucléaire qui se trouve être "masquée" lors de l'observation dans le système du laboratoire. La grandeur qui les intéresse est la valeur de la section efficace en fonction de l'énergie disponible dans le centre de masse. Cette dernière dans les situations réelles n'est pas fixe même si la particule incidente a une énergie fixe dans le système du laboratoire, le noyau cible n'ayant pas une énergie cinétique fixe. Plus précisément, la conservation de l'énergie et de l'impulsion s'applique à l'ensemble du système neutron-milieu même si l'interaction a lieu avec un noyau particulier compte tenu de la faible portée de l'interaction nucléaire par rapport à la distance interatomique. Ainsi, pour déduire la section efficace nucléaire qui n'est pas observable directement, le physicien nucléaire doit connaître la probabilité qu'a le système d'être dans un état donné avant l'interaction. On peut distinguer à ce niveau l'effet Doppler qui est à relier à la répartition des états du milieu (statistiques des états à une température donnée), de l'effet de liaison chimique qui est lié aux types d'états du système ou le spectre des états.

Les physiciens de l'état du solide connaissant les données nucléaires cherchent à extraire de leurs mesures (diffraction, diffusion inélastique) des informations très précises sur la structure spatiale et/ou sur la dynamique des noyaux dans les composés solides ou liquides les plus divers. Dans ce but les réactions résonnantes sont très prometteuses et offrent des possibilités plus larges que les réactions potentielles.

# I.B.2 Point de vue de la physique des réacteurs et de l'analyse des résonances

Dans ce domaine, la résolution de l'équation du transport des neutrons requiert des "sections effectives", l'agitation thermique et la dynamique des noyaux dans les composés étant prises en compte en amont. Par exemple avec le code NJOY qui permet avec des modules comme LEAPR et THERMR (pour thermalisation avec un modèle cristallin) et BROADR (pour élargissement Doppler avec le modèle unique du gaz libre) de calculer ces sections effectives. On souligne encore une fois que les outils actuels ne permettent de calculer les noyaux de transfert qu'avec le modèle statique. Que ce soit au niveau de la thermalisation ou de l'élargissement Doppler des résonances, l'influence des liaisons chimiques doit être prise en compte correctement pour prédire le comportement d'un réacteur en fonction de la température.

En amont du calcul des réacteurs un grand travail de mesures et d'analyse est nécessaire pour fournir des données nucléaires de qualité à l'usage de la neutronique. Un des points importants pour la détermination des paramètres des résonances est de bien prendre en compte l'existence de l'effet Doppler. Des travaux comme ceux de Lynn et Jackson<sup>6</sup> ont mis en évidence ces effets de liaisons chimiques. Leur analyse du problème les a amenés à préconiser des mesures sur des échantillons à faibles liaisons chimiques comme l'uranium métallique de façon à minimiser les erreurs d'analyse liées à l'utilisation du modèle du gaz libre. A ce jour, l'analyse des mesures de sections efficaces neutroniques est faite généralement avec le modèle du gaz libre. Le travail de Lamb<sup>7</sup> a montré que sous une certaine condition, sur laquelle nous reviendrons plus tard, le modèle précédent était licite. Les spécialistes des mesures dans le passé ont noté l'inadéquation de ce modèle pour les résonances à basse énergie et à température ambiante. Des "anomalies" dans l'analyse avec l'obtention d'une température ajustée inférieure à la température thermodynamique montrent les limites de ce modèle. Plus récemment des mesures de transmission sur le dioxyde de neptunium à température ambiante ont mis en évidence le même type de problème.

Enfin pour la qualification des données nucléaires à l'aide d'expériences intégrales (critiques ou autres) généralement faites à température ambiante, l'effet cristallin n'est pas négligeable. La pratique courante en physique des réacteurs est d'utiliser une température effective déduite d'une température de Debye. La valeur de cette température de Debye pour l'uranium dans l'UO<sub>2</sub> a donné lieu à débat. Nous apporterons des éléments pour clarifier ce problème.

## **I.C REVUE DE LA LITERATURE**

## I.C.1 Absorption résonnante

La première théorie prenant en compte la dépendance de la section efficace visà-vis de l'environnement fut celle de Bethe et Placzek.<sup>8</sup> Les auteurs ont développé le modèle du gaz avec une distribution de vitesses des noyaux gouvernée par la loi de Maxwell. Ceci représente le modèle du *gaz libre* se traduisant par l'introduction des fonctions  $\Psi$  et  $\Phi$  bien connues des physiciens des réacteurs. Cette considération même approchée s'est montrée efficace dans les applications neutroniques aux hautes températures et aux hautes énergies.

La première théorie, prenant en compte des liaisons chimiques pour une réaction résonnante, a été proposée par Lamb<sup>7</sup> en 1939. Dans son célèbre article l'auteur a considéré la capture radiative  $(n,\gamma)$  et a déduit la forme de la section de *capture radiative* pour l'interaction des neutrons avec un solide dont les noyaux sont liés par un potentiel harmonique (quadratique en déplacement des noyaux). Les vibrations des noyaux ont été décrites par les modes collectifs ce qui nécessite l'introduction du spectre pondéré des vibrations des noyaux dans un solide ; ce dernier diffère du spectre utilisé pour le calcul des propriétés thermodynamiques d'un cristal. L'auteur a également retrouvé la modélisation de la dynamique des noyaux par un gaz libre comme un cas limite à condition d'avoir des faibles liens chimiques (*modèle du gaz libre avec une température effective*). Néanmoins la formulation quantique ne permet pas de retrouver la forme analytique exacte prédite par la mécanique classique. Nous reviendrons sur ce travail et sur les particularités du cas limite du gaz libre dans le chapitre III de la présente étude.

En 1958 l'utilisation de la formule de Lamb a permis à Mössbauer<sup>9</sup> d'expliquer le phénomène de la présence de la contribution sans recul dans l'absorption résonnante des rayons gammas. Ce phénomène est lié au transfert de l'impulsion du gamma au cristal comme un corps entier.

En pratique la théorie de Lamb a été testée par de nombreux auteurs parmi lesquels on citera les travaux de Jackson et Lyn<sup>6</sup> et celui de Michaudon.<sup>10</sup> Les auteurs ont comparé les sections d'absorption résonnante avec les prédictions théoriques pour deux composés de l'<sup>238</sup>U,  $U_3O_8$  et l'uranium métallique.

Les spectres des vibrations de l'uranium utilisé dans ces deux travaux étaient différents. Jackson et Lynn ont utilisé le spectre de Nernst-Lindemann pour leur modélisation des vibrations de l'uranium dans  $U_3O_8$ . Michaudon a trouvé que le meilleur accord entre la mesure et la théorie de Lamb avait été observé pour un spectre de Debye. Dans la présente thèse on n'a pas pour but de modéliser la dynamique de l'<sup>238</sup>U dans l' UO<sub>2</sub> à l'aide des données expérimentales, on utilisera donc le spectre pondéré, proposé par Dolling.<sup>11</sup> A notre connaissance ce spectre de vibrations de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> est l'information la plus fine existant de nos jours.

En 1960 Nelkin et Parks<sup>12</sup> ont proposé un développement, encadrant l'approximation de temps des collisions courts pour le calcul de la section d'absorption résonnante (analogue à celle utilisée pour les thermaliseurs). Les auteurs ont également considéré l'effet des liens chimiques sur le recul des noyaux.

Une autre formulation mathématique de la théorie de Lamb a été donnée par Singwi et Sjölander.<sup>13</sup> Les auteurs se sont inspiré de la théorie de la diffusion des neutrons thermiques de Van Hove pour en déduire une formulation dite « en temps » du processus de la capture radiative.

Les calculs numériques des sections d'absorption résonnante avec des spectres plus réalistes ont été présentés dans le travail de Borgonovi et al.<sup>14</sup> Dans cet article les auteurs ont adapté le code GASKET,<sup>15</sup> créé initialement pour les neutrons thermiques, pour le calcul de l'absorption et ont utilisé le spectre de Dolling<sup>11</sup> pour leurs calculs.

En ce qui concerne la physique des réacteurs, on citera le papier de Adkins et al.<sup>16</sup> dans lequel l'impact des liens chimiques sur les taux de capture avec des modèles simplifiés d'autoprotection a été estimé. Cher, Ozer et So<sup>17</sup> ont discuté les valeurs de la température effective issue des spectres total et pondéré à l'usage des neutroniciens. L'utilisation de la température effective déduite du spectre pondéré, c'est à dire le spectre total de l'UO<sub>2</sub> pondéré par le carré de l'amplitude des vibrations des noyaux de l'<sup>238</sup>U, a été conseillée par Butland<sup>18</sup> pour les calculs neutroniques. Notons que cette température ne préserve nullement les taux de réaction entre le modèle du gaz libre et le modèle cristallin.

Finalement nous mentionnons les travaux d'un ordre de complexité supérieur au modèle harmonique. Il s'agit des travaux récents de Karam et d'Avila<sup>19</sup> sur l'interaction des neutrons avec un cristal anharmonique. Il est clair qu'aux très hautes températures les mouvements des noyaux s'écartent d'une forte périodicité prédite par le modèle harmonique (expansion thermique, élargissement des fréquences phoniques, etc.). Par conséquent la description anharmonique est indispensable pour prendre en compte ces effets. Comme le montre le travail de Karam et D'Avila le modèle anharmonique introduit des effets extrêmement intéressants : la température effective, obtenue à partir du spectre des phonons, peut se trouver être inférieure à la température thermodynamique. Cependant ce travail a donné lieu à une discussion entre les auteurs et J. Rowlands<sup>20</sup> qui conteste en particulier la non-normalisation du spectre de fréquences utilisé par Karam et D'Avila.

Bien évidemment nous ne sommes pas en mesure de citer tous les travaux concernant le sujet, néanmoins les travaux mentionnés illustrent bien l'évaluation et l'intérêt que les physiciens portent au phénomène des liens chimiques.

## I.C.2 Diffusion résonnante

Avant d'aborder l'étude de l'influence des liaisons chimiques sur les sections résonnantes, il semble utile de dire quelque mots sur la théorie de la diffusion des neutrons thermiques. Précisons que par neutrons thermiques nous entendons les neutrons d'énergie en dessous du domaine des résonances des noyaux lourds. Cette « coupure thermique » varie suivant les différents isotopes.

La première tentative d'estimation des sections de diffusion des neutrons thermiques a été entreprise par Fermi<sup>21</sup> en 1936. Fermi a décrit l'interaction neutron-noyau dans le cadre de la première approximation de Born. A priori pour une telle interaction l'approximation de Born n'est pas applicable, car le potentiel nucléaire ne peut pas être considéré comme une perturbation de l'Hamiltonien du système (rappelons que la « profondeur » du potentiel nucléaire est de l'ordre de 50 MeV, à comparer aux énergies des neutrons thermiques qui sont typiquement de l'ordre de 0.025 eV). Pourtant en se basant sur le fait que la section de la diffusion est déterminée par le comportement de la fonction d'onde du système loin du centre de diffusion (novau), et en sachant que la portée de l'interaction nucléaire (typiquement de l'ordre de 10<sup>-15</sup> m) est beaucoup plus petite comparée à la distance interatomique (typiquement de l'ordre de 10-10 m), Fermi a montré que la première approximation de Born peut être utilisée pour le calcul de la section de la diffusion si l'on introduit un potentiel sous la forme d'une fonction delta. La constante devant la fonction delta est ajustée de manière à pouvoir retrouver à la limite appropriée la section de diffusion des neutrons thermiques sur un noyau libre (grandes énergies des neutrons incidents). Le potentiel dit de Fermi a été largement utilisé par les physiciens pour décrire l'interaction d'un neutron avec des structures cristallines. La théorie complète de diffusion des neutrons thermiques a été donnée, comme on l'a précisé dans l'introduction, par Van Hove.<sup>1</sup> On ne s'arrêtera pas sur ces points, bien qu'ils soient essentiels pour la théorie de diffusion des neutrons, et on invite le lecteur à se reporter aux nombreuses références existant à ce sujet.

La théorie de Lamb, faisant intervenir des matrices de transition, représente un puissant outil pour aborder les problèmes de calcul de la section de diffusion dans le domaine des résonances. Pourtant, il a fallu attendre 1962 pour que le même type de considération soit appliqué à la diffusion résonnante des neutrons. Il s'agit du travail de Trammell<sup>22</sup> qui a étudié l'influence des liens cristallins sur l'amplitude de la diffusion résonnante *élastique*. Les résultats de ce travail ont indiqué l'importance de l'influence de ces liens sur les sections différentielles. Pour l'étude des propriétés des solides ce travail a ouvert de nouveaux horizons: on pouvait désormais obtenir la même information sur la dynamique des noyaux à partir de la section *élastique* de la diffusion résonnante qu'auparavant on ne pouvait obtenir qu'à partir de la section *inélastique* de la diffusion non résonnante. Ce travail s'inscrit dans le cadre de formalisme de Van Hove et utilise largement ses résultats.

La formule initiale pour l'amplitude de réaction a été emprunté par Lamb à la théorie du rayonnement. En 1966 Trammell et Chalk<sup>23</sup> ont déduit cette amplitude comme un cas particulier en résolvant l'équation de Shrödinger appropriée au système neutron-noyau lié dans un potentiel et ils l'ont appelé l'approximation de la collision unique. La même année un excellent livre de Osborn et Yip<sup>24</sup> est paru. Les auteurs se sont intéressé aux différentes composantes de l'équation de transport des neutrons notamment à l'influence du milieu diffuseur sur les sections efficaces. Pour la première fois l'expression de la section doublement

différentielle de la diffusion résonnante dans le cadre du modèle cristallin d'Einstein à une fréquence a été déduite.

Dans l'article de Word et Trammell<sup>25</sup> (1981) la démonstration de la section doublement différentielle a été présentée. Cet article a fourni la base du calcul de la section de transfert. Le travail de Word et Trammell a été suivi par la thèse de Shamaoun dont les résultats principaux sont fournis dans son article en collaboration avec Summerfield.<sup>26</sup> Les auteurs ont appliqué la forme de la section doublement différentielle à un cristal harmonique et en ont déduit l'expression analytique faisant intervenir le spectre des vibrations des noyaux.

En parallèle de nombreux travaux sur l'utilisation du modèle du gaz libre pour expliciter la section de transfert aux énergies des résonances ont fait leur apparition. On peut citer le travail complet de Blackshaw and R. L. Murray<sup>27</sup> (1966) dans lequel les auteurs ont appliqué le modèle mentionné ci-dessus à l'étude théorique de la section de la diffusion résonnante. Cette tentative a eu un écho en France avec la thèse de Ouisloumen suivi d'un article signé Ouisloumen et Sanchez.<sup>28</sup> Les auteurs ont appliqué le modèle du gaz libre au calcul des noyaux de transfert en mettant en évidence des effets extrêmement intéressants. D'après leurs résultats la probabilité de gagner ou perdre de l'énergie pour un neutron dans une diffusion résonnante dépendra de l'énergie du neutron incident par rapport à l'énergie du niveau du noyau. Pour les énergies du neutrons incident se situant à gauche du pic de la résonances les auteurs ont trouvé que la proportion des remontées en énergie était supérieure aux pertes d'énergie. Ces résultats sont, à notre avis, symptomatiques du fait que le modèle du gaz libre n'est pas adéquat pour décrire les réactions composées. Dans le cadre de ce modèle le noyau composé n'a aucun échange d'énergie avec son environnement pendant son temps de vie (par définition du gaz libre). Etant donné que toute la cinématique de la réaction a été empruntée au cas de la diffusion potentielle, on peut dire qu'il n'y a aucun couplage entre le processus nucléaire et la dynamique du novau ; seule la section nucléaire résonnante a une forte dépendance avec l'énergie. Pour conclure nous rappelons que le modèle du gaz libre pour les sections de transfert a été appliqué à l'étude neutronique dans la thèse de O. Bouland.<sup>29</sup> L'auteur a montré que l'utilisation du modèle du gaz libre implique une sous-estimation de l'effet Doppler de 11%.

Dans cette revue on s'est contenté de tracer uniquement les étapes principales du développement de la théorie des réactions résonnantes avec des solides. Un grand nombre de travaux a été consacré aux applications de cette théorie à des domaines différents, ainsi qu'à des études de diverses approximations nécessaires à son développement.

Malgré ces nombreux travaux à notre connaissance aucune théorie, permettant un calcul numérique raisonnablement aisé de la section différentielle de diffusion résonnante sur un cristal, n'a été entreprise, encore moins l'étude de l'influence de celle-ci sur les paramètres neutroniques.

# I.D OBJECTIFS PRINCIPAUX

La décomposition du manuscrit en chapitres suit les objectifs principaux de ce travail.

 On aura à estimer l'influence de la structure cristalline du combustible nucléaire sur la section efficace d'absorption résonnante et sur différents paramètres neutroniques qui s'en déduisent. Pour cela une comparaison entre les deux modèles du gaz libre, largement utilisés dans la physique des réacteurs nucléaires (le modèle du gaz libre avec une température thermodynamique et le modèle du gaz libre avec une température dite effective et déduite des propriétés dynamiques d'un cristal), et le modèle cristallin de Lamb doit être effectuée. Les fondations du modèle du gaz libre avec une température thermodynamique seront brièvement exposées dans le chapitre II. Dans le chapitre III on exposera le formalisme de Lamb et les modifications apportées à celui-ci. Une partie du chapitre III sera consacrée à la description du cas limite du modèle du gaz libre avec une température effective. On introduira également le spectre pondéré des vibrations des noyaux dans un cristal harmonique et discutera les différentes températures liées à celui-ci. Finalement, on discutera les méthodes de calcul et les méthodes numériques qui nous ont servi à calculer les sections efficaces.

Les applications concernant l'absorption résonnante seront présentées dans le chapitre IV. Dans ce chapitre le spectre des vibrations des noyaux dans un cristal harmonique, que l'on emploiera pour nos calculs des sections, sera testé par comparaison de différents paramètres qui s'en déduisent avec leurs valeurs expérimentales (facteur de Debye-Waller, capacité calorifique). On présentera également les comparaisons entre les sections efficaces de l'absorption résonnante calculées avec les deux modèles du gaz libre et le modèle cristallin. Finalement, des comparaisons de nos calculs avec des récentes expériences de transmission, faites à Geel sur différents composés des noyaux lourds, seront exposées.

 Pour se rapprocher de la neutronique on aura à estimer les erreurs sur les taux de réaction qui interviennent dans des calculs neutroniques des réacteurs à cause de l'utilisation du modèle du gaz libre.

Dans le chapitre IV on présentera le calcul des taux de réaction avec le modèle cristallin est on comparera les résultats de ces calculs avec les taux de réaction calculés avec les deux modèles du gaz libre.

 Dans le cadre de l'absorption résonnante on aura à reconsidérer le schéma actuel de l'évaluation des données nucléaires et les modèles qui y sont employés. On chiffrera des erreurs sur les paramètres des résonances et les taux de réaction liées à l'utilisation du modèle du gaz libre.

Il est clair que l'utilisation du modèle du gaz libre au niveau de l'analyse des résonances pose des problèmes. Dans le chapitre IV nous proposons une étude approfondie des méthodes utilisées pour analyser les expériences de transmission. Cette étude purement théorique et numérique nous permettra de suivre en quelque sorte le schéma actuel de l'évaluation et signaler les étapes sur lesquelles les erreurs liées à l'utilisation du modèle du gaz libre interviennent sur les paramètres des résonances et, en aval sur les taux de réaction. Pour conclure le chapitre IV une revue sur le modèle du cristal anharmonique et mesures à hautes températures sera présentée suivi d'une conclusion.

• On aura à étudier l'influence des liaisons chimiques sur les sections de transfert dans le domaine des résonances des noyaux lourds.

Le chapitre V sera consacré à l'étude théorique de l'influence des liens chimiques sur les sections de transfert aux énergies des résonances. Dans ce but une expression analytique de la section de transfert sera déduite. Le couplage entre le processus nucléaire et la dynamique des noyaux sera traité. Un nouveau formalisme (Approximation des Phonons Découplés) sera présenté. On testera également la validité d'application du formalisme de Lamb au calcul de la section totale de la diffusion résonnante. Une application numérique permettra de comparer le modèle cristallin avec le modèle statique. Une discussion qualitative sera présentée pour comparer le modèle cristallin avec le modèle du gaz libre.

## I.E REFERENCES

<sup>1</sup> Leon Van Hove Correlations in space and time and Born approximation scattering in systems of interacting particles Phys. Rev. **95**, 249 (1954).

<sup>2</sup> C. Moxon

REFIT : A least square fitting program for resonance analysis of neutron transmission and capture data, AEA-InTec-0470 (1991).

<sup>3</sup> M. Larson Updated User's guide fo Sammy : Multilevel R-Matrix Fits to Neutron Data Using Bayes' Equation ORNL/TM-9179/R2, NEA Data Bank (1986).

<sup>4</sup> R.E. MacFarlane and D. W. Muir *The NJOY Nuclear data processing system, version 91* LA-12740-M (1994).

<sup>5</sup> R. Sanchez, J. Mondot, Z. Stankovski, A. Cossic, I. Zmijarevic *APOLLO II : a user-oriented portable, modular code for multigroup transport assembly calculations* Nucl. Sci. Eng. 100, 352 (1988).

<sup>6</sup> H.E.Jackson and J.E. Lynn *Resonant absorption of neutrons by crystals* Phys. Rev. **127**, 461 (1962).

<sup>7</sup> W.E.Lamb, *Capture of neutrons by atoms in a crystal* Phys.Rev., 55, 190 (1939).

<sup>8</sup> H. A. Bethe and G. Placzek Phys. Rev. 51, 450(1937).

<sup>9</sup> R. L. Mössbauer
 Z. Physik 124, 151(1958).

<sup>10</sup> A. Michaudon Thèse de doctorat, Université Paris, (1964).

<sup>11</sup> G. Dolling, R. A. Cowley and A. D. B. Woods *The crystal dynamics of uranium dioxide* Can. J. of Physics **43**, 8 (1965).

<sup>12</sup> M. S. Nelkin and D. E. Parks Effects of chemical binding on nuclear recoil Phys. Rev. **119**, 1060 (1960).

<sup>13</sup> K. S. Singwi and A. Sjölander Phys. Rev. **120**, 1093 (1960).

<sup>14</sup> G.M. Borgonovi, D.H. Houston, J.U. Koppel, E.L. Slaggie Crystal-binding effects on Doppler broadening of neutron absorption resonances Phys. Rev. 1, 2054 (1970). <sup>15</sup> J. U. Koppel, J. R. Triplett and Y. D. Naliboff Gasket a unified code for thermal neutron scattering GA-4717 (1966). <sup>16</sup> C. R. Adkins, P. J. Persiani, R. N. Hwang, J. J. Kaganove The chemical binding effects on the resonance line shapes of uranium-238 in  $UO_2$  lattice Conference on neutron cross section technology, Washington, D. C.(1966). <sup>17</sup> R. Cher, O. Ozer, R. So Crystalline binding effects on  $^{238}$ U resonance line shapes in UO<sub>2</sub> lattices ANS 46, 728 (1984). <sup>18</sup> T. D. Butland A note on crystalline binding in uranium dioxide and its effect on the Doppler broadening of uranium resonances Ann. Nucl. Sci. Engergy 1, 575(1974). <sup>19</sup> R. L. D'Avila and R.A. Karam Anharmonic effects on the resonance line shape of  $^{238}U$  in  $UO_2$ Part I and II A simple and accurate numerical method for the evaluation of the resonance line shape Ann. Nucl. Energy 18, 5, (1991). Part III Cubic, quartic and thermal effects on the phonons shifts and width on the resonance line shape Ann. Nucl. Energy 18, 8, (1991). <sup>20</sup> John L. Rowlands Solid states effects on Doppler broadening of <sup>238</sup>U resonances in UO<sub>2</sub> Ann. Nucl. Energy, Vol. 19, No 7, 413 (1992). <sup>21</sup> E. Fermi. Ricerca Scient., 7, 13 (1936). <sup>22</sup> G. T. Trammell Elastic scattering at resonance from bound nuclei Phys. Rev. 126, 1045 (1962). <sup>23</sup> G. T. Trammell and J. D. Chalk Single collision approximation Phys. Rev. 141, 815 (1966). <sup>24</sup> R. K. Osborn, S. Yip The foundations of neutron transport theory Gordon and Breach, Science Publishers, Inc. (1960). <sup>25</sup> R. E. Word and G. T. Trammell Investigation of condensed matter via resonant neutron scattering. Correlation-function formalism with application to the study of the interatomic force density Phys. Rev., 24, 2430 (1981). <sup>26</sup> I. Shamaoun and G. C. Summerfield

Chemical binding effects on resonant scattering of neutrons Ann. Nucl. Energy, **17**, 229 (1990).

- <sup>27</sup> G. L. Blackshaw and R. L. Murray Scattering function for low-energy neutron collisions in a Maxwellian monatomic gas Nucl. Sci. Eng. 27, 520 (1966).
- <sup>28</sup> M. Ouisloumen and R. Sanchez A model for neutron scattering of heavy isotopes that accounts for thermal agitation effects Nucl. Sci. Eng. **107**, 189 (1991).
- <sup>29</sup> O. Bouland Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud (1994).

This page is intentionally left blank.

ı

II MODELE DU GAZ LIBRE

## **II.A MODELE DU GAZ LIBRE**

On donne dans ce chapitre, d'une part, les idées principales qui ont servi à l'introduction du modèle du gaz libre et d'autre part, les diverses approximations dérivées de ce modèle. Celui-ci est largement utilisé dans la physique des réacteurs nucléaires. Pour exposer les idées principales il suffit de présenter ici la démarche pour l'absorption résonnante. Dans le schéma actuel d'évaluation des données nucléaires le même formalisme est appliqué au calcul de la section totale de diffusion. L'application du modèle du gaz libre aux sections de transfert sera considérée dans le chapitre V.

En général, le combustible au niveau macroscopique est au repos dans le laboratoire tandis que les noyaux sont en mouvement incessant autour de leurs positions d'équilibre. L'approche dite "classique" assimile ce mouvement à un gaz dilué à l'équilibre thermique. Pour un gaz à l'équilibre thermique à la température  $T_c$ , la distribution des vitesses des noyaux de masse M est donnée par la distribution de Maxwell :

$$P(v_{A}) = \left(\frac{M\beta}{2\pi}\right)^{3/2} exp\left(-\frac{M\beta}{2}v_{A}^{2}\right), \qquad (II-1)$$

avec  $\beta=1/k_BT_c$ ,  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $T_c$  est la température thermodynamique du gaz des noyaux et M est la masse du noyau en question.

Premier constat surprenant quant à cette modélisation, est que les noyaux d'un gaz libre voyagent beaucoup alors que le même noyau dans le cristal reste sur place en moyenne. Et pourtant cette modélisation n'est pas si mauvaise que le laisse supposer ce constat. En fait, ce paradoxe vient du fait que c'est en première approximation l'énergie cinétique au moment de la collision qui importe et non le fait que le noyau soit libre ou lié à un édifice moléculaire ou cristallin.

Introduisons un peu de cinématique: considérons la collision entre un neutron de vitesse  $\bar{v}_n$  et un noyau de vitesse  $\bar{v}_A$  dans le système du laboratoire. L'énergie disponible pour la réaction dans le centre de masse est :

$$E_{r} = \frac{1}{2} \frac{mM}{m+M} v_{r}^{2}, \qquad (II-2)$$

avec la vitesse du mouvement relatif  $\vec{v}_r = \vec{v}_n - \vec{v}_A$ . Une partie de l'énergie cinétique des particules entrant en collision est perdue pour la réaction, elle est associée au mouvement du centre de masse et vaut :

$$\mathbf{E}_{\rm c} = \frac{\mathbf{m} + \mathbf{M}}{2} \mathbf{v}_{\rm c}^2, \tag{II-3}$$

avec la vitesse du centre de masse définie par  $\vec{v}_c = (m\vec{v}_n + M\vec{v}_A)/(m+M)$ .

Tel que se pose le problème usuel du transport des neutrons, la quantité recherchée est la section effective pour un neutron de vitesse  $\vec{v}_n$  dans le laboratoire. Cette section est une moyenne statistique sur l'ensemble de noyaux et est calculée de façon à obtenir la conservation des taux de réactions. Cela se traduit par l'égalité suivante :

$$\tau = v_n \sigma_{T_c} (v_n) = \int_{-\infty}^{\infty} v_r \sigma_N (v_r) P(v_A) d\vec{v}_A , \qquad (II-4)$$

où  $\sigma_{T_c}(v_n)$  est la section efficace recherchée et  $\sigma_N$  est la section efficace nucléaire. Des deux équations II-1 et II-4, on extrait l'expression de l'élargissement Doppler. Nous donnons pour mémoire le résultat final et ses diverses approximations avec leurs conditions de validité: <sup>1</sup>

$$\sigma_{\rm T}(E) = \int_{0}^{\infty} \sigma_{\rm N}(E') S(E,E',T) dE', \qquad (II-5)$$

avec la fonction S donnée par

$$S(E, E', T) = \frac{1}{\Delta\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{E'}{E}} \left\{ \exp\left[-A\beta\left(\sqrt{E'} - \sqrt{E}\right)^2\right] - \exp\left[-A\beta\left(\sqrt{E'} + \sqrt{E}\right)^2\right] \right\}.$$
 (II-6)

La fonction S est appelé le noyau Doppler. Dans cette dernière formule  $\Delta = 2\sqrt{E/(A\beta)}$  est la largeur Doppler, E est l'énergie du neutron incident et A est le rapport des masses du noyau et du neutron. La première approximation consiste à négliger la deuxième exponentielle, on a :

$$\exp\left[-\frac{A}{kT}\left(\sqrt{E'}+\sqrt{E}\right)^{2}\right] << 10^{-4} \text{ pour les énergies } E > 9.2 / (A\beta),$$

et le noyau Doppler s'écrit :

$$S(E,E',T) = \frac{1}{\Delta\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{E'}{E}} \exp\left[-A\beta\left(\sqrt{E'} - \sqrt{E}\right)^2\right].$$
 (II-7)

La deuxième approximation revient à faire le développement limité de l'argument de l'exponentielle restante (E' au voisinage de E).<sup>1</sup> Cela nous amène à la forme suivante du noyau Doppler :

$$S(E, E', T) = \frac{1}{\Delta\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{E'}{E}} \exp\left[-\frac{(E - E')^2}{\Delta^2}\right].$$
 (II-8)

Cette approximation est moins justifiée. On peut encore faire une approximation en négligeant le comportement lentement variable de  $(E'/E)^{1/2}$  par rapport à la largeur naturelle de la résonance, on trouve alors le noyau Doppler Gaussien bien connu

$$S(E, E', T) = \frac{1}{\Delta\sqrt{\pi}} \exp\left[-\frac{(E - E')^2}{\Delta^2}\right].$$
 (II-9)

qui, convolué avec une section efficace en Breit et Wigner simple niveau, conduit au profil de la section efficace  $\Psi$ .

L'approche classique permet de prédire de manière assez précise sous certaines conditions le comportement de la section effective avec la température comme permettent de le vérifier les mesures de section efficace. Mentionnons tout de suite un défaut majeur de ce modèle, heureusement sans conséquence en physique des réacteurs, lié à l'approche classique: ce modèle ne prédit aucun élargissement Doppler à zéro Kelvin alors qu'en réalité même à cette température il y a de l'agitation thermique. C'est pourquoi l'approche quantique est nécessaire au moins dès que l'on a affaire aux basses températures.

#### **II.B REFERENCES**

<sup>1</sup> A. W Solbrig

Doppler effect in neutron absorption resonances Am. Journal of Physics **29**, 257 (1961).

III ABSORPTION RESONNANTE Dans ce chapitre on se propose d'étudier l'influence de la structure cristalline sur la section efficace d'absorption et les différents aspects liés à l'approximation du gaz libre.

On suivra d'abord le formalisme proposé par Lamb<sup>1</sup> pour décrire la capture radiative d'un neutron par un noyau qui se trouve lié dans une structure cristalline. Les liaisons cristallines sont supposées être harmoniques : quadratique en déplacements. On fournit quelques éléments sur la dynamique des réseaux harmoniques et sur l'état des solides à l'annexe A. Pour une description plus détaillée on propose au lecteur de s'adresser à des nombreux ouvrages consacrés aux études des réseaux harmoniques.<sup>2.3</sup>

Tenant compte du fait que nous nous intéressons à l'interaction d'un neutron avec le combustible nucléaire, quelques simplifications peuvent être faites. Les noyaux d'uranium dans le dioxyde d'uranium forment un réseau cubique à faces centrées. Ceci nous permettra de traiter exclusivement des réseaux de type Bravais, n'ayant qu'un seul noyau par cellule élémentaire. Notons que la théorie de Lamb sera présentée pour une réaction de capture radiative. On discutera par la suite l'application de ce modèle à la section de fission. Ceci nous permettra d'effectuer le calcul de la section d'absorption.

Par la suite on discutera les aspects théoriques liés à l'utilisation du modèle du gaz libre (GL) et à l'utilisation du modèle du gaz libre avec une température effective (GLE) qui est un cas limite du modèle cristallin à condition d'avoir des liens chimiques faibles. Le spectre de vibrations des noyaux utilisé dans nos calculs et la méthode employée pour calculer la section d'absorption dans le cadre du modèle cristallin et du modèle du gaz libre seront également discutés.

## **III.A INTERACTION NEUTRON-CRISTAL**

D'après la théorie de Bohr (voir par exemple la référence 4) l'interaction d'un neutron avec un noyau lié dans une structure cristalline passe par un état intermédiaire appelé noyau composé. Ce noyau est porté à une énergie d'excitation très grande. Ce noyau se désintègre par émission d'une ou plusieurs particules gammas. Dans le cadre de l'étude de l'absorption des neutrons, on peut éliminer l'influence de la barrière colombienne et négliger l'interaction magnétique entre les spins des neutrons et ceux des électrons.

Pour expliciter le calcul de la section, on représente schématiquement cidessous le diagramme de Feynman correspondant à la capture radiative :



Ce schéma représente l'interaction d'un neutron libre, dont l'impulsion est  $\vec{p}$ , avec un noyau de type A se trouvant lié dans un cristal. Les notations introduites sont les suivantes :

- $|\alpha_s\rangle$  fonction d'onde du cristal à l'état initial. Ici  $\alpha_s$  dénote le nombre de phonons dans les différents modes s des oscillations du réseau cristallin (l'indice s représente la paire d'indices (q, j) introduits dans l'annexe A) ;
- $|A\rangle$  est la fonction d'onde du noyau de type A ;
- $\left| \vec{p} \right\rangle$  est l'onde plane du neutron incident.

L'interaction passe par un état intermédiaire dans lequel on trouve :

 $\left|n_{s}\right\rangle$  - fonction d'onde du cristal ;

 $|C\rangle$  - état du noyau composé.

La réaction résulte en :

- $\left|\beta_{s}\right\rangle$  fonction d'onde du cristal ;
- $|B\rangle$  état final du noyau ;

 $|\vec{k}\rangle$  - fonction d'onde du gamma sortant dont le vecteur d'onde est  $\vec{k}$ .

