



2002-2012

10

**ans de l'Accord
CEA/DAM - DOE/NNSA**

**years of the CEA/DAM -
DOE/NNSA Agreement**

THIERRY MASSARD

Directeur Scientifique du CEA/DAM

CHRIS DEENEY

Assistant Deputy Administrator for Stockpile Stewardship
National Nuclear Security Administration

Éditorial

Au cours des dix dernières années, la France et les États-Unis d'Amérique ont coopéré très activement dans le domaine de la recherche de base sous l'égide d'un Accord bilatéral. Dans ce cadre, les scientifiques de chacune des deux nations ont développé des collaborations sur de nombreux projets de recherche ouverts tels que l'étude des matériaux sous conditions extrêmes, la physique nucléaire, la physique atomique et la physique des plasmas. En plus d'être publiés dans les meilleures revues scientifiques, les résultats de leurs efforts ont aussi largement contribué à l'avancement de nos connaissances dans le domaine de la Simulation, programme essentiel en vue d'assurer la sûreté, la sécurité et la fiabilité de nos armes nucléaires respectives.

Les travaux issus de ces collaborations sont très importants. Ils ont permis de mobiliser nos brillants cerveaux sur des thé-

matiques d'intérêt majeur pour nos deux pays, mais ont également permis de développer des savoir-faire scientifiques et techniques uniques dans nos laboratoires. En vue de célébrer le dixième anniversaire de la signature de cet Accord, il nous paraît important de remercier l'ensemble des acteurs qui ont contribué au succès de cette coopération. Avec l'avènement de grands moyens scientifiques au sein de nos laboratoires respectifs tels que le National Ignition Facility (NIF), le Laser Mégajoule (LMJ) et les calculateurs pétaflopiques, pour ne citer qu'eux, nous souhaitons voir se développer dans cet Accord d'importants projets de recherche à la fois prometteurs par leurs enjeux et excitants par leur nouveauté et leurs challenges.

Nous saluons les résultats obtenus au cours de cette décennie et nous réjouissons à l'avance des résultats de nos recherches à venir. ●

Executive summary

For the past ten years, there has been a very active, productive International Agreement between France and the United States of America for Cooperation on Fundamental Science supporting Stockpile Stewardship. Under this Agreement the scientists at the nuclear weapons laboratories in both countries have collaborated on many unclassified research projects in areas such as Materials in Extreme Conditions, Nuclear Physics, and Atomic and Plasma Physics. The results of their efforts have not only been published in the open literature but have enhanced the physics base of the computer codes essential to the mission of ensuring that the nuclear stockpiles are safe, secure and effective.

Work on these collaborations is extremely important. Not only does such joint work bring more brilliant minds to work

on pressing research problems for both our countries but also the collaborative effort sharpens the scientific skills of and presents scientific challenges to the scientific and technical staff of our laboratories.

As we reach the tenth Anniversary of the formal signing of the Agreement, we feel it is important to thank all of the individuals who have contributed to its continuing success. With the advent of new capabilities for science in our laboratories such as the National Ignition Facility, the Laser Mega-Joule and High Performance Computers to name just a few, our expectations for brilliant, exciting, challenging joint research projects under this Agreement are at an all-time high.

We toast the achievement of this milestone and look forward to the research results to come. ●

10 ans de l'Accord CEA/DAM - DOE/NNSA years of the CEA/DAM - DOE/NNSA Agreement

Editorial / Executive summary

Th. MASSARD / C. DEENEY

- | | | |
|-----------|---|----|
| 1 | Historique de l'Accord
History of the Agreement | 2 |
| 2 | Investigation de la section efficace $^{238}\text{Pu}(n,f)$ /
Investigation of the $^{238}\text{Pu}(n,f)$ cross section | 4 |
| 3 | Étude du spectre des neutrons prompts
de fission / Prompt fission neutron studies | 6 |
| 4 | Rendements de fission en masse et multiplicité
neutronique / Measurements of fission mass
yields and neutron multiplicity | 8 |
| 5 | Étude de l'émission de photons prompts
dans la fission / Investigation of prompt
photon emission in fission | 10 |
| 6 | Mesures de sections efficaces de fission à l'aide
d'un spectromètre à ralentissement dans le plomb /
Fission cross section measurements with a Lead
Slowing-Down Spectrometer | 12 |
| 7 | Mesure intégrale de l'activation de l'isomère ^{235}U
par diffusion inélastique de neutrons de fission /
Integral measurement of ^{235}U isomer activation by
inelastic fission neutron scattering | 14 |
| 8 | Comparaison des méthodes d'évaluation des
incertitudes pour les sections efficaces $n+^{89}\text{Y}$ /
Uncertainty quantification methods compared for
$n+^{89}\text{Y}$ cross sections | 16 |
| 9 | Section efficaces moyennes pour les
fragments de fission / Prompt fission
product average cross sections | 18 |
| 10 | Capture radiative sur Lu / Radiative capture on Lu | 20 |
| 11 | Mesures de sections efficaces de produits
de fission / Fission product cross section
measurements | 22 |
| 12 | Description microscopique de la
fission nucléaire / Microscopic description
of nuclear fission | 24 |
| 13 | Initiation par choc et détonations dans
les explosifs / Shock initiation and detonation
of high explosives | 26 |
| 14 | Étude expérimentale de la réactivité chimique
des explosifs sous choc / Experimental study
of shock induced chemistry in explosives | 28 |
| 15 | Simulations de dynamique moléculaire
quantique de mélanges sous conditions extrêmes /
Quantum molecular dynamics simulations of
mixtures at extreme conditions | 30 |
| 16 | Étain polycristallin à grain fin pour l'étude
du changement de phase polymorphique
sous compression dynamique / Fine-grained
polycrystalline tin for the study of structural phase
transformations under dynamic compression | 32 |
| 17 | Propriétés dynamiques des actinides / Lattice
dynamics of the actinides | 34 |
| 18 | Équation d'état multiphase et cinétique des
changements de phase / Multiphase equation of
state and kinetics of phase changes | 36 |
| 19 | Opacité des intérieurs stellaires: mesures et
modèles / Stellar interior opacity: measurements
and models | 38 |
| 20 | Développement du LTD (Linear Transformer
Driver) pour la radiographie éclair / Linear
Transformer Driver (LTD) development for flash
x-ray radiography | 40 |
| 21 | Radiographie et intercomparaisons de codes /
Computational radiography and cross code
comparisons | 42 |
| 22 | Analyseurs de gaz à base de nano-résonateurs
NEMS / NEMS nanoscale resonator gas sensors | 44 |
| | Glossaire / Glossary | 46 |
| | Références / References | 47 |

History of the Agreement



Fig. 1 : Séminaire général près du CEA – Le Ripault (avril – mai 2011).
The General Meeting near Le Ripault (April-May 2011)

In 1998, there was interest in both France and the United States in “reinforcing the collaboration” between the scientists at the weapons laboratories in each country. To that end, Jacques Bouchard, the Director of **CEA/DAM** sent Daniel Gogny to **LLNL** to explore the possibilities of collaborative efforts in unclassified research. Partly as a result of Dr. Gogny’s efforts, Director Bouchard wrote in January 2000 to both Bruce Tarter and John Browne, the Directors of **LLNL** and **LANL** in the U.S. suggesting that a formal collaboration be established. That suggestion was driven by the realization that the “spectacular advances in computational technology offer new prospects in the use of more fundamental physics than in the past.” Jacques Bouchard proposed meetings between representatives of the U.S. Laboratories and Jean Lachkar, of **CEA/DAM – Île-de-France** and Daniel Gogny to review what physics areas were appropriate for such collaborative efforts.

In March 2000, Brigadier General Thomas Gioconda, the Acting Deputy Administrator for Defense Programs of the

Historique de l’Accord

En 1998, un intérêt commun était porté par la France et les États-Unis en vue de renforcer la coopération scientifique dans le domaine de la défense. À cette fin, Jacques Bouchard, le Directeur du **CEA/DAM** chargea Daniel Gogny d’explorer les possibilités de coopérations dans les domaines de recherche ouverts, lors d’un déplacement au **LLNL**. Par la suite, Jacques Bouchard écrivit en janvier 2000 à Bruce Tarter et John Browne, directeurs du **LLNL** et du **LANL** aux États-Unis en proposant qu’une coopération formelle soit établie entre les deux nations. Cette proposition était guidée par le fait que « l’obtention d’avancées spectaculaires dans le domaine du calcul haute performance ouvrait, plus que par le passé, à de nouvelles perspectives dans le domaine de la physique fondamentale ». Jacques Bouchard proposa d’initier

des rencontres entre les représentants des laboratoires américains et les délégués français, Jean Lachkar (**CEA/DAM – Île-de-France**) et Daniel Gogny, pour le compte du **CEA/DAM**, afin de décliner les domaines de physique appropriés en vue de cette coopération.

En mars 2000, le Général Thomas Gioconda, Directeur adjoint des programmes de défense du Département de l’énergie (**DOE**) des États-Unis, répondit à Jacques Bouchard mentionnant que « le **DOE** et les laboratoires nationaux étaient très favorables à de tels échanges » et suggéra que l’accord porte sur la recherche fondamentale dans des champs couvrant « la physique nucléaire, la physique de la matière condensée, la science des matériaux et la physique des plasmas ». Tout comme

pour les autres domaines de coopération, cette activité a été menée sous l’égide d’un l’accord intergouvernemental.

Des rencontres ont suivi afin d’identifier les domaines spécifiques les plus prometteurs. Un colloque a eu lieu à Bruyères-le-Châtel en octobre 2000 impliquant près de 30 responsables de laboratoires du **CEA/DAM**, du **DOE** et des laboratoires américains. Par la suite, différents groupes de travail ont été mis en place en vue de préciser les collaborations potentielles en physique nucléaire (février 2001), en science des matériaux (février 2002), puis en physique atomique et physique des plasmas (avril 2002).

L’accord a été rédigé, approuvé et signé formellement le 13 mars 2002 par Alain

U.S. **DOE**, answered Director Bouchard saying that the “**DOE** and the laboratories would value such an interchange” and suggested that an unclassified basic science cooperative agreement be established covering such topics “as nuclear science, condensed matter physics and materials science and atomic and plasma physics.” As with other collaborative efforts, this activity was to be conducted under a government-to-government agreement.

Meetings ensued to ascertain what specific areas of research held the most promise. A seminal meeting was held at Bruyères-le-Châtel in October 2000 involving almost 30 leaders from **CEA/DAM** and the **DOE/NNSA** weapons laboratories. In February 2001, a Workshop on Potential Collaborations in Nuclear Physics was held followed by one on Materials Science in February 2002 and one on Atomic and Plasma Physics in April 2002.

The Agreement was written, approved and formally signed on March 13, 2002 by Alain Delpuech, Director of **CEA/DAM**, and John Gordon, the Administrator of the **DOE/NNSA**.

The Agreement covers Cooperation on Fundamental Science Supporting Stockpile Stewardship and is managed by a Steering Committee with two Co-Chairs, two Management Point-of-Contacts (MPOC’s) and a Technical Coordinator at each American laboratory. Over the past decade, a number of distinguished individuals have worked very hard to help manage the Agreement. At this time, the Co-Chairs are Thierry Massard, Scientific Director of **CEA/DAM** and Chris Deeney, Assistant Deputy Administrator for Stockpile Stewardship of the **NNSA**. The MPOC’s are Catherine Cherfils (**CEA/DAM**) and Michael Kreisler (**NNSA**) with John Porter (**SNL**), Christian Mailhiot (**LLNL**),

Paul Dotson (**LANL**), the Technical Coordinators.

There have been roughly 80 proposals for collaborations. Many projects have been completed and 30 projects are active. Over 125 joint publications have appeared in the open literature.

The Steering Committee meets annually. A General Meeting is held every two years at which each active project presents the status of and results from their research. These extremely interesting meetings alternate between sites in each country.

In this issue of *Focus*, we celebrate the 10th Anniversary of the signing of the Agreement and present articles that describe much of the current on-going research. The prospects for future collaborative efforts under this Agreement are truly spectacular. Long life to the Agreement! ●



Fig. 2 : Séminaire général au National Ignition Facility (NIF) à Livermore (Avril 2009).
The General Meeting at the NIF/Livermore (April 2009).

Delpuech, Directeur du **CEA/DAM**, et John Gordon, Directeur de l’Administration de sûreté nucléaire américaine (**NNSA**) du **DOE**.

Cet Accord couvre la coopération sur la recherche fondamentale et est animé par un comité directeur comprenant deux co-présidents, deux chefs de projet et un correspondant technique représentant chacun les laboratoires américains. En une décennie, nombre d’individua-

lités ont œuvré dans l’animation de cet accord. À ce jour, les deux co-présidents sont Thierry Massard, Directeur scientifique du **CEA/DAM**, et Chris Deeney, l’Administrateur adjoint de la **NNSA** pour la dissuasion nucléaire. Les chefs de projet sont Catherine Cherfils (**CEA/DAM**) et Michael Kreisler (**NNSA**) et les correspondants techniques sont John Porter (**SNL**), Christian Mailhiot (**LLNL**), Paul Dotson (**LANL**).

Il y a eu quelques 80 propositions de projets de coopération. Beaucoup sont achevés et une trentaine d’entre eux sont en cours. Plus de 125 publications communes ont été publiées dans la littérature scientifique ouverte.