On s'intéressera pour simplifier à un seul gamma en voie de sortie dit primaire. La probabilité totale est obtenue par sommation sur toutes les voies d'émission des gammas primaires. La section efficace de capture radiative est proportionnelle à la probabilité de la transition décrite ci-dessus qui, d'après Lamb,<sup>1</sup> est donnée au premier ordre par l'équation suivante :

$$W_{\alpha_{s} \to \beta_{s}}(E) = \left| \sum_{n_{s}} \frac{\left\langle B\beta_{s}\vec{k} \left| V | Cn_{s} \right\rangle \left\langle Cn_{s} \left| V' | A\alpha_{s}\vec{p} \right\rangle \right|^{2}}{E_{0} - E + E(n_{s}) - E(\alpha_{s}) + i\Gamma(n_{s})/2} \right|^{2}.$$
(III-1)

où  $\Gamma(n_s) = \Gamma_{\gamma} + \Gamma_n(n_s)$  dénote la largeur totale de l'état intermédiaire,  $E(n_s)$  est l'énergie du réseau cristallin à l'état intermédiaire,  $E(\alpha_s)$  est l'énergie du réseau cristallin à l'état initial,  $E_0$  est l'énergie de la résonance et E représente l'énergie du neutron incident. V' et V sont respectivement les Hamiltoniens correspondant au passages  $|i\rangle \rightarrow |g\rangle$  et  $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ . Du fait de la courte portée de l'interaction nucléaire et donc de l'indépendance des états du cristal vis-à-vis des états du noyau, les éléments des matrices de perturbation V et V' peuvent être factorisés de la manière suivante :

$$\langle \operatorname{Cn}_{s} | \mathbf{V}' | A \boldsymbol{\alpha}_{s} \vec{p} \rangle = \langle \operatorname{n}_{s} | \exp(i \vec{p} \vec{x}_{L}) | \boldsymbol{\alpha}_{s} \rangle \boldsymbol{\gamma}_{c} , \langle B \boldsymbol{\beta}_{s} | \mathbf{V} | \operatorname{Cn}_{s} \rangle = \langle \boldsymbol{\beta}_{s} | \exp(-i \vec{k} \vec{x}_{L}) | \operatorname{n}_{s} \rangle \boldsymbol{\gamma}_{r} (\vec{k}) ,$$

où  $\vec{x}_L$  est le vecteur de la position du noyau L,  $\gamma_c$  est la matrice nucléaire dite de la formation du noyau composé et  $\gamma_r(\vec{k})$  est celle de la décroissance radiative du noyau composé. Les grandeurs  $\gamma_c$  et  $\gamma_r(\vec{k})$  sont associées respectivement aux

largeurs neutronique et radiative. L'élément de la matrice  $\langle n_s | exp(i\vec{p}\vec{x}_L) | \alpha_s \rangle$  représente l'amplitude de la probabilité de transfert du moment  $\vec{p}$  au réseau cristallin avec l'excitation ou la désexcitation de celui-ci de l'état  $|\alpha_s\rangle$  à l'état  $|n_s\rangle$  lors de l'interaction avec le noyau L.

En pratique le réseau cristallin se trouve à l'équilibre thermique il faut alors pondérer la probabilité III-1 par la densité des états initiaux et sommer sur tous les états initiaux et finaux afin de retrouver la probabilité totale du processus :

$$W(E) = \sum_{\beta_s} \sum_{\alpha_s} W_{\alpha_s \to \beta_s}(E) \rho(\alpha_s),$$

où  $\rho(\alpha_s)$  est la densité des états initiaux du cristal. Du fait de la conservation de l'énergie, le vecteur d'onde  $\vec{k}$  du gamma sortant est une fonction de l'état final. Dans tous les cas pratiques on peut négliger la variation de  $\vec{k}$  car l'énergie du gamma, qui varie entre quelques keV et quelques centaines de keV, est grande devant l'énergie des vibrations thermiques du cristal (typiquement de l'ordre de 1 eV). Dans ces conditions  $exp(-i\vec{k}\vec{x}_L)$  n'est plus un opérateur. Ceci nous permet de sommer sur tous les états finaux en utilisant la relation de fermeture

$$\sum_{\beta_{s}} \left| \beta_{s} \right\rangle \left\langle \beta_{s} \right| = 1,$$

et d'utiliser le fait que les états intermédiaires du cristal sont orthogonaux. Une fois ces propriétés employées, on aboutit à l'expression dans laquelle la largeur radiative est sortie à l'extérieur de toutes les sommations:

$$W(E) = \Gamma_{\gamma} \sum_{\alpha_s} \rho(\alpha_s) \sum_{n_s} \Gamma_n(n_s) \frac{\left| \left\langle n_s \left| \exp(i\vec{p}\vec{x}_L) \right| \alpha_s \right\rangle \right|^2}{\left[ E - E_0 - E(n_s) + E(\alpha_s) \right]^2 + \Gamma^2(n_s) / 4}.$$
 (III-2)

L'expression III-2 devient beaucoup moins compliquée si on néglige la dépendance de la largeur totale  $\Gamma(n_s) = \Gamma_{\gamma} + \Gamma_n(n_s)$  et de la largeur neutronique  $\Gamma_n(n_s)$  avec l'état  $|n_s\rangle$ , grandeurs qui apparaissent au numérateur et au dénominateur de la dernière expression. Ceci est une approximation car, généralement,  $\Gamma_n(n_s)$  dépend aussi bien de l'énergie du neutron incident que des transferts de phonons. Cette approximation a été étudiée par plusieurs auteurs. Pour la largeur totale, se trouvant dans le dénominateur de III-2, Djafri<sup>5</sup> a montré que l'effet du transfert de phonons peut être considéré comme négligeable. La même conclusion a été faite par Bowman et Schrack<sup>6</sup> pour la largeur neutronique se trouvant dans le numérateur. On s'appuiera sur leurs conclusions pour éliminer la dépendance de ces largeurs vis-à-vis des effets liés au transferts des phonons.

Pour calculer la probabilité III-2 on devra évaluer l'élément de la matrice  $\langle n_s | exp(i \vec{p} \vec{x}_L) | \alpha_s \rangle$ . A l'aide des fonctions d'onde du cristal  $\Psi_{\alpha_s}$  et  $\Psi_{n_s}$  cet élément de la matrice s'écrit comme suit:

$$\left\langle n_{s} \left| \exp(i\vec{p}\vec{x}_{L}) \right| \alpha_{s} \right\rangle = \int \cdots \int d\vec{x}_{1} \cdots d\vec{x}_{N} \Psi_{n_{s}}^{*}(\vec{x}_{1}, \cdots, \vec{x}_{N}) \exp(i\vec{p}\vec{x}_{L}) \Psi_{\alpha_{s}}(\vec{x}_{1}, \cdots, \vec{x}_{N}).$$
(III-3)

On se tourne à présent vers la théorie des vibrations harmoniques exposée brièvement dans l'annexe A. La dynamique d'un système à N oscillateurs gouvernés par un potentiel harmonique peut se décrire de manière découplée. Le passage aux modes (cordonnées) normaux permet de traiter le système de N oscillateurs couplés en tant qu'un système de N oscillateurs indépendants. Dans ces coordonnées et pour un réseau de type Bravais, le déplacement du noyau L autour de sa position d'équilibre  $\bar{x}_1^0$  s'écrit :

$$\vec{\mathbf{x}}_{L} = \left(\frac{\hbar}{2\sqrt{NM}}\right) \sum_{s} \vec{\mathbf{e}}_{s} \frac{1}{\sqrt{\omega_{s}}} \left[a_{s} \exp(i\vec{q}\vec{\mathbf{x}}_{L}^{0} - i\omega_{s}t) + a_{s}^{+} \exp(-i\vec{q}\vec{\mathbf{x}}_{L}^{0} + i\omega_{s}t)\right]. \quad (III-4)$$

Dans cette expression M est la masse du noyau, N est le nombre de noyaux dans le cristal en question, l'indice s est équivalent à la paire d'indices (q, j) introduits dans l'annexe A et  $\omega_s$  est la fréquence associée au mode normal s. La sommation sur s entend implicitement la sommation sur q et j. La sommation sur q porte sur tous les vecteurs d'onde se trouvant dans la première zone de Brillouin et la sommation sur j va de un à trois fois le nombre de noyaux dans une cellule élémentaire (un pour le réseau Bravais). Les opérateurs de création  $a_s^+$  et d'annihilation  $a_s$  dépendent des cordonnées normales  $Q_s$ . Leur action sur les états du cristal détermine la création et annihilation des phonons. Ici et dans tout ce qui suit on posera  $\hbar = 1$ .

Pour trouver les fonctions d'onde du cristal il faut résoudre l'équation de Schrödinger correspondant au problème. D'abord, donnons l'Hamiltonien du système à l'aide des coordonnées normales  $Q_s$ :

$$H = \sum_{s} H_{s} = \sum_{s} (M\omega_{s}^{2}Q_{s}^{2}/2 + P_{s}^{2}/2M),$$

où P<sub>s</sub> sont des impulsions conjuguées aux Q<sub>s</sub>. La solution de l'équation de Shcrödinger pour un système d'oscillateurs indépendants,  $H_s \Psi_{n_s} = E_s \Psi_{n_s}$ , est bien connue et s'écrit en fonction de la variable  $\xi_s = Q_s (2M\omega_s)^{1/2}$ :

$$\Psi_{n_s}(\xi_s) = (2\pi)^{1/2} (n_s!)^{-1/2} \exp(-\xi_s^2 / 4) h_{n_s}(\xi_s),$$

où  $h_{n_s}$  représente le polynôme d'Hermite de degré  $n_s$ . Les valeurs propres de l'Hamiltonien du système sont données par :

$$\mathbf{E}_{s} = (\mathbf{n}_{s} + 1/2)\boldsymbol{\omega}_{s}.$$

Ces résultats sont bien connus en mécanique quantique et résultent du traitement habituel d'un oscillateur harmonique. On peut à présent passer au calcul de l'élément III-3. Insérant ces résultats dans l'intégrale III-3, cette dernière se transforme comme suit :

$$\prod_{s}\int d\xi_{s}\Psi_{n_{s}}(\xi_{s})\exp\left(\frac{i\vec{p}\vec{e}_{s}\xi_{s}}{\sqrt{2M\omega_{s}N}}\right)\Psi_{\alpha_{s}}(\xi_{s}),$$

où le produit doit être calculé sur tous les modes normaux. En remplaçant  $E(n_s) - E(\alpha_s)$  par son expression en modèle harmonique  $\sum (n_s - \alpha_s)\omega_s$ , on obtient pour la probabilité III-2 :

$$W(E) = \Gamma_{n} \Gamma_{\gamma} \sum_{\alpha_{s}} \rho(\alpha_{s}) \sum_{n_{s}} \frac{\prod_{s} |K(n_{s}, \alpha_{s}, q_{s})|^{2}}{[E - E_{0} - \sum_{s} (n_{s} - \alpha_{s})\omega_{s}]^{2} + \Gamma^{2}/4}, \qquad (III-5)$$

où on a introduit l'intégrale

$$K(n_s, \alpha_s, q_s) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\xi \Psi_{n_s} \exp(iq_s \xi_s) \Psi_{\alpha}$$

et la variable

$$q_{s}^{2} = (\vec{p}\vec{e}_{s})^{2} / (2M\omega_{s}N)$$
.

Une forme plus compacte de la probabilité III-5 s'obtient si on regroupe les termes  $\sum (n_s - \alpha_s)\omega_s$  à l'aide de la fonction de Dirac sous sa forme intégrale. On peut toujours écrire

$$\delta(\mathbf{x}) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \exp(it\mathbf{x})$$

Une fois cette forme intégrale de la fonction de Dirac utilisée dans III-5, il en découle :

$$W(E) = \frac{\Gamma_{n}\Gamma_{\gamma}}{2\pi} \sum_{\alpha_{s}} \rho(\alpha_{s}) \int_{-\infty}^{+\infty} d\mu \int_{-\infty}^{+\infty} dt \frac{\exp(i\mu t)}{(E - E_{0} - \mu)^{2} + \Gamma^{2}/4} \times \sum_{n_{s}} \prod_{s} \left| K(n_{s}, \alpha_{s}, q_{s}) \right|^{2} \exp\left[-it(n_{s} - \alpha_{s})\omega_{s}\right].$$
(III-6)

Les approximations très précises des intégrales du type  $K(n_s, \alpha_s, q_s)$  sont données dans l'article de Lamb. Ces dernières s'obtiennent en utilisant le fait que les quantités  $q_s^2 = (\vec{p}\vec{e}_s)^2 / (2M\omega_s N)$  sont petites. Par conséquent dans la sommation sur  $n_s$  dans III-6 seuls les termes du premier ordre en  $q_s^2$  sont importants. Cela revient à retenir les termes correspondant à l'échange de 0, +1 et -1 phonons du mode s, c'est-à-dire les termes avec  $n_s = \alpha_s$ ,  $n_s = \alpha_s + 1$ ,  $n_s = \alpha_s - 1$ .

La moyenne sur tous les états initiaux du cristal revient à remplacer  $\alpha_s$  par  $\overline{\alpha}_{s} = \left[ \exp(\omega_{s}\beta) - 1 \right]^{-1}$ , la moyenne sur la distribution de Bose avec  $\beta = 1/(k_{B}T_{c})$ . En utilisant les expressions de Lamb pour les  $K(n_s, \alpha_s, q_s)$  et la moyenne statistique, on obtient :

$$\sum_{\alpha_s} \rho(\alpha_s) \sum_{n_s} \prod_s \left| K(n_s, \alpha_s, q_s) \right|^2 \exp\left[-it(n_s - \alpha_s)\omega_s\right] = \exp[g(t)].$$
(III-7)

avec la fonction :

$$g(t) = \sum_{s} q_{s}^{2} \left\{ (\overline{\alpha}_{s} + 1) \exp(-it\omega_{s}) + \overline{\alpha}_{s} \exp(it\omega_{s}) - 1 - 2\overline{\alpha}_{s} \right\}.$$
 (III-8)

On en déduit la forme suivante pour l'intégrale III-6 :

W(E) = 
$$\frac{\Gamma_{n}\Gamma_{\gamma}}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\mu \int_{-\infty}^{+\infty} dt \frac{\exp[i\mu t + g(t)]}{(E - E_{0} - \mu)^{2} + \Gamma^{2}/4}$$
. (III-9)

L'intégrale sur  $\mu$  dans l'expression III-9 peut être calculée par la méthode des résidus, il en découle :

$$W(E) = \frac{2\Gamma_{n}\Gamma_{\gamma}}{\Gamma} \operatorname{Re}\int_{0}^{\infty} dt \exp\left[it(E - E_{0} + i\Gamma/2) + g(t)\right].$$
(III-10)

Cette dernière expression déduite par Lamb<sup>1</sup> constitue actuellement la base du calcul de l'effet Doppler produit par les vibrations des noyaux dans une structure cristalline. Soulignons un point très important qui n'est apparu qu'implicitement dans la fonction finale g(t) : cette fonction contient les caractéristiques dynamiques du noyau résonnant L par le fait que le vecteur polarisation  $\vec{e}_s(L)$  dépend précisément du noyau L. Par conséquent l'effet Doppler va être déterminé à la fois par les fréquences normales  $\omega_s$  mais aussi par les poids associés en  $|\vec{e}_s(L)|^2$ . Nous allons donc maintenant établir la notion du spectre de fréquence pondéré d'un noyau donné qui se distingue nettement du spectre de fréquence total du cristal.

## **III.B SPECTRE DES FREQUENCES PONDERE**

Les vecteurs de polarisation et les fréquences peuvent être calculés à partir de modèles décrivant la dynamique du réseau. Les équations des mouvements des noyaux dans un réseau doivent être écrites pour chaque type de noyau et pour chaque branche de vibrations. Les fréquences propres sont déduites en résolvant l'équation séculaire en  $\omega_s^2$  qui est d'ordre 3r (r étant le nombre des noyaux par cellule) et ce pour toutes les valeurs des vecteurs d'ondes de la première zone de Brillouin. Le spectre résultant qui prend en compte les vibrations de tous les types de noyaux est appelé spectre complet. C'est bien ce spectre-ci que l'on utilise pour le calcul des propriétés thermiques d'un cristal. On montrera des résultats du calcul de différentes grandeurs macroscopiques relatives au spectre des vibrations de l'UO<sub>2</sub> dans le chapitre IV.

Nous allons nous concentrer sur la fonction g(t) qui contient toute l'information pertinente pour le calcul de l'effet des liaisons chimiques. On rappelle que l'indice s est équivalent à la paire d'indices (q, j). On se placera dans le cas d'un réseau cubique qui permet une simplification importante et constitue une bonne approximation dans la plupart des cas. Il nous faut donc calculer la somme sur s qui apparaît dans l'expression de g(t). On notera maintenant par l'indice i le type de noyau résonnant dont on désire calculer la section efficace. La fonction g(t) est donnée par :

$$g(t) = \sum_{s} \frac{\left| \vec{p} \vec{e}_{s}(i) \right|^{2}}{2M\omega_{s}N} \left\{ (\overline{\alpha}_{s} + 1) \exp(-it\omega) + \overline{\alpha}_{s} \exp(it\omega_{s}) - 1 - 2\overline{\alpha}_{s} \right\}.$$
 (III-11)

Dans le cas des cristaux désordonnés ou des poudres il faut prendre une moyenne de la fonction g(t) sur toutes les orientations possibles du cristal par rapport au faisceau de neutrons. Dans ce cas (aussi bien que dans le cas des réseaux cubiques) on peut montrer que  $q_s^2 = (\vec{p}\vec{e}_s)^2 / (2M\omega_s N)$  ne dépend pas de l'orientation de l'impulsion  $\vec{p}$  du neutron, on a alors :

$$\overline{\left|\vec{p}\vec{e}_{s}(i)\right|^{2}} = \frac{1}{3}p^{2}\left|\vec{e}_{s}(i)\right|^{2},$$

où la moyenne sur différentes orientations du cristal par rapport à la direction de faisceau des neutrons est prise. Cela permet de réécrire la fonction g(t) en sortant l'impulsion du neutron de la somme, on obtient :

$$g(t) = \frac{p^2}{2M} \sum_{s} \frac{\left|\overline{e}_s(i)\right|^2}{3N\omega_s} \left\{ (\overline{\alpha}_s + 1) \exp(-it\omega_s) + \overline{\alpha}_s \exp(it\omega_s) - 1 - 2\overline{\alpha}_s \right\}.$$

En introduisant le spectre des vibrations du noyau de type i ou plus précisément le spectre pondéré par les modules au carré des vecteurs polarisations des noyaux i, on peut écrire la fonction g(t) sous une autre forme en remplaçant la sommation par une intégrale. Le nombre de noyaux dans le cristal étant voisin du nombre d'Avogadro on peut négliger la nature discrète des vecteurs d'onde q :

$$g(t) = \frac{p^2}{2m_A} \int_{0}^{\omega_{max}} d\omega \frac{f_i(\omega)}{\omega} \{ (\overline{\alpha}(\omega) + 1) \exp(-it\omega) + \overline{\alpha}(\omega) \exp(it\omega) - 1 - 2\overline{\alpha}(\omega) \},\$$
  
$$f_i(\omega) = \frac{1}{3N} \sum_{q_i} \left| \vec{e}_{q_i}(i) \right|^2 \delta(\omega - \omega_{q_i}).$$

Sur le plan pratique, le spectre est obtenu en calculant la limite ci-dessous :

$$f_{i}(\omega) = \frac{1}{3N} \lim_{\Delta \omega \to 0} \frac{\left(\sum_{qj} \left| \vec{e}_{qj}(i) \right|^{2} \right)_{\Delta \omega}}{\Delta \omega},$$

où l'indice  $\Delta \omega$  signifie que l'on ne retient que les termes se trouvant dans l'intervalle  $(\omega, \omega + \Delta \omega)$ . On rappelle aussi que la sommation sur s entend implicitement les sommations sur q qui comprend tous les vecteurs d'ondes se trouvant dans la première zone de Brillouin et sur j qui comprend toute les branches de vibrations dans une cellule élémentaire (3 pour une cellule Bravais et 3r pour une cellule contenant r noyaux). De la dernière équation et des propriétés des vecteurs de polarisation (voir annexe A pour ces propriétés) on déduit que :
$$\sum_{i} f_{i}(\omega) = f(\omega),$$

où  $f(\omega)$  est le spectre total des vibrations.

La fonction g se réarrange sous la forme usuelle suivante qui est l'analogue de celle apparaissant en théorie de la diffusion des neutrons thermiques :

$$g_i(t) = R(\phi_i(t) - \phi_i(0)),$$
 (III-12)

$$\varphi_{i}(t) = \int_{0}^{\omega_{\text{max}}} \left[ \coth\left(\frac{\omega\beta}{2}\right) \cos \omega t + i \sin \omega t \right] \frac{f_{i}(\omega)}{\omega} d\omega, \qquad \text{(III-13)}$$

où  $R = \vec{p}^2 / 2M$  est l'énergie du recul du noyau libre après l'absorption du neutron. Il est usuel d'interpréter la variable t comme le temps de l'interaction. On rappelle à ce propos qu'on a posé  $\hbar = 1$  et alors le temps t doit être exprimé en eV<sup>-1</sup>.

La quantité  $exp[-R\varphi(0)]$  est souvent appelée le facteur de Debye-Waller par analogie avec la théorie de la diffusion des neutrons thermiques. Ce facteur décrit l'atténuation des perturbations apportées au système par le neutron.

# III.C CAS LIMITE DU GAZ LIBRE, CAS DIVERS

L'expression de la section efficace est complexe à cause du spectre de fréquence pondéré qui apparaît dans la fonction intermédiaire g(t). Pourtant si l'on considère à nouveau l'expression finale de Lamb pour W(E), on voit que la convergence de l'intégrale dépend du comportement décroissant avec t du facteur suivant :

$$\exp\left[-\Gamma t/2 + R \int_{0}^{\omega_{\max}} \frac{f_{i}(\omega)}{\omega} \coth(\omega/2k_{B}T_{c})(\cos(\omega t) - 1)d\omega\right].$$

Le passage au cas limite du gaz libre dépend du comportement de ce facteur. Plaçons-nous dans la situation où les valeurs de t sont telles que t $\omega_{max} \ll 1$ ; on peut alors effectuer un développement limité du second terme de l'argument de l'exponentielle ci-dessus; le facteur décroissant intervenant dans l'intégrant de W(E) devient :

$$\exp\left[-\Gamma t / 2 - (Rt^2 / 2) \int_0^{\omega_{max}} f_i(\omega) \omega \coth(\omega / 2k_B T_c)\right].$$

On introduit  $\overline{\epsilon}$  l'énergie cinétique moyenne par degré de liberté de vibration du noyau, c'est-à-dire aussi la température effective :

$$T_{eff} = \overline{\epsilon} = \frac{1}{2k_{B}} \int_{0}^{\omega_{max}} \coth(\omega / (2kT)) f_{i}(\omega) \omega d\omega . \qquad (III-14)$$

La condition de validité de l'approximation du gaz libre avec une température effective est donc :

$$\Gamma + 2(R\overline{\epsilon})^{\frac{1}{2}} >> 2\omega_{\rm p}, \qquad (\text{III-15})$$

où  $\omega_D$  est la fréquence de Debye liée à la température de Debye. Nous discuterons les diverses notions de température et leurs liens entre elles dans la suite du manuscrit. Nous donnons alors le résultat qui découle de cette approximation du gaz libre avec une température effective. La fonction g(t) s'écrit :

$$\mathbf{g}_{i}(t) = -\mathbf{R}(it + t^{2}\overline{\mathbf{\epsilon}}). \tag{III-16}$$

Puis en procédant à l'intégration donnant W(E), on obtient la forme énergétique de la section efficace bien connue, celle de Bethe et Placzek :<sup>7</sup>

$$W(E) = \frac{4\Gamma_{n}\Gamma_{\gamma}}{\Gamma^{2}} \int_{0}^{\infty} dy \cos(xy) \exp(-y - \frac{y^{2}}{\xi^{2}}) = \frac{4\Gamma_{n}\Gamma_{\gamma}}{\Gamma^{2}} \psi(\xi, x), \qquad (III-17)$$

où

$$\psi(\mathbf{x},\xi) = \frac{\xi}{2\pi^{\frac{1}{2}}} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-\frac{1}{4}\xi^2 [\mathbf{x}-t]^2) / (1+t^2)$$

est la fonction de Bethe avec les notations habituelles :

$$\mathbf{x} = 2(\mathbf{E} - \mathbf{E}_0 - \mathbf{R}) / \Gamma,$$
  
$$\boldsymbol{\xi} = \Gamma / \Delta.$$

Ici  $\Delta = \sqrt{4ET_{eff} / A}$  est la largeur Doppler avec la température effective et A est la masse du noyau rapportée à la masse du neutron.

Les codes usuels de calcul des sections efficaces pour les réacteurs nucléaires utilisent le modèle du gaz libre classique. Dans ce rapport on se proposera de quantifier les erreurs que l'on fait en utilisant ce modèle sans prise en compte de la contrainte III-15. On précisera également les domaines d'application de ce modèle.

Notons pour conclure que divers cas limites peuvent être obtenus à partir de l'expression de Lamb en modélisant le spectre de fréquence. Le cas d'un cristal d'Einstein tous les noyaux sont supposés osciller à la même fréquence :

 $f(\omega) = \delta(\omega - \omega_0)$ .

Un cristal de Debye est caractérisé par un spectre de vibration quadratique en fréquence :

 $f(\omega) = c\omega^2$ , c est une constante.

# III.D TEMPERATURE DE DEBYE, TEMPERATURE EFFECTIVE ET TEMPERATURE THERMODYNAMIQUE

On discute ici les diverses températures intervenant dans les applications neutroniques et leurs liens avec le formalisme présenté précédemment. La température effective se déduit du spectre de fréquences (spectre des phonons) et dépend de la température thermodynamique comme dans III-14.

Cette température est toujours supérieure à la température thermodynamique dans le cadre du modèle du cristal harmonique.

Il est courant dans la physique des réacteurs nucléaires de parler de l'élargissement Doppler en terme de la température de Debye même si le spectre des phonons ne suit pas la loi de Debye. Le calcul de cette température de Debye implique une équivalence entre la température effective calculée avec le spectre réel et la température calculée avec le spectre de Debye. Cette équivalence s'exprime mathématiquement par l'équation intégrale suivante :

$$T_{\rm eff} = \frac{3}{2} T_{\rm D} \int_{0}^{1} v^{3} \coth(v T_{\rm D} / 2k_{\rm B} T_{\rm c}) dv, \qquad (\text{III-18})$$

où  $T_{eff}$  est la température effective et  $T_D$  est celle de Debye. En toute généralité cette température de Debye équivalente dépend de la température thermodynamique. Cependant dans l'intervalle des température 300-1200 K, concernant les réacteurs nucléaires à chaud ou les expériences critiques, la température de Debye dépend peu de la température thermodynamique et peut être considérée comme constante. Pour les températures supérieures à 300 K un développement de l'intégrante en série de Taylor facilite le calcul :

$$\begin{split} T_{eff} &\approx T_{D} \int d\omega f_{i}(\omega) \Biggl[ 1 + \frac{1}{3} \Biggl( \frac{\omega}{2k_{B}T_{c}} \Biggr)^{2} \Biggr], \quad \text{pour le spectre réel }; \\ T_{eff} &\approx T_{C} \Biggl[ 1 + \frac{1}{20} \Biggl( \frac{T_{D}}{T_{c}} \Biggr)^{2} \Biggr], \qquad \text{pour le spectre de Debye.} \end{split}$$

## **III.E METHODE DE CALCUL**

#### III.E.1 Généralités

La section efficace d'absorption s'écrit en fonction de la probabilité trouvée précédemment :

$$\sigma_{\rm nv}(E) = \pi \lambda^2 g_{\rm J} W(E), \qquad (III-19)$$

où  $\lambda = 455.214(A+1)/(A\sqrt{E})$  est la longueur d'onde de Broglie du neutron incident,  $g_J = (2J+1)/(2(2I+1))$  est le facteur statistique, J est le spin du noyau composé, I est celui du noyau cible. En utilisant les résultats obtenus précédemment, notamment l'expression III-9, on réécrit la section efficace sous une autre forme :

$$\sigma_{n,\gamma} = \pi \lambda^2 g_J \Gamma_n \Gamma_\gamma \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{S(p,\mu)}{\left[E - E_0 - \mu\right]^2 + \Gamma^2 / 4} d\mu , \qquad (III-20)$$

où la fonction S contient toute l'information sur la dynamique du réseau cristallin. Cette fonction est donnée par :

$$S(p,\mu) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \exp(i\mu t) \exp(g(t)), \qquad (III-21)$$

où la fonction g(t) est donnée par III-12 et III-13. La section efficace d'absorption se présente sous la forme de l'intégrale de convolution entre la section nucléaire (Breit-Wigner simple niveau ou tout autre formalisme nucléaire) et la fonction S.

#### III.E.2 Propriétés de la fonction S. Développement en phonons

La fonction S peut s'exprimer en termes des variables usuelles en thermalisation :

$$\label{eq:alpha} \begin{split} \alpha &= p^2 \, / \, (2MT_c) & \text{le carré du transfert d'impulsion au réseau par le neutron} \\ & \text{lors de l'interaction ;} \\ \beta &= \mu \, / \, T_c & \text{le transfert d'énergie.} \end{split}$$

On rappelle que les expressions III-12 et III-13 ont été obtenues dans le cadre du modèle harmonique pour un réseau cubique de type Bravais. Dans le cas général il faudra revenir à la forme III-8 de la fonction g(t).

L'interprétation physique de la fonction  $S(\alpha,\beta)$  est la suivante : elle donne la probabilité par unité d'énergie que le système de particules (cristal) absorbe l'énergie  $\beta$  quand l'impulsion délivrée au système est  $\alpha$ . Cette quantité est une propriété du cristal et n'est pas lié aux neutrons : on aurait pu raisonner en termes d'une impulsion donnée au système et déterminer la probabilité que le système absorbe une quantité d'énergie  $\beta$ .

La fonction S, dont la forme est strictement équivalente à celle de la loi de diffusion pour les thermaliseurs, possède quelques propriétés importantes qui servent à valider la précision de nos calculs. Premièrement, cette fonction est normalisée :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} S(\alpha, \beta) d\beta = 1.$$
 (III-22)

Deuxièmement, le premier moment par rapport à  $\beta$  de cette fonction est égal au transfert d'impulsion (la règle des sommes) :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} S(\alpha,\beta)\beta d\beta = \alpha.$$
(III-23)

Cette relation est valable quelle que soit la nature des liens cristallins. Elle nous assure le passage correct à la limite pour un neutron incident de haute énergie avec un noyau au repos, c'est-à-dire dans le cas où les liaisons cristallines deviennent négligeables.

La troisième propriété de la loi de diffusion S est la condition du bilan détaillé :

 $S(-\alpha,-\beta) = exp(-\beta)S(\alpha,\beta)$ 

Cette propriété est une conséquence directe du principe de la réversibilité microscopique et de l'équilibre thermique du cristal.

Le calcul de la fonction S est un problème compliqué. Heureusement comme on l'a noté précédemment, la forme de cette fonction coïncide avec celle de la loi de diffusion pour les neutrons thermiques. Pour la calculer on dispose de deux codes.

Le premier est le code GASKET<sup>8</sup> écrit au cours des années soixante. Il fait le calcul direct de la fonction S (on se permet à ce niveau de confondre du point de vue numérique notre fonction S avec la loi de diffusion pour les thermaliseurs) en estimant la transformée de Fourier dans III-21 numériquement. Ce code a des défauts parmi lesquels on citera l'instabilité du calcul (pour bien faire converger l'intégrale de Fourier il faut ajouter à notre fonction S une petite composante de gaz libre, une gaussienne, pour «lisser» le calcul), d'autre part la précision du calcul sur la norme n'est pas suffisante.

Pour ces raisons on a choisi un deuxième code LEAPR<sup>9</sup> implanté récemment par MacFarlane dans le code NJOY pour les thermaliseurs. Ce code effectue le développement «en phonons» de l'intégrant dans III-21. Ce développement consiste à présenter cet intégrant sous la forme d'une somme en réécrivant l'exponentielle en série de Taylor. Cette méthode est décrite dans des nombreux articles sur le sujet et sera résumée dans la suite de l'exposé. Le code LEAPR offre à l'utilisateur un choix important pour décrire le spectre de fréquence : il est possible, par exemple, d'ajouter des raies discrètes avec les poids correspondants à un spectre continu.

Pourtant il nous a fallu modifier ce code pour l'adapter à nos besoins. Comme dans le cas de l'absorption il n'est pas nécessaire de créer le maillage sur la variable  $\alpha$ , on fait le calcul pour chaque valeur de l'énergie incidente en vérifiant la normalisation et la règle des sommes pour atteindre la précision demandée. Le maillage sur  $\beta$  est difficile à choisir a priori. Il devrait logiquement suivre le spectre des fréquences au moins pour des petites valeurs de  $\beta$  pour bien représenter les transferts d'énergie. Le maillage peut être choisi plus grossier pour de grandes valeurs de  $\beta$ . De toute façon une étude numérique approfondie de la question est nécessaire.

Passons maintenant à la description de la méthode du développement en phonons de la fonction S qui est utilisée dans le code LEAPR. Initialement cette méthode a été proposée par Sjölander.<sup>10</sup> Développons l'exponentielle de III-21 en série de Taylor :

$$\exp\left\{\mathbf{R}\left[\boldsymbol{\varphi}(t)-\boldsymbol{\varphi}(0)\right]\right\}=\exp\left\{-\mathbf{R}\boldsymbol{\varphi}(0)\right\}\sum_{l=0}^{\infty}\frac{1}{l!}\left[\mathbf{R}\boldsymbol{\varphi}(t)\right]^{l},$$

où l'on a omis l'indice i de la fonction  $\varphi$  tout en ayant à l'esprit qu'on considère les vibrations de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub>. Chaque terme de ce développement détermine le processus dans lequel l phonons ont été échangés entre le neutron et le réseau cristallin. Pour calculer la fonction S on doit pouvoir calculer la transformée de Fourier de chaque terme du développement, c'est-à-dire les intégrales :

$$G_{n}(\mu) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \exp\left(-i\mu t\right) \left[\frac{\phi(t)}{\phi(0)}\right]^{n}.$$

Il est bien connu que la transformée de Fourier d'un produit de fonctions est égale à la convolution des transformées de chaque multiplicateur, autrement dit :

$$G_{n}(\mu) = \int_{-\infty}^{+\infty} g(\mu - \omega_{1})g(\omega_{1} - \omega_{2})\cdots g(\omega_{n-1})d\omega_{1}\cdots d\omega_{n-1}.$$

La transformée du degré un se trouve facilement et est égale à :

$$g(\mu) = \begin{cases} \frac{f(\mu)}{2\mu\phi(0)\sinh(\mu/2T_c)}, & |\mu| \le \omega_{\max} \\ 0, & |\mu| > \omega_{\max} \end{cases}$$

Les fonctions G<sub>n</sub> se calculent consécutivement :

$$G_{0}(\mu) = \delta(\mu), \qquad G_{1}(\mu) = g(\mu),$$
  

$$G_{2}(\mu) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega' g(\mu - \omega') G_{1}(\omega'), \qquad G_{n+1}(\mu) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega' g(\mu - \omega') G_{n}(\omega').$$

La fonction S est donc obtenue par sommation de ces termes avec des constantes appropriées :

$$S(\alpha,\beta) = \exp\left[-\alpha\phi(0)\sum_{n=0}^{\infty}\frac{1}{n!}\left[\alpha\phi(0)\right]^{n}G_{n}(\beta).$$

Le nombre de termes à calculer est déterminé par la vérification de la normalisation et la règle des sommes à une précision choisie. Pour les grands transferts d'énergie  $\beta$  le calcul des termes d'ordre élevé est coûteux en temps. Dans ce cas le théorème central limite peut être employé pour représenter les termes du développement sous forme gaussienne. Bien que cette approximation soit bien justifiée pour les grands transferts d'énergie dans ce travail on n'a pas en recours à cette limite ayant pour le but de garder l'influence de la structure cristalline dans sa totalité.

A titre d'exemple on montre sur Figure III.1 les fonctions  $G_n$  donnant les contributions du nombre de phonons approprié dans la somme. Les résultats sont donnés à la température T=300 K et pour l'énergie du neutron  $E_i$ =0.2 eV. On voit

que pour les échanges de peu de phonons l'influence du spectre est important. Les échanges d'ordre plus élevé s'étalent et se rapprochent des gaussiennes.



Figure III. 1 Contribution des termes multiphonons Gn.

#### III.E.3 Calcul de la section d'absorption

Ayant calculé la fonction S on peut aborder le calcul de la section efficace de la capture radiative en effectuant la convolution III-20. Plusieurs tentatives de calcul ont été faites. On citera à ce sujet l'étude de G. M. Borgonovi et al.<sup>11</sup> dans laquelle les auteurs avaient utilisé une version modifiée du code GASKET pour le calcul de la section d'absorption. On pourra aussi citer l'étude de R. Cher, O. Ozer et R. So<sup>12</sup> qui ont précisé l'importance des liens cristallins sous certaines conditions.

On introduit aussi quelques modifications dans le formalisme de Lamb considéré précédemment. Premièrement pour le calcul de la section efficace nucléaire nous avons utilisé le formalisme de Reich-Moore<sup>13</sup> au lieu de la section de Breit-Wigner simple niveau de l'article de Lamb. Mentionnons que dans le papier de Lamb les paramètres de résonances sont donnés dans le système du centre de masse. Par contre dans les évaluations des données nucléaires ils sont fournis dans le système du laboratoire. En conséquence il a fallu décaler les abscisses de la loi de transfert de la valeur du recul dont la valeur moyenne est E/(A+1).