Le comité directeur se réunit une fois par an. Un colloque général est organisé tous les 2 ans, dans lequel l’état d’avancement et les résultats de chaque projet actif sont présentés. Ces rencontres très fructueuses sont organisées de manière alternée entre les sites de chaque pays.

Dans ce numéro de *Focus*, nous célébrons le 10^{ème} anniversaire de la signature de l’accord et présentons les articles qui décrivent certains des travaux de recherche les plus récents. Les perspectives de coopération pour les années à venir dans le cadre de cet Accord sont extrêmement prometteuses. Nous lui souhaitons longue vie ! ●

Investigation de la section efficace $^{238}\text{Pu}(n,f)$

La section efficace de fission du ^{238}Pu pour les neutrons rapides est une quantité importante pour les applications de défense que celles de l'énergie nucléaire. Elle est en outre reliée à $^{239}\text{Pu}(n,f)$ au travers des processus d'émission de neutrons suivie de fission.

Au-delà de 6 MeV, les données expérimentales antérieures sont rares. Un premier jeu de données couvre le domaine 6-10 MeV; les autres mesures se situent aux alentours de 14 MeV et ont été obtenues dans les années 1960 à l'exception d'un point à 14,7 MeV. Aucune donnée n'est disponible au-delà de 17 MeV et entre 10 et 13 MeV.

Dans ce contexte, une nouvelle mesure était requise afin de couvrir la région 5-20 MeV. Des investigations expérimentales ont été entreprises auprès de la source de neutrons pulsée **WNR** du **LANSCE** où le spectre en énergie des neutrons s'étend entre environ 1 MeV et plusieurs centaines de MeV. La méthode du temps de vol a été appliquée pour mesurer l'énergie des neutrons incidents. Une chambre à fission contenant environ 20 μg de ^{238}Pu a été utilisée. La petite quantité de Pu permet de s'affranchir de la haute activité alpha du ^{238}Pu qui rend difficile l'extraction du signal de fission, mais requiert en contrepartie de longues périodes d'irradiation et

de prise de données. Pour pallier cette contrainte, la mesure a été réalisée en mode parasite de l'instrument **GEANIE [Ne197]** (voir article 5, ce numéro), situé à environ 20 m de la source neutronique. L'avantage de cette solution était la possibilité d'acquérir des données durant plusieurs mois avec un minimum de surveillance. De plus, les moniteurs de faisceau de **GEANIE** qui consistent en deux chambres à fission contenant chacune un dépôt mince d'uranium (respectivement ^{238}U et ^{235}U) ont pu être utilisés simultanément. Des corrections ont été appliquées pour prendre en compte le chevauchement des neutrons les plus rapides par les neutrons les plus lents du paquet de neu-

Investigation of the $^{238}\text{Pu}(n,f)$ cross section

The fission cross section of ^{238}Pu in the fast neutron energy domain is an important quantity for both stockpile stewardship and nuclear power applications. Moreover, it is related to $^{239}\text{Pu}(n,f)$ through neutron-emission-followed-by-fission processes. Above 6 MeV, previous experimental data are scarce. One set of data points extends up to 10 MeV, other measurements are at 14 MeV and above and were obtained in the 1960's, with the exception of one point at 14.7 MeV. No data are available above 17 MeV and between 10 and 13 MeV.

In this context a new measurement was required to cover the 5-20 MeV

region. Experimental investigations were performed at the **WNR** pulsed neutron source of the **LANSCE** where the neutron energy spectrum extends from about 1 MeV to several hundreds of MeVs. The time-of-flight technique was applied to measure the energy of the incident neutrons. A fission ionization chamber constructed at **CEA** and containing about 20 μg of ^{238}Pu was used. The small quantity of Pu involved permits overcoming the high alpha activity of ^{238}Pu which makes the extraction of the fission signal difficult, but requires long periods of irradiation and data recording. To accommodate this constraint, it was chosen to perform the

measurement in a parasitic mode of the **GEANIE** instrument [**Ne197**] (see article 5, this issue), located at about 20 m from the neutron source. The advantage of this solution was that month-long data recording periods were possible with minimum supervision. Moreover, the **GEANIE** beam monitors consisting of two planar fission chambers each containing a thin foil of respectively ^{238}U and ^{235}U were used simultaneously. Corrections had to be applied in order to take into account the overlap between the faster neutrons and the slower neutrons from the preceding pulse. This effect is not negligible for ^{238}Pu because the cross section below 550 keV is large.

trons précédent. Cet effet est non négligeable pour le ^{238}Pu du fait que sa section efficace en dessous de 550 keV est importante. Le spectre des fissions du ^{238}Pu a été également corrigé de la contribution due au ^{239}Pu et à ^{234}U (provenant de la désintégration alpha du ^{238}Pu) présents dans l'échantillon. La section efficace relative du ^{238}Pu a été obtenue en multipliant le rapport mesuré du nombre de fissions du ^{238}Pu à celui de ^{235}U (resp. ^{238}U) par la section efficace $^{235}\text{U}(n,f)$ (resp. $^{238}\text{U}(n,f)$) issue de la bibliothèque ENDF-B/VII [Gra09]. Les résultats préliminaires de la section efficace de $^{238}\text{Pu}(n,f)$ sont présentés sur la Fig. 1. Les points sont normalisés aux mesures plus anciennes aux énergies

inférieures à 5 MeV. Au-dessus de 5 MeV un désaccord net est constaté avec les données de Budtz-Jørgensen *et al.* Au lieu d'accroître brusquement à 5 MeV, nos données atteignent doucement un plateau à $\sim 2,4$ barns puis décroissent au-delà de 30 MeV pour atteindre $\sim 1,7$ barn à 50 MeV et au-delà. À ~ 14 MeV, un

accord correct est observé avec Fursov *et al.* Ce comportement est soutenu par l'évaluation BRC [Mor09] et celle de Maslov publiée récemment mais est en désaccord avec la bibliothèque ENDF-B/VII.1 [Cha11]. Les investigations se poursuivent. ●

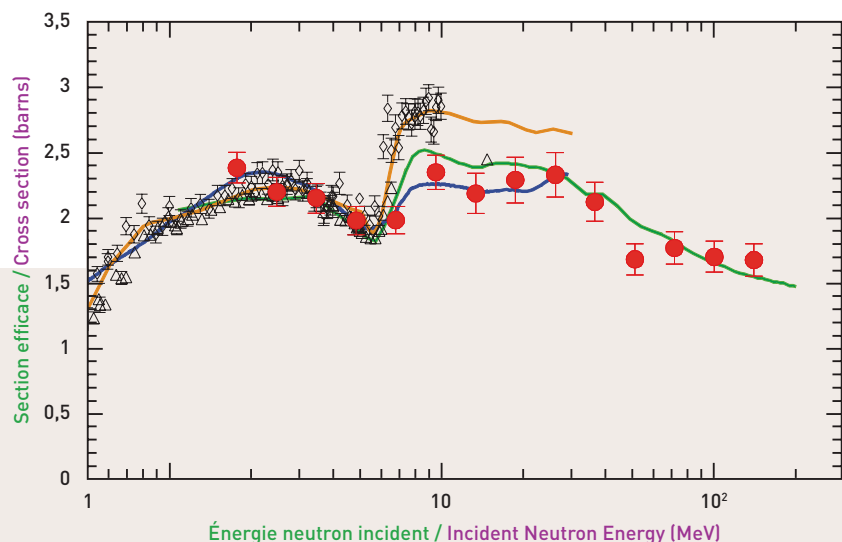


Fig. 1 : Résultats préliminaires de la section efficace de $^{238}\text{Pu}(n,f)$ (points rouges) comparés à des mesures antérieures et des bibliothèques de données nucléaires évaluées. Preliminary results of $^{238}\text{Pu}(n,f)$ cross section (red dots) compared to previous measurements and data evaluations.

- Ce travail / This work
- △ Fursov *et al.* (1997)
- ◇ Budtz-Jørgensen *et al.* (1982)
- BCR 2009
- Maslov (2011)
- ENDF-BVII

The ^{238}Pu fission spectrum was also corrected for the contribution of fission from ^{239}Pu and ^{234}U (from ^{238}Pu alpha decay) present in the sample. The relative ^{238}Pu cross section was obtained by multiplying the measured ratio of the number of fission events of ^{238}Pu to that of ^{235}U (resp. ^{238}U) by cross sections from the ENDF-B/VII library for ^{235}U (resp. ^{238}U) [Gra09].

Preliminary results for the $^{238}\text{Pu}(n,f)$ cross sections are presented in Fig. 1. The points are normalized to the earlier measurements for neutron energies below 5 MeV. Above 5 MeV a clear discrepancy with the data of Budtz-Jørgensen *et al.* is observed. Instead of rising sharply

at 5 MeV our data gently reach a plateau at ~ 2.4 barn and then decrease above 30 MeV to reach ~ 1.7 barn at 50 MeV and above. At ~ 14 MeV, a fair agreement is observed with Fursov *et al.*

data. This behavior is supported by the BRC evaluation [Mor09] and a recent evaluation by Maslov but disagrees with the ENDF-B/VII.1 library [Cha11]. Investigations are continuing. ●

Prompt fission neutron studies

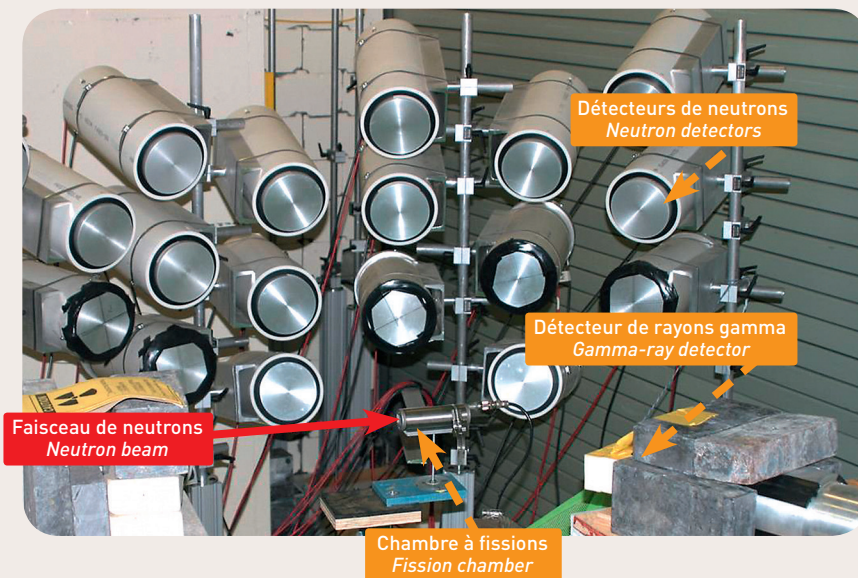


Fig. 1 : Dispositif expérimental pour la mesure des spectres de neutrons de fission sur FIGARO.

Experimental setup for the measurement of the prompt fission neutron spectra at FIGARO.

The average number of prompt neutrons per fission (Greek nu-bar, $\bar{\nu}$) and their average kinetic energy spectrum (prompt fission neutron spectrum, PFNS) are essential quantities in the design and understanding of the performance of applications of nuclear fission. Moreover, they are intimately linked with the mechanisms involved in this complex reaction. In this regard, measurements not only provide basic data for the applications but also enable tests, constraints and improvements of the theoretical models of fission.

Experimental investigations on prompt fission neutrons [Roc04] were initiated in the early 2000's on the FIGARO instrument (Fig. 1) at the pulsed neutron source WNR facility of the LANSCE. At WNR, the energy spectrum of the incident neutrons extends from below 1 MeV to several hundreds of MeV. These experiments are based on a double time-

of-flight (TOF) technique. A multi-foil fission chamber loaded with hundreds of milligrams of actinides was irradiated by the WNR neutrons at a distance of about 22 meters from the neutron production target. The incident neutrons were well collimated and their energy was obtained by the TOF technique. Neutron detection in coincidence with fission was performed thanks to several detectors based on EJ301 organic liquid scintillators located at a distance of about 1m from the fission chamber. The TOF technique was used to measure the energies of the neutrons. The detection efficiency was measured by using a source of ^{252}Cf triggered by the detection of fission γ -rays.

Results of these experiments have been published [Eth03, Eth05, Eth08, Tai07, Nod11]. The first experiments yielded pioneering results on the average prompt fission neutron kinetic energy and $\bar{\nu}$ in $^{235,238}\text{U}(n,f)$ for incident neutron

energies ranging from about 1 MeV to 200 MeV [Eth03, Eth05, Eth08]. Below 28 MeV, the variation of $\bar{\nu}$ was found to be in excellent agreement with earlier reference measurements. Above this energy our results were unprecedented. The results on the average prompt neutron energy were the first to establish with no ambiguity the presence of a dip at the opening of second chance fission. Such a dip was predicted by models because prefission evaporated neutrons have less energy on average than neutrons emitted by fission fragments as a result of a lower nuclear temperature. Similar results were also obtained for ^{237}Np [Tai07]. The fission neutron spectra from ^{235}U and ^{239}Pu were measured and compared in a subsequent experiment with a fission chamber containing both isotopes [Nod11].