Le code principal DOPUSH<sup>14</sup> calcule l'intégrale de convolution décrite par la formule :

$$\sigma_{T}(E) = \int_{-\beta_{min}}^{\beta_{max}} \sigma_{N} (E + \beta T_{c}) S(\alpha, \beta) d\beta , \qquad (III-24)$$

$$S(\alpha, \beta) = S_{1}(\alpha, \beta) + e^{-W\alpha} \delta(\beta) .$$

où  $\sigma_T$  est la section Doppler à la température  $T_c$ ,  $\sigma_N$  est la section nucléaire, W est l'intégrale de Debye Waller et  $\beta$  représente le transfert d'énergie.

Pour atteindre une précision donnée on a implanté dans le code DOPUSH la méthode de piles inversées<sup>15</sup> pour la reconstruction de la résonance par III-20 point

par point. Cette méthode permet d'avoir un gain en temps de calcul. Dans cette méthode le schéma d'interpolation de type linéaire-linéaire a été choisi. Pour le calcul de la fonction  $S_1$  (contribution multi-phonons) le code LEAPR modifié a été utilisé comme un sous-programme du code DOPUSH.

Le second terme de la loi S est la contribution sans recul. La convolution avec ce terme singulier est immédiate : il est très important à basse énergie et à basse température. Le contrôle de la précision du calcul se fait en respectant les propriétés III-22, III-23 pour chaque énergie initiale.

Deux paramètres ont été jugés avoir une forte influence sur la précision. Pour les températures supérieures à 50 Kelvins la précision est atteinte par ajustement du premier paramètre qui est le nombre de phonons correspondant à l'échange d'énergie entre le neutron et le réseau cristallin, c'est-à-dire l'ordre du développement de l'intégrale III-21. Dans notre calcul on n'a pas fait appel à l'approximation de temps de collision court pour ne pas commettre d'erreurs dues à cette approximation.

Pourtant pour les basses températures (au-dessous de 50 K) la probabilité de gagner de l'énergie par neutron est faible, par contre une plus grande énergie peut être transférée au réseau ce qui nous oblige d'augmenter le domaine d'intégration sur le transfert (variable  $\beta$ ) alors le deuxième moyen de contrôler la précision du calcul est l'augmentation du domaine d'intégration dans l'intégral III-24.

La précision du calcul de la fonction S et de la reconstruction des sections efficaces par la méthodes des piles inversées a été fixé à 0.1%. La forme de la fonction S étant très compliquée, toutes les intégrations ont été faites par la méthode des trapèzes pour attendre une précision demandée.

Un calcul similaire a été fait pour le modèle du gaz libre, soit avec la température thermodynamique soit avec la température effective déduite de l'énergie cinétique moyenne par degré de liberté du noyau résonnant. Nous allons montrer comment se raccorde le modèle cristallin harmonique et les deux modèles du gaz libre.

#### **III.F REFERENCES**

 <sup>2</sup> A. K. Ghatak and L. S. Kothari Introduction to lattice dynamics Addison-Wesley Publishing company (1971).

<sup>3</sup> I. I. Gurevich and L. V. Tarasov Low-energy physics north-Holland publishing company, Amsterdam (1968).

- <sup>4</sup> A. Sitenko *Theory of nuclear reactions* Springer-Verlag (1981).
- <sup>5</sup> Djamel E. Djafri Effect of phonon Transfer on the neutron resonance line shape

<sup>1. &</sup>lt;sup>1</sup> W.E.Lamb, *Capture of neutrons by atoms in a crystal* Phys.Rev., 55, 190 (1939).

Ann. Nucl. Energy, Vol. 21, No. 3(1994). <sup>6</sup> C. D. Bowman and R. A. Schrack Effects of phonons transfer on near thermal neutron fission cross section Phys. Rev. 17, 654 (1978). <sup>7</sup>H. A. Bethe and G. Placzek Phys. Rev. 51, 450(1937). <sup>8</sup> J. U. Koppel, J. R. Triplett and Y. D. Naliboff Gasket a unified code for thermal neutron scattering GA-4717 (1966). <sup>9</sup> R.E. MacFarlane New thermal neutron scattering files for ENDF/B-VI release 2 LA 12639-MS (1994). <sup>10</sup> A. Sjölander Multi-phonons processes in slow neutron scattering by crystals Arkiv Fysik 14, 315 (1958). <sup>11</sup> G.M. Borgonovi, D.H. Houston, J.U. Koppel, E.L. Slaggie Crystal-binding effects on doppler broadening of neutron absorption resonances Phys. Rev. 1, 2054 (1970). <sup>12</sup> R. Cher, O. Ozer, R. So Crystalline binding effects on <sup>238</sup>U resonance line shapes in UO<sub>2</sub> lattices ANS 46, 728 (1984). <sup>13</sup> C. W. Reich and M. S. Moore Multilevel formula for the fission processes Phys. Rev. 111, 3(1958). <sup>14</sup> D. Naberejnev et C. Mounier Etude de l'influence des liaisons cristallines sur les sections efficecs et les paramétres neutroniques rapport DMT/97-219 (1997). <sup>15</sup> C. Diop Méthode de génération des sections efficaces ponctuelles par le module RECONS du système THEMIS

Rapport DMT 87/512, SERMA/LEPP/87/966 (1987).

This page is intentionally left blank.

4

# IV APPLICATIONS CONCERNANT L'ABSORPTION RESONNANTE

Le but principal de cette étude est de traiter correctement l'effet des liaisons chimiques pour les noyaux de l'uranium dans l'UO<sub>2</sub> pour le comparer au modèle du gaz libre. Les applications numériques porteront sur plusieurs niveaux.

Le premier niveau de comparaison porte sur les sections efficaces elles-mêmes pour les trois modèles suivants : le modèle du cristal harmonique (CH), le modèle du gaz libre avec une température réelle (GL) et le modèle du gaz libre à une température effective (GLE). La condition d'utilisation du modèle GLE sera testée pour différentes résonances et différentes températures. Ensuite le modèle du cristal harmonique de Lamb et les deux modèles GL et GLE serons testés par comparaisons avec les expériences récentes faites à Geel.

Avec le deuxième niveau, il s'agit de comparer des taux de réaction pour s'approcher de la neutronique qui nous intéresse en définitive.

Une troisième étude portera sur l'analyse des résonances de différents composés des noyaux lourds tels que <sup>238</sup>U, <sup>240</sup>Pu, <sup>237</sup>Np. Cette étude est menée avec des paramètres de résonances empruntés à la bibliothèque JEF2.2<sup>1</sup> qui sont supposés être « vrais ».

Les problèmes rencontrés à l'analyse des expériences et dus à l'utilisation du modèle GL nous incitera à effectuer une autre étude importante, liée directement au modèle CH. Celle-ci consiste à estimer les erreurs commises au niveau de l'analyse des résonances. L'utilisation du modèle du gaz libre dans les codes d'analyse des résonances provoque des erreurs non négligeables aussi bien sur les paramètres des résonances que sur les taux de réaction. Pour démontrer ceci nous allons simuler numériquement et théoriquement une expérience de transmission en utilisant le modèle de Lamb comme référence. Pour finir on estimera les erreurs commises sur les taux de réaction du modèle GL pour l'analyse des résonances.

Finalement on parlera du modèle plus élaboré, celui du cristal anharmonique et les conclusions qui peuvent être tirées de nos études seront exposées.

Nous allons commencer par présenter quelques quantités liées à la dynamique des noyaux dans une structure cristalline, qui nous serviront par la suite. Le spectre de fréquence de l'<sup>238</sup>U dans l'UO<sub>2</sub> qui est à la base du calcul précis de l'effet Doppler, sera étudié ainsi que quelques éléments de qualification expérimentale de ce modèle.

## IV.A VIBRATIONS DES NOYAU DE L'238U: MODELE DE DOLLING

Ce modèle<sup>2.3</sup> permet de calculer le spectre de fréquence moyennant une modélisation de la dynamique de l'UO<sub>2</sub> et les mesures des lois de dispersion suivant certaines directions d'un monocristal de l'UO<sub>2</sub> et des propriétés diélectriques. La cellule élémentaire de l'UO<sub>2</sub> est constituée de trois noyaux d'où l'existence de neuf relations de dispersion. Ces mesures de fréquences, avec une précision de 2 à 3% servent à ajuster les onze paramètres du modèle qui donne l'accord avec l'expérience le plus satisfaisant puisque le  $\chi^2$  réduit (par degré de liberté) est de 1,48. Les auteurs ont vérifié ce modèle vis à vis d'une mesure de capacité calorifique à pression constante. La capacité calorifique à volume constant peut être déduite du spectre de fréquence total qui lui-même est calculé en résolvant l'équation séculaire sur un échantillonnage de vecteurs d'onde. Nous donnons sur la Figure IV.1 le spectre pondéré de l'uranium et le spectre total.

On se propose de valider ces spectres en calculant certains paramètres qui peuvent être déduits des spectres de fréquence. Concernant la capacité calorifique (déduite du spectre total), l'accord est assez bon compte tenu du fait que la grandeur mesurée ( $C_p$ ) n'est pas identique à la valeur calculée ( $C_v$ ) et qu'il existe d'autres phénomènes physiques non pris en compte, comme le magnétisme, qui contribuent à la capacité calorifique à pression constante. La différence entre  $C_p$  et  $C_v$  est donnée par la relation ci-dessous qui fait intervenir la densité  $\rho$ , la compressibilité isotherme  $B_T$  et le coefficient de dilatation volumique  $\beta$ :

$$C_{p} = C_{v} + \frac{\beta^{2} T B_{T}}{\rho}$$

Nous n'avons pas cherché à faire une correction des valeurs calculées pour avoir une comparaison stricte entre les grandeurs mesurées et calculées car, d'une part, cette correction est petite et d'autre part, le spectre total, qui sert au calcul de  $C_v$ , n'est pas le spectre utile pour l'élargissement Doppler. On peut voir sur la Figure IV.2 que l'accord entre l'expérience<sup>4</sup> et le calcul est satisfaisant.

Le deuxième point de qualification du modèle concerne le calcul de l'intégrale de Debye-Waller de l'uranium qui est liée à son déplacement quadratique moyen (sur la figure en unités 10<sup>-20</sup> m<sup>-2</sup>). L'expression de cette intégrale qui fait intervenir le spectre pondéré est la suivante :

$$W = \frac{h^2}{MTk_B} \int_{0}^{\omega_{max}} f_U(\omega) \coth(\frac{\omega}{2k_BT}) \frac{d\omega}{\omega}.$$
 (IV-1)

Celle-ci est déduite des mesures de diffraction neutronique de Willis.<sup>5</sup> L'accord entre l'expérience et le modèle est assez bon sur l'ensemble de la gamme de températures couverte par la mesure 300-1300 K (voir la Figure IV.3). A température ambiante, l'écart relatif entre la mesure et le calcul atteint près de 20% pour une incertitude expérimentale de 6%.

L'accord entre le calcul et l'expérience pour l'intégrale Debye-Waller de l'oxygène, non présenté ici, se dégrade à haute température, l'auteur de ces mesures invoque pour l'expliquer un effet anharmonique qui provoque une anisotropie des vibrations de l'oxygène. Par contre pour l'intégrale de Debye-Waller de l'uranium, il ne semble pas y avoir d'anharmonicité forte. Nous reviendrons dans le chapitre « perspectives » sur ce problème d'anharmonicité. Avec ces réserves, l'étude appliquée de l'effet Doppler qui suit et qui a pour point de départ le spectre pondéré semble convenablement validé sur ces mesures. A notre connaissance, on dispose avec ce spectre pondéré de l'information la plus fine sur la dynamique de l'uranium dans l'UO<sub>2</sub>.

A titre d'exemple on présente sur la Figure IV.4 le calcul de la température effective déduite du spectre de fréquences pondéré selon III-14.

On juge important de préciser que la température de Debye peut être déduite de la dernière expression en remplaçant le spectre pondéré par celui de Debye ( $\omega_{max}$  doit être remplacé par  $\omega_D$  respectivement) et en résolvant l'équation intégrale résultante. L'application numérique donne une température de Debye équivalente au spectre pondéré de l'<sup>238</sup>U dans l'UO<sub>2</sub> de 288 K. Cette dernière est nettement en désaccord avec la température 620 K, la valeur déduite des expériences d'oscillation dans Minerve.<sup>6</sup> Nous donnerons par la suite quelques éléments permettant d'expliquer cette divergence.



Figure IV.1 Spectre de vibration de l'UO2.



Figure IV.2 Capacités calorifiques.



Figure IV.3 Intégrale de Debye-Waller.



Figure IV.4 Température effective.

## IV.B RESULTATS NUMERIQUES SUR LE DIOXYDE DE L'238U

## **IV.B.1** Sections efficaces

On s'intéressera aux trois premières résonances de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> (6.674 eV, 20.871 eV, 36.682 eV) et différentes températures (77, 293.16, 973.16 K). Les courbes pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> sont présentées sur la Figure IV.5-Figure IV.7 pour les trois températures. Ici et dans la suite du manuscrit les énergies sont données dans le système du laboratoire. Comme on pouvait prévoir la différence entre les trois modèles diminue au fur et à mesure que la température augmente.

Pour la température 77 K on peut remarquer un léger décalage entre la courbe de la section du modèle cristallin et celles de deux modèles du gaz libre. Ce décalage est dû à l'échange d'énergie entre le noyau dans une structure cristalline et le neutron, c'est-à-dire à l'énergie de recul. Ce décalage dépend de l'énergie du neutron incident, du spectre des fréquences utilisé et de la température.

A cette température la fonction S discutée précédemment a une forme très complexe qui décrit les échanges d'énergie entre le neutron et le cristal. A titre d'exemple on présente cette fonction pour l'énergie du neutron incident E=6.66 eV (Figure IV.8) et à la température de 77K. Sur la figure on ne présente que la partie multiphonon de cette fonction, dite loi de transfert (voir III-24), c'est-à-dire la loi sans contribution élastique. Cette dernière, à cette énergie et à cette température, représente 3.6% du total. Autrement dit, la loi sur la figure est normalisée à 0.964. La contribution du terme non recul (fonction delta) est ajoutée directement à la section convoluée. Cette contribution a été également prise en compte pour la validation de la précision du calcul de la fonction S selon III-22 et III-23. Elle est très importante à basse énergie et basse température : pour la première résonance et à T=4 K sa contribution atteint 12%. On voit bien que les probabilités de gagner et de perdre de l'énergie d'excitation ne sont pas égales comme c'est pratiquement le cas dans le cadre du modèle du gaz libre. Les liens cristallins jouent donc un rôle très important, particulièrement aux basses températures, et par conséquent ni le modèle du gaz libre à la température réelle ni celui du gaz libre à la température effective ne sont corrects.

On remarque aussi que dans certaines configuration, c'est le cas de la première résonance à 6.674 eV et à la température 293.16 K, le modèle du gaz libre avec une température thermodynamique donne un meilleur accord visuel avec le modèle cristallin que le modèle du gaz libre avec une température effective.

Pour les températures plus élevées (Figure IV.7) la différence entre les modèles s'efface et on peut estimer, en tout cas dans le cadre du modèle harmonique, que la situation est correctement décrite par le modèle du gaz libre avec une température effective. Ces meilleurs résultats pour les températures plus élevées s'expliquent par le fait qu'avec l'augmentation de la température, l'équilibre entre les pertes et les gains d'énergie s'établit et qu'en conséquence, la loi de transfert du cristal tend vers celle du gaz libre.



Figure IV.5 Section efficace d'absorption de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub>. Première résonance à 6.674 eV et à T=77 K. La courbe CH correspond à la section calculée avec le modèle cristallin, GL correspond à celle calculée avec le modèle du gaz libre, GLE correspond à celle du modèle du gaz libre avec la température effective Teff=119.577 K déduite selon III-14.



Figure IV.6 Section efficace d'absorption de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub>. Première résonance à 6.674 eV et à T=293.16K. La courbe CH correspond à la section calculée avec le modèle cristallin, GL correspond à celle calculée avec le modèle du gaz libre, GLE correspond à celle du modèle du gaz libre avec la température effective Teff=307.29K déduite selon III-14.



Figure IV.7 Section efficace d'absorption de capture de l'238U dans UO2. Première résonance à 6.674 eV et à T=973.16K. La courbe CH correspond à la section calculée avec le modèle cristallin, GL correspond à celle calculée avec le modèle du gaz libre, GLE correspond à celle du modèle du gaz libre avec la température effective Teff=977.95K déduite selon III-14.



Figure IV.8 Loi de transfert S à 6.66 eV et à 77 K.

On se propose à présent d'étudier la condition de validité III-15 de la substitution du calcul avec le modèle du cristal harmonique par un calcul avec le modèle du gaz libre à une température effective. Il s'agit de savoir si la condition de Lamb est vérifiée.

A T=293.16 K et pour les énergies autour de la première résonance de <sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> le terme de droite de III-15 vaut  $2\theta_D=0.04962$  eV. Pour calculer cette quantité on a considéré la température de Debye équivalente (conservation de la température effective pour le spectre de Debye (voir III-18)) plutôt que la fréquence maximale du spectre de Dolling (0.086 eV) car elle est plus représentative de l'effet Doppler.

Pour la première résonance positive de l'<sup>238</sup>U à 6.674 eV et à la température 293.16 K on a  $\Gamma + 2(R\overline{\epsilon})^{1/2} = 0.0796$  eV, autrement dit, la condition de Lamb n'est pas bien vérifiée à température ambiante. On peut donc dire a priori que le modèle du gaz libre avec température effective n'est pas nécessairement plus précis que le même modèle avec la température réelle. Dans ce cas, comme on l'a noté précédemment, les écarts sur les sections efficaces entre le modèle du cristal et les modèles de gaz libre sont appréciables.

Pour la deuxième résonance à 20.871 eV, pour laquelle des écarts sur les sections efficaces sont plus petits, la condition de Lamb est mieux vérifiée :  $\Gamma + 2(R\bar{\epsilon})^{1/2} = 0.1216$  eV. Enfin pour la troisième à 36.682 eV, le premier membre vaut  $\Gamma + 2(R\bar{\epsilon})^{1/2} = 0.1532$  eV ce qui est trois fois supérieur au second membre.

A haute énergie, quelle que soit la force des liaisons cristallines, le recul R est suffisamment grand pour vérifier la condition de Lamb et donc le modèle du gaz libre avec température effective doit être très satisfaisant. De façon analogue à très haute température les liaisons chimiques peuvent être ignorées toujours dans le cadre de vibrations harmoniques, ainsi déjà à 973.16 K pour les résonances à 6.674, 20.871 et 36.682 eV les premiers membres de la condition de Lamb valent respectivement 0.1225 eV, 0.1975 eV et 0.2537 eV. On peut avancer ce fait que si la partie gauche est dix fois supérieure à la partie droite de III-15, la condition de Lamb peut être considérée satisfaite. On présente ces résultats dans le Tableau IV:1.

	Résonance	$\Gamma + 2(R\overline{\epsilon})^{\frac{1}{2}}, eV$	$2\theta_{\rm D},{\rm eV}$
T <sub>c</sub> =293.16 K	6.674 eV	0.0796	
	20.871 eV	0.1216	0.04962
	36.682 eV	0.1532	
T <sub>c</sub> =973.16 K	6.674 eV	0.1225	0.0526
	20.871 eV	0.1975	
	36.682 eV	0.2537	

Tableau IV:1 Vérification de la condition de Lamb pour les trois premières résonances de l'UO<sub>2</sub> aux différentes températures.

On voit bien que la condition de Lamb III-15 n'est pas toujours satisfaite, surtout pour les résonances à basse énergie, et que le modèle du gaz libre avec une température effective n'est pas nécessairement plus précis. Evidemment, on peut se contenter de ce modèle pour certaines applications.

On présente sur les figures suivantes (Figure IV.9-Figure IV.17) les différences entre le modèle du gaz libre et le modèle cristallin, ainsi qu'entre le modèle du gaz libre avec une température effective et le modèle cristallin pour les trois premières résonances de l'<sup>238</sup>U dans l'UO<sub>2</sub> aux différentes températures. Cette différence est la soustraction mathématique des sections efficaces correspondant aux modèles différents:

## Différence=HC<sub>Absorption</sub>-GL(GLE)<sub>Absorption</sub>.

Les erreurs relatives sur les sections efficaces varient pour différentes résonances et différentes températures. Par exemple pour la première résonance à 6.674 et à 77 K l'erreur relative entre le modèle HC et le modèle GL est de l'ordre de 17% autour du pic de la résonance. Pour la même résonance à 293.16 K l'erreur est de l'ordre de 4%. Cette erreur diminue avec l'augmentation de la température et de l'énergie du neutron incident (0.5% pour la première résonance à 973.16 K). Cependant les quantités qui intéressent les physiciens des réacteurs nucléaires sont les taux de réaction. Ces derniers sont déterminés par l'intégrale des sections pondérées par le flux de neutrons. Pour se rapprocher de la neutronique on se propose d'étudier l'influence des liaisons chimiques sur les taux de capture.



Figure IV.9 Comparaison de modèles : résonance à 6.674 eV T=77K (Teff=119.577K).



Figure IV.10 Comparaison de modèles: résonance à 6.674 eV, 293.16K (Teff=307.29K).



Figure IV.11 Comparaison de modèles : résonance à 6.674 eV, 973.16K (Teff=977.95K).



Figure IV.12 Comparaison de modèles : résonance à 20.872 eV, 77K (Teff=119.577K).



Figure IV.13 Comparaison de modèles : résonance à 20.872 eV, T=293.16K (Teff=307.29K).



Figure IV.14 Comparaison de modèles : résonance à 20.872 eV, T=973.16K (Teff=977.95K).



Figure IV.15 Comparaison de modèles : résonance à 36.682 eV et T=77K (Teff=119.577K).



Figure IV.16 Comparaison de modèles : résonance à 36.682 eV,T=293.16K (Teff=307.29K).



Figure IV.17 Comparaison de modèles : résonance à 36.682 eV, T=973.16K (Teff=977.95K).

## IV.B.2 Taux de capture

Les calculs des taux de capture pour les températures de 293.16 et 973.16 K ont été effectués pour les différentes sections de dilution en utilisant le modèle WR (modèle des résonances larges) et NR (modèle des résonances étroites) pour représenter le flux.<sup>7</sup> Dans ce but le code RESKOR<sup>8</sup> a été écrit. Ce code utilise le code DOPUSH de calcul des sections comme un sous-programme. Le modèle WR a été utilisé pour le calcul des taux de capture pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub>. Le modèle NR nous a permis d'estimer les taux de capture pour la deuxième résonance. La précision du calcul des sections efficaces et des taux de réaction est estimée à 0.1%.

On note que le calcul du flux a nécessité la connaissance de la section totale de la diffusion pour laquelle on a appliqué le modèle de Lamb. La justification de l'utilisation de modèle de Lamb pour la section totale sera discuté dans le chapitre V. L'application du même modèle sur la section de fission a été étudiée par Shrack et Bowman.<sup>9</sup>

L'erreur relative entre les modèles peut être définie comme suit :

erreur relative = 
$$\frac{TAUX(CH) - TAUX(GL, GLE)}{TAUX(CH)} \times 100\%$$

où CH est le résultat obtenu avec le modèle du cristal harmonique de Lamb, GL est le résultat obtenu avec le modèle du gaz libre avec une température thermodynamique et GLE est celui obtenu avec le modèle du gaz libre avec une température effective. On présente sur les Figure IV.18-Figure IV.21 l'erreur relative en fonction de la section de dilution. On rappelle que la section de dilution de l'238U d'un réacteur à eau pressurisée (REP) est de l'ordre de 50 barns.

Les écarts constatés entre le modèle cristallin et le modèle du gaz libre avec ou sans température effective sont faibles de l'ordre de quelques fractions de pour cent. Le modèle du gaz libre avec une température effective est toujours plus proche du modèle cristallin sans être nettement meilleur que le modèle du gaz libre à la température réelle. Comme on l'a vu précédemment la condition de Lamb n'est pas strictement vérifiée, par conséquent, les sections efficaces obtenues avec le modèle du gaz libre diffèrent de celle du modèle harmonique.

Finalement, la température de Debye équivalente au sens de la conservation des taux de réaction serait supérieure à 288 K mais la problématique pour l'obtenir devient dépendante de l'expérience neutronique (essentiellement de la dilution associée à l'<sup>238</sup>U). On peut envisager de faire une analyse convergente : utilisant l'approche microscopique présentée dans ce rapport et l'approche intégrale consistant à analyser l'expérience d'oscillation dans le réacteur Minerve.<sup>6</sup> Rappelons que l'analyse de cette expérience par H. Tellier donnant une température de Debye équivalente de 620 K était en quelque sorte une équivalence en taux de réaction. Cette approche s'avère finalement plus réaliste malgré la complexité de l'analyse de l'expérience d'oscillation. En effet, si l'on considère les résultats numériques pour les résonances de l'<sup>238</sup>U à basses énergies, il faudrait une température de Debye équivalente plus élevé. Pour les résonances à plus hautes énergies, la température de Debye équivalente de Debye équivalente de 288 K devrait être correcte.

En résumé on note que la température qui intéresse les physiciens des réacteurs est obtenue par l'équivalence entre les taux de capture issus du modèle harmonique et les taux de capture issus du modèle du gaz libre. Ceci revient à ajuster la température dans le modèle du gaz libre enfin de réduire les erreurs relatives discutées précédemment. Cette température ajustée est celle à utiliser dans les codes de neutronique.

Les modèles WR et NR ne prennent pas en compte strictement la section de transfert. Cette dernière peut influencer le flux des neutrons. Or la démarche à suivre est la suivante. L'influence des liens cristallins doit être prise en compte pour tous les types de sections (capture, fission, diffusion totale, transfert). Après quoi ces sections doivent être utilisées pour créer une bibliothèque de sections multigroupes. Un calcul de ralentissement avec un code de transport, par exemple APOLLO2,<sup>10</sup> doit être effectué avec cette bibliothèque. Cette approche permettra d'avoir une vue d'ensemble sur les effets dus à la structure cristalline du combustible nucléaire. Si l'on veut garder le modèle du gaz libre dans les codes de traitement des données nucléaire (comme le code NJOY<sup>11</sup>), l'approche décrite cidessus permettra de déduire une température T<sub>R</sub> qui conserve les taux de réaction entre le modèle cristallin et le modèle du gaz libre. Cette température doit être utilisée pour le calcul neutronique.

Cette approche nécessite une description de la section de transfert et de la section de diffusion totale dans le cadre du modèle du cristal harmonique. L'influence des liens chimiques sur la section de transfert dans le domaine des résonances n'a jamais été estimée de manière adéquate, du moins en ce qui concerne le modèle calculable de la section de transfert et l'application dans la physique des réacteurs. Le chapitre V sera consacré à ce problème.



Figure IV.18 Erreur relative sur le taux de capture pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> à 6.674 eV et à la température de 293.16 K. Modèle WR. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH et le modèle GL. La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH et le modèle GLE.



Figure IV.19 Erreur relative sur le taux de capture pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> à 6.674 eV et à la température de 973.16 K. Modèle WR. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH et le modèle GL. La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH et le modèle GLE.



Figure IV.20 Erreur relative sur le taux de capture pour la deuxième résonance de l'<sup>238</sup>U dans  $UO_2$  à 20.871 eV et à la température de 293.16 K. Modèle NR. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH et le modèle GL. La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH et le modèle GLE.



Figure IV.21 Erreur relative sur le taux de capture pour la deuxième résonance de l' $^{238}$ U dans UO<sub>2</sub> à 20.871 eV et à la température de 973.16 K. Modèle NR. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH et le modèle GL. La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH et le modèle GLE.

#### **IV.C ANALYSE DES RESONANCES**

#### IV.C.1 L'uranium <sup>238</sup>U

L'analyse des résonances permet d'accéder à une description simplifiée du spectre de fréquence pondéré, sans doute suffisante s'agissant de calculer la section efficace. En effet, cette dernière résulte d'intégrations multiples où le détail du spectre de fréquence doit peu influencer la forme des résonances.

Au premier ordre, ce qui est prépondérant en tout cas aux températures ordinaires, c'est la température effective associée au spectre pondéré. Autrement dit, il est possible d'avoir des spectres pondérés différents donnant la même température effective. Parmi ces représentations simples du spectre pondéré, nous retiendrons celle de Nernst-Lindemann utilisée dans de nombreux travaux, en particulier ceux de Meister<sup>12</sup> qui présentent des résultats pour différents composés contenant de l'uranium :

$$f(\omega) = \sum_{i} w_{i} \delta(\omega - \omega_{i}).$$

Nous donnons les résultats de ces analyses ainsi que la température de Debye équivalente.

Pour l'uranium métal où le spectre est représenté avec une fréquence à 11 meV, la température de Debye équivalente est de 165 K.

Pour l'uranium dans le dioxyde d'uranium avec une représentation du spectre à deux fréquences 11 meV (92% du poids total) et 46 meV, la température de Debye est de 258 K ce qui est proche de celle déduite dans cette étude.

Pour l'uranium dans l'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> où les fréquences sont de 13 meV (90% du poids total) et 52 meV, elle est de 300 K.

Enfin pour un composé pouvant apparaître en criticité, le  $UO_2(NO_3)_2$ -6H<sub>2</sub>O, elle vaut 390 K. Pour ce dernier composé, il faut émettre une réserve s'agissant de savoir si lorsque ce sel est mis en solution, l'intégrité des liaisons chimiques est conservée.

Les mesures récentes faites par Meister à Geel à 23.6 et 293.6 K montrent bien l'importance des liaisons chimiques.<sup>12</sup> Les mesures sont du type transmission :

 $T = R * e^{-n\sigma_t}$ 

où R est la résolution expérimentale, n la concentration,  $\sigma_t$  est la section totale. Le symbole \* signifiant convolution. Autrement dit, pour obtenir la section efficace totale Meister a opéré une déconvolution, c'est-à-dire :

$$\sigma_{t} = -(1/n)\log(R^{-1} * T)$$

Ce processus de déconvolution est numériquement délicat à cause des fluctuations statistiques. Nous donnons ci-dessous les comparaisons entre le calcul et l'expérience sans utiliser la technique de l'analyse des résonances avec des codes comme REFIT<sup>13</sup> et SAMMY<sup>14</sup> qui permettent de prendre en compte les différents aspects expérimentaux. Malheureusement ces codes ne sont pas encore dotés du modèle d'élargissement Doppler cristallin hormis tout récemment REFIT.

Pour l'<sup>238</sup>U dans l'UO<sub>2</sub> à 23.6 K et 293.6 K, l'accord est satisfaisant au niveau forme avec les paramètres de résonance JEF2.2<sup>1</sup>, on note un petit décalage entre les pics calculé et expérimental de 5 meV à 23.6 K et de 1 meV environ à 293.6K. Ce décalage peut être lié à l'incertitude sur les paramètres des résonances qui dans la littérature se trouve égal à 2 meV.

Pour l'<sup>238</sup>U dans l'uranium métallique, aux températures identiques aux précédentes, l'accord est assez bon. Le spectre de fréquence utilisé est un spectre de Debye avec  $\theta_D$  égal à 165 K. On a aussi décalé le pic de la résonance de 6.674 à 6.679 eV de façon à mieux juger l'accord sur la forme.

# IV.C.2 Le plutonium <sup>240</sup>Pu

Mentionnons la mesure à la température ambiante de Liou et Chrien<sup>15</sup> du <sup>240</sup>Pu pour la résonance à 1.056 eV; les auteurs de la mesure ont obtenu, pour minimiser les écarts entre le calcul et l'expérience, une température ajustée inférieure à la température thermodynamique. Cela est symptomatique du fait que la condition de Lamb n'est pas satisfaite. En effet si elle l'était, la température ajustée (équivalente en quelque sorte à la température effective) serait supérieure à la température thermodynamique. En utilisant le spectre des vibrations de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub>, on peut vérifier qu'effectivement pour cette résonance et à la température ambiante la condition de Lamb n'est pas satisfaite. Le membre de gauche de III-15 vaut 0.053 eV, le membre de droite vaut 0.04962 eV. On peut s'attendre à observer ce comportement pour les résonances à basse énergie, car le recul est très faible.



Figure IV.22 Section totale de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub>. Première résonance à 6.674 eV et à la température 23.6 K. La courbe HC correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique, la courbe Meister correspond aux résultats expérimentaux de Meister et al.<sup>12</sup>



Figure IV.23 Section totale de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub>. Première résonance à 6.674 eV et â la température 293.6 K. La courbe HC correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique, la courbe Meister correspond aux résultats expérimentaux de Meister et al.<sup>12</sup>



Figure IV.24 Section totale de l<sup>238</sup>U (métallique). Première résonance à 6.674 eV et à la température 23.6K. La courbe HC (Debye) correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique et le spectre de Debye, la courbe Meister correspond aux résultats expérimentaux de Meister et al.,<sup>12</sup> la courbe GLE correspond au calcul avec le modèle du gaz libre avec une température effective.



Figure IV.25 Section totale de l'<sup>238</sup>U (métal). Première résonance à 6.674 eV et à la température 293.6K. La courbe HC (Debye) correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique et le spectre de Debye, la courbe Meister correspond aux résultats expérimentaux de Meister et al.,<sup>12</sup> la courbe GLE correspond au calcul avec le modèle du gaz libre avec une température effective.

## IV.C.3 Mesure des sections de <sup>237</sup>Np dans NpO<sub>2</sub>

Cette mesure effectuée en 1994<sup>16</sup> peut être considérée comme un banc d'essai pour un groupe débutant dans le domaine des mesures de sections efficaces neutroniques. Malgré ses défauts, cette mesure met en évidence très probablement un phénomène de liaisons cristallines. Nous analyserons uniquement la résonance à 0,5 eV car l'influence de la résolution expérimentale est négligeable. D'autre part, on supposera le bruit de fond négligeable bien que ce point soit discutable à la lumière de mesures ultérieures sur le <sup>99</sup>Tc qui montrent une structure dans le bruit de fond. Cette structure n'a pas pu être appréhendée lors de la mesure du <sup>237</sup>Np avec le dispositif expérimental de l'époque. Ceci étant dit, on a calculé simplement la section efficace expérimentale en prenant le logarithme de la transmission :

 $\sigma_{1} = -(1/n)\log(T).$ 

Nous donnons à titre d'illustration la loi de transfert à 15 K (Figure IV.26) pour le neptunium dans le NpO<sub>2</sub> en prenant sans justification le spectre de fréquence de l'Uranium dans l'UO<sub>2</sub>.



Figure IV.26 Loi de transfert pour NpO<sub>2</sub> à 0.49 eV et 15 K

On voit que la loi de transfert est extrêmement « chahutée » et donc fortement éloignée de la loi de transfert du gaz libre qui est en première approximation symétrique (gaussienne).

Précisons encore une fois un point important : sur ce graphe ne figure que la contribution multiphonons de la loi de transfert normalisée à 0.15 pour l'énergie et la température en question. En effet, à 0.49 eV et 15 K, la contribution du terme de non recul représente près de 85% du poids total de la loi de transfert.

On trouve sur la Figure IV.27 les sections efficaces totales pour les modèles cristallin et gaz libre aux températures réelle et effective. On note que la section efficace associée au modèle cristallin est encadrée par les courbes du modèle de gaz libre. Toujours pour la même résonance mais à 298 K la contribution de non
recul reste très importante avec 45%. Le pic de section efficace du cristal se trouve au-dessus de celui du gaz libre à la température réelle et donc a fortiori pour le gaz libre à la température effective. Cette inversion de position du pic s'explique par une compétition entre le poids du terme de non recul et l'effet Doppler qui est commandé par la température effective. Cette inversion se note sur la Figure IV.28 et la Figure IV.29 où est donnée la mesure de la section totale.

L'analyse des résonances à basse énergie (<3 eV) avec un modèle de gaz libre et à température ambiante conduit à un « paradoxe » : à savoir que le meilleur lissage de la mesure entraîne l'obtention d'une température ajustée inférieure à la température réelle. Ce paradoxe n'est donc que le résultat de l'inadéquation du modèle du gaz libre avec la réalité. Le modèle anharmonique de Karam et D'Avila<sup>17</sup> semble expliquer ce phénomène, utilisant le spectre de fréquences non normalisé.



Figure IV.27 Section totale du <sup>237</sup>Np dans NpO<sub>2</sub>. Première résonance à 0.49 eV et à la température 15 K. La courbe 'cristal' correspond au calcul avec le modèle cristallin harmonique, la courbe 'gaz' correspond au calcul avec le modèle du gaz libre, la courbe 'gaz(Teff)' correspond au calcul avec le modèle du gaz libre, la courbe 'gaz(Teff)' correspond au calcul avec le modèle du gaz libre avec une température effective.



Figure IV.28 Section totale du <sup>237</sup>Np dans NpO<sub>2</sub>. Première résonance à 0.49 eV et à la température 298K (vue d'ensemble). La courbe 'mesure' correspond aux résultats expérimentaux de Brusegan et al.,<sup>16</sup> la courbe 'cristal' correspond au calcul avec le modèle du cristal harmonique, la courbe 'gaz' correspond au calcul avec le modèle du gaz libre.



Figure IV.29 Section totale du <sup>237</sup>Np dans NpO<sub>2</sub>. Première résonance à 0.49 eV et à la température 298K (zoom). La courbe 'mesure' correspond aux résultats expérimentaux de Brusegan et al.,<sup>16</sup> la courbe 'cristal' correspond au calcul avec le modèle du cristal harmonique, la courbe 'gaz' correspond au calcul avec le modèle du gaz libre.

# IV.D ETUDE DU BIAIS SUR LES PARAMETRES DES RESONANCES DANS LE SCHEMA ACTUEL DE L'EVALUATION DES DONNEES NUCLEAIRES

Dans le schéma actuel de l'évaluation des données nucléaires l'analyse des expériences est faite à l'aide des codes comme REFIT où SAMMY. Ces codes sont dotés uniquement du modèle du gaz libre. Autrement dit, ne pouvant prendre en compte les effets des liaisons chimiques, ces codes engendrent des paramètres biaisés lors de l'analyse des mesures. C'est ce que l'on se propose d'étudier maintenant.

Les paramètres des résonances sont généralement déduits à partir d'une série de mesures faites sur différents composés d'un isotope, pour différents épaisseurs de la cible et à des différentes températures. Alors de ce point de vue les paramètres de résonances sont en quelques sorte « moyennés » sur des mesures de différents composés, mesures aux différentes températures et différents épaisseurs de la cible.

Les travaux fondamentaux, comme celui de Jackson et Lynn<sup>18</sup> ont montré que le modèle GL n'est pas suffisant pour l'étude des composés à fortes liaisons chimiques comme U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>. Les auteurs ont précisé que les mesures devraient être faites sur des composés à faibles liaisons tels que l'uranium métallique. Ceci pourra assurer que l'utilisation du modèle GL ne fasse pas intervenir des erreurs majeures sur les paramètres de résonances. Ce fait est directement lié à la condition de Lamb qui représente la critère d'utilisation du cas limite du modèle cristallin, le modèle du gaz libre effectif.

En effet, pour différents composés des noyaux lourds, l'influence des liaisons chimiques est déterminée par les spectres spécifiques des vibrations des noyaux. Or on peut avancer ce fait que non seulement l'utilisation du modèle du gaz libre n'est pas justifiée pour les composés à fortes liaisons chimiques, mais aussi que les paramètres des résonances doivent dépendre de la nature des liens chimiques.

En résumé: l'analyse des mesures faite sur les composés à fortes liaisons chimiques avec le modèle du gaz libre produit un biais sur les paramètres des résonances. Ceci étant, l'utilisation du modèle GL dans les codes d'analyse comme REFIT ou SAMMY peut donner lieu à discussions sur les paramètres de résonances ainsi obtenus. Il est entendu que ceci concerne une gamme restreinte des mesures : les mesures aux basses températures et les mesures faites sur les composés à fortes liaisons chimiques.

Pour expliquer les origines de ce biais nous proposons à présent de répéter en quelque sorte le schéma actuel de l'évaluation des données nucléaires pour montrer son incohérence avec le modèle du cristal harmonique.

Pour atteindre notre but nous modélisons une expérience de transmission en prenant le modèle du cristal harmonique comme référence (voir dans le chapitre IV.C les comparaisons de ce modèle avec expérience). Le modèle du cristal harmonique de Lamb avec des paramètres initiaux de la bibliothèque JEF2.2 peut servir à modéliser une transmission à l'aide du code REFIT.

Une telle approche permet d'éliminer les erreurs liées à ce genre d'expérience : bruit de font, résolution, etc. (les difficultés liées à ces mesures ont été discutées dans le chapitre IV.C). Pourtant les erreurs statistiques sont à simuler, leurs valeurs sont proportionnelles aux racines carrés des transmissions.

Ayant une référence nous analysons la forme de la transmission issue du modèle cristallin avec le code REFIT doté uniquement du modèle du gaz libre. Les

comparaisons des nouveaux paramètres des résonances (paramètres biaisés) issus de cette analyse avec les paramètres initiaux de JEF2.2 donnent une estimation des erreurs commises sur ces paramètres et dues à l'utilisation du modèle GL dans les codes d'analyse.

Pour valider ce schéma de calcul des transmissions de référence pour chaque isotope à calculer et pour chaque épaisseur de la cible ont été créées avec le modèle du gaz libre effectif. Celles-ci ont été analysées avec le code REFIT. L'analyse de forme de ces transmissions nous a redonné les paramètres des résonances initiaux de JEF2.2. La température ajustée, calculée par REFIT, s'est trouvée être égale à la température effective utilisé dans le calcul de référence. Cette validation nous est indispensable car elle nous assure que les erreurs trouvées ne sont pas liées aux méthodes mathématiques et numériques implantées dans le code REFIT.

L'analyse a été faite pour des différentes noyaux lourds tels que <sup>238</sup>U, <sup>237</sup>Np, <sup>240</sup>Pu et leurs composés. Ces nouveaux paramètres biaisés sont donnés dans les Tableau IV:2-Tableau IV:6 pour différentes épaisseurs de la cible et différentes températures. On remarque que les paramètres ajustés sont dépendants de l'épaisseur de la cible. La température ajustée se trouve être inférieure à la température effective. Le dernier fait est lié à la violation de la condition de Lamb à basses énergie et à basse température. Notons que lors des dernières mesures faites à Geel sur le dioxyde de neptunium le résultat  $T_A < T_{eff}$  a aussi été obtenu.

épaisseur n (atome/barn)	Γ <sub>n</sub> , meV	Γ <sub>γ</sub> , meV	Ε <sub>τ</sub> , eV,	T <sub>A</sub> , K	T <sub>eff</sub> , K
10-4	1.5011	25.848	6.6731	276.6	307.16
2.8610*10-4	1.4999	25.346	6.6735	281.0	307.16
6*10-4	1.4962	24.704	6.6742	287.9	307.16

Tableau IV:2 Paramètres biaisés pour la cible de UO<sub>2</sub> à T=293.16 K. Les paramètres initiaux de JEF2.2 :  $\Gamma_n$ =1.493 meV,  $\Gamma_r$ =23 meV,  $E_r$ =6.674 eV.

épaisseur n (atome/barn)	Γ <sub>n</sub> , meV	Γ <sub>γ</sub> , meV	E <sub>r</sub> , eV,	Т <sub>А</sub> , К	T <sub>eff</sub> , K
10-4	1.5043	25.944	6.6719	94.6	119.6
2.8610*10-4	1.5117	25.291	6.6731	97.1	119.6
6*10-4	1.5593	24.091	6.6750	96.9	119.6

Tableau IV:3 Paramètres biaisés pour la cible de UO<sub>2</sub> à T=77 K. Les paramètres initiaux de JEF2.2 :  $\Gamma_n$ =1.493 meV,  $\Gamma_r$ =23 meV,  $E_r$ =6.674 eV.

épaisseur n (atome/barn)	Γ <sub>n</sub> , eV	Γ <sub>γ</sub> , meV	E <sub>r</sub> , eV,	T <sub>A</sub> , K	T <sub>eff</sub> , K
10-4	1.4968	23.968	6.6738	287.0	297.9
2.8610*10-4	1.4961	23.761	6.6740	289.0	297.9
6*10-4	1.4941	23.538	6.6742	291.6	297.9

Tableau IV:4 Paramètres biaisés pour la cible de <sup>238</sup>U métallique à T=293.16 K. Les paramètres initiaux de JEF2.2 :  $\Gamma_n$ =1.493 meV,  $\Gamma_\gamma$ =23 meV,  $E_r$ =6.674 eV.

épaisseur n (atome/barn)	Γ <sub>n</sub> , meV	Γ <sub>γ</sub> , meV	E <sub>r</sub> , eV,	T <sub>A</sub> , K	T <sub>eff</sub> , K
10-5	2.4544	32.088	1.0533	214.0	307.16
1.79*10-5	2.4513	31.701	1.0557	225.7	307.16
3.6*10-5	2.44	31.112	1.0560	251.5	307.16

Tableau IV:5 Paramètres biaisés pour la cible de PuO<sub>2</sub> à T=293.16 K. Les paramètres initiaux de JEF2.2 :  $\Gamma_n$ =2.44 meV,  $\Gamma_r$ =29.6 meV,  $E_r$ =1.056 eV.

épaisseur n (atome/barn)	Γ <sub>n</sub> , meV	Γ <sub>γ</sub> , meV	E <sub>r</sub> , eV,	T <sub>A</sub> , K	T <sub>eff</sub> , K
8.1*10-4	3.2961	41.142	0.4898	211.4	307.6

Tableau IV:6 Paramètres biaisés pour la cible de NpO<sub>2</sub> à T=293.16 K. Les paramètres initiaux de JEF2.2 :  $\Gamma_n$ =3.291 meV,  $\Gamma_r$ =40 meV,  $E_r$ =0.49 eV.

Ces paramètres biaisés peuvent servir à estimer les erreurs commises sur les taux de réaction par une comparaison des taux de capture entre le modèle cristallin calculé avec les paramètres initiaux de JEF2.2 et les deux modèles du gaz libre calculés avec les paramètres biaisés.

Sur les figures suivantes (Figure IV.30-Figure IV.31) on présente les erreurs relatives commises sur les taux de capture par le biais sur les paramètres des résonances. L'erreur relative est définie comme précédemment :

erreur relative = 
$$\frac{\text{TAUX}(\text{CH}_{\text{JEF2.2}}) - \text{TAUX}(\text{GL}_{\text{biaisé}}, \text{GLE}_{\text{biaisé}})}{\text{TAUX}(\text{CH}_{\text{JEF2.2}})} \times 100\%$$

où  $CH_{JEF2.2}$  note le résultat obtenu avec le modèle du cristal harmonique de Lamb calculé avec les paramètres initiaux de JEF2.2,  $GL_{\text{biaisé}}$  note le résultat obtenu avec le modèle GL calculé avec les paramètres biaisés.

Les graphiques donnent les erreurs relatives en fonction de la section de dilution pour les paramètres issus de l'analyse de deux composés de l' $^{238}U$ :

l'uranium métallique et le dioxyde d'uranium. Les taux de réaction ont été calculés avec le modèle WR pour la première résonance à 6.674 eV.

On peut voir que les erreurs commises en utilisant les paramètres biaisés dans le schéma actuel de l'évaluation des données nucléaires atteignent 2-3% pour le dioxyde de l'uranium. Pour l'uranium métallique dont les liens cristallins sont plus faibles et pour lequel le modèle du gaz libre devrait être suffisant, on constate que les erreurs ne sont pas négligeables et sont de l'ordre de 1%.

Pour la première résonance de <sup>238</sup>U qui représente 30% de l'absorption dans un réacteur à spectre thermique, ces erreurs peuvent largement influencer le calcul de l'absorption résonnante. Les erreurs sur les taux issus de la modélisation de l'UO<sub>2</sub> peuvent être considérées comme majorantes du fait des fortes liaisons dans ce composé. Celles commises sur l'uranium métallique représentent la bande d'erreurs inférieure du fait des faibles liaisons de <sup>238</sup>U métallique.

On note que ces erreurs sont dix fois supérieures aux erreurs propres liées aux modèles de l'élargissement Doppler calculés avec les mêmes paramètres des résonances, ceux de JEF2.2 (voir les Figure IV.18-Figure IV.21).

La conclusion de l'étude présentée ci-dessus est que l'analyse des expériences doit être faite avec un modèle cristallin. Ceci permettra de corriger les biais introduit par le modèle du gaz libre.

Supposant qu'il n'y a pas de biais sur les paramètres des résonances et que l'on continue à utiliser le modèle du gaz libre dans le code NJOY, un calcul de ralentissement avec un modèle cristallin est nécessaire pour ajuster la différence restante sur les taux de réaction (voir chapitre IV.B.2) et en déduire la température à utiliser dans le calcul neutronique. Soulignons que cette étude implique le fait qu'une partie du domaine épithermique devrait être traité comme le domaine thermique : il ne suffit pas de donner les caractéristiques d'un isotope dans les évaluations, mais il faut aussi préciser dans quel composé chimique il se trouve. Les résultats principaux de cette étude ont fait l'objet d'une publication.<sup>19</sup>

L'utilisation de cette méthode décrite dans la partie D du chapitre IV (comparaisons des résultats du calcul avec le code DOPUSH avec le calcul par le code REFIT) a permis d'expliquer les inconsistances dans l'analyse des expériences récentes sur le <sup>237</sup>Np lié dans NpO<sub>2</sub> avec le modèle du gaz libre.<sup>20</sup>



Figure IV.30 Erreur relative sur les taux de capture de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> pour la première résonance à 6.674 eV et à la température 293.16 K. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température thermodynamique (avec les paramètres biaisés du Tableau IV:2). La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température thermodynamique (avec les paramètres biaisés du Tableau IV:2). La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température effective (avec les paramètres biaisés du Tableau IV:2).



Figure IV.31 Erreur relative sur les taux de capture de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> pour la première résonance à 6.674 eV et à la température 293.16 K. La courbe GL donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température thermodynamique (avec les paramètres biaisés du Tableau IV:4). La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température thermodynamique (avec les paramètres biaisés du Tableau IV:4). La courbe GLE donne l'erreur entre le modèle CH (avec les paramètres de JEF2.2) et le modèle du gaz libre avec la température effective (avec les paramètres biaisés du Tableau IV:4).

# IV.E VIBRATIONS ANHARMONIQUES ET MESURES A HAUTES TEMPERATURES

Le seul point restant à étudier est le caractère anharmonique des vibrations. Une série de trois articles de Karam et d'Avila<sup>17</sup> aborde ce problème qui est d'un ordre de complexité plus élevé que la théorie exposée dans ce chapitre. Les auteurs indiquent que l'autoprotection des résonances serait accentuée avec un élargissement Doppler anharmonique à 300 et 1200 K, comportement qui est contraire à celui prédit par le modèle harmonique. Les auteurs ont utilisé, en le développant, le modèle dynamique de Dolling<sup>2</sup> pour l'UO<sub>2</sub>. L'étude approfondie de l'article de Karam et d'Avila n'a pu être faite dans le cadre de ce travail, on se contentera de fournir des éléments de discussion de cet article.

Le fondement de ce travail est contesté par J. Rowlands.<sup>21</sup> Les auteurs de l'étude de l'effet anharmonique sur les sections efficaces maintiennent leurs résultats dans une lettre à l'éditeur. Nous donnons quelques éléments de cette discussion.

Le premier résultat surprenant de cette étude théorique de Karam et d'Avila est la prédiction d'un changement notable du pic des résonances avec la température, particulièrement visible à 80 et 787 eV pour la température de 1200 K. Aux températures de 300 et 1800 K, les résultats sont en meilleur accord avec le modèle du gaz libre. La position du pic, dans le cadre du formalisme de Karamd'Avila, est donnée par :

$$\mathbf{E} = \frac{\mathbf{A}_{\text{eff}} + 1}{\mathbf{A}_{\text{eff}}} \mathbf{E}_{r} - \frac{\mathbf{k} \mathbf{T}_{\text{eff}}^{*}}{\mathbf{A}_{\text{eff}}},$$

où  $E_r$ ,  $T_{eff}^*$  et  $A_{eff}$  sont respectivement l'énergie de la résonance dans le centre de masse, la température effective et la masse effective dont les définitions des deux dernières grandeurs sont :

$$A_{eff} = A / \int \rho(\varepsilon) d\varepsilon$$
$$T_{eff}^{*} = \frac{T_{eff}}{\int \rho(\varepsilon) d\varepsilon}$$

Le spectre  $\rho(\epsilon)$  qui intervient dans ces expressions est le "spectre anharmonique" d'où le signe \* sur T<sub>eff</sub> pour le distinguer de la température effective du modèle harmonique. Avec ce dernier modèle, on a bien sûr A<sub>eff</sub> égal à A puisque le spectre harmonique est normalisé.

Comme l'a constaté J. Rowlands le comportement "surprenant" des résultats de Karam-d'Avila provient de la non normalisation du « spectre anharmonique ». Les règles de somme de la loi de transfert (voir III-22 et III-23) doivent être vérifiées indépendamment de la nature des liaisons cristallines, que les vibrations soient harmoniques ou anharmoniques. Dans le cadre du modèle harmonique, cela implique que le spectre de fréquence soit normalisé à l'unité.

Dans le cas anharmonique, nous ne savons pas si la même conclusion s'applique. Le concept de spectre de fréquence anharmonique n'est pas évident à saisir dans la mesure où précisément les phonons ayant une durée de vie finie il est impossible de définir une densité d'états. Sans aller plus loin dans ces considérations théoriques à la limite de nos compétences mentionnons les éléments expérimentaux d'Haste et Moxon<sup>22</sup> qui tendent à infirmer les résultats numériques de Karam-d'Avila principalement à 1200 K, en effet à cette température, la résonance de l'<sup>238</sup>U à 80.7 eV peut être analysée à l'aide du modèle de gaz libre avec une température effective voisine de celle déduite dans notre étude.

Compte tenu de cette contradiction entre l'expérience et le calcul de Karamd'Avila, la campagne de mesures de transmission sur l'UO<sub>2</sub> à haute température, prévue à Geel dans le cadre d'un programme européen,<sup>12</sup> devrait clarifier ce point. Ces mesures sont importantes car les conséquences sur le plan neutronique sont opposées, par exemple en terme de coefficient Doppler. Enfin, les déplacements du pic des résonances avec la température affecteraient l'absorption résonnante dans un barreau en présence d'un profil de température.

# **IV.F CONCLUSIONS**

L'influence des liens cristallins sur l'absorption résonnante des neutrons par les noyaux lourds a été étudiée sur plusieurs niveaux :

- Etude des sections efficaces issues du modèle cristallin de Lamb par comparaison avec les modèles du gaz libre avec une température thermodynamique et avec une température effective ;
- Etude de la condition de l'utilisation du modèle du gaz libre effectif ;
- Etude des taux de capture et des erreurs introduites par le modèle du gaz libre par rapport au modèle du cristal harmonique ;
- Etude du biais sur les paramètres des résonances dû à l'utilisation du modèle du gaz libre dans les codes d'analyse ;
- Etude des erreurs commises sur les taux de capture et dues à l'utilisation des paramètres des résonances biaisés.

Le modèle cristallin de l'UO2 de Dolling et le spectre de fréquence associé a été vérifié sur des expériences intégrales du type capacité calorifique et diffraction neutronique. L'accord satisfaisant montre que le spectre de fréquence issu de ce modèle est une base solide pour étudier l'effet Doppler cristallin et le comparer au modèle de gaz libre, universellement utilisé en physique des réacteurs. Ce modèle permet par conséquent de déterminer a priori la température effective sans avoir recourt à l'analyse de résonance ce qui est intéressant si l'on veut confronter différentes approches. On a déterminé la température de Debye équivalente pour l'UO<sub>2</sub> à l'aide du spectre de fréquence pondéré, celle-ci vaut 288 K et se distingue nettement de la température 620 K, valeur qui a été déduite des expériences d'oscillation dans Minerve. Cependant, la température de Debye équivalente au sens de la conservation des taux de réaction serait supérieure à 288 K (figure IV.18 à une dilution de 50 barns) mais la problématique pour l'obtenir devient dépendante de l'expérience neutronique. On peut envisager de faire une analyse convergente : utilisant l'approche microscopique présentée dans ce chapitre et l'approche intégrale consistant à analyser l'expérience d'oscillation dans le réacteur Minerve.<sup>6</sup> Concernant les applications neutroniques, les erreurs propres aux

modèles du gaz libre de l'élargissement Doppler par rapport au modèle du cristal harmonique atteignent 10% sur les sections efficaces d'absorption en fonction de l'énergie de la résonance et de la température (de l'ordre de 17% à T=77 K, est de l'ordre de 4% à température ambiante). Ce désaccord entre les modèles diminue avec l'augmentation de température et de l'énergie de la résonance. Pour certaines applications on peut donc se contenter d'utiliser le modèle de gaz libre pour effectuer l'élargissement Doppler par rapport au modèle cristallin harmonique. En utilisant les paramètres de résonances de JEF2.2 de l'238U, l'accord entre le modèle cristallin et la mesure concernant l'UO2 et l'uranium métallique peut être considéré comme satisfaisant. Les mesures de transmission ont été faites à 23.6 et 293.6 K. Le modèle harmonique semble donc valide à ces températures. Cependant, les travaux de Karam-d'Avila sur l'anharmonicité des vibrations discuté dans le présent chapitre indique un comportement opposé au modèle harmonique. L'absorption des résonances de l'<sup>238</sup>U serait plus faible que ne le prévoit le modèle harmonique à 300 et 1200 K. Autrement dit, la correction de température effective que l'on effectue en physique des réacteurs serait erronée. Pour clarifier ce point, une campagne de mesures de transmission sur l'UO<sub>2</sub> à haute température, devrait débuter à Geel dans le cadre du programme Européen.<sup>12</sup> Ces mesures permettront d'infirmer ou de confirmer les résultats théoriques de Karam et d'Avila. Si ces auteurs ont raison (J. Rowlands a émis des réserves pertinentes sur leurs résultats) les conséquences sur le plan neutronique devraient être évaluées, en particulier, en terme de coefficient Doppler et de production de <sup>239</sup>Pu.

La différence entre le modèle du cristal harmonique et les deux modèles du gaz libre est liée à la non vérification de condition de Lamb à basses énergies et basses températures. L'utilisation de ces deux derniers n'est donc pas conseillée dans cette gamme d'énergie et température.

Avec les paramètres des résonances de JEF2.2 le modèle de gaz libre donne des taux de capture pour les premières résonances de l'<sup>238</sup>U au plus inférieurs de 0.3% par rapport au cristal harmonique. Autrement dit, pour des taux de capture épithermique de l'<sup>238</sup>U allant de 10000 à 20000 pcm suivant la plus ou moins grande dureté du spectre, l'erreur sur la réactivité ne devrait pas excéder 100 pcm. L'utilisation du modèle de gaz libre avec une température effective n'améliore pas significativement l'accord entre le modèle cristallin pour la résonance à 6.674 eV de l'<sup>238</sup>U. Cela provient du fait que la condition de Lamb n'est pas bien vérifiée. Cette non vérification de la condition de Lamb est d'autant plus nette que l'énergie des résonances est basse et que la température l'est aussi. Malgré cela le modèle du gaz libre à une température effective est la meilleure approche pour les hautes températures et les résonances à hautes énergies. Avec les mêmes paramètres des résonances l'utilisation du modèle cristallin pour l'élargissement Doppler introduit de faibles corrections par rapport aux deux modèle du gaz libre.

D'autre part ces faibles erreurs ont été obtenues avec les paramètres des résonances de JEF2.2 qui ont été déduits à l'aide de codes d'analyse des résonances utilisant exclusivement le modèle du gaz libre. L'étude du biais sur les paramètres des résonances dû à l'utilisation du modèle du gaz libre montre que les erreurs intervenant dans la physique des réacteurs sont dix fois supérieures aux erreurs propre à l'élargissement Doppler. Ces erreurs peuvent être corrigées si l'on insère le modèle du cristal harmonique dans les codes d'analyse des résonances.

Pour donner une image complète sur l'influence des liens cristallins sur les taux de réaction, une description cohérente dans le cadre de l'approximation du cristal harmonique, de tous les types de sections efficaces (capture, fission, diffusion totale, transfert) est nécessaire. Ces sections doivent être utilisées pour effectuer un calcul de ralentissement avec l'aide du code de transport APOLLO2. Ce calcul permettra de déduire les taux de réaction plus réalistes que ceux obtenus avec les modèles WR et NR.

Effectivement, dans ces modèles la section de transfert n'est pas prise en compte explicitement. Pourtant elle modifie le flux des neutrons dans une résonance. De nos jours aucune estimation de la section de transfert dans le cadre du modèle cristallin n'a été faite. Dans le chapitre suivant nous introduisons un nouveau modèle qui permet de calculer la section de transfert dans le domaine des résonances tenant compte de la structure cristalline du combustible nucléaires.

# **IV.G REFERENCES**

- <sup>1</sup> C. Norborg, M. Salvatores Status of the JEF evaluated data library Proc. int. conf. on nuclear data for science and thecnology Gatlinburg, Tennessee, USA (1994).
- <sup>2</sup> G. Dolling, R. A. Cowley and A. D. B. Woods *The crystal dynamics of uranium dioxide* Can. J. of Physics **43**, 8 (1965).
- <sup>3</sup> James A. Young Neutron scattering from uranium dioxide Nukleonik 12. Bd., Heft 5 (1969).
- <sup>4</sup> Gmelin handbook in inorganic chemistry 8<sup>e</sup> édition, Springer-Verlag (1986).
- <sup>5</sup> B. T. M. Willis

Neutron diffraction studies of the actinide oxides. II. Thermal motions of the atoms in uranium dioxide and thorium dioxide between room temperature and 1100° C.

Proceeding of the Royal Society, 274A, 134 (1963).

<sup>6</sup> H. Tellier

Uranium dioxide crystalline binding effect on Doppler broadening Seminar on Thermal Reactor Benchmark Calculations, Techniques, Results and Applications, Upton, NY USA (1982).

<sup>7</sup> J. Bussac et P. Reuss Traité de neutronique Edition Hermann (1985).

<sup>8</sup> D. Naberejnev et C. Mounier Etude de l'influence des liaisons cristallines sur les sections efficaces et les paramétres neutroniques rapport DMT/97-219 (1997).

- <sup>9</sup> C. D. Bowman and R. A. Schrack Effects of phonons transfer on near thermal neutron fission cross section Phys. Rev. **17**, 654 (1978).
- <sup>10</sup> R. Sanchez, J. Mondot, Z. Stankovski, A. Cossic, I. Zmijarevic APOLLO II: a user-oriented portable, modular code for multigroup transport assembly calculations Nucl. Sci. Eng. 100, 352 (1988).

<sup>11</sup> R.E. MacFarlane and D. W. Muir The NJOY Nuclear data processing system, version 91 LA-12740-M (1994). <sup>12</sup> A. Meister et al. Experimental study of the Doppler broadening of neutron resonances at **GELINA** Int. Conf. On Nuclear Data for Science and Technology, vol 59, part I, Trieste (1997). <sup>13</sup>C. Moxon REFIT : A least square fitting program for resonance analysis of neutron transmission and capture data. AEA-InTec-0470 (1991). <sup>14</sup> M. Larson Updated User's guide fo Sammy : Multilevel R-Matrix Fits to Neutron Data Using Bayes' Equation ORNL/TM-9179/R2, NEA Data Bank (1986). <sup>15</sup> Liou and R. E. Chrien Neutron cross section and Doppler effect of the 1.056 eV resonance in <sup>240</sup>Pu Proc. of the Joint IAEA/NEA Consulting Meeting on Uranium and Plutonium Resonance Parameters, BNL-30597 (1981). <sup>16</sup> A. Brusegan (IRMM, GEEL), O. Bouland, C. Raepsaet, A. Leprêtre, C. Mounier (CEA), communication privée (1994). <sup>17</sup> D'Avila and R.A. Karam Anharmonic effects on the resonance line shape of  $^{238}U$  in  $UO_2$ Part I and II A simple and accurate numerical method for the evaluation of the resonance line shape Ann. Nucl. Energy 18, 5, (1991). Part III Cubic, quartic and thermal effects on the phonons shifts and width on the resonance line shape Ann. Nucl. Energy 18, 8, (1991). <sup>18</sup> H.E.Jackson and J.E. Lynn Resonant absorption of neutrons by crystals Phys. Rev. 127, 461 (1962). <sup>19</sup> Dimitri G. Naberejnev, Claude Mounier and Richard Sanchez On the influence of the crystalline binding on resonant absorption and reaction rates Nucl. Sci. Eng. (en publication en février, 1999). <sup>20</sup> Vincent Gressier, en cours de thèse DSM/Sphn, CEA, France, communication privée. <sup>21</sup> John L. Rowlands Solid states effects on Doppler broadening of <sup>238</sup>U resonances in UO<sub>2</sub> Ann. Nucl. Energy, Vol. 19, No 7, 413 (1992). <sup>22</sup> T. J. Haste and M. G. Moxon A study of the temperature dependence of the neutron transmission of uranium dioxide J. Phys. D : Appl. Phys., Vol. 12(1979).

 $\mathbf{v}$ 

# **DIFFUSION RESONNANTE**

# V.A GENERALITES SUR LES REACTIONS NUCLEAIRES INDUITES PAR LES NEUTRONS

Dans ce chapitre on présente quelques éléments sur la théorie des réactions nucléaires. De nombreux excellents livres (voir par exemple la référence 1) traitent ce sujet. On se permettra de résumer les points essentiels qui faciliteront la compréhension de la suite de l'exposé.

Les interactions des neutrons avec des noyaux sont très diverses. La nature des produits des réactions dépend de la nature des particules entrant en collision, des potentiels gouvernant cette interaction et des caractéristiques cinématiques de ces particules. Malgré leur diversité les réactions nucléaires sont généralement divisées en deux groupes : réactions directes et réactions composées. Avant d'aborder la nature de ces deux types de réaction, nous donnons quelques éléments sur le modèle du gaz Fermi pour le noyau pour introduire le contenu de la figure V.1.

Un noyau est un système des nucléons liés par une interaction forte de courte portée. La profondeur du potentiel nucléonique est typiquement de l'ordre de 50 MeV. Vu la densité très élevée et constante des nucléons dans un noyau, l'interaction entre ceux-ci est saturée et ce pour la plupart des noyaux (à l'exception des noyaux très légers). Effectivement, les rayons des noyaux sont convenablement décrits par la formule  $R=r_0A^{1/3}$ , où A est le nombre des nucléons et  $r_0=1.2\times10^{-13}$  cm. La densité des nucléons étant constante et très élevée, on peut décrire un noyau par une goutte de liquide de la matière nucléaire très condensée. Comme les nucléons obéissent la statistique de Fermi, le traitement de la matière nucléaire comme un liquide de Fermi s'impose. Pourtant le spectre énergétique des états faiblement liés du liquide de Fermi ressemble à celui d'un gaz de Fermi. La distribution des moments des nucléons dans un gaz de Fermi est associée à une sphère. Le moment à la surface est gouverné par la densité des nucléons et se présente comme  $k_{\rm F}=(9\pi/8)^{1/3}/r_0$ . Cette description impose que les A nucléons du novau sont répartis dans un puits de potentiel suivant un certain nombre d'orbites. L'énergie de chaque orbite et son nombre de nucléons sont déterminés par le modèle en couches et le principe d'exclusion de Pauli. Dans l'état fondamental, toutes les couches du fond du puits sont remplies jusqu'à un certain niveau qui est la surface de Fermi; les orbites d'énergie supérieure au niveau de Fermi sont vides. Le temps entre les collisions des nucléons constituants le noyau est de l'ordre de  $t_0=10^{-22}$  sec.

Considérons l'interaction d'un neutron avec un noyau. Le mécanisme de l'interaction dépend essentiellement de l'énergie du neutron incident. Pour introduire la notion de réaction composée considérons le cas où l'énergie du neutron incident est suffisamment basse pour que le temps nécessaire à la traversée du noyau en vol libre soit plus grande que  $t_0$ , alors le neutron sera « absorbé » par le noyau. L'énergie du neutron absorbé est vite redistribuée entre le nombre énorme de degrés de liberté des nucléons. Le système résultant, se trouvant dans un état excité, est appelé noyau composé. Comme il est peu probable que cette énergie d'excitation soit concentrée dans une seule particule (ou une fraction de particules) pour que celle-ci puisse s'échapper du système, le temps de vie du noyau composé est grand devant  $t_0$ . Le noyau composé peut se désexciter soit par émission d'une particule gamma soit, après une période de temps assez longue pour que la basse probabilité de concentration de l'énergie

d'excitation dans une seule particule ait lieu, par l'émission d'une particule. Généralement l'énergie et le moment de la particule sortante (ou d'une fraction des particules sortantes) diffèrent de ceux de la particule incidente.

Le concept des réactions composées a été proposé par Bohr en 1936. Bohr a supposé que la réaction se produit en deux étapes : la formation du noyau composé et son éventuelle désintégration. Les deux étapes sont indépendantes : la désintégration du noyau composé est gouvernée par l'énergie, le moment angulaire et la parité, indépendamment du processus de formation dont il a perdu le souvenir. Considérons une réaction décrite schématiquement par  $a+A\rightarrow C\rightarrow b+B$ , la combinaison a+A est le canal d'entrée (la particule incidente a et le noyau A dans son état fondamental); C est le noyau composé, la combinaison b+B est le canal de sortie (la particule sortante b et le noyau dans son état B). Mathématiquement le concept de Bohr se présente comme suit:

 $\sigma(a,b)=\sigma_{c}(a)G_{c}(b),$ 

avec  $\sigma_C(a)$  - la section de formation du noyau composé,  $G_C(b)$  - la probabilité de la désintégration du noyau composé par émission de la particule b.\* Les expériences mettent en évidence la présence des résonances dans les sections efficaces d'un noyau. Une résonance survient sur un certain niveau d'excitation  $E_r$  du noyau composé dont la valeur est connue à  $\Gamma$  près (appelé la largeur de la résonance). L'état excité d'un noyau composé a une certaine durée de vie  $\delta \tau$  qui, d'après Heisenberg, est liée à la largeur de la résonance par  $\delta \tau \times \Gamma \approx h$ , h étant la constante de Planck. Les largeurs des résonances varient entre quelques meV à environ un keV. Cela implique des temps de vie du noyau composé qui excèdent t<sub>0</sub> du facteur allant de quelques milliers à quelques millions.

Les réactions directes, au contraire des réactions composées, sont accompagnées de l'excitation de peu de degrés de liberté. Ce fait conduit à ce que la durée de telles réactions est fortement plus courte. Cette durée est caractérisée par le temps nécessaire à la particule pour traverser le noyau. Ce temps diffère de  $t_0$  d'un facteur «A<sup>1/3</sup>, A étant le nombre de nucléons dans le noyau.

Aussi bien les réactions directes que les réactions composées sont des cas extrêmes. En réalité il peut y avoir des réactions à durée intermédiaire. Considérons plus en détail l'enchaînement des différents états conduisant à la formation d'un noyau composé.

Les forces produites par le potentiel nucléaire agissent aussi au-delà de la surface du noyau (à une distance de l'ordre de la portée de l'interaction nucléaire entre deux particules). Il s'en suit que lorsqu'un neutron se présente en face du puits du potentiel nucléaire, au-delà de la surface du noyau, il peut être tout simplement dévié et s'échapper dans une autre direction sans perte d'énergie. Ce processus, dans lequel le noyau garde son état fondamental, est appelé réaction élastique directe ou diffusion potentielle.

D'autre part le neutron peut pénétrer dans la surface du noyau, entrer en collision avec un des nucléons et exciter celui-ci de façon à ce qu'il occupe un niveau au-dessus de la surface de Fermi. Une place vacante (un trou) se forme alors au-dessous de la surface de Fermi. Le neutron incident à son tour se retrouve lui aussi sur une des orbites au-dessus de la surface de Fermi. Cet état collectif peut alors être considéré comme un état dit à trois quasi-particules: deux particules et un trou (2p1h two particles one hole state). L'énergie d'excitation d'un

<sup>\*</sup> Les notations sont empruntées à la référence 1.

This page is intentionally left blank.