More recently, another experiment on ^{239}Pu provided significantly better quality results in terms of uncertainties [Cha10]. An example of obtained PFNS is shown in Fig. 2. The experimental spectral shape is fairly well described by the evaluations below 5 MeV whereas above this energy the measurements are below the evaluations. This trend, visible for all incident neutron energies, is currently under investigation. ●

Étude du spectre des neutrons prompts de fission

Le nombre moyen de neutrons prompts par fission (noté $\bar{\nu}$) et leur spectre moyen en énergie cinétique sont des quantités essentielles pour la mise au point et l'interprétation des applications de la fission nucléaire. Elles sont en outre intimement liées aux mécanismes mis en jeu dans cette réaction complexe. Les mesures fournissent ainsi non seulement des données de base pour les applications mais permettent également de tester, contraindre et améliorer les modèles théoriques de la fission.

Des études expérimentales sur les neutrons prompts de fission [Roc04] ont été initiées dès le début des années 2000 sur l'instrument FIGARO (Fig. 1) auprès de la source neutronique pulsée WNR du

LANSCE. À WNR, le spectre en énergie des neutrons s'étend depuis 1 MeV jusqu'à plusieurs centaines de MeV. Ces expériences sont basées sur une méthode de double temps de vol. Une chambre à fission à dépôts multiples contenant des centaines de mg d'actinides est irradiée à une distance d'environ 22 m de la source. Les neutrons incidents sont parfaitement collimatés et leur énergie est obtenue par mesure du temps de vol. La détection des neutrons en coïncidence avec la fission est assurée par plusieurs détecteurs basés sur le liquide organique scintillant EJ301 placés à environ 1 m de la chambre à fission. L'énergie des neutrons de fission est obtenue par temps de vol. L'efficacité de détection est mesurée à l'aide d'une source de ^{252}Cf .

Les résultats de ces expériences ont fait l'objet de publications [Eth03, Eth05, Eth08, Tai07, Nod11]. Les premières expériences ont fourni des résultats novateurs sur l'énergie moyenne des neutrons prompts et $\bar{\nu}$ en fonction de l'énergie des neutrons incidents entre 1 MeV et 200 MeV pour $^{235,238}\text{U}(n,f)$ [Eth03, Eth05, Eth08]. En dessous de 28 MeV, la variation $\bar{\nu}$ obtenue est en excellent accord avec les mesures de référence. Au-dessus de 28 MeV, nos résultats sont sans précédent. Les résultats sur l'énergie moyenne des neutrons prompts ont été les premiers à établir de manière non ambiguë l'existence d'une récession à l'ouverture de la fission de seconde chance. Un tel phénomène était prédit par les modèles du fait que les neutrons évaporés de pré-fission sont en moyenne moins énergétiques que les neutrons émis par les fragments de fission, en raison d'une moindre température nucléaire. Des résultats similaires ont été obtenus pour le ^{237}Np [Tai07]. Les spectres de neutrons de ^{235}U et ^{239}Pu ont été mesurés et comparés dans une expérience ultérieure avec une chambre à fission contenant les deux isotopes [Nod11].

Plus récemment, une nouvelle expérience sur le ^{239}Pu a conduit à des résultats de meilleure qualité en termes d'incertitudes [Cha10]. Un exemple de spectre obtenu est présenté sur la Fig. 2. Le spectre expérimental est assez bien reproduit par les évaluations en dessous 5 MeV, alors qu'au-dessus de cette énergie les mesures se situent sous les évaluations. Cette tendance, visible à toutes les énergies de neutrons incidents, fait actuellement l'objet d'investigations. ●

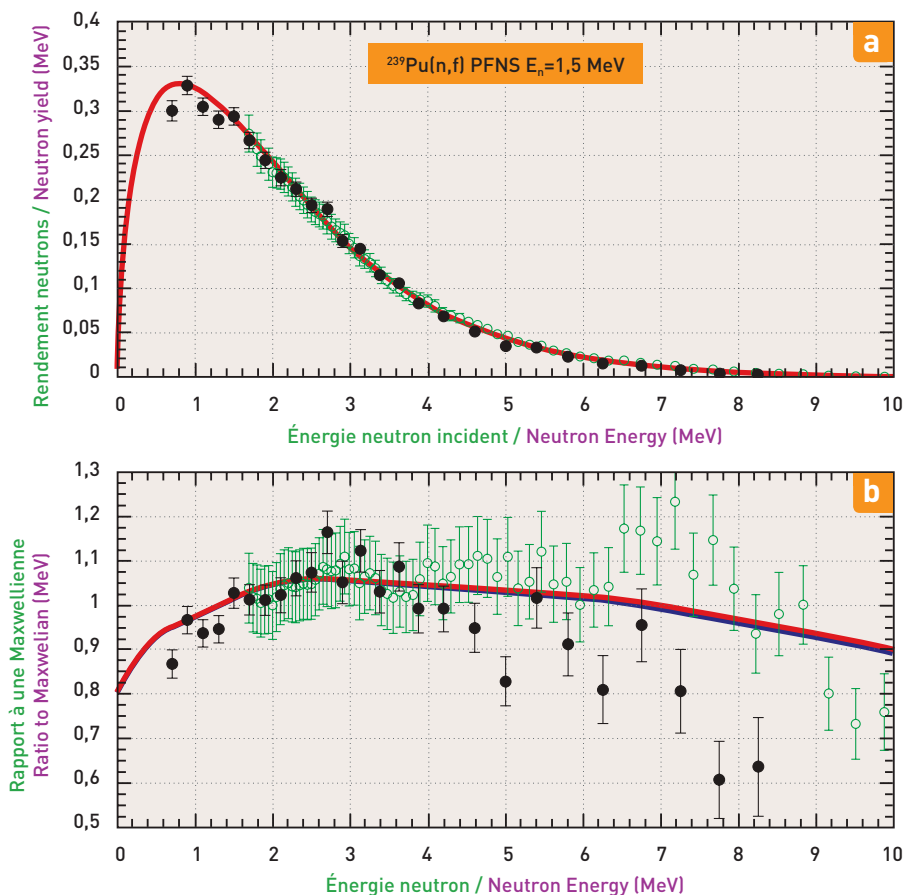


Fig. 2 : Spectre de neutrons prompts de fission pour $^{239}\text{Pu}(n,f)$ pour des neutrons incidents d'énergie comprise entre 1 et 2 MeV. **a** échelle linéaire ; **b** rapport à une Maxwellienne avec $T=1,4$ MeV. Les résultats sont comparés aux mesures plus anciennes de Staples *et al.* en 1995 ainsi qu'à des évaluations. PFNS obtained for $^{239}\text{Pu}(n,f)$ for incident neutron energies between 1 and 2 MeV. **a** linear scale, **b** ratio to Maxwellian with $T=1.4$ MeV. The results are compared to earlier measurements by Staples *et al.* in 1995 and evaluations.