4







Figure V.2 Sections efficaces

# **V.B SECTION DE TRANSFERT DANS LE DOMAINE DES RESONANCES**

Dans ce chapitre on discutera les aspects théoriques de la diffusion des neutrons aux énergies des résonances des noyaux lourds tels que les noyaux du combustible nucléaire. La considération du régime résonnant introduit des nouvelles difficultés par rapport à la diffusion des neutrons thermiques. En plus de la partie potentielle de la diffusion on devra tenir compte de la composante résonnante et de sa forte dépendance énergétique. Cette dépendance énergétique introduit un couplage entre le processus nucléaire proprement dit et la dynamique des noyaux. Le couplage intervient du fait que le noyau composé dans le cadre du modèle harmonique peut effectuer plusieurs oscillations pendant son temps de vie et avoir un échange d'énergie avec son environnement. De ce point de vue la diffusion sur un noyau lié dans une structure cristalline est fortement différente de la diffusion sur un gaz libre. Dans le dernier cas la formation du noyau composé n'apporte pas de changement dans la dynamique du système. Par conséquent la cinématique d'un tel processus est celle de la diffusion potentielle.

Dans la première partie on rappellera comment s'effectue la décomposition de la section de transfert en partie potentielle, résonnante et d'interférence. La partie potentielle sera traitée rapidement utilisant les résultats bien connus de Van Hove.

La plupart de l'exposé portera sur le développement d'un formalisme pour prendre en compte l'influence des liens cristallins sur la section de diffusion résonnante.

D'après Osborn et Yip<sup>2</sup> la section doublement différentielle en angle et en énergie s'écrit :

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \sum_{\alpha} \rho(\epsilon_{\alpha}) \sum_{\beta} \left( \frac{E_f}{E_i} \right)^{1/2} |F|^2 \delta(E_i + \epsilon_{\alpha} - E_f - \epsilon_{\beta}).$$
 (V-1)

Dans cette expression on a introduit les notations suivantes :

 $E_i, E_f$  - énergies initiale et finale du neutron ;

 $\epsilon_{\alpha}$ ,  $\epsilon_{\beta}$  - énergies du cristal à l'état initial et final ;

 $\rho(\epsilon_{\alpha})$  - densité des états initiaux du cristal ;

F - amplitude de diffusion.

La sommation s'effectue sur tous les états initiaux et finaux du système anfin de retrouver la section totale. L'état initial se compose de l'état initial décrivant la fonction d'onde initiale du cristal  $\chi_{\alpha}$ , et de la fonction d'onde plane du neutron incident  $\vec{k}_i$ :

$$|i\rangle = |\chi_{\alpha} \vec{k}_{i}\rangle.$$

De la même manière l'état final du système s'écrit comme suit :

 $|\mathbf{f}\rangle = |\chi_{\beta}\vec{k}_{f}\rangle.$ 

L'amplitude de diffusion est généralement une quantité complexe. Elle représente en quelque sorte le rayon effectif du noyau. Cet amplitude se présente toujours sous la forme d'une somme de l'amplitude de la diffusion potentielle et celle de la diffusion résonnante :

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}_{\mathbf{R}} + \mathbf{F}_{\mathbf{P}} \, .$$

Insérant cette dernière expression dans l'expression V-1 on obtient :

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{d^2\sigma_P}{dEd\Omega} + \frac{d^2\sigma_R}{dEd\Omega} + \frac{d^2\sigma_{int}}{dEd\Omega},$$
(V-2)

avec les composantes définies comme suit :

$$\frac{d^{2}\sigma_{P}}{dEd\Omega} = \sum_{\alpha} \rho(\epsilon_{\alpha}) \sum_{\beta} \left(\frac{E_{f}}{E_{i}}\right)^{1/2} \left|F_{P}\right|^{2} \delta(E_{i} + \epsilon_{\alpha} - E_{f} - \epsilon_{\beta}),$$

$$\frac{d^{2}\sigma_{R}}{dEd\Omega} = \sum_{\alpha} \rho(\epsilon_{\alpha}) \sum_{\beta} \left(\frac{E_{f}}{E_{i}}\right)^{1/2} \left|F_{R}\right|^{2} \delta(E_{i} + \epsilon_{\alpha} - E_{f} - \epsilon_{\beta}),$$

$$\frac{d^{2}\sigma_{int}}{dEd\Omega} = \sum_{\alpha} \rho(\epsilon_{\alpha}) \sum_{\beta} \left(\frac{E_{f}}{E_{i}}\right)^{1/2} 2Re(F_{P}^{*}F_{R})\delta(E_{i} + \epsilon_{\alpha} - E_{f} - \epsilon_{\beta}).$$
(V-3)

Cette décomposition de la section de transfert a la signification suivante. Quand l'énergie du neutron est suffisamment éloignée du pic de la résonance c'est le terme potentiel qui joue le rôle dominant et la diffusion se passe en dehors de la surface du noyau (voir la Figure V.1). Dans ce cas l'amplitude de diffusion est indépendante de l'énergie du neutron incident est représente le rayon effectif de la surface du noyau. Près du pic de la résonance la forte dépendance énergétique de l'amplitude de la diffusion résonnante devient dominante devant le terme potentiel. Finalement la situation sur les ailes de la résonance est mixte : l'interférence entre les deux processus domine. Cette interférence a une contribution constructive à droite du pic de la résonance et destructive à gauche. Dans la suite on va traiter séparément chacun de ces termes.

## **V.C SECTION DE LA DIFFUSION POTENTIELLE**

Dans le domaine thermique et loin des pics des résonances le régime potentiel est le processus le plus probable d'interaction entre un neutron et un noyau. L'image semi-classique conduit à ne pas considérer la pénétration du neutron dans le noyau : l'onde plane du neutron est déviée en quelque sorte par la surface nucléonique. La diffusion potentielle est donc la plus simple des réactions directes. La théorie de l'influence du milieu sur la section de la diffusion potentielle est bien connue. Le formalisme le plus général englobant tous les aspects de la diffusion potentielle a été proposé en 1954 par Van Hove.<sup>3</sup> L'auteur a proposé une nouvelle représentation, la représentation dans l'espace des temps de l'interaction, qui exprime le processus de la diffusion en termes des fonctions de corrélations. Cette théorie a été revue par plusieurs auteurs. On renvoie le lecteur, par exemple, à l'excellent livre de S. Lovesey<sup>4</sup> pour les détails. Dans le cas de la diffusion potentielle l'amplitude de diffusion ne dépend pas de l'énergie du neutron incident et s'écrit comme suit :

$$F_{\rm P} = \langle f | V(\vec{r}) | i \rangle$$

où le potentiel de l'interaction pour la diffusion potentielle est donnée par le pseudo-potentiel de Fermi :

$$V(\vec{r}) = \frac{2\pi}{m} \sum_{j} b_{j} \delta(\vec{r} - \vec{r}_{j}) \,.$$

Dans cette dernière formule m représente la masse du neutron,  $b_j$  est l'amplitude de la diffusion potentielle du noyau j et  $\vec{r}_j$  est sa position d'équilibre. En omettant les détails on résume les résultats. La section de la diffusion potentielle est donnée par :

$$\frac{d^2 \sigma_{\rm P}}{dE d\Omega} = \frac{1}{2\pi} \left( \frac{E_{\rm f}}{E_{\rm i}} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} dT \exp(-iEt) \sum_{jj'} \overline{b_{j}^* b_{j'}} Y_{jj'} (\Delta \vec{k}, T), \qquad \Delta \vec{k} = \vec{k}_{\rm i} - \vec{k}_{\rm f}$$
(V-4)

où le trait horizontal entend la moyenne sur les différentes orientations des spins des noyaux par rapport aux spins des neutrons en question (en présence de différents isotopes la moyenne sur les abondances doit aussi être considérée). La fonction de corrélation Y, habituelle dans le cas des neutrons thermiques, s'écrit comme suit :

$$\mathbf{Y}_{jj'}(\Delta \vec{k}, T) = \left\langle \exp[-i\Delta \vec{k}\vec{r}_{j}] \exp[i\Delta \vec{k}\vec{r}_{j'}(T)] \right\rangle.$$
(V-5)

avec la moyenne thermique  $\langle \cdots \rangle = \sum_{\alpha} \rho(\epsilon_{\alpha})(\cdots)$ .

La sommation dans la moyenne thermique se fait sur tous les noyaux (les sites) dans le cristal en question. Il faut ajouter que la formule V-4 est tout à fait générale. Pour décrire un modèle précis il faut modéliser l'opérateur position  $\vec{r}(t)$  du noyau en fonction du temps. On renvoie le lecteur à l'annexe D pour un exemple de calcul de la fonction Y dans le cas d'un cristal harmonique. Aux énergies des résonances des noyaux lourds, l'approximation incohérente est justifiée. Elle nous permettra le calcul de la section de transfert avec une bonne précision.

#### **V.D APPROXIMATION INCOHERENTE**

La décomposition de la section de transfert en partie cohérente et incohérente permet de séparer explicitement les pics de Bragg.<sup>5,6</sup> Aux hautes énergies (audessus de 1 eV) ces pics sont atténués par le facteur de Debye-Waller. Ceci nous suggère une approximation dite incohérente qui représente une somme de la partie incohérente et la partie cohérente sans la prise en compte des pics de Bragg. Montrons ceci sur l'exemple de la section potentielle. Cette dernière est donnée par V-4 et V-5.

La moyenne du produit des amplitudes peut être écrite comme suit :

$$\overline{\mathbf{b}_{j}^{*}\mathbf{b}_{j'}} = \overline{\mathbf{b}}_{j}^{*}\overline{\mathbf{b}}_{j'} + \delta_{jj'}(\left|\overline{\mathbf{b}_{j}}\right|^{2} - \left|\overline{\mathbf{b}}_{j}\right|^{2}),$$

où on a utilisé le fait que si  $j \neq j'$ , alors les amplitudes de diffusion de deux sites différents sont indépendantes. Par contre si j=j' les amplitudes de diffusion sont complètement corrélées. Cette décomposition donne la naissance aux sections cohérente et incohérente de la diffusion :

$$\left(\frac{d^2\sigma_{\rm P}}{dEd\Omega}\right) = \left(\frac{d^2\sigma_{\rm P}}{dEd\Omega}\right)_{\rm coh} + \left(\frac{d^2\sigma_{\rm P}}{dEd\Omega}\right)_{\rm incoh},\qquad(V-6)$$

avec la section cohérente donnée par :

$$\left(\frac{d^2\sigma_{\rm p}}{dEd\Omega}\right)_{\rm coh} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{E_{\rm f}}{E_{\rm i}}\right)^{1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} dT \exp(-iET) \sum_{jj'} \left(a_{jj'}^{\rm coh}\right)^2 Y_{jj'}(\Delta \vec{k}, T), \qquad (V-7)$$

où  $(a_{jj'}^{coh})^2 = \overline{b}_j^* \overline{b}_{j'}$  est le carré de l'amplitude de la diffusion cohérente. La section incohérente s'écrit comme suit :

$$\left(\frac{d^2\sigma_{\rm P}}{dEd\Omega}\right)_{\rm incoh} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{E_{\rm f}}{E_{\rm i}}\right)^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \sum_{\rm j} \left(a_{\rm j}^{\rm incoh}\right)^2 Y_{\rm jj}(\Delta \vec{k}, T), \qquad (V-8)$$

avec le carré de l'amplitude de la diffusion incohérente définie comme  $(a_j^{incoh})^2 = \overline{|b_j - \overline{b}_j|^2}$ . La somme sur j et j' dans V-7 peut être représentée comme :

$$\sum_{jj'} \left(a_{jj'}^{\text{coh}}\right)^2 Y_{jj'}(\Delta \vec{k}, T) = \sum_{j} \left(a_{j}^{\text{coh}}\right)^2 Y_{jj}(\Delta \vec{k}, T) + \sum_{j \neq j'} \left(a_{jj'}^{\text{coh}}\right)^2 Y_{jj'}(\Delta \vec{k}, T) \ .$$

Insérant la dernière expression dans V-6, on obtient pour la section potentielle de transfert :

$$\frac{d^2 \sigma_{\rm p}}{dEd\Omega} = \frac{1}{2\pi} \left( \frac{E_{\rm f}}{E_{\rm i}} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} dT \exp(-iET) \sum_{\rm j} \left[ \left( a_{\rm j}^{\rm coh} \right)^2 + \left( a_{\rm j}^{\rm incoh} \right)^2 \right] Y_{\rm jj}(\Delta \vec{k}, T) + \frac{1}{2\pi} \left( \frac{E_{\rm f}}{E_{\rm i}} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} dT \exp(-iET) \sum_{\rm j\neq j'} \left( a_{\rm jj'}^{\rm coh} \right)^2 Y_{\rm jj'}(\Delta \vec{k}, T).$$

Dans cette expression le premier terme a la même structure que le terme incohérent à un changement près : le facteur  $(a_j^{incoh})^2$  est remplacé par  $(a_j^{incoh})^2 + (a_j^{coh})^2$ . L'approximation incohérente revient à négliger le dernier terme dans la formule précédente. La section de la diffusion potentielle se réécrit donc comme suit :

$$\frac{d^2 \sigma_{\rm P}}{dEd\Omega} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{E_{\rm f}}{E_{\rm i}}\right)^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-iEt) \left[ \left(a^{\rm coh}\right)^2 + \left(a^{\rm incoh}\right)^2 \right] \sum_{\rm j} Y_{\rm jj}(\Delta \vec{k}, T) .$$
 (V-9)

Cette expression nous donne l'approximation incohérente. Considérant un cristal monoatomique on peut omettre l'indice j des amplitudes de la diffusion cohérente et incohérente car il s'agit de la sommation sur le même type des noyaux ayant la même longueur de diffusion. Physiquement ceci revient à considérer la diffusion sur chaque noyau comme si les neutrons ne diffusaient pas sur les autres noyaux. Du point de vue physique, cette approximation est justifiée si la longueur d'onde du neutron est beaucoup plus petite que la distance entre les noyaux (hautes énergies des neutrons). Cette condition est bien vérifiée pour les neutrons dans le domaine des résonances des noyaux lourds car celles-ci interviennent à quelques eV. Le même type de raisonnement s'appliquera aux parties résonnante et d'interférence.

# **V.E SECTION DE LA DIFFUSION RESONNANTE**

La partie résonnante de la section tenant compte de la forte dépendance énergétique de l'amplitude correspondante, est beaucoup plus compliquée. Dans ce chapitre on discutera les aspects théoriques de la diffusion résonnante des neutrons. On présentera la démonstration de l'expression de l'amplitude pour un tel processus, on parlera des différents modèles de la dynamique des noyaux en connexion avec la diffusion résonnante. On appliquera le formalisme nucléaire et la dynamique appropriés au problème du calcul de la section de transfert dans le cadre d'un cristal harmonique en introduisant une approximation pour traiter le couplage entre le processus nucléaire (interaction nucléaire d'un neutron avec un noyau proprement dit) et la dynamique du milieu (modèle harmonique des vibrations dans une structure cristalline).

# V.E.1 L'amplitude de diffusion résonnante

Considérons le processus de diffusion d'un neutron sur un noyau de spin nul lié dan un potentiel. On cherche à expliciter l'amplitude d'une telle interaction. On suivra dans la démonstration la méthode proposé par G.T. Trammell et J. D. Chalk<sup>7</sup> à quelques changements mineurs près. Le système à étudier est présenté sur le schéma suivant:



Figure V.3. Interaction d'un neutron avec un noyau lié dans un potentiel.

La position du neutron incident de masse m est notée comme  $\vec{r}_n$ . Le noyau de masse M défini par son rayon-vecteur  $\vec{r}_A$ , est supposé être lié à son environnement par un potentiel  $V(\vec{r}_A)$  ne dépendant que de la position du noyau en question. L'équation de Schrödinger pour ce système prend, donc, la forme suivante :

$$\left\{ \mathbf{K} + \mathbf{U}(\mathbf{\vec{r}}, \mathbf{z}) + \mathbf{V}(\mathbf{\vec{r}}_{A}) + \mathbf{h}(\mathbf{z}) \right\} | \mathbf{\psi} \rangle = \mathbf{E} | \mathbf{\psi} \rangle, \qquad (V-10)$$

où K est énergie cinétique des particules, le potentiel U, dont la portée est  $\delta$ , détermine l'interaction entre elles, h est l'Hamiltonien de l'état interne de la cible, z représente les variables décrivant cet Hamiltonien,  $\vec{r} = \vec{r}_n - \vec{r}_A$  et E est l'énergie totale du système.

On ne considérera ici que la diffusion où le noyau-cible reste dans son état fondamental après l'interaction. Par conséquent, la dépendance de l'équation des variables internes du noyau est supprimée.

En passant dans le système de cordonnées du centre de masse du système on peut réécrire la dernière équation comme suit :

$$\left\{ \vec{p}^{2} / 2\mu + U(\vec{r}) + \vec{P}^{2} / 2M_{t} + V(\vec{R}) + \Delta V \right\} |\psi\rangle = E |\psi\rangle, \qquad (V-11)$$

avec

$$\vec{p} = (M\vec{p}_n - m\vec{p}_A) / 2M_t,$$
  

$$\vec{P} = \vec{p}_A + \vec{p}_n,$$
  

$$\Delta V = V(\vec{R} - \vec{r}m / M_t) - V(\vec{R}),$$
  

$$M_t = m + M,$$
  

$$\mu = mM / M_t.$$
  
(V-12)

Dans ces dernières expressions  $\overline{R}$  décrit le mouvement du centre de masse et  $\overline{r}$  décrit le mouvement relatif. La fonction d'onde initiale est présentée comme suit :

$$\left|\psi_{i}\right\rangle = \left|\chi_{i} \exp(i\vec{k}_{i}\vec{r}_{n}\right\rangle, \qquad (V-13)$$

avec la fonction d'onde initiale du noyau  $\chi_i$  qui satisfait l'équation suivante :

$$\left\{ \bar{p}_{A}^{2} / 2M + V(\bar{r}_{A}) \right\} \left| \chi_{j} \right\rangle = \varepsilon_{j} \left| \chi_{j} \right\rangle.$$
(V-14)

En ces termes, on peut définir l'énergie totale du système comme  $E = \hbar^2 \vec{k}_i^2 / 2m + \epsilon_i$ . Dans la suite pour faciliter l'écriture on posera  $\hbar = 1$ . La portée de l'interaction nucléaire étant petite, on peut séparer le mouvement du centre de masse du mouvement relatif. Ceci se traduit par une factorisation complète de la fonction d'onde du système :

$$\left|\psi\right\rangle = \sum_{j} \left|\zeta_{j}(\vec{r})\phi_{j}(\vec{R})\right\rangle. \tag{V-15}$$

Les fonctions  $\phi_j$ , décrivant le mouvement du centre de masse du système, satisfont l'équation suivante :

$$\left\{ \vec{\mathbf{P}}^{2} / 2\mathbf{M}_{t} + \mathbf{V}(\vec{\mathbf{R}}) \right\} |\phi_{j}\rangle = \tilde{\varepsilon}_{j} |\phi_{j}\rangle.$$
(V-16)

En insérant la forme factorisée de la fonction d'onde dans l'équation de Shrödinger V-11 on obtient :

$$\left\{ \vec{p}^{2} / 2\mu + U(\vec{r}) - \left(E - \tilde{\epsilon}_{j}\right) \right\} \zeta_{j}(\vec{r}) = -\sum_{n} \left\langle \phi_{j}(\vec{R}) \middle| \Delta V \middle| \phi_{n}(\vec{R}) \right\rangle \zeta_{n}(\vec{r}) \right\rangle.$$
(V-17)

La partie droite de cette équation est un couplage entre le mouvement du centre de masse et le mouvement relatif, produit par le potentiel V. Si elle était zéro, la séparation de variables serait exacte. Toutefois il est quand même possible d'utiliser cette séparation à l'intérieur du domaine de l'interaction. En se rappelant que le paramètre mr/M<sub>t</sub> est petit par rapport à R, on peut développer le potentiel  $\Delta V$  en série de Taylor comme suit :

$$\Delta \mathbf{V} = (\mathbf{m} / \mathbf{M}_{t}) \mathbf{\bar{r}} \cdot \nabla \mathbf{V} (\mathbf{\bar{R}}) - \frac{1}{2} (\mathbf{m} / \mathbf{M}_{t})^{2} (\mathbf{\bar{r}} \cdot \nabla)^{2} \mathbf{V} (\mathbf{\bar{R}}) + \cdots$$

On peut toujours négliger  $\Delta V$  si  $r < \delta$ , d'autant plus que, d'après Trammell et Chalk, on peut négliger ce terme même en dehors de ce domaine (où U=0) à condition que :

$$E - \tilde{\varepsilon}_{j} = k_{j}^{\prime 2} / 2\mu \gg \left[ \left( m / M_{\iota} \right) \bar{r} \nabla \right]^{2} V.$$

L'erreur relative d'une telle approximation dans un cadre similaire (diffusion des neutrons sur des protons) a été estimée par Breit :<sup>8</sup> elle serait de l'ordre de 10<sup>-5</sup>.

On se place maintenant en dehors de la portée du potentiel nucléaire, mais encore suffisamment proche de la surface du noyau pour que la condition précédente soit satisfaite. Alors la solution de l'équation V-17 dans ce domaine peut être choisie sous la forme suivante :

$$\zeta_{j}(\vec{r}) = b_{j} \left[ \frac{\sin(\vec{k}_{j}\vec{r})}{k_{j}'r} + \eta(\vec{k}_{j}') \frac{\exp(i\vec{k}_{j}'\vec{r})}{r} \right], \qquad (V-18)$$

où  $\eta(\vec{k}'_j)$  est la longueur de diffusion pour la particule libre pour l'énergie du système dans le centre de masse. Cette longueur sert à raccorder cette solution à la solution dans le domaine  $r < \delta$  et est donc définie par  $U(\vec{r})$ . Cette solution détermine la forme de la fonction d'onde du système juste en dehors de la portée des forces nucléaires. Etant donné que la partie droite de l'équation V-17 est petite, ceci suggère la reformulation du problème en termes de la condition aux limites à r=0. Dans la région  $r > \delta$  la fonction d'onde doit être obtenue à partir de l'équation initiale V-11. Pour trouver cette solution on suit encore la démarche proposée par Trammell et Chalk. On introduit deux Hamiltoniens :

$$H = K + V(\bar{r}_{A}),$$

$$H_{0} = K + V(\bar{R}).$$
(V-19)

On peut maintenant formuler le problème, supposant que la solution V-18 est justifiée à la limite  $r \rightarrow 0$ . Cela revient à dire qu'on se place à la limite de la portée des forces nucléaires  $\delta \rightarrow 0$ ; le potentiel prend, donc, la forme de la fonction delta (cette limite est en quelque sorte similaire au pseudo potentiel introduit par Fermi, pour les détails voir l'article de Breit). Mathématiquement ce passage est effectué en intégrant l'équation V-11 sur le volume d'une petite sphère de rayon r juste en dehors de  $\delta$ .



Figure V.4 Intégration de l'équation V-11.

L'opérateur  $p^2/2\mu$  dans V-11 est un Laplacien en r. D'après le théorème de Gauss, l'intégrale sur le volume r se transforme en intégrale sur la surface de r égale à  $4\pi r^2$ . En se rappelant que pour les petits r la forme de  $\zeta_j(\vec{r})$  est donnée par V-18 et en passant à la limite  $r \rightarrow 0$ , après avoir intégré, on obtient l'équation sur  $\psi$  dans le domaine externe en termes de la condition aux limites à r=0 :

$$(H-E)|\psi\rangle = \frac{2\pi}{\mu} \sum_{j} \eta(\vec{k}_{j}) b_{j} |0,\phi_{j}(\vec{R})\rangle, \qquad (V-20)$$

où on a introduit la notation  $\langle \vec{r}, \vec{R} | 0, \phi_j(\vec{R}) \rangle = \delta(\vec{r}) \phi_j(\vec{R})$ .

La solution de l'équation V-20 avec la condition initiale V-13 est bien connue et s'écrit comme suit :

$$|\psi\rangle = \left|\vec{k}_{i}\chi_{i}\rangle - \frac{2\pi}{\mu}G\sum \eta_{j}b_{j}|0,\phi_{j}\rangle, \qquad (V-21)$$

avec la fonction de Green  $G = (E - H + i\lambda)^{-1}$ , où  $\lambda$  est une valeur positive infinitésimale et  $\eta_j \equiv \eta_j(\vec{k}'_j)$ . Utilisant V-21 on obtient la forme asymptotique de l'onde diffusée :

$$\Psi_{s} = \sum_{j,f} \frac{m \exp(i \vec{k}_{f} \vec{r}_{n})}{\mu r_{n}} \chi_{f}(\vec{r}_{A}) \langle \chi_{f} \vec{k}_{f} | 0, \phi_{j} \rangle b_{j} \eta_{j}, \qquad (V-22)$$

avec l'énergie totale définie toujours comme :  $E = \epsilon_f + k_f^2 / (2m) = \epsilon_i + k_i^2 / (2m)$ . On détermine l'équation sur  $b_j$  en égalisant  $\psi$  donné par V-15 et V-18 avec V-21 à la

limite  $r\to 0$ . On multiplie cette égalité par  $\left<\vec{R}0\right|$  et on passe à la limite  $r\to 0$ , il en découle :

$$\Psi_{\rm mod}(\bar{R}) = \sum_{n} b_n \phi_n(\bar{R}) = \langle \bar{R}, 0 | \bar{k}_i \chi_i \rangle - \frac{2\pi}{\mu} \sum_j \langle \bar{R}, 0 | G - G_0 | 0, \phi_j \rangle b_j \eta_j ,$$

avec  $G_0 = (E - H_0 + i\lambda)^{-1}$ . Remarquons que la singularité à r=0, présente dans V-21, a été éliminée dans la dernière équation. De cette expression on déduit pour  $b_n$ :

$$\mathbf{b}_{n} = \left\langle \phi_{n}, 0 \middle| \vec{\mathbf{k}}_{i} \chi_{i} \right\rangle - \frac{2\pi}{\mu} \sum_{j} \left\langle \phi_{n}, 0 \middle| \mathbf{G} - \mathbf{G}_{0} \middle| 0, \phi_{j} \right\rangle \mathbf{b}_{j} \eta_{j} .$$
(V-23)

Ici  $b_n$  est l'amplitude de l'onde incidente dans le canal n,  $b_j\eta_j$  est l'amplitude de l'onde diffusée dans le canal j, donc  $-2(\pi/\mu)\sum_j \langle \phi_n, 0 | G - G_0 | 0, \phi_j \rangle$  peut être

interprété comme amplitude de probabilité pour une onde diffusée dans le canal j de devenir à nouveau l'onde incidente dans le canal n. Pour une particule libre cette amplitude est zéro et, d'après Trammell et Chalk, elle est petite si l'énergie du neutron incident est assez grande. L'approximation de la collision unique s'obtient en négligeant ce terme de la diffusion multiple, on en tire :

$$\mathbf{b}_{n} \equiv \mathbf{b}_{n}^{0} = \left\langle \phi_{n}, 0 \middle| \vec{k}_{i} \chi_{i} \right\rangle. \tag{V-24}$$

La matrice S de la diffusion est définie de la manière la plus générale comme suit :  $\psi(\infty) = S\psi(-\infty)$ , où  $\psi(\infty)$  est l'onde diffusée (loin de la zone d'interaction), et  $\psi(-\infty)$  est l'onde incidente. En inserant V-24 dans V-22, on obtient :

$$S(\vec{k}_{i},\vec{k}_{f}) = (m / \mu) \sum_{j} \langle \chi_{f} \vec{k}_{f} | 0, \phi_{j} \rangle \eta_{j} \langle 0, \phi_{j} | \chi_{i} \vec{k}_{i} \rangle.$$
 (V-25)

Si  $\eta_j$  change peu avec  $\phi_j$ , on peut le poser constant est obtenir le résultat de Fermi (pseudo potentiel de Fermi, amplitude de diffusion constante). Si  $\eta_j$  est dû à une résonance isolée  $\eta_j = (\Gamma_n / 2k'_j) (E_i - E_r + \varepsilon_i - \varepsilon'_j + i\Gamma / 2)^{-1}$  (la forme de Breit-Wigner) et en sachant que l'amplitude de diffusion est proportionnelle à S, il en découle pour l'amplitude de diffusion :

$$F_{R}(\vec{k}_{i},\vec{k}_{f}) = \sum_{j} \frac{\Gamma_{n}}{2k'_{j}} \frac{\langle \chi_{f} | exp(-i\vec{k}_{f}\vec{r}) | \phi_{j} \rangle \langle \phi_{j} | exp(i\vec{k}_{i}\vec{r}) | \chi_{i} \rangle}{(E_{i} - E_{r} + \varepsilon_{i} - \varepsilon'_{j} + i\Gamma/2)}, \qquad (V-26)$$

qui est la formule de Lamb. Les termes correspondant à la diffusion multiple ont été estimés dans l'article qui a servi de référence à cette présentation. Cette démonstration n'est pas unique. Une autre manière consistera, par exemple, à considérer la matrice S donnée par la théorie de perturbations.<sup>9</sup> Cette dernière est purement mathématique et laisse tout l'enjeu des approximations et de la physique à la théorie de perturbations.

# V.E.2 Amplitude de la diffusion résonnante dans la représentation de Heisenberg

L'amplitude de la diffusion résonnante que l'on vient de calculer est donnée par l'approximation de la collision unique dans laquelle on néglige les collisions multiples entre le neutron et le noyau. Tenant compte du fait que M>>m on peut déterminer les fonctions d'onde du cristal à l'état intermédiaire à partir de l'équation V-14. Il est aussi justifié de remplacer  $k'_j$  par  $k_i$  dans le dénominateur de V-26.

Remarquons que toute la dépendance des spins du noyau et du neutron a été éliminée dans la démonstration ci-dessus. Pourtant cette dépendance est à prendre en considération car elle donne naissance à un facteur dit statistique. La dépendance de la diffusion des spins peut être prise en compte par l'intermédiaire de l'opérateur de spins qui s'écrit comme suit :

$$\hat{\mathbf{S}} = \mathbf{A} + \mathbf{B}\hat{\mathbf{I}}_{j}\cdot\hat{\boldsymbol{\sigma}}$$
 ,

où  $\hat{I}_j$  est le spin du noyau j avec lequel le neutron entre en interaction et  $\hat{\sigma}$  est le spin du neutron. Les facteurs A et B sont donnés par :

$$A = \frac{I(I+1) + \sigma(\sigma+1) - J'(J'+1)}{J(J+1) - J'(J'+1)}$$
$$B = \frac{2}{J(J+1) - J'(J'+1)}.$$

Ici J est le spin du noyau composé et J'=2I-J. L'opérateur  $\hat{S}$  est similaire à celui que l'on introduit généralement dans le cas de la diffusion des neutrons thermiques à une exception près : dans le cas résonnant cet opérateur tient compte de la formation du noyau composé.

L'opérateur des spins est à insérer dans l'élément de matrice V-26 et les états initiaux et finaux de l'amplitude de diffusion incluent généralement les états des spins. Or une moyenne sur les états des spins des noyaux et des neutrons, se traduisant par des sommations sur tous les noyaux et tous les états des spins dans le faisceau de neutrons incidents avec des facteurs de pondération correspondants, est à calculer. Pour calculer cette moyenne on fait les hypothèses suivantes.

- Si la cible n'est pas polarisée alors la distribution des orientations du spin des noyaux est aléatoire. Comme la polarisation joue un rôle important uniquement à très basses températures (de l'ordre de 10<sup>-3</sup> K), l'hypothèse de la distribution aléatoire des spins est une très bonne approximation dans des cas d'intérêt de la physique des réacteurs.
- Il n'y a pas de corrélations entre les spins des noyaux des différents sites dans un structure cristalline. Cette hypothèse est très bien justifiée pour les noyaux lourds (elle se détériore pour les noyaux légers, nous citons ici l'exemple de la molécule d'hydrogène H2 à basse température).
- Le faisceau de neutrons n'est pas polarisé. Cette hypothèse est naturelle dans un réacteur nucléaire.

Le calcul des moyennes sur les états de spins peut être fait à l'aide de l'opérateur de densité des spins et est explicité, par exemple, dans la thèse de Word<sup>10</sup> et dans l'article de Word et Trammell.<sup>11</sup> Le calcul résulte dans la multiplication de l'amplitude de diffusion par le facteur statistique qui est :

$$\upsilon = \left(\frac{2J+1}{(2I+1)(2\sigma+1)}\right)^{1/2}$$

Un autre point important à souligner avant de considérer l'amplitude de la diffusion résonnante est que la diffusion des neutrons aux énergies des résonances des noyaux lourds, la diffusion incohérente domine la diffusion cohérente. Les pics de Bragg, résultant de la diffusion cohérente, sont atténués aux énergies au-dessus de quelques eV. Effectivement, aux énergies de quelques eV les longueurs d'onde des neutrons incidents  $\lambda$  sont beaucoup plus petites que la distance entre les noyaux  $\Delta r$ . Par analogie avec le cas de la diffusion des neutrons thermiques le comportement des fonctions de corrélation est déterminé grossièrement par le facteur exp(- $\Delta r/\lambda$ ), qui rend négligeable la diffusion cohérente. La diffusion d'un neutron sur un noyau est convenablement décrite à l'aide de l'approximation incohérente, décrite dans le chapitre V.D « Approximation incohérente ». Pour cette raison on se contentera à présent de considérer uniquement la partie incohérente de la diffusion résonnante, qui, aux vues des hypothèses décrites ci-dessus, est donnée par :

$$F_{R} = \upsilon \frac{\Gamma_{n}}{2k_{i}} \sum_{n} \frac{\left\langle \chi_{\beta} \left| \exp(-i\vec{k}_{f}\vec{r}_{j}) \left| \chi_{n} \right\rangle \left\langle \chi_{n} \left| \exp(i\vec{k}_{i}\vec{r}_{j}) \right| \chi_{\alpha} \right\rangle}{E_{i} - E_{r} - (\varepsilon_{n} - \varepsilon_{\alpha}) + i\Gamma/2}, \qquad (V-27)$$

avec  $\epsilon_n$  et  $\epsilon_i$  représentant respectivement les énergies du cristal à l'état intermédiaire et initial, le vecteur d'onde du neutron est lié à l'énergie initiale du neutron par  $E_i = \hbar^2 \vec{k}_i^2 / (2m)$ ,  $E_r$  est l'énergie du niveau et  $\vec{r}_j$  représente le rayon-vecteur du déplacement du noyau j au moment t=0 (on omettra l'indice j dans la suite de l'exposé dans le cadre de l'approximation incohérente). On rappelle aussi qu'on a posé  $\hbar = 1$ , ainsi le temps se mesure en eV-1. Les fonctions d'onde du cristal sont notées par  $\chi$  avec des indices  $\alpha$ ,  $\beta$  et n correspondant respectivement aux états initial, final et intermédiaire.

La sommation directe sur les états intermédiaires dans l'expression V-27 n'est pas possible pour la raison de la dépendance du dénominateur de ces états. Cette dépendance énergétique peut être représentée sous sa forme intégrale :

$$\frac{1}{E_{i} - E_{r} - (\varepsilon_{n} - \varepsilon_{\alpha}) + i\Gamma/2} = -i\int_{-\infty}^{0} dt \exp\left(i\left[(E_{r} - E_{i} - \varepsilon_{\alpha} + \varepsilon_{n}) - i\Gamma/2\right]t\right)$$

La variable t peut être considérée comme le temps de formation du noyau composé. En insérant cette expression dans V-27 on aboutit à l'expression suivante pour l'amplitude de diffusion :

$$F_{R} = -\upsilon \frac{i\Gamma_{n}}{2k_{i}} \times \sum_{n} \int_{-\infty}^{0} dt \exp[i(E_{r} - E_{i} - i\Gamma/2)t] \langle \chi_{\beta} | \exp(-i\vec{k}_{f}\vec{r}) | \chi_{n} \rangle \langle \chi_{n} | \exp(i\epsilon_{n}t) \exp(i\vec{k}_{i}\vec{r}) \exp(-i\epsilon_{\alpha}t) | \chi_{\alpha} \rangle.$$

On élimine la dépendance explicite de l'amplitude de diffusion des états intermédiaires en utilisant les relations suivantes :

$$\exp(i\varepsilon_{i}t)|\chi_{i}\rangle = \exp(iHt)|\chi_{i}\rangle,$$
  
$$\exp(i\varepsilon_{f}t)|\chi_{f}\rangle = \exp(iHt)|\chi_{f}\rangle,$$
  
(V-28)

où H est l'Hamiltonien du système qui est la somme des énergies cinétiques de tous les noyaux, du neutron et de l'énergie potentielle du système. Il est utile à ce niveau de souligner qu'à l'état intermédiaire l'Hamiltonien n'est pas généralement le même qu'aux états initial et final : l'augmentation de la masse d'un des noyaux du système est à l'origine de cette différence. L'absorption du neutron provoque donc un changement de la fréquence des vibrations qui sera négligé. En égalisant les Hamiltoniens à l'état initial (final) avec celui à l'état intermédiaire, on obtient une approximation bien. Ceci n'est pas le cas dans le cadre du modèle du gaz libre où, malgré le fait que l'Hamiltonien est toujours sous la forme d'une somme sur tous les noyaux, il n'y a aucune interaction entre eux. Dans la suite nous étudierons ce détail plus profondément. Une fois cette dépendance énergétique éliminée, on peut sommer sur les états intermédiaires :

$$\sum_{n} |\chi_{n}\rangle \langle \chi_{n}| = 1.$$

Il est aussi utile, pour des raisons qui seront explicitées par la suite, de passer à la représentation de Heisenberg. Dans cette représentation les opérateurs évoluent en temps comme suit :

$$\vec{r}(t) = \exp(iHt)\vec{r}\exp(-iHt)$$
.

Dans ces conditions et après un peu d'algèbre on réécrit l'amplitude de diffusion comme suit :

$$F_{R} = -\upsilon \frac{i\Gamma_{n}}{2k_{i}} \int_{-\infty}^{0} dt \exp\left[i(E_{r} - E_{i} - i\Gamma/2)t\right] \langle \chi_{\beta} \left| \exp(-i\vec{k}_{f}\vec{r}) \exp(i\vec{k}_{i}\vec{r}(t)) \right| \chi_{\alpha} \rangle.$$
(V-29)

On a donc obtenu la nouvelle forme de l'amplitude de diffusion qui ne dépend plus explicitement des états intermédiaires. On va à présent l'employer pour le calcul de la section de transfert.

# V.E.3 Section de la diffusion résonnante

La section doublement différentielle en énergie et en angle pour la diffusion inélastique est donnée par :

$$\frac{d^2 \sigma_{\rm R}}{d\Omega dE} = \sum_{\alpha} \sum_{\beta} \rho(\epsilon_{\alpha}) \frac{k_{\rm f}}{k_{\rm i}} |F_{\rm R}|^2 \delta(E + \Delta \epsilon), \qquad (V-30)$$

avec  $E = E_f - E_i$  et  $\Delta \varepsilon = \varepsilon_\beta - \varepsilon_\alpha$ .

Le cristal étant à l'équilibre thermique avant l'interaction, il faut pondérer la matrice de transition par la probabilité de trouver le cristal dans un état quelconque  $\chi_{\alpha}$  et de la sommer sur tous les états initiaux. Enfin de retrouver la probabilité totale, mesurable à l'expérience, il faut également sommer sur tous les états finaux du cristal.

On propose ici une approche différente de celle de Word et Trammell,<sup>11</sup> pour faire intervenir explicitement l'énergie du neutron incident. La fonction delta dans V-30 peut être réécrite sous sa forme intégrale:

$$\delta(\varepsilon_{\beta} - \varepsilon_{\alpha} + E) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dT \exp\left[-i(\varepsilon_{\beta} - \varepsilon_{\alpha} + E)T\right].$$

Une fois V-29 inséré dans IV-30, il en découle pour la section résonnante de transfert :

$$\frac{d^{2}\sigma_{R}}{d\Omega dE} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon \frac{\Gamma_{n}}{2k_{i}} \right)^{2} \left( \frac{E_{f}}{E_{i}} \right)^{1/2} \sum_{\beta} \sum_{\alpha} \rho(\varepsilon_{\alpha}) \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \int_{-\infty}^{0} dt \exp[-a(t)] \int_{-\infty}^{0} dt' \exp[-a^{*}(t')] \times \left\langle \chi_{\alpha} \right| \exp(i\varepsilon_{\alpha}T) \exp(-i\vec{k}_{i}\vec{r}(t')) \exp(i\vec{k}_{f}\vec{r}) \exp(-i\varepsilon_{\beta}T) \left| \chi_{\beta} \right\rangle \left\langle \chi_{\beta} \right| \exp(-i\vec{k}_{f}\vec{r}) \exp(i\vec{k}_{i}\vec{r}(t)) \left| \chi_{\alpha} \right\rangle$$

avec  $a(t) = -i(E_r - E_i - i\Gamma/2)t$ . Sachant comment l'Hamiltonien du système agit sur les états (voir V-28) et utilisant la relation de fermeture sur les états finaux du système  $\sum_{\beta} |\chi_{\beta}\rangle \langle \chi_{\beta} | = 1$ , on obtient :

$$\frac{d^2 \sigma_R}{d\Omega dE} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon \frac{\Gamma_n}{2k_i} \right)^2 \left( \frac{E_f}{E_i} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \int_{-\infty}^{0} dt \exp[-a(t)] \int_{-\infty}^{0} dt' \exp[-a^*(t')] \times \left\langle \exp[-i\vec{k}_i\vec{r}(T+t')] \exp[i\vec{k}_f\vec{r}(T)] \exp[-i\vec{k}_f\vec{r}] \exp(i\vec{k}_i\vec{r}(t)) \right\rangle.$$

Les crochets triangulaires signifient que la moyenne sur les états initiaux est à calculer :

$$\langle \cdots \rangle = \sum_{\alpha} \rho(\varepsilon_{\alpha})(\cdots).$$

Cette moyenne thermique peut être représentée sous une autre forme :

$$\langle \cdots \rangle = \frac{\mathrm{Tr}[(\cdots)\mathrm{exp}(-\mathrm{H}\beta)]}{\mathrm{Tr}[\mathrm{exp}(-\mathrm{H}\beta)]}, \qquad \beta = \frac{1}{\mathrm{k}_{\mathrm{B}}\mathrm{T}_{\mathrm{C}}},$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $T_c$  est la température thermodynamique du cristal et H est l'Hamiltonien du système. Maintenant les raisons pour lesquelles on a employé la représentation de Heisenberg sont claires : cette représentation facilite le calcul de la moyenne thermique. Etant donné que les fonctions d'onde ne dépendent pas du temps, il suffit d'évaluer cette moyenne une fois pour toutes. Dans le cas contraire il aurait fallu expliciter la moyenne à chaque instant de l'évolution du système en temps. L'expression obtenue se distingue de celle obtenue dans le chapitre précédent pour le cas d'absorption pour une simple raison : dans le cas de la diffusion, l'exponentielle dépendant du vecteur d'onde du neutron sortant est un opérateur qui agit sur les états finaux du système (l'énergie du neutron sortant est compatible avec celle du cristal ce qui n'était pas le cas d'un gamma en voie de sortie dont l'énergie est fortement supérieure à la dernière).

Pour des raisons de simplicité il est utile de faire le changement de variables suivant :  $t \rightarrow -t$ ,  $t' \rightarrow -t'$ . On en déduit la forme finale de la section de transfert :

$$\frac{d^2\sigma_{R}}{d\Omega dE} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon \frac{\Gamma_{n}}{2k_{i}} \right)^{2} \left( \frac{E_{f}}{E_{i}} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \int_{0}^{\infty} dt \exp[a(t)] \int_{0}^{\infty} dt' \exp[a^{*}(t')] \times W(T, t, t'),$$

(V-31)

$$W(T, t, t') = \left\langle \exp\left[-i\vec{k}_{i}\vec{r}(T-t')\right] \exp\left[i\vec{k}_{f}\vec{r}(T)\right] \exp\left[-i\vec{k}_{f}\vec{r}\right] \exp\left[i\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right]\right\rangle, \quad (V-32)$$
$$a(t) = -i\left(E_{r} - E_{i} - i\Gamma/2\right)t.$$

La section différentielle de la diffusion résonnante est décrite par la fonction de corrélation W(T,t,t') qui est une fonction à quatre points en temps. Cette fonction de corrélation contient des informations supplémentaires par rapport au cas de la diffusion non-résonnante : notamment les corrélations entre les positions des noyaux aux temps différents, absentes dans le cas non-résonnant. Cette fonction contient toute l'information sur la dynamique du réseau cristallin. Pour plus de détail sur l'information contenu dans cette fonction et sur les différentes propriétés dynamiques du cristal qui s'en déduisent on renvoie le lecteur à l'article de Word et Trammell. Notons que V-31 et V-32 ont été obtenus en supposant que l'amplitude de diffusion a la forme de Breit-Wigner. Pour un autre formalisme nucléaire il faut revenir à l'expression V-25.

Les formules V-31 et V-32 sont tout à fait générales quant aux modélisations des mouvements des noyaux. Pour conclure la description de l'interaction d'un neutron avec un noyau, il faut modéliser les mouvements des noyaux, autrement dit modéliser l'opérateur  $\overline{r}(t)$ .

# V.E.4 Sens physique de la fonction de corrélation

Réarrangeons les exponentielles intervenants dans cette fonction. Pour cela on utilisera l'égalité de Weyl.<sup>12</sup> Pour les opérateurs, commutant avec leurs commutateurs, on peut écrire :

$$exp(A)exp(B)exp(C)exp(D) = exp(A+B+C+D+1/2([A,B]+[A,C]+[A,D]+[B,C]+[B,D]+[C,D])).$$
(V-33)

Pour évaluer la moyenne thermique de cette expression on utilisera le théorème de Bloch établi pour des réseaux harmoniques. D'après ce théorème, si un opérateur  $\Lambda$  est une combinaison linéaire des opérateurs de création et d'annihilation, alors on peut écrire :

$$\langle \exp(\Lambda) \rangle = \exp(\frac{1}{2} \langle \Lambda^2 \rangle).$$
 (V-34)

Sachant que les commutateurs, intervenant dans cette dernière expression, sont des nombres, il en découle immédiatement :

$$\langle \exp(\mathbf{A})\exp(\mathbf{B})\exp(\mathbf{C})\exp(\mathbf{D})\rangle = \\ \exp\left(\frac{1}{2}\left[\langle \mathbf{A}^2 \rangle + \langle \mathbf{B}^2 \rangle + \langle \mathbf{C}^2 \rangle + \langle \mathbf{D}^2 \rangle\right] + \langle \mathbf{A}\mathbf{B} \rangle + \langle \mathbf{A}\mathbf{C} \rangle + \langle \mathbf{A}\mathbf{D} \rangle + \langle \mathbf{B}\mathbf{C} \rangle + \langle \mathbf{B}\mathbf{D} \rangle + \langle \mathbf{C}\mathbf{D} \rangle\right).$$

On en déduit :

$$W(T,t,t') = \exp\left\{-\left\langle \left(\vec{k}_{i}\vec{r}\right)^{2}\right\rangle - \left\langle \left(\vec{k}_{f}\vec{r}\right)^{2}\right\rangle\right\} \exp\left\{\left\langle \vec{k}_{i}\vec{r}(-t')\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle + \left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right\rangle\right\} \times \exp\left\{-\left\langle \vec{k}_{i}\vec{r}(T-t')\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle + \left\langle \vec{k}_{i}\vec{r}(T-t')\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right\rangle + \left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}(T)\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle - \left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}(T)\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right\rangle\right\}\right\}$$

$$(V-35)$$

Le premier facteur de la dernière expression ne dépend pas du temps, et c'est donc un facteur équivalent au facteur de Debye-Waller pour les neutrons thermiques. Le deuxième facteur ne dépend que de t et t' et représente les contributions des phonons « virtuels », créés au début et réabsorbés à la fin de l'interaction ou vice versa. Ceux-ci permettent de « pomper » l'énergie nécessaire pour exciter un noyau à un niveau et décrivent le processus purement nucléaire (contribution dans le dénominateur de la section de Breit-Wigner). Ce processus d'échange des phonons virtuels ne rentre pas dans la loi de la conservation d'énergie et n'est pas détectable expérimentalement. La variable T, explicitant la dynamique du noyau, est responsable de l'inélasticité de la diffusion, en d'autres termes, de l'échange des phonons réels. Du fait de la conservation d'énergie, il existe un couplage entre les deux processus (entre les variables T d'un côté et t, t' de l'autre): ce que représente le troisième facteur dans V-35. La présence de ce couplage pose d'immenses difficultés numériques au calcul de la section de transfert. Dans la suite de l'exposé on s'intéressera plus particulièrement à cette partie du problème et on introduira une méthode de traitement de ce couplage. Remarquons aussi que l'expression V-35 est une fonction constituée des fonctions à deux points en temps. Ce fait explicite la règle de paires, exacte pour les réseaux harmoniques : une fonction de corrélation d'ordre plus élevé peut être décomposée en une somme de toutes les combinaisons possibles des fonctions de corrélation à

deux points en temps (Word). Un diagramme de Feynman peut être construit à partir de cette expression :



# V.E.5 Quelques cas limites de la fonction W

On se propose d'étudier ici quelques cas limites de cette fonction. Le premier cas limite est celui où les temps t et t' de formation et de décomposition du noyau composé tendent vers zéro. Physiquement ce cas correspond à la limite  $\Gamma \rightarrow \infty$  et comprend les réactions instantanées. Ceci correspond aux réactions directes ou potentielles décrites par la fonction de Van Hove. Dans ce cas on peut, donc, s'attendre à avoir une fonction de corrélation à deux points en temps. Effectivement, pour des grandes valeurs de  $\Gamma$ , les contributions dans les intégrales en t et t' viennent essentiellement des petites valeurs de ces deux variables. On peut, donc, poser t,t'=0 dans W avec une erreur négligeable. Sachant que les opérateurs exponentiels correspondant aux mêmes temps commutent et en effectuant l'intégration sur t et t', on obtient :

$$\frac{d^{2}\sigma_{R}}{d\Omega dE} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon \frac{\Gamma_{n}}{2k_{i}} \right)^{2} \left( \frac{E_{f}}{E_{i}} \right)^{1/2} \frac{1}{\left(E_{r} - E_{i}\right)^{2} + \Gamma^{2} / 4} \times \\ \times \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \left\langle \exp\left[i\Delta \vec{k}\vec{r}(T)\right] \exp\left[-i\Delta \vec{k}\vec{r}\right] \right\rangle,$$
(V-36)

ceci est le résultat de Van Hove pour les neutrons thermiques avec une nouvelle amplitude de diffusion définie comme  $f = (E_r - E_i - i\Gamma/2)^{-1}$ .

Le deuxième cas est celui des temps longs :  $t, t' \rightarrow \infty$ , ce qui correspond physiquement au cas  $\Gamma \rightarrow 0$ . Pour les grandes valeurs de t et t' les exponentielles dans W ne sont plus corrélées (pour un cristal réel car pour un cristal parfait, oscillant à la même fréquence, les positions des noyaux seront corrélées) :

$$\langle \exp\left[-i\vec{k}_{i}\vec{r}(T-t')\right] \exp\left[i\vec{k}_{f}\vec{r}(T)\right] \exp\left[-i\vec{k}_{f}\vec{r}\right] \exp\left[i\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right] \rangle = \langle \exp\left[-i\vec{k}_{i}\vec{r}(T-t')\right] \rangle \langle \exp\left[i\vec{k}_{f}\vec{r}(T)\right] \exp\left[-i\vec{k}_{f}\vec{r}\right] \rangle \langle \exp\left[i\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right] \rangle.$$

On sait aussi que la moyenne thermique d'un seul opérateur ne dépend pas du temps. En appliquant ceci sur la première et la deuxième moyenne dans l'expression précédente, on obtient :

$$\frac{d^{2}\sigma_{R}}{d\Omega dE} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon \frac{\Gamma_{n}}{2k_{i}} \right)^{2} \left( \frac{E_{f}}{E_{i}} \right)^{1/2} \frac{1}{\left(E_{r} - E_{i}\right)^{2} + \Gamma^{2}/4} \left\langle \exp\left[-\vec{k}_{i}\vec{r}\right] \right\rangle \left\langle \exp\left[\vec{k}_{i}\vec{r}\right] \right\rangle \times \\ \times \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp\left(-iET\right) \left\langle \exp\left[i\vec{k}_{f}\vec{r}(T)\right] \exp\left[-i\vec{k}_{f}\vec{r}\right] \right\rangle,$$
(V-37)

## V.E.6 Cas limite du gaz libre

Considérons des modélisations physiques de la fonction de corrélation qui simplifient son expression. Commençons par le cas de l'interaction d'un neutron avec un gaz libre à l'équilibre thermique. Partant de l'expression V-26 pour l'amplitude de diffusion résonnante et sachant que les fonctions d'onde des noyaux pour un gaz libre sont des ondes planes, on obtient l'expression de la section de transfert (annexe B) :

$$\frac{d^{2}\sigma}{d\Omega dE} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon \frac{\Gamma_{n}}{2k_{i}} \right)^{2} \left( \frac{E_{f}}{E_{i}} \right)^{1/2} \int d^{3}p_{i} \int d^{3}p_{f} \rho(p_{i}) \frac{\delta(\vec{k}_{i} + \vec{p}_{i} - \vec{k}_{f} - \vec{p}_{f}) \delta(E_{i} + \varepsilon_{i} - E_{f} - \varepsilon_{f})}{\left( \mu \upsilon_{r}^{2} / 2 - E_{r} \right)^{2} + \Gamma^{2} / 4}.$$
(V-38)

Cette forme exprime la conservation des taux de réaction et a été étudiée à plusieurs reprises par des auteurs différents dans le cadre de la dynamique classique (Blackshaw an Murray<sup>13</sup> (1966), Ouisloumen et Sanchez<sup>14</sup> (1989)). On rappelle qu'on a posé  $\hbar = 1$ .

L'autre manière d'effectuer ce passage au gaz libre consiste à évoluer la fonction de corrélation W(T,t,t'). Ce calcul est fait dans l'annexe C, en utilisant l'expression de la section de transfert et de la fonction W. On donne ici le résultat :

$$W(T,t,t') = \left\langle \exp\left[i(t-t')\left\{\frac{\hbar^2 \Delta k^2}{2M} - \frac{\hbar^2 k_i^2}{2M} + \frac{\vec{p}_i \vec{k}_f}{M}\right\}\right] \exp\left[iT\left\{\frac{\vec{p}_i \Delta \vec{k}}{M} - \frac{\hbar^2 \Delta k^2}{M}\right\}\right]\right\rangle. \quad (V-39)$$

Notons ici que la même forme peut être obtenue, sachant que le mouvement des noyaux pour un gaz libre peut être présenté sous la forme suivante :

$$\vec{r}(t) = \vec{r}(0) + \vec{p}(0)t / M$$
.

En substituant cette expression dans l'expression de la fonction de corrélation on obtient à nouveau V-39.
La moyenne thermique pour un gaz libre doit être considérée comme classique et décrite par la distribution de Maxwell :

$$\langle \cdots \rangle = \int d^3 p_i \exp \left(-\frac{p_i^2 \beta}{2M}\right) (\cdots)$$

Toute intégration faite il en découle pour la section efficace :

$$\frac{\mathrm{d}^2\sigma}{\mathrm{d}\Omega\mathrm{d}E} = \frac{1}{2\pi} \left(\upsilon \frac{\Gamma_n}{2k_i}\right)^2 \left(\frac{E_f}{E_i}\right)^{1/2} \int \mathrm{d}^3 p_i \exp\left(-\frac{p_i^2\beta}{2M}\right) \frac{\delta\left(E_f - E_i + \frac{\hbar^2 \Delta k^2}{2M} - \frac{\hbar \vec{p}_i \Delta \vec{k}}{M}\right)}{\left(E_i - E_r - \frac{\hbar^2 k_i^2}{2M} - \frac{\hbar \vec{p}_i \vec{k}_i}{M}\right)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}.$$

(V-40)

Remarquons que cette expression diffère de V-38, ce qui entraîne très souvent une confusion. Regardons le domaine de validité de la dernière expression. Cette expression est valable pour le cas du gaz libre à condition que la contrainte m<<M soit imposée. Pour expliquer ceci considérons le recul du noyau après la collision. D'après V-27 le recul est sous la forme :

$$\mathbf{R} = \boldsymbol{\varepsilon}_{n} - \boldsymbol{\varepsilon}_{\alpha}.$$

Sachant que  $\varepsilon_n$  est l'énergie cinétique du noyau composé à l'état intermédiaire, et par conséquent est celle du mouvement du centre de masse, on peut écrire :

$$R = \frac{M+m}{2} \left(\frac{\vec{k}_{i}+\vec{p}_{i}}{M+m}\right)^{2} - \frac{p_{i}^{2}}{2M} = \frac{\vec{k}_{i}\vec{p}_{i}}{M+m} + \frac{k_{i}^{2}}{2(M+m)} + \frac{p_{i}^{2}}{2M} \left(\frac{M}{M+m} - 1\right).$$

Si maintenant on fait l'approximation mentionnée plus haut on obtient la forme du recul figurant dans l'expression de la section efficace du gaz libre V-40. Cette approximation provient automatiquement du fait de décrire les états intermédiaires du système par le même Hamiltonien que pour les états initiaux et finaux (voir V-28). Cette approximation est bonne pour le cas du cristal car le neutron interagit avec un noyau lié dans son ensemble et le changement de la masse n'apporte pas de grosses perturbations sur l'Hamiltonien du système. Dans le cas du gaz libre cette perturbation, due à l'augmentation de la masse du noyau, peut être importante car le noyau en question n'interagit pas avec les autres noyaux. Cette différence dans le cas du gaz libre est de même nature que celle entre la section de capture issue d'une étude classique et son équivalent quantique. Pour le cas non résonnant la nature de cette différence se trouve dans la physique du problème : aux hautes énergies, où la longueur d'onde du neutron est petite, on peut négliger la nature quantique de l'interaction neutron-cristal et on obtient un parfait accord entre les deux formulations.

#### V.E.7 Cas limite d'un noyau libre initialement au repos

Vérifions maintenant que l'on peut avoir un cas limite correct considérant un noyau libre initialement au repos. La méthode consiste à calculer la fonction de corrélation W, comme cela a été fait dans l'annexe B, utilisant le fait que l'Hamiltonien d'un noyau libre a pour forme :  $H(p) = p^2 / 2M$ , où p est le module de l'impulsion du noyau. Pour prendre en compte le fait que le noyau est au repos au début de l'interaction, on devrait calculer la moyenne thermique figurant dans W sur un seul état du système p=0. Ici on utilisera directement l'expression V-40 décrivant un noyau libre dans laquelle on posera p=0. La moyenne disparaît et l'expression finale, représentant la limite correcte, devient :

$$\frac{\mathrm{d}^2\sigma}{\mathrm{d}\Omega\mathrm{d}E} = \frac{1}{2\pi} \left(\upsilon \frac{\Gamma_{\mathrm{n}}}{2\mathrm{k}_{\mathrm{i}}}\right)^2 \left(\frac{\mathrm{E}_{\mathrm{f}}}{\mathrm{E}_{\mathrm{i}}}\right)^{1/2} \frac{\delta \left(\mathrm{E}_{\mathrm{f}} - \mathrm{E}_{\mathrm{i}} + \frac{\hbar^2 \Delta \mathrm{k}^2}{2\mathrm{M}}\right)}{\left(\mathrm{E}_{\mathrm{i}} - \mathrm{E}_{\mathrm{r}} - \frac{\hbar^2 \mathrm{k}_{\mathrm{i}}^2}{2\mathrm{M}}\right)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}}.$$
 (V-41)

Ici la fonction delta représente la conservation d'énergie pour l'interaction d'un neutron avec un noyau libre, où le carré du transfert d'impulsion est égal au transfert d'énergie. La section même a une forme de Breit-Wigner simple niveau avec un recul correspondant bien au cas d'un noyau initialement au repos  $R=E_i/A$ .

#### V.E.8 Modèle cristallin harmonique

Une approche plus rigoureuse serait celle du modèle du cristal harmonique. On se place, comme dans le cas de l'absorption résonante, dans le cadre d'un cristal avec un réseau Bravais. Dans l'annexe A on a présenté quelques éléments sur les vibrations des réseaux et la physique du solide. Encore une fois on utilise ces résultats.

Le théorème de Bloch peut être utilisé pour l'évaluation de la fonction de corrélation W(T,t,t'). On donne ici les étapes principales à effectuer : a) utilisation des expressions V-31, V-32 ; b) calcul direct des commutateurs intervenant ; c) utilisation du théorème de Bloch ; d) application aux réseaux cubiques. La dernière condition simplifie l'expression de la fonction de corrélation en faisant intervenir le spectre des phonons habituel en physique du solide. Cette estimation est due à Shamaoun et Summerfield.<sup>15\*</sup> Les auteurs ont étudié la section de transfert sous une autre forme qui s'obtient en faisant le changement de variables  $T \rightarrow T - t + t'$  dans les expressions V-31 et V-32. Cette considération fait intervenir explicitement l'énergie finale du neutron. Pour les détails on rapporte le lecteur à l'article original. On présente ici un résultat analogue à celui de Shamaoun et Summerfield, obtenu en utilisant la même démarche mais faisant intervenir explicitement l'énergie du neutron incident :

$$W(T,t,t') = \exp[\eta(T,t,t')],$$
 (V-42)

<sup>\*</sup> Ce calcul a été initialement présenté dans la thèse de C. R. Adkins, Carnegie Institute of Technology, 1966, mais il n'a pas été publié.

$$\eta(T,t,t') = = \int_{0}^{\infty} \frac{d\omega}{\omega} f(\omega) \left\{ k_{i}^{2} g(T,\omega) + k_{f}^{2} g(t-t'-T,\omega) + \vec{k}_{i} \vec{k}_{f} \left[ g(t',\omega) + g^{*}(t,\omega) - g(T+t',\omega) - g^{*}(t-T,\omega) \right] \right\}$$

avec la définition de la fonction g :

$$g(x,\omega) = \frac{1}{2M\omega} \coth(\frac{\omega}{k_B T_C})(\cos(x\omega) - 1) - i\sin(x\omega)).$$

Cette forme représente une généralisation pour un cristal réel (avec un spectre continu) de la formule qui a été déduite par Yip et Osborn<sup>2</sup> (1966) pour un cristal d'Einstein.

Le cas limite du gaz libre peut aussi être obtenue à partir de ces expressions en développant la fonction oscillante g en série de Taylor et en retenant uniquement les termes d'ordre deux.

#### V.E.9 Cas d'un cristal à une fréquence

Les dernières formules se simplifient si les noyaux du cristal sont supposés osciller à la même fréquence (modèle d'Einstein). Cela impose la représentation du spectre des vibrations par une fonction delta:

$$f(\omega) = \delta(\omega - \omega_0)$$
.

La fonction g figurant dans l'expression de la fonction de corrélation devient:

$$g(x,\omega_0) = \frac{1}{2M\omega_0} \left(-\coth(z) + \frac{\cosh(i\omega_0 x - z)}{\sinh(z)}\right), \text{ avec } z = \beta\omega_0.$$

Où x correspond aux différents temps figurant dans la fonction g. En utilisant la fonction génératrice des fonctions de Bessel modifiées de première espèce :

$$\exp(y\cosh(x)) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \exp(nx)I_n(y),$$

où  $I_n$  est la fonction de Bessel modifiée d'ordre n, on arrive à l'expression suivante de la section doublement différentielle (Yip et Osborn 1966):

avec  $D = \frac{\coth(z)}{2A\omega}$ ,  $P = \frac{1}{2A\omega\sinh(z)}$ ,  $\mu = \vec{k}_i\vec{k}_f/k_ik_f$  est le cosinus de l'angle de diffusion et A=M/m.

Le calcul de la section résonnante de transfert à partir de l'expression V-43 nécessitera la programmation de six sommations imbriquées l'une dans l'autre (au lieu du calcul d'une transformée de Fourier et deux transformées de Laplace comme dans le cas général V-31, V-32). La tentative du calcul numérique a échoué car le temps du calcul était prohibitif.

La complexité des expressions exactes V-31 et V-32 ne nous permettant d'effectuer un calcul exact, on est alors amené à faire recours à une approximation justifiée pour les résonances des noyaux lourds du combustible nucléaire.

# V.F APPLICATION ORIGINALE :NOYAU SEMI-LIBRE A L'ETAT INTERMEDIAIRE. APPROXIMATION DES PHONONS DECOUPLES (APhD) POUR LE TERME DE LA DIFFUSION RESONNANTE

Dans ce chapitre on présente le formalisme que l'on utilisera pour le calcul de la section de transfert pour un cristal.

On se propose à présent d'explorer la physique de la modélisation du mouvement du noyau à l'état intermédiaire par un déplacement rectiligne. Ceci revient à considérer la première correction au cas limite des temps de collision courts V-36. On écrit au premier ordre :

 $\vec{r}(t) = \vec{r}(0) + \vec{p}(0)t / M$ .

On cherche maintenant à étudier physiquement les conséquences directes d'une telle approximation. Insérant la dernière expression dans V-32 on obtient :

$$W(T,t,t') = \left\langle \exp\left[-i\vec{k}_{i}\vec{p}(T)/M\right] \exp\left[i\Delta\vec{k}\vec{r}(T)\right] \exp\left[-i\Delta\vec{k}\vec{r}\right] \exp\left[-i\vec{k}_{i}\vec{p}(0)\right] \right\rangle \exp\left[i\vec{k}_{i}^{2}(t-t')/2M\right],$$

où on a utilisé la relation  $\exp(A)\exp(B) = \exp(A + B + [A,B]/2)$  et le fait que  $[\vec{r},\vec{p}] = i\hbar$ . Toute intégration sur t et t' faite, il en découle pour la section de transfert, V-31 :

$$\frac{d^{2}\sigma_{R}}{d\Omega dE} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon \frac{\Gamma_{n}}{2k_{i}} \right)^{2} \left( \frac{E_{f}}{E_{i}} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \times \left\langle \frac{1}{E_{r} - E_{i} - E_{i} / A - \bar{k}_{i} \bar{p}(T) / M + i\Gamma / 2} \times \exp\left[ i\Delta \bar{k} \bar{r}(T) \right] \exp\left[ -i\Delta \bar{k} \bar{r} \right] \frac{1}{E_{r} - E_{i} - E_{i} / A - \bar{k}_{i} \bar{p}(0) / M - i\Gamma / 2} \right\rangle.$$
(V-44)

A partir de cette expression la limite du gaz libre peut être facilement obtenue. Pour cela il suffit d'effectuer le développement sur la variable T. Cette représentation est intermédiaire : le noyau composé est supposé d'effectuer un mouvement rectiligne pendant son temps de vie. Regardons, suivant de Gennes,<sup>16</sup> la limite semi-classique de cette expression. Ceci revient à traiter les opérateurs d'impulsion comme classiques (non-dependant du temps). De Gennes affirme que cette limite est correcte à condition que :

- le recul des noyaux après l'interaction soit négligeable. Si  $T_n$  et  $T_A$  dénotent les températures du neutron et du noyau respectivement, cette condition se réécrit comme suit :  $mT_n / MT_A \ll 1$ ;
- les effets quantiques des mouvements des noyaux soient négligeables.

Ceci nous permettra de montrer ce qui se passe physiquement une fois l'approximation faite. Dans ce cas les parties « résonnantes » de V-44 ne dépendent plus de T et la moyenne doit être prise classiquement sur le spectre de Maxwell. Autrement dit :

$$\frac{d^{2}\sigma_{R}}{d\Omega dE} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon_{incoh} \frac{\Gamma_{n}}{2k_{i}} \right)^{2} \left( \frac{E_{f}}{E_{i}} \right)^{1/2} \left\langle \frac{1}{(E_{r} - E_{i} - E_{i} / A - \vec{k}_{i}\vec{p} / M)^{2} + \Gamma^{2} / 4} \right\rangle_{cl} \times \\ \times \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \left\langle \exp[i\Delta \vec{k}\vec{r}(T)] \exp[-i\Delta \vec{k}\vec{r}] \right\rangle.$$
(V-45)

Ceci est une forme semi-classique de la section. Si on note l'intégrale dans la dernière expression comme  $S(\alpha,\beta)$  et  $\sigma_{_N}(E_{_i},\beta)$  tout ce qui la précède, suivant les notations introduites dans le chapitre III, on peut écrire pour la section totale de diffusion :

$$\sigma(E_i) = \int_{\beta_{min}}^{\beta_{max}} \sigma_N(E_i - \beta) S(\alpha, \beta) d\beta d\Omega.$$

On voit bien que la dernière formule représente l'application directe du formalisme de Lamb, explicité dans le chapitre III, à la section totale de la diffusion. Cette formule est programmée, sans démonstration de sa validité, dans le code NJOY (avec le modèle du gaz libre), fournissant les données nucléaires à l'usage de la neutronique. Ici on montre la physique d'une telle modélisation. L'idée principale consiste, alors, à pouvoir utiliser les développements en séries de Taylor sur t et t' pour le calcul de la section de transfert. Revenons en détail sur ce développement : s'arrêtant à l'ordre deux on obtient un effet très intéressant, celui qu'on appellera par la suite l'approximation des phonons découples pour des raisons qui seront explicitées plus loin.

Considérons à nouveau l'expression de la section de transfert :

$$\frac{d^2\sigma_R}{d\Omega dE} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon \frac{\Gamma_n}{2k_i} \right)^2 \left( \frac{E_f}{E_i} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \int_{0}^{\infty} dt \exp[a(t)] \int_{0}^{\infty} dt' \exp[a^*(t')] W(T, t, t'),$$

avec

$$W(T, t, t') = \exp\left\{-\left\langle \left(\vec{k}_{i}\vec{r}\right)^{2}\right\rangle - \left\langle \left(\vec{k}_{f}\vec{r}\right)^{2}\right\rangle \right\} \exp\left\{\left\langle \vec{k}_{i}\vec{r}(-t')\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle + \left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right\rangle \right\} \times \exp\left\{-\left\langle \vec{k}_{i}\vec{r}(T-t')\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle + \left\langle \vec{k}_{i}\vec{r}(T-t')\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right\rangle + \left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}(T)\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle - \left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}(T)\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right\rangle \right\},$$
  
$$a(t) = -i\left(E_{r} - E_{i} - i\Gamma/2\right)t. \qquad (V-46)$$

Maintenant on applique à la section résonnante de transfert la méthode proposée par Trammell<sup>17,18</sup> pour la diffusion *élastique* des neutrons dans une résonance. Considérons les deux premiers facteurs dans l'expression précédente de W qui ne dépendent que de t et t' :

$$\exp\left\{-\left\langle\left(\vec{k}_{i}\vec{r}\right)^{2}\right\rangle-\left\langle\left(\vec{k}_{f}\vec{r}\right)^{2}\right\rangle\right\}\exp\left\{\left\langle\vec{k}_{i}\vec{r}(-t')\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle+\left\langle\vec{k}_{f}\vec{r}\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right\rangle\right\}.$$

On vérifie facilement que ceci peut être réécrit comme suit :

$$\exp\left\{-\left\langle \left(\Delta \vec{k}\vec{r}\right)^{2}\right\rangle - \left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}\vec{k}_{i}(\vec{r}-\vec{r}(-t))\right\rangle - \left\langle \vec{k}_{i}(\vec{r}-\vec{r}(-t'))\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle \right\}, \quad \Delta \vec{k} = \vec{k}_{i} - \vec{k}_{f}. \quad (V-47)$$

L'élargissement Doppler et l'énergie de recul sont inclus dans ces exponentielles et sont obtenus en les développant en série de Taylor. Considérons d'abord la variable t. Il en découle pour cette variable :

$$\langle \vec{k}_{f}\vec{r}\vec{k}_{i}(\vec{r}-\vec{r}(-t))\rangle \approx \langle \vec{k}_{f}\vec{r}\vec{k}_{i}\vec{p}\rangle \frac{t}{M} + \langle \vec{k}_{f}\vec{p}\vec{k}_{i}\vec{p}\rangle \frac{t^{2}}{2M^{2}}.$$

On a utilisé le fait qu'une fonction de corrélation à deux points en tempsne dépend que de la différence des temps ; or les deux premières dérivées se calculent comme suit :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dt}} \left\langle \vec{\mathbf{r}}_{x}(t) \vec{\mathbf{r}}_{y} \right\rangle = \frac{1}{M} \left\langle \vec{\mathbf{p}}_{x}(t) \vec{\mathbf{r}}_{y} \right\rangle$$
$$\frac{\mathrm{d}^{2}}{\mathrm{dt}^{2}} \left\langle \vec{\mathbf{r}}_{x}(t) \vec{\mathbf{r}}_{y} \right\rangle = -\frac{1}{M^{2}} \left\langle \vec{\mathbf{p}}_{x}(t) \vec{\mathbf{p}}_{y} \right\rangle$$

Les moyennes intervenant dans ces expressions peuvent être calculées directement (voir l'exemple dans l'annexe D) :

$$\frac{1}{M^2} \left\langle \vec{k}_f \vec{p} \vec{k}_i \vec{p} \right\rangle = \frac{\vec{k}_i \vec{k}_f}{2M} \int_0^\infty f(\omega) \omega \coth \frac{\beta \omega}{2} d\omega,$$
  
$$\frac{1}{M} \left\langle \vec{k}_f \vec{r} \vec{k}_i \vec{p} \right\rangle = i \frac{\vec{k}_i \vec{k}_f}{2M}.$$
 (V-48)

En introduisant les variables  $R = \vec{k}_i \vec{k}_f / 2M$ , l'énergie de recul dans le cas de diffusion, et  $\langle \Theta \rangle = \int_0^{\infty} f(\omega) \omega \coth \frac{\beta \omega}{2} d\omega = p^2 / 3M = 2\langle T \rangle / 3$ , avec  $\langle T \rangle$  l'énergie moyenne par degré de vibration, on écrit :

$$\left\langle \vec{k}_{f} \vec{r} \vec{k}_{i} (\vec{r} - \vec{r} (-t)) \right\rangle \approx iRt + R \langle \Theta \rangle t^{2}.$$
 (V-49)

Considérons le facteur de V-47 dépendant de t. On omet à présent la dépendance de t et t' du troisième facteur dans W(T,t,t') pour des raisons qui seront explicitées dans la suite. On insère V-49 dans V-46 et on réécrit l'intégrale sur t intervenant dans l'expression de la section de transfert comme suit :

$$\int_{0}^{\infty} dt \exp[a(t)] \exp\left[-\left\langle \vec{k}_{f} \vec{r} \vec{k}_{i} (\vec{r} - \vec{r}(-t))\right\rangle\right] \approx$$

$$\int_{0}^{\infty} dt \exp\left[-i\left(E_{r} - E_{i} + R - i\Gamma/2\right)t\right] \exp\left[-R\langle\Theta\rangle t^{2}\right] = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\pi}{R\langle\Theta\rangle}} \exp(-x^{2}) \operatorname{erfc}(-ix),$$
(V-50)

où  $x = -(\Delta + R - i\Gamma/2)/(4R\langle\Theta\rangle)^{1/2}$ ,  $\Delta = E_r - E_i$ . La dernière expression est valable pour R>0, c'est-à-dire pour les angles de diffusion dont le cosinus est plus grand que zéro. Le cas R<0 sera considéré dans la suite.