B. LAURENT, T. GRANIER, G. BÉLIER, J.-F. MARTIN,
A. CHATILLON, J. TAIEB
CEA – DAM Île-de-France

F.-J. HAMBSCH, P. SALVADOR CASTINEIRA, S. OBERSTEDT
EC-JRC-IRMM, Geel, Belgium

F. TOVESSON, A.B. LAPTEV, R.C. HAIGHT, R.O. NELSON,
J.M. O'DONNELL
Los Alamos National Laboratory

Rendements de fission en masse et multiplicité neutronique

Les rendements de fission en masse sont intimement liés aux mécanismes internes mis en jeu dans le phénomène de fission. En outre, les rendements de produits de fission des actinides majeurs sont des données très importantes pour les programmes de défense. En fission induite par neutrons, les rendements des fragments en masse varient de manière très significative en fonction de l'énergie du neutron incident. Pour les actinides majeurs, la fragmentation est essentiellement asymétrique à basse énergie et la probabilité d'obtenir des fragments symétriques augmente avec l'énergie du neutron

incident du fait de la décroissance des effets couches. Cependant, les mesures de rendements de fission sont rares, en particulier en neutrons rapides, et le pouvoir prédictif des modèles théoriques demeure très limité. Une connaissance précise des rendements de fission en masse en fonction de l'énergie des neutrons incidents fournira des données de valeur tant pour les applications que pour le développement de modèles prédictifs et robustes.

Dans ce but, une expérience a été réalisée au LANSCE pour étudier les rendements en masse et l'émission de neutrons prompts dans $^{238}\text{U}(n,f)$ en fonc-

tion de l'énergie des neutrons incidents. L'expérience est basée sur l'utilisation d'une double chambre à ionisation à grilles de Frisch (DCIGF) et d'un compteur de neutrons constitué de 30 détecteurs à ^3He disposés selon deux anneaux concentriques à l'intérieur d'un bloc de polyéthylène servant de modérateur (Fig. 1). L'efficacité de détection des neutrons est d'environ 30% pour la fission spontanée du ^{252}Cf . La DCIGF est placée au centre du compteur sur le trajet du faisceau de neutrons. La cathode de la chambre à ionisation est un film métallisé mince sur lequel l'actinide a été déposé en couche mince. La DCIGF sert à mesurer en

Measurements of fission mass yields and neutron multiplicity

Fission fragment mass yields are intimately related to the internal mechanisms involved in the fission phenomenon. Moreover, fission product yields of the major actinides are very important data for defense programs. In neutron-induced fission, the fragment mass yields vary significantly as a function of incident neutron energy. For the major actinides, the gross trend is that fragmentation at low energy is essentially asymmetric while the probability to have symmetric fragments increases as the incident neutron energy goes up

because of the decrease of shell effects. However, measurements of fission mass yields are few, in particular for fast neutron energies, and the predictive power of theoretical models is still rather poor. A precise knowledge of fission mass yields as a function of incident neutron energy will provide valuable data both for applications and for the development of predictive and robust models.

For this purpose an experiment has been performed at the LANSCE in order to investigate fission mass yields and prompt neutron emission in

$^{238}\text{U}(n,f)$ as a function of incident neutron energy. The experiment was based on the use of a double-Frisch-gridded ion chamber (DFGIC) and a neutron counter consisting of 30 ^3He neutron detectors arranged in two concentric rings within a polyethylene block for neutron moderation (Fig. 1). The neutron detection efficiency of the counter is about 30% for ^{252}Cf spontaneous fission. The DFGIC is placed in the center of the neutron counter where the beam comes through an open channel. The cathode of the ionization chamber is a thin metalized film onto which the actinide has been deposited with a low areal density. The DFGIC serves to measure in coincidence the kinetic energies and angles of emergence of both fission fragments. The masses of the primary fragments are obtained through mass and momentum conservation and taking into account corrections for neutron

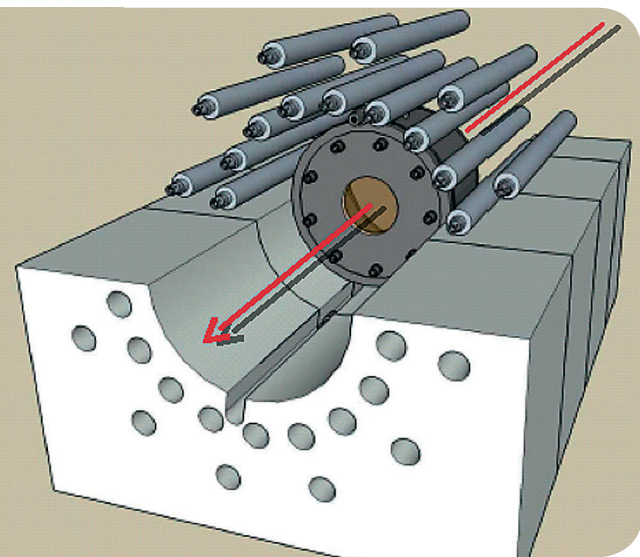


Fig. 1 : Schéma du dispositif expérimental avec la chambre à ionisation entourée par les compteurs ^3He . Seule une moitié du massif de polyéthylène est représentée. La flèche correspond au trajet des neutrons incidents. Drawing of the experimental setup with the DFGIC surrounded by the ^3He counters. Only one half of the polyethylene blanket is represented. The arrow corresponds to the incident neutrons trajectory.

coïncidence l'énergie cinétique des deux fragments et leurs angles d'émergence. Les masses des fragments primaires sont obtenues par conservation de la masse et de la quantité de mouvement en prenant en compte des corrections pour l'émission

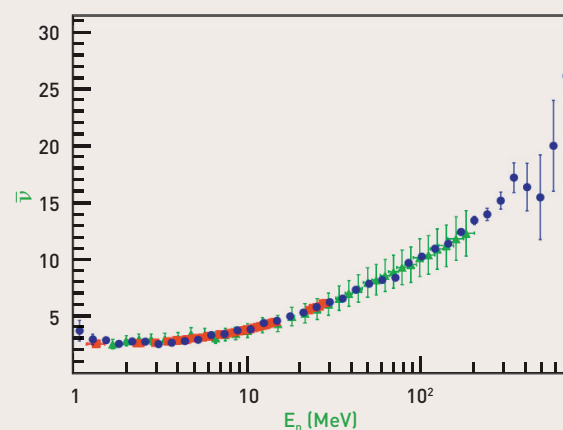
de neutrons, la perte d'énergie et le défaut de hauteur d'impulsion. La correction d'émission de neutrons est contrainte par la mesure en coïncidence du nombre de neutrons à l'aide du compteur. Du fait de la résolution en énergie et des diverses

corrections appliquées, la résolution en masse correspond au mieux à un σ de deux unités de masse. La corrélation entre l'asymétrie de masse et la multiplicité neutronique peut être mesurée, ce qui fournira des données multiparamétriques sans précédent à ces énergies.