L'intégrale V-50 a été étudiée en détail par Trammell<sup>17</sup> dans le cadre de l'étude de l'amplitude de la diffusion résonnante élastique. L'auteur a précisé le domaine de validité de la dernière expression approchée. D'après Trammell cette expression que  $|\Delta + i\Gamma/2|/\omega_m$ à condition ne est valable soit pas petit et  $|\Delta + i\Gamma/2| / \omega_m + R\langle \Theta \rangle / \omega_m^2 >> 1, \text{ où } \omega_m \text{ est la fréquence caractéristique des vibrations}$ dans le cristal Les largeurs totales des premières résonances des noyaux lourds sont confinés entre 25 et 60 meV (24.9 meV pour l'isotope <sup>238</sup>U). La fréquence caractéristique des vibrations dans des dioxydes des noyaux lourds est de l'ordre de 10 meV. L'énergie de recul peut être estimée par R≈E/A=25 meV pour la première résonance de l'isotope <sup>238</sup>U, l'énergie cinétique par degré de vibration est  $k_B T_c \approx 20$  meV pour  $T_c = 300$  K. On en déduit de l'ordre de aue  $|\Delta + i\Gamma/2|/\omega_m + R\langle\Theta\rangle/\omega_m^2 > 2$  pour l'UO<sub>2</sub> et pour la diffusion vers l'avant et les angles de diffusion assez grands. Elle l'est d'autant plus que l'énergie du neutron incident augmente (les largeurs totales des résonances à hautes énergies sont plus grandes que celle de la première résonance). De toute façon une étude approfondie de la condition de validité est nécessaire pour chaque application numérique. En utilisant la formule intégrale :

$$\exp(-y^{2})\operatorname{erfc}(-\mathrm{i}y) = \frac{\mathrm{i}}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-t^{2})}{y-t} \mathrm{d}t , \qquad (V-51)$$

on peut réécrire l'intégrale V-50 comme suit (toujours dans le cas R>0):

$$\int_{0}^{\infty} dt \exp[a(t)] \exp\left[-\left\langle \vec{k}_{f} \vec{r} \vec{k}_{i} (\vec{r} - \vec{r}(-t))\right\rangle\right] \approx -i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx}{\sqrt{4\pi R \langle \Theta \rangle}} \frac{\exp\left[-x^{2} / (4R \langle \Theta \rangle)\right]}{\Delta + R - i\Gamma / 2 + x}.$$
 (V-52)

La dernière formule montre explicitement l'effet Doppler de l'amplitude de diffusion produite par les phonons virtuels. Cet effet se manifeste par le déplacement du pic de la résonance, donc la quantité est donnée par l'énergie de recul R, et par un élargissement de la largeur de la résonance de  $2\sqrt{R\langle\Theta\rangle}$ . Cette quantité est la largeur Doppler de la résonance qui se différencie de l'expression habituelle.

Le cas R<0 s'obtient de la même manière :

$$\int_{0}^{\infty} dt \exp[a(t)] \exp\left[-\left\langle \vec{k}_{f} \vec{r} \vec{k}_{i} \left(\vec{r} - \vec{r} \left(-t\right)\right)\right\rangle\right] \approx -i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx}{\sqrt{4\pi |\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle}} \frac{\exp\left[-x^{2} / \left(4|\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle\right)\right]}{(\Delta - |\mathbf{R}| - i(\Gamma/2 + x))}.$$
 (V-53)

L'intégrale sur t' peut être traitée de la même manière. Développement en séries de Taylor du facteur dépendant de t' dans V-46 est :

$$\left\langle \vec{k}_{i}(\vec{r}-\vec{r}(-t'))\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle \approx -iRt'+R\langle\Theta\rangle t'^{2}.$$

Faisons la démarche analogue à celle utilisée pour l'intégrale sur t, pour l'intégrale dans V-46 dépendant de t'. Cela nous amène aux résultats conjugués à V-52 et V-53 :

pour R>0

$$\int_{0}^{\infty} dt' \exp\left[a^{*}(t')\right] \exp\left[-\left\langle \vec{k}_{f}\left(\vec{r}-\vec{r}(-t')\right)\vec{k}_{i}\vec{r}\right\rangle\right] \approx i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx'}{\sqrt{4\pi R\langle\Theta\rangle}} \frac{\exp\left[-x'^{2}/\left(4R\langle\Theta\rangle\right)\right]}{\Delta+R+i\Gamma/2-x'}, \quad (V-54)$$

pour R<0

$$\int_{0}^{\infty} dt' \exp\left[a^{*}(t')\right] \exp\left[-\left\langle \vec{k}_{i}\left(\vec{r}-\vec{r}(-t')\right)\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle\right] \approx i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx'}{\sqrt{4\pi |\vec{R}|\langle\Theta\rangle}} \frac{\exp\left[-x'^{2}/(4|\vec{R}|\langle\Theta\rangle)\right]}{(\Delta-|\vec{R}|+i(\Gamma/2-x'))}.$$
 (V-55)

Ces résultats ne sont pas surprenants car la partie de la section résonnante de transfert dépendante de t'est conjuguée à celle dépendante de t.

Le cas R=0 ( $\theta=\pi/2$ ) doit être considéré séparément. Pour R=0 toute la dépendance de W de t et t' est supprimé et l'intégration sur t et t' devient triviale , il en découle de V-46 et V-50 :

$$\int_{0}^{\infty} dt' \exp[a^{*}(t')] \exp\left[-\left\langle \vec{k}_{i}\left(\vec{r}-\vec{r}(-t')\right)\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle\right] \int_{0}^{\infty} dt' \exp[a(t)] \exp\left[-\left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}\vec{k}_{i}\left(\vec{r}-\vec{r}(-t)\right)\right\rangle\right] = \frac{1}{\left(E_{r}-E_{i}\right)^{2}+\Gamma^{2}/4},$$

pour R=0 ( $\theta=\pi/2$ ). Ceci est la forme de Breit-Wigner.

Selon Trammell<sup>18</sup> on peut négliger la dépendance de t et t' dans le troisième facteur dans V-46 à condition que

$$\left|\Delta + \mathbf{R} + \mathbf{i}(\Gamma/2 + 2\sqrt{\mathbf{R}\langle\Theta\rangle})\right| \gg \omega_{\mathrm{m}}.$$
(V-57)

(V-56)

Le fait de négliger ce facteur sépare en quelque sorte le processus nucléaire de la dynamique du noyau. Une fois les variables t et t' posées égales à zéro dans le troisième terme de V-46 on obtient pour la dépendance de la fonction W de la variable T :

$$\exp\left\{-\left\langle \left(\Delta \vec{k}\vec{r}\right)^{2}\right\rangle - \left\langle \vec{k}_{i}\vec{r}(T)\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle + \left\langle \vec{k}_{i}\vec{r}(T)\vec{k}_{i}\vec{r}\right\rangle + \left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}(T)\vec{k}_{f}\vec{r}\right\rangle - \left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}(T)\vec{k}_{i}\vec{r}\right\rangle \right\} = \\ \exp\left\{-\left\langle \left(\Delta \vec{k}\vec{r}\right)^{2}\right\rangle \left\langle \Delta \vec{k}\vec{r}(T)\Delta \vec{k}\vec{r}\right\rangle \right\} = \left\langle \exp\left[-i\Delta \vec{k}\vec{r}(T)\right]\exp\left[i\Delta \vec{k}\vec{r}\right] \right\rangle.$$

Dans la dernière expression on retrouve la forme de W habituelle dans le cas de la diffusion des neutrons thermiques ou dans le cas de l'absorption résonnante.

Considérons la fonction :

$$Z(z) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-t^2)}{z-t} dt .$$

Cette fonction a été obtenue par introduction de la représentation intégrale de la fonction d'erreur complémentaire. Cette représentation est valide pour Im(y)>0. La fonction Z est bien connue dans la physique de plasma. Cette fonction a été largement étudiée et tabulée.<sup>19</sup> Etant définie dans le plan complexe supérieur, elle est définie comme suit dans le plan complexe inférieur :

$$Z(z) = \begin{cases} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-t^2)}{z - t} dt, & \text{Im}(z) > 0, \\ Z^*(z^*) - 2i\pi \exp(-z^2), & \text{Im}(z) < 0. \end{cases}$$

La section résonnante de transfert s'écrit en termes de cette fonction :

$$\frac{d^2 \sigma_R}{dEd\Omega} = \frac{1}{2\pi} \left( \upsilon \frac{\Gamma_n}{2k_i} \right)^2 \left( \frac{E_f}{E_i} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \left\langle \exp\left[ -i\Delta \vec{k}\vec{r}(0) \right] \exp(i\Delta \vec{k}\vec{r}(T) \right\rangle \times \sigma_R^{APD}$$
(V-58)

avec

$$\sigma_{R}^{APhD} = \begin{cases} \frac{1}{4\pi |\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle} Z \left(\frac{\Gamma/2}{\sqrt{4|\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle}}, \frac{\Delta - |\mathbf{R}|}{\sqrt{4|\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle}}\right) \times Z^{*} \left(\frac{\Gamma/2}{\sqrt{4|\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle}}, \frac{\Delta - |\mathbf{R}|}{\sqrt{4|\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle}}\right), & \mathbf{R} < 0 \\ \frac{1}{\Delta^{2} + \Gamma^{2}/4}, & \mathbf{R} = 0 \\ \frac{1}{4\pi \mathbf{R}\langle\Theta\rangle} Z \left(\frac{\Delta + \mathbf{R}}{\sqrt{4\mathbf{R}\langle\Theta\rangle}}, \frac{\Gamma/2}{\sqrt{4\mathbf{R}\langle\Theta\rangle}}\right) \times Z^{*} \left(\frac{\Delta + \mathbf{R}}{\sqrt{4\mathbf{R}\langle\Theta\rangle}}, \frac{\Gamma/2}{\sqrt{4\mathbf{R}\langle\Theta\rangle}}\right), & \mathbf{R} > 0 \end{cases}$$

Pour être cohérent avec le cas de la diffusion des neutrons thermiques et d'absorption résonnante on a posé  $\Delta \vec{k} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$ ,  $E = E_i - E_f$  et  $T \rightarrow -T$ .

Physiquement, la dernière expression signifie que l'approximation des phonons découplés entraîne des élargissements séparés de la section efficace par les phonons virtuels et phonons réels. Le fait de négliger le couplage entre les deux se traduit par une factorisation entre les élargissements : la section nucléaire est élargie par une loi du gaz libre et la dynamique du réseau est donnée par l'intégrale sur T. L'expression de la section de transfert sans la dernière approximation peut être trouvée dans la thèse de Word,<sup>10</sup> où un développement analogue a été déduit pour extraire l'information contenue dans la fonction de corrélation W. La différence dans ce cas consiste à considérer l'énergie de recul R et l'énergie moyenne par vibration  $\langle \Theta \rangle$ . L'intégrale sur T est encore une fois la même intégrale qui intervient dans le cas de l'absorption résonnante et de la section totale de diffusion (au changement de paramètre physique du problème près). Pour comparer l'APhD avec le cas général on trace le diagramme de Feynman correspondant:



On peut comparer ce diagramme avec celui discuté dans le chapitre V.E.4. On en déduit que l'APhD consiste à négliger l'interaction du noyau avec son environnement pendant le temps de vie du noyau composé. La création et l'annihilation des phonons virtuels ne se produit qu'au début ou à la fin de l'interaction. Pendant son temps de vie le noyau composé effectue un mouvement rectiligne.

#### V.G SECTION DE LA DIFFUSION D'INTERFERENCE

## V.G.1 Section de la diffusion d'interférence

Pour calculer la section différentielle de la diffusion d'interférence on procède comme dans le chapitre précèdent. L'expression générale a été donnée par Kuwafi et al.<sup>20</sup> Cette expression a été réécrite d'une autre manière faisant intervenir explicitement l'énergie du neutron incident.

L'amplitude de la diffusion potentielle ne dépend pas de l'énergie et se factorise comme suit (dans le cadre de l'approximation incohérente l'amplitude de diffusion potentielle est donnée par  $\sqrt{(a^{coh})^2 + (a^{incoh})^2}$ ):

$$F_{P} = \sqrt{\left(a^{\text{coh}}\right)^{2} + \left(a^{\text{incoh}}\right)^{2}} \left\langle \chi_{f} \left| \exp(-i\Delta \vec{k}\vec{r}) \right| \chi_{i} \right\rangle.$$

En réécrivant la fonction delta de conservation d'énergie dans le terme d'interférence de V-3 sous sa forme intégrale et en passant dans la représentation

de Heisenberg comme pour la section résonnante de transfert on obtient directement :

$$\frac{d^2 \sigma_{int}}{dEd\Omega} = \frac{\Gamma_n}{2k_i \pi} \upsilon \left(\frac{E_f}{E_i}\right)^{1/2} \sqrt{\left(a^{\cosh}\right)^2 + \left(a^{incoh}\right)^2} \times \\ \times \operatorname{Re} \left\{-i \int_{-\infty}^{+\infty} dT \exp[-iET] \int_{0}^{\infty} dt \exp[-i(E_r - E_i - i\Gamma/2)t] W_{int}(T, t)\right\}$$

(V-59)

La fonction de corrélation pour le terme d'interférence est donnée par :

$$W_{int}(T,t) = \left\langle \exp\left[-i\Delta \vec{k}\vec{r}(T)\right] \exp\left[-i\vec{k}_{f}\vec{r}\right] \exp\left[i\vec{k}_{i}\vec{r}(-t)\right] \right\rangle.$$
(V-60)

Toutes les notations dans ces dernières formules sont conformes aux précédentes.

# V.G.2 Approximation APhD pour le terme d'interférence

Dans le cas de la diffusion d'interférence l'approximation des phonons découplés s'effectue de la même manière que précédemment pour.

La fonction de corrélation se décompose en partie dépendante des phonons virtuels (dépendance de t uniquement) et la partie dépendante des phonons « réels » (dépendance de T uniquement) :

$$W_{int}(T,t) = \exp\left\{-\left(\Delta \vec{k}\vec{r}\right)^2 - \vec{k}_f \vec{r} \vec{k}_i [\vec{r} - \vec{r}(-t)]\right\} \times \exp\left\{\Delta \vec{k} \vec{r}(T) \Delta \vec{k} \vec{r}\right\} \times \exp\left\{\Delta \vec{k} \vec{r}(T) \vec{k}_i [\vec{r} - \vec{r}(-t)]\right\}$$

avec  $\Delta \vec{k} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$ .

En développant la première exponentielle en série de Taylor et après un calcul similaire à celui effectué pour la section résonnante on obtient :

$$\frac{d^2\sigma_{int}}{dEd\Omega} = \upsilon \frac{\Gamma_n}{2k_i\pi} \left(\frac{E_f}{E_i}\right)^{1/2} \sqrt{\left(a^{coih}\right)^2 + \left(a^{incoh}\right)^2} \int_{-\infty}^{\infty} dT \exp(-iET) \left\langle \exp\left[-i\Delta \vec{k}\vec{r}(0)\right] \exp(i\Delta \vec{k}\vec{r}(T)\right\rangle \times \sigma_{int}^{APD}$$

avec

$$\sigma_{int}^{APhD} = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{4\pi |\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle}} \operatorname{Im}\left[Z\left(\frac{\Gamma/2}{\sqrt{4|\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle}}, \frac{\Delta - |\mathbf{R}|}{\sqrt{4|\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle}}\right)\right], & \mathbf{R} < 0\\ -\frac{\Delta}{\Delta^2 + \Gamma^2/4}, & \mathbf{R} = 0 \\ \frac{1}{\sqrt{4\pi |\mathbf{R}|\langle\Theta\rangle}} \operatorname{Re}\left[-Z\left(\frac{\Delta + \mathbf{R}}{\sqrt{4\mathbf{R}\langle\Theta\rangle}}, \frac{\Gamma/2}{\sqrt{4\mathbf{R}\langle\Theta\rangle}}\right)\right], & \mathbf{R} > 0 \end{cases}$$
(V-61)

#### **V.H SECTION DE TRANSFERT**

Remarquons que dans le cadre de l'approximation incohérente la sommation sur tous les sites dans le cristal revient à la multiplication de l'intégrale sur T (fonction  $Y_{ij}$  dans V-5) par le nombre de noyaux. Comme nous nous intéressons à la section de transfert sur un seul noyau il faut par la suite diviser le résultat par le nombre des noyaux dans le cristal en question. Finalement, regroupant tous les résultats précédents (la partie potentielle, la partie résonnante et la partie d'interférence) on obtient pour la section de transfert :

$$\frac{d^{2}\sigma}{dEd\Omega} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{E_{f}}{E_{i}}\right)^{1/2} \left\{ \sqrt{\left(a^{\cosh}\right)^{2} + \left(a^{incoh}\right)^{2}} \frac{\Gamma_{n}\upsilon}{k_{i}} \sigma^{APhD}_{int} + \left(\frac{\Gamma_{n}\upsilon}{2k_{i}}\right)^{2} \sigma^{APhD}_{R} + \left(a^{coh}\right)^{2} + \left(a^{incoh}\right)^{2} \right\} \times \int_{-\infty}^{+\infty} dT \exp(-iET) Y(\Delta \vec{k}, T)$$
(V-62)

avec la fonction de corrélation  $Y(\Delta \vec{k}, T)$  donnée par :

$$\mathbf{Y}(\Delta \mathbf{\vec{k}}, \mathbf{T}) = \left\langle \exp\left[-i\Delta \mathbf{\vec{k}} \mathbf{\vec{r}}(0)\right] \exp\left(i\Delta \mathbf{\vec{k}} \mathbf{\vec{r}}(\mathbf{T})\right) \right\rangle.$$

Cette fonction a été considérée en détail dans la chapitre consacré à l'absorption résonnante. Nous utiliserons le même formalisme (expansion en phonons) pour la calculer.

# V.I CAS LIMITES DIVERS DE L'APhD

# **V.I.1 Section nucléaire constante**

Nous étudions ici le cas limite où la section nucléaire est une constante. Ce cas limite très simple nous assure que pour une diffusion qui est purement potentielle on retrouve les noyaux de transfert habituels dans la physique des réacteurs. En posant  $\sigma_R^{APD}$  et  $\sigma_{int}^{APD}$  constantes (ou l'amplitude de la diffusion non dépendante de l'énergie du neutron incident) il ne reste que le terme potentiel. Il en découle directement :

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{E_f}{E_i}\right)^{1/2} \sigma_b \int_{-\infty}^{+\infty} dT \exp(-iET) Y(\Delta \vec{k}, T)$$

où  $\sigma_b$  est la section du noyau rigidement lié. Il ne reste que la modélisation des opérateurs des mouvements des noyaux intervenant dans la fonction Y. Si on s'intéresse au modèle du gaz libre on retrouve directement les sections de transfert potentiel.

#### V.I.2 Cas limite de la température zéro absolu

Si la température thermodynamique du cristal tend vers zéro on retrouve à partir de l'expression précédente les noyaux statiques explicités dans le chapitre précédent.

Pourtant le fait d'avoir posé la section nucléaire égale à une constante est un artifice permettant d'étudier la cohérence analytique du modèle. En effet, les natures de la diffusion résonnante et potentielle sont physiquement différentes. La première passe par la formation d'un noyau composé, la deuxième n'est qu'une déviation de l'onde du neutron incident à la surface du noyau. Dans le cadre de l'APhD les noyaux de transfert statiques ne peuvent être obtenus car même à la température du zéro absolu, il existe dans un cristal le mode fondamental des vibrations avec l'énergie  $1/2\hbar\omega$ . Donc l'élargissement Doppler peut jouer un rôle important même à la température nulle.

#### **V.J SECTION TOTALE**

On peut facilement retrouver l'expression de la section totale en utilisant le théorème optique :

$$\sigma_{\rm T} = -\frac{4\pi}{k_{\rm i}} \, {\rm Im} \, F(\vec{k}_{\rm f} = \vec{k}_{\rm i}).$$

On insère maintenant dans cette dernière expression l'amplitude de la diffusion résonante  $F_{R}$ . Faisant le changement de variables  $t \rightarrow -t$ , on obtient :

$$\sigma_{T} = \upsilon \frac{2\pi\Gamma_{n}}{k_{i}^{2}} \operatorname{Re} \int_{0}^{\infty} dt \exp\left[i(E_{i} - E_{r} + i\Gamma/2)t\right] \left(\exp\left[-i\vec{k}_{i}\vec{r}\right]\exp\left[i\vec{k}_{i}\vec{r}(t)\right]\right), \quad (V-63)$$

qui est la formule de Lamb III-10 avec  $\vec{p}$  remplacé par  $k_i$ . Notons que dans la dernière formule la diffusion potentielle et le terme d'interférence ne sont pas pris en compte. L'amplitude de la diffusion potentielle pour les ondes s est donnée par  $F_p = (1/2ik_i)[exp(2i\delta_o) - 1]$ , où  $\delta_0$  est le déphasage entre l'onde du neutron incident et celle du neutron sortant. En considérant la section de la diffusion potentielle (voir le chapitre V.C) on a supposé que l'amplitude de la diffusion potentielle était réelle et constante. Cette approximation est justifiée. Pourtant pour prendre correctement en compte la partie potentielle dans la section totale, comme dans le théorème optique décrit ci-dessus, il faut prendre en compte la partie imaginaire de l'amplitude de la diffusion potentielle, qui est donnée dans le cadre de l'approximation incohérente par  $4\pi \left[ \left(a^{coh}\right)^2 + \left(a^{incoh}\right)^2 \right]$ . Notons que pour calculer la section totale de la diffusion il suffit de multiplier V-63 par le rapport de branchement  $\Gamma_p/\Gamma$  et par  $\Gamma_a/\Gamma$  pour obtenir la section de la capture radiative.

Donc, pour calculer la section totale de la diffusion (dans le cadre de l'approximation incohérente) il suffit d'appliquer le formalisme de Lamb décrit dans le chapitre III qui est valable, à première vue, uniquement pour la section d'absorption. Ceci justifie notre calcul des taux de réactions fait pour les modèles simplifiés (NR et WR) dans le chapitre III. Ceci nous a permis également d'appliquer ce formalisme au calcul des sections totales de différents isotopes pour des comparaisons avec l'expérience.

Notons que la section totale donnée par V-63 a été obtenue dans le cadre de l'approximation incohérente. Si le faisceau des neutrons incident arrive avec l'angle de Bragg, cette formule sous-estime la section, sinon elle surestime la section totale de diffusion. Quand les composés avec lesquels interagit le neutron sont des poudres ou des cristaux désordonnés les deux effets se compensent. L'influence de ces effets sur la section de diffusion a été discutée par Trammell<sup>17</sup> et Afanas'ev.<sup>21</sup>

Notons que l'application du formalisme de Lamb à la section totale de la diffusion est faite dans le code NJOY uniquement dans le cadre du modèle du *gaz libre*. La dernière formule représente la raison physique de la validité d'un tel calcul : pour les temps de collision courts un développement nous assure le comportement du gaz libre.

Notons que l'utilisation du théorème optique sur l'amplitude de diffusion donnée par l'APhD (voir la formule V-52, par exemple) nous redonne les fonctions  $\Psi$ et  $\Phi$  de Bethe et Placzek<sup>22</sup> bien connues des physiciens des réacteurs. Dans le cas de la diffusion purement résonnante (près du pic de la résonance), on obtient :

$$\sigma(\mathbf{E}_{i}) = -\frac{2\sqrt{\pi}(\upsilon\Gamma_{n})^{2}}{k_{i}^{2}\Gamma\sqrt{4E_{i}\langle\Theta\rangle/A}} \operatorname{Im}Z\left(\frac{E_{i}-E_{r}-E_{i}/A}{\sqrt{4E_{i}\langle\Theta\rangle/A}},\frac{\Gamma/2}{\sqrt{4E_{i}\langle\Theta\rangle/A}}\right)$$

#### V.K NOYAUX DE TRANSFERT

#### V.K.1 Noyaux de transfert dans le cadre de l'APhD

Les noyaux de transfert, qui intéressent les physiciens des réacteurs, sont définis comme suit :

$$P(E_i \rightarrow E_f) = \frac{1}{\sigma_T(E_i)} \int_{4\pi} \left( \frac{d^2 \sigma}{dE d\Omega} \right)_{APhD} d\Omega$$

où  $\sigma_T$  est la section totale de diffusion et  $d\Omega = d(\cos\theta)d\phi$  est l'élément d'angle solide dans le système des cordonnées sphériques.

La section doublement différentielle a été décrite précédemment et est donnée par l'APhD. La section totale est l'intégrale de la dernière sur  $\mu$  (cosinus de l'angle de diffusion) et E (transfert d'énergie). Une remarque peut être faite à ce niveau : la section totale peut aussi être calculée par V-63. La différence entre les normalisations des deux probabilités de transfert correspondant peut servir d'estimateur d'erreur.

#### V.K.2 Modèles statique et du gaz libre des noyaux de transfert

L'approximation qui est faite habituellement dans la physique des réacteurs dans le domaine des résonances consiste à supposer que les noyaux sont libres et au repos dans le système du laboratoire. Dans ce cas les probabilités de transfert sont donnés par :

$$P(E_i \to E_f) = \frac{1}{(1-\gamma)E_f}$$

où  $\gamma$  est défini comme  $\gamma = \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2$ .

Ce modèle ne tient pas compte des propriétés du milieu dans lequel le noyau se trouve lié.

L'approximation d'ordre suivant est celle du gaz libre. Il convient pour certaines applications de considérer l'ensemble des noyaux comme un gaz à l'équilibre thermique. La distribution des vitesses des noyaux suit la loi maxwellienne. Plusieurs travaux théoriques et appliqués ont été menés sur l'application du modèle du gaz libre sur la section de transfert. Notons qu'à notre avis ce modèle est contradictoire en ce qui concerne la diffusion résonante. Supposant que les noyaux sont libres et n'interagissent pas entre eux : on néglige tout le couplage entre l'interaction nucléaire et la dynamique des noyaux. Autrement dit la formation du noyau composé n'apporte aucun changement au mouvement du noyau, par conséquent la dynamique du système « gaz libre des noyaux - neutron » est celle de la diffusion non résonnante. En résumé dans le cadre du modèle du gaz libre on ne considère pas le processus de la formation du noyau composé ce qui est contradictoire avec la physique du problème posé.

Les premiers résultats théoriques sur l'utilisation du modèle du gaz libre ont été donnés par Blackshaw<sup>13</sup> dans son article complet et profond paru en 1966. L'auteur s'est basé sur la mécanique classique pour décrire l'interaction neutron noyau. En 1979 dans sa thèse Holger<sup>23</sup> a calculé pour la première fois la section de transfert dans le cadre du modèle du gaz libre. L'expression de la section de transfert utilisée par l'auteur est celle du cas limite du modèle cristallin. Elle est donnée (à des modifications mineures près) par la formule V-40 du présent manuscrit. Une étude numérique complète sur ce sujet a été faite par Ouisloumen et Sanchez.<sup>14</sup> Les auteurs ont mis en évidence des effets fortement intéressants : d'après leurs résultats la probabilité de gagner ou perdre de l'énergie pour un neutron dans une diffusion résonnante dépendra de l'énergie du neutron incident par rapport à l'énergie du niveau du noyau. On ne s'arrêtera pas sur les détails de ces formalismes et on propose aux lecteurs de se rapporter aux nombreux articles sur le sujet.

Les noyaux de l'APhD diffèrent considérablement des noyaux donnés dans le cadre de l'approximation statique et du gaz libre. La durée de vie du noyau composé finie introduit des nouvelles caractéristiques du problème : les noyaux de transfert dépendent du spectre des vibrations.

## **V.L CONCLUSION**

Une réaction résonnante nécessite une description quantique de l'interaction neutron-noyau, car dans ce cas la discrétisation des niveaux des états des noyaux aura une forte influence sur la distribution des neutrons secondaires. Nous avons décrit le processus de la diffusion d'un neutrons sur un noyau possédant des résonances et lié dans une structure cristalline. Comme il était dit dans l'introduction, le traitement de tous les types de sections d'intérêt dans la physique des réacteurs de manière cohérente, celle d'un cristal harmonique, est nécessaire pour décrire correctement les grandeurs physiques de l'équation de transport. La nouveauté de ce travail est d'avoir développé un formalisme (APhD) pour tous les composantes de la section de transfert, d'avoir étudié son domaine de validité et de le comparé avec les modèles existants. On note aussi que le formalisme APhD permet un calcul numérique raisonnablement aisé de la section de transfert.

# **V.M REFERENCES**

<sup>1</sup> A. Sitenko Theory of nuclear reactions Springer-Verlag (1981). <sup>2</sup> R. K. Osborn, S. Yip The foundations of neutron transport theory Gordon and Breach, Science Publishers, Inc. (1960). <sup>3</sup> Leon Van Hove Correlations in space and time and Born approximation scattering in systems of interacting particles Phys. Rev. 95, 249 (1954). <sup>4</sup> S. Lovesey Dynamics of solids and liquids by neutron scattering Springer-Verlag, New York(1977). <sup>5</sup> A. Egelstaff and P. Schofield On the evaluation of the thermal neutron scattering law Nucl. Sci. Eng. 12, 260(1962). <sup>6</sup> George H. Vigneyard Scattering of slow neutrons by liquid Phys. Rev. 110, 999 (1958). <sup>7</sup> G. T. Trammell and J. D. Chalk Single collision approximation Phys. Rev. 141, 815 (1966). <sup>8</sup> G. Breit The scattering of slow neutrons by bound protons. I. Method of calculation Phys. Rev., 71, No. 4, 215 (1947). 9 A. I. Shamaoun Chemical binding effects in neutron resonance scattering and absorption Ph. D. Thesis, University of Michigan (1989). <sup>10</sup> R. E. Word The use of resonant epithermal neutron scattering for the study of condensed matter Ph. D. thesis, Rice University, Houston, Texas, USA (1979). <sup>11</sup> R. E. Word and G. T. Trammell Investigation of condensed matter via resonant neutron scattering. Correlation-function formalism with application to the study of the interatomic force density

Phys. Rev., 24, 2430 (1981). <sup>12</sup> H. Wevl Z. Physik 46, 1 (1927). <sup>13</sup> G. L. Blackshaw and R. L. Murray Scattering function for low-energy neutron collisions in a Maxwellian monatomic gas Nucl. Sci. Eng. 27, 520 (1966). <sup>14</sup> M. Ouisloumen and R. Sanchez A model for neutron scattering of heavy isotopes that accounts for thermal agitation effects Nucl. Sci. Eng. 107, 189 (1991). <sup>15</sup> I. Shamaoun and G. C. Summerfield Chemical binding effects on resonant scattering of neutrons Ann. Nucl. Energy, 17, 229 (1990). <sup>16</sup> G. De Gennes Liquid dynamics and inelastic scattering of neutrons Physica 25 (1959). <sup>17</sup> G. T. Trammell Elastic scattering at resonance from bound nuclei Phys. Rev. 126, 1045 (1962). <sup>18</sup> G. T. Trammell Condensed Matter Physics for Neutron Research, 277 (1984). <sup>19</sup> B. D. Fried and S. D. Conte The plasma dispersion function. The Hilbert transform of the gaussian Academic press, New York and London (1961). <sup>20</sup> A. Kuwafi and G. C. Summerfield Chemical binding effects in resonance-potential interference scattering for harmonic crystals Ann. Nucl. Energy 18, 19 (1991). <sup>21</sup> Kagan and A. M. Afanas'ev Suppression of inelastic channels in resonant scattering of neutrons in regular crystals J. Exptl. Theoret. Phys. (USSR) 49, 1504 (1965). <sup>22</sup> H. A. Bethe and G. Placzek Phys. Rev. 51, 450(1937). <sup>23</sup> St. John Edgar Holger

Chemical binding effects on neutron slowing down and capture rates in the resonant region Ph. D. thesis, Georgia Institute of Technology (1979). This page is intentionally left blank.

4

# VI APPLICATION NUMERIQUE CONCERNANT LA DIFFUSION RESONNANTE

#### **VI.A METHODE DE CALCUL**

Dans ce chapitre on présente une étude numérique des noyaux de transfert. Au premier plan nous nous attachons à décrire un changement de variables qui facilitera le calcul des noyaux de transfert. Pour déterminer la section de transfert il est nécessaire de calculer la fonction Y. La fonction S du chapitre III, consacré à l'absorption résonnante, est du point de vue numérique équivalente à Y. Cette fonction est bien connue dans la théorie de diffusion des neutrons thermiques. Pour la calculer nous avons utilisé la même méthode que dans le cas d'absorption résonnante : méthode de l'expansion en phonons. On rapporte le lecteur à la description du code DOPUSH et à la section III.E.2 pour les détails sur la méthode et la précision du calcul. On se contentera de citer ici uniquement les modifications numériques apportées à cette méthode.

Premièrement, la redéfinition des variables est nécessaire. Dans le cas de diffusion les variables  $\alpha$  et  $\beta$  son définies comme suit :

$$\alpha = \frac{\Delta \vec{k}^2}{AT_c} = \frac{E_i + E_f - 2\sqrt{E_i E_f} \mu}{AT_c},$$

le transfert d'impulsion du neutron au noyau, adimentionné par la température thermodynamique du cristal  $T_c$  et

$$\beta = \frac{E}{T_c} = \frac{E_f - E_i}{T_c},$$

le transfert d'énergie du neutron au noyau.

Le formalisme APhD est donné en terme des variables habituelles de la diffusion  $E_i$ ,  $E_f$  et  $\mu$ . Le calcul des noyaux de transfert nécessite l'intégration de la section doublement différentielle en  $\mu$ . Pour éviter l'interpolation à deux dimensions dans le tableau Y, la fonction Y est calculée par la méthode de l'expansion en phonons en termes de  $\alpha$  et  $\beta$ , et il est donc utile de passer aux variables  $\alpha$  et  $\beta$  dans l'APhD.