Les données recueillies ont permis d'extraire une mesure de la multiplicité neutronique moyenne $\bar{\nu}$ dans $^{238}\text{U}(n,f)$ en fonction de l'énergie des neutrons incidents entre 1 et 700 MeV (Fig. 2) qui est en excellent accord avec les mesures antérieures et en particulier avec celle réalisée à FIGARO avec une méthode complètement différente [Eth05,Hai12] (voir article 3, ce numéro). Les données sur les fragments sont en cours d'analyse. Les suites possibles de cette expérience comprennent l'investigation d'autres actinides comme ^{235}U et ^{239}Pu , la mesure de $\bar{\nu}$ en fonction de la masse des fragments et des expériences dédiées à des mesures de précision de $\bar{\nu}$. ●

emission, energy loss and pulse height defect. The neutron emission correction is constrained by coincident measurement of the number of neutrons using the neutron counter. Due to the energy resolution achieved and the various corrections applied, the 1- σ mass resolution expected is at best 2 mass units. Correlations between mass asymmetry and neutron multiplicity can be measured yielding unprecedented multiparametric data in this energy range.

From the recorded data it was possible to extract a measurement of the mean prompt neutron multiplicity $\bar{\nu}$ in $^{238}\text{U}(n,f)$ as a function of incident neutron energy from 1 to 700 MeV (Fig. 2) which is in excellent agreement with previous measurements, and in particular with those performed at FIGARO with a completely different method [Eth05,Hai12] (see article 3 in this issue). The fission fragment data are currently



● Ce travail / This work [Lau12]
▲ [Eth05]
■ Frehaut et al., CEA Bruyeres-le-Chatel (1980)

Fig. 2 : Multiplicité neutronique moyenne $\bar{\nu}$ dans $^{238}\text{U}(n,f)$ en fonction de l'énergie des neutrons incidents. Les résultats de cette expérience [Lau12] sont en excellent accord avec les mesures de référence à basse énergie et des mesures obtenues à l'aide d'une méthode différente à FIGARO [Eth05,Hai12].

Mean prompt neutron multiplicity $\bar{\nu}$ in $^{238}\text{U}(n,f)$ as a function of incident neutron energy. Results from this experiment [Lau12] are in excellent agreement with reference measurements at low energy and measurements obtained with a different method at FIGARO [Eth05,Hai12].

being analyzed. Possible follow-ons of this experiment include investigating other actinides such as ^{235}U and ^{239}Pu , measuring the fragment mass dependence of $\bar{\nu}$ and dedicated $\bar{\nu}$ precision measurements. ●

Étude de l'émission de photons prompts dans la fission

La fission nucléaire s'accompagne de l'émission prompte de rayons gamma

issus de la désexcitation des fragments de fission. Certaines transitions gamma sont converties en émission d'électrons (conversion interne) résultant en émission de rayons X prompts, principalement des couches K de l'atome. Il a été démontré il y a plus de 40 ans que ce phénomène est à l'origine de la majorité des rayons X prompts émis en fission. Les émissions X et gamma ont été peu caractérisées dans la fission induite par neutrons rapides et les mesures fournissent des données de base en tant que composante de l'énergie totale dans la fission.

L'ensemble de spectromètres germanium de haute résolution **GEANIE** au **LANSCE** est un parfait outil pour l'étude des photons prompts de fission. Cet instrument se situe sur une des bases de vol de l'installation **WNR** où les neutrons sont délivrés en mode pulsé avec un spectre en énergie cinétique s'étendant de ~1 MeV à plusieurs centaines de MeV. Des expériences ont été menées à **GEANIE** avec des cibles passives d'uranium (*Fig. 1*) afin de recueillir le spectre des photons en fonction de l'énergie du neutron incident. Ces données ont permis d'extraire les fonctions d'excitation de la production d'environ 20 fragments, pour la plupart comportant un nombre pair de protons et de neutrons (noyaux pairs-pairs) pour lesquels la désintégration prompte met en jeu une bande rotationnelle avec des transitions de bas niveaux intenses [*Eth08*].

Une expérience plus sensible a été réalisée avec une cible active constituée d'un empilement de couches minces d'uranium déposées sur des cellules photovoltaïques utilisées comme détecteurs

de fragments de fission [*Eth01*]. La détection des fragments était utilisée pour déclencher l'acquisition des données afin que les données photoniques soient obtenues en coïncidence avec la fission. La cible active a été conçue pour une atténuation minimale du rayonnement photonique. En outre, **GEANIE** a été optimisé pour la détection des photons de basse énergie dans le but d'étudier les rayons X. Du fait de son origine dans la conversion interne, l'émission X est favorisée pour les noyaux éloignés des couches nucléaires fermées et pour les fragments de fission ayant des nombres de nucléons impairs.

Les rendements X de fission et leur variation avec l'énergie neutron ont été obtenus pour la première fois pour $^{238}\text{U}(n,f)$ à haute énergie (*Fig. 2*). Des comparaisons avec des calculs détaillés des rendements X utilisant toute les

connaissances actuelles sur les schémas de niveaux et des systématiques de rendements de fission montrent un assez bon accord global, et mettent en évidence des cas particuliers où des transitions converties sont manquantes dans les schémas de niveaux. Ces données de rayons X ont également été utilisées pour étudier les rendements en charge des fragments en utilisant des mesures antérieures en neutrons thermiques des probabilités d'émission X par fragment. Les rendements en charge ainsi déduits sont en bon accord avec les systématiques de Wahl. Ces données présentent un grand intérêt pour tester et contraindre les modèles de la fission. Une expérience à plus haut débit de données est prévue avec un compteur à avalanche à plaques parallèles mis au point récemment [*Wu11*] pour effectuer des mesures de rayons X et gamma en coïncidence. ●

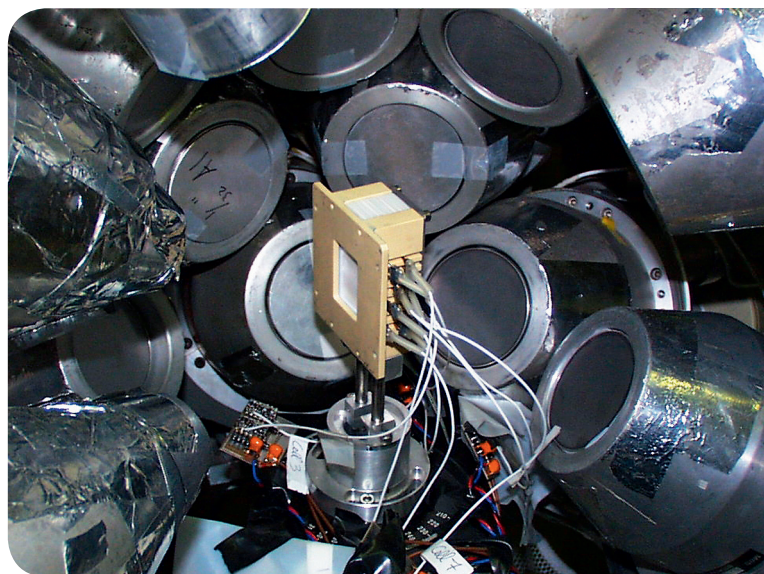


Fig. 1 : La cible active d'uranium placée au cœur du spectromètre **GEANIE** / The uranium active target in the center of the **GEANIE** spectrometer.