Le lien entre  $\mu$  et  $\alpha$  se déduit aisément des expressions précédentes. Le passage à l'intégration sur  $\alpha$  s'effectue comme suit :

$$\mu = \frac{E_i + E_f - \alpha A T_c}{2\sqrt{E_i E_f}},$$

$$\int_{-1}^{1} d\mu \rightarrow \frac{A T_c}{2\sqrt{E_i E_f}} \int_{\alpha_{min}}^{\alpha_{max}} d\alpha \text{ avec } \alpha_{min} = \frac{(\sqrt{E_i} - \sqrt{E_f})^2}{A T_c} \text{ et } \alpha_{max} = \frac{(\sqrt{E_i} + \sqrt{E_f})^2}{A T_c}.$$

Dans la formulation de l'APhD les paramètres dépendant de  $\alpha$  sont le recul R et la fonction Y. Pour la fonction Y le passage aux nouvelles variables est évident:

$$Y(\alpha, T) = \exp\left\{\alpha\left[\phi_i(t) - \phi_i(0)\right]\right\},$$
(VI-1)

$$\varphi_{u}(t) = \int_{0}^{\omega_{\text{max}}} \left[ \coth\left(\frac{\omega}{2k_{\text{B}}T_{\text{c}}}\right) \cos \omega t + i \sin \omega t \right] \frac{f_{u}(\omega)}{\omega} d\omega,$$

où l'indice u indique, comme dans le cas d'absorption, que le spectre des vibration de l' $^{238}$ U dans UO<sub>2</sub> est à considérer. De la même manière le recul s'écrit comme suit :

$$R = \frac{\vec{k}_i \vec{k}_f}{2M} = \frac{E_f + E_i}{2A} - \frac{\alpha T_c}{2}$$

En regroupant ces résultats on obtient pour les noyaux de transfert (voir V-62) :

$$P(E_{i} \rightarrow E_{f}) = \frac{AT_{c}}{4E_{i}\sigma_{s}(E_{i})} \int_{\alpha_{min}}^{\alpha_{max}} d\alpha \left[ \left( \frac{\Gamma_{n}\upsilon_{incoh}}{2k_{i}} \right)^{2} \sigma_{R}^{APD} + \frac{\Gamma_{n}\upsilon_{incoh}}{2k_{i}} b\sigma_{int}^{APD} + b^{2} \right]_{-\infty}^{+\infty} dT \exp(-i\beta T) Y(\alpha, T) .$$
(VI-2)

Dans la dernière expression les sections nucléaires dans le cadre de l'APhD sont données par V-58, et V-61,  $\sigma_s(E_i)$  est la section totale de la diffusion résonnante et  $b = \sqrt{(a^{coh})^2 + (a^{incoh})^2}$ .

Pour évaluer les noyaux de transfert, le code DEMETRA a été écrit. Ce code prend en compte les conditions suivantes. Les maillages sur  $\alpha$  et  $\beta$  sont difficiles à choisir a priori. Le maillage sur  $\beta$  doit suivre le spectre des phonons au moins pour les petits transferts d'énergie. Pour les grands transferts l'influence du spectre phonique est dominée par des grandes énergies de recul du noyau. Dans ce cas le comportement de la fonction Y se rapproche de celui du gaz libre.

Dans le code DEMETRA nous avons adapté le maillage sur  $\beta$  pour vérifier les propriétés III-22 et III-23 de la fonction Y. Le maillage sur  $\alpha$  a été choisi pour bien représenter les distributions angulaires des neutrons secondaires.

Un des points les plus importants est le calcul des fonctions Z dans V-58 et V-61. Pour les calculer on a adopté le module W du code  $MC2^1$  qui calcule la fonction liée à la fonction Z qui nous intéresse :

$$W(z) = \frac{i}{\pi} Z(z) \, .$$

La fonction Z est définie dans tout le plan complexe et est donnée par :

$$Z(z) = \begin{cases} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-t^2)}{z - t} dt, & \text{Im}(z) > 0, \\ Z^*(z^*) - 2i\pi \exp(-z^2), & \text{Im}(z) < 0, \end{cases}$$

où l'exponentielle représente la continuation analytique de la fonction Z dans le plan complexe inférieur. Les propriétés de cette fonction sont bien connues :

$$Re[Z(-x+iy)] = -Re[Z(x+iy)] \quad y > 0,$$
  
$$Im[Z(-x+iy)] = Im[Z(x+iy)] \quad y > 0.$$

Le module ZET, qui est la version modifiée du module W, emploie des séries de Taylor et des développements asymptotiques pour le calcul de la fonction Z(z) dans l'intervalle -0.1<x,y<6. En dehors de ce domaine les approximations suivantes sont programmées :

$$Z(z) = \begin{cases} \pi z \left( \frac{0.5124242}{z^2 - 0.2752551} + \frac{0.05176536}{z^2 - 2.724745} \right), & 6 \le |z| \le 12, \\ 2\sqrt{\pi} z \left( \frac{1}{2z^2 - 1} \right), & 12 < |z| \le 100, \\ \frac{2\sqrt{\pi}}{z}, & |z| \ge 100, \end{cases}$$

#### VI.B ETUDE DU DOMAINE DE VALIDITE DE L'APhD. CALCUL DE REFERENCE.

Etudions en détail le domaine de validité de l'APhD donné par V-57, qui est la condition permettant de négliger la dépendance en t et t' dans le troisième facteur de V-46. Pour les résonances très larges l'approximation des phonons découplés est une très bonne approximation. Les largeurs totales des résonances de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> varient entre 25 ( $E_r$ =6.674 eV) et 200 meV. La fréquence caractéristique des vibrations des noyaux de l'uranium est de l'ordre de 11 meV. Ceci implique que pour la première résonance à 6.674 eV l'APhD peut donner des résultats approchés. Pourtant la présence du paramètre  $\Delta$ = $E_r$ - $E_i$  dans la condition V-57 nous permet, en s'éloignant du pic de la résonance pour satisfaire V-57, de calculer la section de transfert et d'estimer les proportions des remontées des neutrons en énergie par diffusion par rapport aux pertes d'énergie par le neutron. Regardons la condition V-57 en détail.

Pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> on a :  $E_r$ =6.674 eV,  $\omega_c$ =0.011 eV,<sup>2</sup>  $\Gamma/2$ =0.0122 eV. Comme R peut être égale à zéro on peut majorer la condition de validité V-57 :

$$\left|\mathbf{E}_{r}-\mathbf{E}_{i}+\mathbf{R}+\mathbf{i}\Gamma/2\right| \gg \omega_{m}.$$
 (VI-3)

Cette inégalité est en quelque sorte équivalente à la condition de Lamb III-15. Dans le cadre de l'étude consacrée à l'absorption résonnante on a déduit que l'inégalité peut être considérée comme satisfaite si la partie gauche (PG) est dix fois supérieure à la partie droite (PD) de l'inégalité (voir l'étude de condition de Lamb du chapitre IV.B.1). La valeur maximale de R peut être estimée à partir du transfert maximal d'énergie possible pour les énergies des neutrons incidents autour du pic de la première résonance de l'238U dans UO2. Pour satisfaire la condition de normalisation et la règle de somme III-22 et III-23 on estime le transfert maximal à  $\beta_{max}$ =0.3. Donc |R| est estimé à 0.025 eV. Comme la différence  $E_r$ - $E_i$  dans VI-3 peut être zéro, on obtient le minimum de PG=0.028 eV. Cette valeur comparée à  $PD=\omega_c=0.011$  eV ne nous assure pas PG>>PD. On en conclut que si l'énergie du neutron incident est très proche du pic de la résonance (à une distance inférieure à quelque fois  $\omega_c$ ), l'APhD ne permettra pas de calculer la section de transfert. Pourtant, en s'éloignant du pic de la résonance à une distance suffisante pour satisfaire VI-3, on pourra appliquer l'APhD pour le calcul de la section de transfert. Autre possibilité consisterait à considérer des résonances avec des grands  $\Gamma$  (la résonance à 189.67 eV de l'uranium 238, par exemple, avec  $\Gamma$ =197 meV). Dans ce cas la condition se trouve convenablement satisfaite pour toute la gamme d'énergie du neutron incident.

De toute façon une étude numérique approfondie du domaine de validité de l'APhD est nécessaire pour chaque application numérique.

Une autre étude du comportement des fonctions de corrélation peut être faite pour étudier la validité des développements nécessaires à l'APhD. Regardons plus en détail une des possibilités d'une telle étude.

Au niveau numérique l'APhD consiste à développer les fonctions sin et cos présents dans les fonctions de corrélation initiales (voir V-47 et l'annexe D) en séries de Taylor. Numériquement cette procédure est délicate. Pourtant le sens physique de l'APhD suggère une autre approche qui est la suivante. L'utilisation de l'APhD réduit l'influence du spectre à un seul paramètre qui est l'énergie cinétique moyenne par degré de liberté  $\langle \Theta \rangle$ . Ceci nous amène à considérer l'expression exacte de la fonction de corrélation (voir la formule 15 de l'annexe D) dans le cadre d'un cristal d'Einstein, mais avec  $\langle \Theta \rangle$  calculé avec un spectre réel de Dolling.<sup>3</sup> La fonction de corrélation dans le facteur ne dépendant que de t dans V-46 s'écrit comme suit (voir l'annexe D):

$$\left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}(t)\vec{k}_{i}\vec{r}\right\rangle = -\frac{\vec{k}_{i}\vec{k}_{f}}{2M}\int_{0}^{\infty}\frac{d\omega'}{\omega'}f(\omega')\coth\frac{\beta\omega'}{2} + \frac{\vec{k}_{i}\vec{k}_{f}}{2M}\int_{0}^{\infty}\frac{d\omega'}{\omega'}f(\omega')\left[\coth\frac{\beta\omega'}{2}\cos(\omega't) - i\sin(\omega't)\right].$$

Si le spectre est sous la forme d'Einstein  $f(\omega') = \delta(\omega'-\omega)$ , on peut réécrire la dernière expression comme suit:

$$\left\langle \vec{k}_{f}\vec{r}(t)\vec{k}_{i}\vec{r}\right\rangle = -\frac{\vec{k}_{i}\vec{k}_{f}}{2M\omega}\coth\frac{\beta\omega}{2} + \frac{\vec{k}_{i}\vec{k}_{f}}{2M\omega}\coth\frac{\beta\omega}{2}\left[\coth\frac{\beta\omega}{2}\cos(\omega t) - i\sin(\omega t)\right].$$

On introduit les mêmes variables que dans le chapitre V:  $R = \vec{k}_i \vec{k}_f / 2M$  l'énergie de recul et  $\langle \Theta \rangle = \omega \coth(\beta \omega / 2)$ . Comme on l'a noté précédemment il est plus approprié de calculer la dernière variable à partir du spectre réel des vibrations selon III-14. Avec ces notations l'intégrale V-50 sur t se réécrit comme suit:

$$\int_{0}^{\infty} dt \exp\left[-i(\Delta t - i\Gamma/2)t\right] \exp\left[-\frac{R\langle\Theta\rangle}{\omega^{2}} + \frac{R\langle\Theta\rangle}{\omega^{2}}\left[\cos(\omega t) - i\sin(\omega t)\right]\right]$$
(VI-4)

Remarquons que si f(t) est une fonction périodique avec la période T alors l'intégrale:

$$\int_{0}^{\infty} dt f(t) \exp(-at) = \frac{\int_{0}^{T} dt f(t+T) \exp(-at)}{1 - \exp(-aT)}$$

\_\_\_\_

En conséquence pour calculer l'intégrale VI-3 il suffit de la calculer sur l'intervalle  $T=2\pi/\omega$ . Dans ce cas  $a=i(\Delta t-i\Gamma/2)$  et la condition de convergence du calcul sera  $|\exp(-aT)| < 1$ . Nous avons utilisé cette méthode pour effectuer un

« calcul de référence » des noyaux de transfert pour étudier numériquement les développements nécessaires à l'APhD.

A partir de l'intégrale VI-3 on conclut que l'APhD, étant le développement des cos et sin en séries de Taylor, n'est une bonne approximation que dans l'intervalle T/4= $\pi/2\omega$ . Ce fait a été confirmé par un calcul numérique. L'utilisation de l'APhD consiste à supposer que les contributions majeures dans l'intégrale VI-3 viennent de l'intervalle de t entre 0 et t<sub>0</sub>, tel que t<sub>0</sub><<1/w. Si les paramètres physiques du problème (E<sub>i</sub>, E<sub>f</sub>, R,  $\omega$  et  $\Gamma/2$ ) sont tels que les contributions majeures viennent de cette intervalle, alors l'APhD sera une bonne approximation. Pourtant il est possible de faire une extension de l'APhD sur toute la période T. Il suffit alors de faire des développements de sin et cos, équivalents aux V-49, autour des points 0, T/4, T/2 et 3T/4 pour améliorer la précision du calcul par APhD. Si les paramètres physiques du problème sont tels que cela n'est pas suffisant, on peut continuer ce processus jusqu'à ce que l'exponentielle exp(- $\Gamma t/2$ ) devienne dominante. Finalement l'intégration sur l'intervalle (0,t<sub>0</sub>) peut être faite en utilisant les fonctions Z et la transformation suivante:

$$\int_{0}^{t_{0}} dt f(t) = \int_{0}^{\infty} dt f(t) - \int_{t_{0}}^{\infty} dt f(t) = \int_{0}^{\infty} dt f(t) - \int_{0}^{\infty} dt f(t+t_{0}).$$

#### VI.C RESULTATS NUMERIQUES

On présente sur les graphiques suivants les noyaux de transfert pour la première résonance à 6.674 eV. Les énergies initiales des neutrons ont été choisies pour satisfaire VI-3. Pour  $E_i$ =6 eV et  $T_c$ =300 K on a : PG=0.8 eV et PD=0.011 eV. La condition est convenablement satisfaite. Pour  $E_i$ =6.9 eV on obtient : PG=0.22 eV, PD=0.011 eV.

Dans la section V.J on a noté que l'application du théorème optique sur l'amplitude de la diffusion purement résonnante donnée par l'APhD (voir V-52), redonne la fonction  $\Psi$  de Bethe et Placzek. Pour tester nos calculs la section totale de la diffusion a été calculée : a)  $\sigma_T^{NJOY}$ , en utilisant le théorème optique et le code NJOY ; b)  $\sigma_T^{APhD}$ , en intégrant les noyaux de transfert sur l'angle de diffusion et sur l'énergie d'arrivée. On retrouve, par exemple :  $\sigma_T^{NJOY}(6.9)=28.28$  barns,  $\sigma_T^{APhD}(6.9)=27.985$  barns. On trouve également :  $\sigma_T^{NJOY}(6)=7.3$  barns,  $\sigma_T^{APhD}(6)=6.9$  barns.

Pour l'énergie  $E_i$ =6.52 eV , la proportion de gain d'énergie donnée par l'APhD atteint 22% contre 58% pour celle prédite par le modèle du gaz libre.



Figure VI. 1 Comparaison entre le noyau de transfert calculé avec le modèle APhD (calcul de référence) et le noyau statique pour la première résonance de l'^238U dans  $UO_2$  à 6.674 eV. L'énergie du neutron incident est E<sub>i</sub>=6.9 eV et la température thermodynamique du cristal La proportion  $T_{c}=300$ K. des est remontées proportion des UPP=17.36%, la pertes d'énergie DOWN=82.64%.



Figure VI.2 Comparaison entre le noyau de transfert calculé avec le modèle APhD (calcul de référence) et le noyau statique pour la première résonance de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> à 6.674 eV. L'énergie du neutron incident est  $E_i$ =6 eV et la température thermodynamique du cristal est  $T_c$ =300 K. La proportion des remontées UPP=18.28%, la proportion des pertes d'énergie DOWN=81.72%.

Les noyaux de transfert dans le cadre de l'APhD sont différents de ceux prédits par le modèle statique. Par rapport à ce dernier, une proportion non négligeable de neutrons gagne de l'énergie. Ce fait est certainement lié aux échanges d'énergie entre le cristal et les neutrons. Ces échanges, étant gouvernés par le spectre des phonons, peuvent prendre une forme très compliquée. En plus du pic de la diffusion élastique (sans perte d'énergie par le neutron), on voit apparaître deux pics à gauche de l'énergie du neutron incident qui sont situés aux fréquences caractéristiques des vibrations de l'<sup>238</sup>U dans UO<sub>2</sub> (voir le spectre pondéré présenté sur la Figure IV-1). Les pics présents à droite de l'énergie initial du neutron sont de la même nature mais sont moins accentués. Ceci s'explique par le fait que les gains d'énergie sont atténués par la condition du bilan détaillé (voir chapitre III.E.2).

Les résultats de l'APhD ne sont pas en accord avec les résultats de Ouisloumen et Sanchez<sup>4</sup> sur l'application du modèle du gaz libre pour le calcul des noyaux de transfert dans le domaine des résonances des noyaux lourds. En utilisant le modèle du gaz libre et la mécanique classique pour décrire la cinématique de l'interaction neutron-noyau, les auteurs ont trouvé une forte proportion des remontées en énergie pour les énergies des neutrons incidents se trouvant à gauche du pic de la résonance. A droite du pic les auteur ont trouvé que la situation s'inverse : on observe plus de pertes d'énergie que des gains. On voit sur les résultats de l'APhD que cette forte asymétrie entre les gains et les pertes en fonction de l'énergie incidente du neutron par rapport au pic n'est pas présente. Néanmoins on note que la proportion des remontées est plus grande pour les neutrons arrivant à gauche du pic de la résonance.

Cela nous incite à émettre des réserves sur la validité du modèle du gaz libre pour le calcul des noyaux de transfert dans le domaine des résonances. Ce modèle n'est pas une bonne approche physique pour décrire l'interaction résonnante. En fait dans le cadre de ce modèle simplifié le temps de vie du noyau composé et, par conséquent l'influence du milieu sur la dynamique de l'interaction pendant ce temps de vie, n'est pas pris en compte. Pour illustrer le phénomène de présence d'une plus grande proportion des remontées en énergie à gauche de la résonance par rapport aux pertes, les auteurs ont considère une résonance très étroite (fonction delta en énergie initiale du neutron). Pour une réaction résonnante cette considération implique que le temps de vie du noyau composé est infinie et, en conséquence, que le noyau composé, une fois formé, ne se désintègre pas.

D'autre part, comme le temps de vie du noyau composé a été négligé, la cinématique de l'interaction est celle d'une diffusion potentielle. D'après les résultats de calcul par l'APhD, la nature résonnante de l'interaction ne permet pas de retrouver les mêmes tendances.

A titre d'exemple on présente les distributions angulaire (données en unités arbitraires) pour l'énergie du neutron incident  $E_i$ =6.9 eV.



Figure VI. 2 Distributions angulaires pour l'énergie du neutron incident  $E_i$ =6.9 eV et à la température  $T_c$ =300K.

## **VI.D CONCLUSIONS**

Le travail effectué sur les noyaux de transfert se résume par les études des aspects suivants :

- Un formalisme, l'Approximation des Phonons Découplés (APhD) a été développé pour prendre en compte l'influence des liens cristallins sur les noyaux de transfert dans le domaine résonnant. Ce formalisme permet de découpler le processus nucléaire de la dynamique des noyaux.
- Les différents aspects physiques de la diffusion résonnante des neutrons par les noyaux lourds ont été étudiés : le cas limite du gaz libre a été retrouvé dans le cadre de la considération quantique. Cette limite ne donne pas strictement la même forme que la considération de la diffusion résonnante à l'aide de la mécanique classique. Les moyennes thermiques étant différentes, le passage rigoureux ne peut pas être obtenu.
- Le code DEMETRA permettant le calcul des noyaux de transfert dans le domaine des résonances a été écrit ;
- Les comparaisons des noyaux de transfert avec le modèle statique ont été faites.
- Les comparaisons qualitatives avec le modèle du gaz libre ont été faites.

On note que l'approximation statique, faite dans les codes d'évaluation des données nucléaires pour les noyaux de transfert, n'est pas consistante avec le modèle plus élaboré qu'est l'APhD. Néanmoins on souligne aussi que l'APhD est un modèle approché, qui n'est valable que pour les énergies des neutrons incidents se trouvant suffisamment loin du pic de la résonance. La condition de validité de l'APhD doit être étudiée en détail pour chaque application.

# VI.E REFERENCES

- <sup>1</sup> B. J. Toppel MC2 : a code to calculate multigroup cross sections ANL-7318, USA (1967).
- <sup>2</sup> Gmelin handbook in inorganic chemistry 8<sup>e</sup> édition, Springer-Verlag (1986).
- <sup>3</sup> G. Dolling, R. A. Cowley and A. D. B. Woods Can. J. of Physics **43**, 8 (1965).
- <sup>4</sup> M. Ouisloumen and R. Sanchez Nucl. Sci. Eng. **107**, 189 (1991).

# PERSPECTIVES

Le travail effectué permet de prendre en compte l'influence des liens chimiques sur tous les types de sections d'importance dans le domaine des résonances des noyaux lourds (diffusion, absorption, transfert). Ces liens étant pris en compte, on peut envisager une étude convergente neutronique de l'influence des liens chimiques sur les taux de réaction.

Comme on l'a vu dans le chapitre IV les erreurs intervenant sur les taux de capture et propres au biais introduit par l'utilisation du modèle du gaz libre au niveau de l'analyse des résonances sont de l'ordre de 1-3%. Le premier constat est donc :

• Ces erreurs peuvent être corrigées si l'on introduit le modèle du cristal harmonique dans les codes d'analyse des résonances.

Pourtant les erreurs propres aux effets des liaisons chimiques sont de quelques fractions de pour cent. Si l'on veut continuer à utiliser le modèle du gaz libre dans les codes de traitement des données nucléaires, l'étude restant à faire à ce niveau consistera à ajuster la température de minimiser les erreurs entre le modèle cristallin harmonique et le modèle du gaz libre. Pour cela les modèles proposés dans ce travail doivent être utilisés pour créer une bibliothèque des sections efficaces dans le cadre du modèle cristallin harmonique. Cette bibliothèque doit être utilisée dans les codes de transport, comme APOLLO2,<sup>i</sup> pour calculer les taux de réaction afin d'en déduire, par équivalence en taux de réaction entre le modèle du gaz libre et le modèle cristallin, la température à utiliser dans des calculs neutroniques. Une étude similaire dans le cadre du modèle du gaz libre a été faite dans la thèse de O. Bouland.<sup>ii</sup> Ce travail montre qu'en utilisant le modèle du gaz libre pour le calcul du transfert, on sous-estime l'effet Doppler de 11%. Le modèle du gaz libre semblant être infirmé par les résultats de l'APhD, il est souhaitable de faire :

#### • Une étude des taux de réaction avec le modèle cristallin harmonique

L'approximation des phonons découplés (APhD) doit être étudiée en détail pour déduire le domaine exact de sa validité pour chaque résonance (cette étude est en quelque sorte est équivalent à l'étude de l'inégalité de Lamb, présentée dans le chapitre IV). Il est possible de généraliser l'étude présentée dans le chapitre VI pour valider l'APhD à l'aide d'un calcul exact.

• Validation de l'APhD par un calcul exact est nécessaire.

L'APhD n'est une bonne approximation qu'à la distance égale à quelques fois la fréquence caractéristique des vibrations des noyaux. Il est nécessaire donc de faire une extension de l'APhD qui permettra le calcul de la section de transfert autour du pic de la résonance.

Le formalisme de la diffusion résonnante a été développé pour une résonance de type Breit-Wigner. Il est intéressant de considérer le formalisme de la matrice condensé de Reich-Moore pour décrire l'interaction nucléaire. Les premières indications peuvent être trouvées dans l'article de Word et Trammell.<sup>111</sup>

 Une étude de la diffusion résonnante dans le cadre de formalisme de Reich-Moore est nécessaire.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> R. Sanchez, J. Mondot, Z. Stankovski, A. Cossic, I. Zmijarevic, Nucl. Sci. Eng. **100**, 352 (1988).

<sup>&</sup>lt;sup>ii</sup> O. Bouland, thèse de doctorat, Université de Paris-Sud, 1994.

<sup>&</sup>lt;sup>III</sup> R. E. Word and G. T. Trammell, Phys. Rev., **24**, 2430 (1981).

# ANNEXES

#### Annexe A : Eléments sur la dynamique des réseaux cristallins

On regroupe ici les résultats principaux sur la dynamique des réseaux cristallins. Le réseau d'un cristal est formé par des translations successives d'une cellule élémentaire. Cette cellule peut être choisie de manière différente mais en générale reflète diverses symétries ayant lieu dans une structure cristalline. Si il est possible de choisir la cellule élémentaire de façon à avoir un seul noyau, on parle alors d'un réseau de type Bravais. Naturellement tout réseau, y compris des réseaux à plusieurs noyaux par cellule, peut se construire par superposition de cellules de Bravais. Pour un cristal donné la position de chaque noyau d'un tel réseau peut être décrite par l'équation suivante:

$$\vec{\mathbf{r}}_{n} = \vec{\rho}_{n} + \alpha \vec{\mathbf{a}}_{1} + \beta \vec{\mathbf{a}}_{2} + \gamma \vec{\mathbf{a}}_{3} + \vec{\mathbf{u}}_{n}, \qquad (1)$$

où  $\alpha, \beta, \gamma$  sont des entiers,  $\bar{a}_1, \bar{a}_2, \bar{a}_3$  définissent la cellule élémentaire et la symétrie de translation du cristal. Ces vecteurs sont appelés les vecteurs primitifs. Ces vecteurs définissent la position d'une cellule dans un réseau. Le vecteur  $\bar{\rho}_n$  défini la position d'équilibre du noyau n dans cette cellule. Finalement la présence d'un potentiel chimique, liant les noyaux entre eux, provoque des petites oscillations  $\bar{u}_n$ des noyaux autour de cette position d'équilibre. Pour expliciter ces oscillations des noyaux on fait appel à la technique des séries de Fourier. On se place dans le cadre de l'hypothèse du potentiel harmonique (déplacements quadratiques). Utilisant la symétrie par translation, présente dans chaque structure cristalline, on arrive à remplacer les vibrations couplées de tous les noyaux (nombre immense d'équations de mouvement couplées) par des modes collectifs de vibrations indépendants dits normaux. Ces modes représentent des ondes se propageant à travers le cristal et décrites par leur vecteurs d'onde dont l'indice est noté q et par toutes les branches de vibrations dont l'indice est j :

$$\vec{u}_{n} = \sum_{qj} \left[ \frac{\hbar}{2M_{n}N\omega_{qj}} \right]^{\frac{1}{2}} \left\{ \vec{c}_{qj}a_{qj} \exp(i\vec{q}\vec{\rho}_{n} - i\omega_{qj}t) + \vec{c}_{qj}^{*})a_{qj}^{+} \exp(-i\vec{q}\vec{\rho}_{n} + i\omega_{qj}t) \right\}.$$
(2)

Ici  $\bar{c}_{qj}$  sont des vecteurs de polarisation qui déterminent des directions privilégiées des vibrations des noyaux, N est le nombre de noyaux dans l'échantillon,  $\omega_{qj}$  sont les fréquences de vibrations collectifs. On présente sans démonstration les propriétés de ces vecteurs :

$$\sum_{n} \vec{c}_{n}(\vec{q}, j) \vec{c}_{n}^{*}(\vec{q}, j') = \delta_{jj'} \\ \vec{c}_{n}(-\vec{q}, j) = \vec{c}_{n}^{*}(\vec{q}, j)$$
(3)

Les opérateurs  $a_{qj}$  et  $a_{qj}^{+}$  sont des opérateurs de création et d'annihilation, ils vérifient les relations de commutation suivantes :

$$\begin{bmatrix} a_{qj}, a_{q'j'}^{+} \end{bmatrix} = \delta_{jj'} \delta(q - q'),$$
$$\begin{bmatrix} a_{qj}, a_{q'j'}^{-} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_{qj}^{+}, a_{q'j'}^{+} \end{bmatrix} = 0,$$

et leur moyennes thermiques sont données par :

$$\left\langle a_{qj}a_{qj}^{*}\right\rangle = \exp(\beta\omega_{qj}) / (\exp(\beta\omega_{qj}) - 1)$$

$$\left\langle a_{qj}^{*}a_{qj}\right\rangle = 1 / (\exp(\beta\omega_{qj}) - 1).$$

$$(4)$$

avec  $\beta = 1/(k_B T_c)$ . Ceci est le résultat direct du principe de la seconde quantification où on opère non avec un nombre immense des trajectoires identiques mais avec les états du système décrits par le nombre des particules et les opérateurs qui agissent sur ces états. Autrement dit les vibrations réelles sont remplacées par les quantas de l'échange d'énergie entre les modes qui sont appelés phonons. Ces derniers obéissent à la statistique de Bose-Einstein et sont repérés par leurs vecteurs d'onde q et leurs « polarisations » j (phonons optiques et acoustiques ).

Les propriétés thermiques d'un solide sont décrites en termes de la relation de dispersion désignant la relation entre les vecteurs de propagation et les fréquences de ces derniers. Très souvent on travaille également avec une autre caractéristique des vibrations qui est le spectre de fréquence des modes normaux.

On introduit donc une densité  $f(\omega) d\omega$  qui est le nombre de modes normaux dans l'intervalle  $(\omega, d\omega)$ . Les fréquences participant dans la définition de cette fonction parcourent l'intervalle entre 0 et une certaine fréquence  $\omega_{max}$  qui est la fréquence maximale de propagation des ondes dans le cristal en question. On peut ajouter que ce spectre de fréquence peut être considéré comme continu sachant que le nombre de noyaux dans un volume unité est de l'ordre du nombre d'Avogadro. On note la propriété de normalisation (3N degrés de liberté) du spectre de fréquence :

$$\int_{0}^{\omega_{\max}} d\omega f(\omega) = 3N$$

où  $\omega_{max}$  est la fréquence maximale de propagation des ondes dans le cristal.

# Annexe B : Section de transfert pour le modèle du gaz libre, calcul direct

Considérons l'amplitude de la diffusion résonnante pour le gaz libre. Dans ce cas les états du milieu se présentent sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} \left|\chi_{i}\right\rangle &= \exp(i\vec{p}_{i}\vec{r}), \\ \left|\chi_{f}\right\rangle &= \exp(i\vec{p}_{f}\vec{r}), \\ \left|\chi_{n}\right\rangle &= \exp(i\vec{p}_{n}\vec{r}). \end{aligned}$$
(5)

Or les éléments de la matrice figurant au numérateur peuvent être réécrits comme suit :

$$\langle \chi_{f} | \exp(-i\vec{k}_{f}\vec{r}) | \chi_{n} \rangle = \delta(\vec{k}_{f} + \vec{p}_{f} - \vec{p}_{n}),$$
  
$$\langle \chi_{n} | \exp(-i\vec{k}_{i}\vec{r}) | \chi_{i} \rangle = \delta(\vec{p}_{n} - \vec{k}_{i} + \vec{p}_{i}).$$

Sachant que pour le gaz libre à l'état intermédiaire l'énergie du noyau est donnée par celle du centre de masse, on peut réarranger le dénominateur de la manière suivante :

$$E_{i} + \varepsilon_{i} - \varepsilon_{n} = \frac{\vec{k}_{i}^{2}}{2m_{n}} + \frac{\vec{p}_{i}^{2}}{2m_{A}} - \frac{m_{A} + m_{n}}{2} \left(\frac{\vec{k}_{i} + \vec{p}_{i}}{m_{A} + m_{n}}\right)^{2} = \frac{\mu v_{r}^{2}}{2}, \qquad (6)$$

avec  $\bar{\upsilon}_r$  la vitesse du mouvement relatif et  $\mu$  la masse réduite. Dans ces conditions la sommation sur les états intermédiaires est immédiate :

$$\sum_{n} \delta(\vec{k}_{f} + \vec{p}_{f} - \vec{p}_{n}) \delta(\vec{p}_{n} - \vec{k}_{i} + \vec{p}_{i}) = \delta(\vec{k}_{f} - \vec{k}_{i} + \vec{p}_{f} - \vec{p}_{i}).$$
(7)

La sommation sur les états initiaux et finaux peut être remplacée par les intégrales. En insérant ces dernieres expressions 6 et 7 dans l'expression de la section différentielle on obtient la forme recherchée.

# Annexe C : Fonction de corrélation résonnante pour le modèle du gaz libre

On utilise ici la représentation en termes de l'hamiltonien du système H. Sachant que deux opérateurs exponentiels agissent comme les opérateurs de « déplacement » de l'impulsion :

$$\exp\left[-i\vec{k}\vec{r}\right]\exp\left[iH(r,p)t\right]\exp\left[i\vec{k}\vec{r}\right] = \exp\left[iH((r,p-k))\right],$$

on peut réécrire la fonction de corrélation W(T,t,t') comme suit :

$$W(T,t,t') = \left\langle \exp[iHT] \exp[iH(\vec{r},\vec{p}-\vec{k}_{i})t'] \exp[-iH(\vec{r},\vec{p}-\Delta\vec{k})(T+t'-t)] \exp[-iH(\vec{r},\vec{p}-\vec{k}_{i})t] \right\rangle$$
(8)

avec  $\Delta \vec{k} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$ . Pour un gaz libre l'hamiltonien s'écrit :

$$H(\vec{r},\vec{p}-\vec{k}) = (\vec{p}-\vec{k})^2 / 2M.$$
 (9)

Utilisant 9 dans 8, on obtient l'expression recherchée.

# Annexe D : Fonction de corrélation de Van Hove à deux point en temps

On s'intéresse à présent à expliciter la moyenne thermique intervenant dans le cas d'absorption résonnante et à un certain degré dans la section de transfert en termes des fonctions de corrélation de Van Hove :

$$W(t) = \left\langle \exp\left[-i\vec{k}\vec{r}\right] \exp\left[i\vec{k}\vec{r}(t)\right] \right\rangle.$$
(10)

On se propose d'estimer cette fonction de corrélation pour un cristal harmonique. On peut réarranger les exponentielles figurant dans la fonction de corrélation en utilisant l'égalité introduite dans le chapitre V (V-33). On en tire :

$$W(t) = \exp\left\{-\left\langle \left(\vec{k}\vec{r}\right)^2 \right\rangle + \left\langle \vec{k}\vec{r}\vec{k}\vec{r}(t) \right\rangle \right\}.$$
(11)

Les moyennes thermiques intervenant dans la dernière exponentielle se calculent utilisant 4 (voir, par exemple, \*) :

$$g(t) = \langle \vec{k}\vec{r}(t)\vec{k}\vec{r} \rangle = \sum_{qj} \frac{1}{4NM\omega_{qj}\sinh(\beta\omega_{qj})} \times \\ \times \{ (\vec{k}\vec{c}_{qj}^{*})(\vec{k}\vec{c}_{qj})\exp(-\beta\omega_{qj})\exp[-i\omega_{qj}t'] - (\vec{k}\vec{c}_{qj})(\vec{k}\vec{c}_{qj}^{*})\exp[i\omega_{qj}t']\exp(\beta\omega_{qj}) \}.$$
(12)

Suivant Shamaoun on définit la fonction :

$$G_{\alpha\beta}(\omega) = \frac{1}{N} \sum_{qj} c^{\alpha}_{qj} c^{\beta*}_{qj} \delta\left(\omega - \omega_{qj}\right), \qquad \alpha, \beta = x, y, z.$$
(13)

On peut montrer, en utilisant les propriétés des vecteurs de polarisation, que :

$$\sum_{\text{noyaux}} \sum_{\alpha\beta} G_{\alpha\beta}(\omega) = f(\omega),$$

où  $f(\omega)$  est le spectre des modes normaux.

On se limitera ici aux réseaux cristallins cubiques. Pour les réseaux en question la matrice G est diagonale :

$$G_{\alpha\beta}(\omega) = G(\omega)\delta_{\alpha\beta}$$
, avec  $G(\omega) = G_{xx}(\omega)$ .

Pour les réseaux les réseaux de type Bravais, on a :

$$G_{\alpha\beta}(\omega) = \frac{1}{3} f(\omega) \delta_{\alpha\beta} .$$
 (14)

Dans ce cas la moyenne thermique se réécrit :

$$\left\langle \vec{k}\vec{r}(t)\vec{k}\vec{r}\right\rangle = \frac{k^2}{2M}\int_{0}^{\infty}\frac{d\omega}{\omega}f(\omega)\left[\coth\frac{\beta\omega}{2}\cos(\omega t) - i\sin(\omega t)\right].$$

<sup>\*</sup> I. Shamaoun and G. C. Summerfield, *Chemical binding effects on resonant scattering of neutrons*, Ann. Nucl. Energy, **17**, 229 (1990).

Le premier terme dans l'exponentielle 11 s'obtient en posant t=0 dans la dernière expression. Le résultat s'écrit :

$$W(t) = \exp(g(t) - g(0)).$$
(15)