Investigation of prompt photon emission in fission

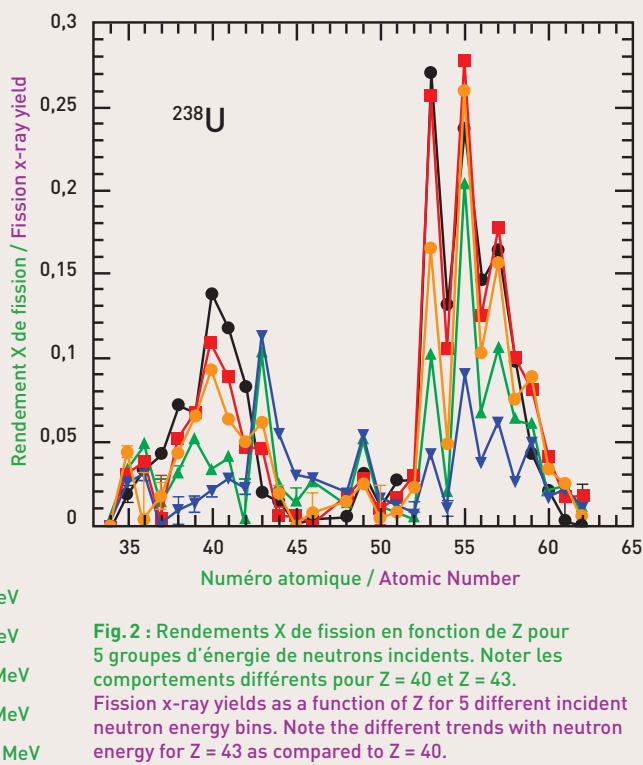
Nuclear fission is accompanied by the prompt emission of gamma rays originating in the de-excitation of the fission fragments. Some of the gamma-ray transitions are converted to electron emission (internal conversion process) resulting in prompt x-ray emission, mainly from the K shells of the atom. As discovered over 40 years ago, this phenomenon is the source of the majority of prompt x-rays emitted in fission. Both gamma and x-ray emission are poorly characterized for fast neutron-induced fission and measurements provide basic data as a component of the total emitted energy in fission.

The array of high-resolution germanium photon spectrometers **GEANIE** at the **LANSCE** is a perfect tool to investigate prompt photons in fission. This instrument is located on one of the **WNR** facility neutron flight paths where neutrons are delivered in pulsed mode with a kinetic energy spectrum extending from below 1 MeV to hundreds of MeVs. Experiments were conducted at **GEANIE** with passive targets of uranium (*Fig. 1*) to record photon spectra as a function of incident neutron energy. From these data, excitation functions for the production of about 20 fission fragments were extracted, most had even proton

and neutron numbers (even-even nuclei) for which the prompt decay involves a rotational band with intense low lying transitions [*Eth08*].

A more sensitive experiment was performed with an active target consisting of a stack of thin uranium layers deposited onto photovoltaic cells used as fission fragment detectors [*Eth01*]. Fragment detection was used to trigger data recording so that photon data was obtained in coincidence with fission. The active target was designed for reduced photon attenuation. Also, **GEANIE** was optimized for the detection of lower energy photons in order to investigate fission x-rays. Because of its internal conversion origin, x-ray emission is favored for nuclei away from closed nuclear shells, and for fission fragments with odd nucleon numbers.

Fission x-ray yields and their variation with neutron energy have been obtained for the first time for $^{238}\text{U}(n,f)$ at high neutron energies (*Fig. 2*). Comparisons with detailed calculations of x-ray yields using all current data on level schemes and systematics for fission yields give fair overall agreement, and show cases where converted transitions are missing in level schemes. These x-ray data have also been used to investigate the charge yields of fission fragments using data from earlier measurements at thermal neutron energies of the x-ray emission probability per fragment. Deduced charge yields are in fair agreement with Wahl systematics. These data are of great interest in testing and constraining models of nuclear fission. A higher data rate experiment is planned using a recently developed parallel-plate avalanche counter [*Wu11*] to allow x-ray-gamma-ray coincidence measurements. ●



R.C. HAIGHT, T.A. BREDEWEG, E. BOND, M.J. DEVLIN,
A. GAVRON, M. JANDEL, J.M. O'DONNELL, B.A. PERDUE
Los Alamos National Laboratory

Y. DANON, J.T. THOMPSON
Rensselaer Polytechnic Institute

C.W. ALEXANDER
Oak Ridge National Laboratory

G. BÉLIER, T. GRANIER, B. LAURENT, J. TAIEB
CEA – DAM Île-de-France

Fission cross section measurements with a Lead Slowing-Down Spectrometer

A **Lead Slowing-Down Spectrometer (LSDS)** has been installed at the **LANSCE** Facility at **LANL**. It increases the neutron flux on a sample by a factor of 1 000, allowing the measurement of neutron-induced reactions on small samples or on isotopes with small cross sections. It is a 20 ton cube of lead with several entry channels, one for the proton beam from the **LANSCE** accelerator and others for samples and detectors (*Fig. 1*). Spallation neutrons are produced at the center of the cube by the 800 MeV proton beam incident

on a tungsten target. The neutrons are quickly down-scattered by various reactions until their energies are less than the first excited state of ^{207}Pb (0.57 MeV). The neutrons continue to slow down by elastic scattering, losing on average 1% of their energy per interaction. Faster neutrons encounter more lead nuclei per unit time than slower neutrons, and therefore slow down faster. Thus there is a focusing of the energy distribution of neutrons, which yields a correlation between neutron energies and the total scattering time in the spectrometer. The

energy resolution is approximately 30% in the energy range 1 eV-1 keV. Samples with detectors are placed in channels in the lead and the reactions are recorded as a function of time. The average neutron energy varies with time as

$$\bar{E} = \frac{K}{(t+t_0)^2} \quad (1)$$

with $K = 166.4 \text{ keV}\cdot\mu\text{s}^2$ and $t_0 = 0.11 \mu\text{s}$ [*Gra03,Roc05*]. The spectrometer was designed, built and characterized at **CEA** with a lower-energy driving source before being shipped to **LANL** where it

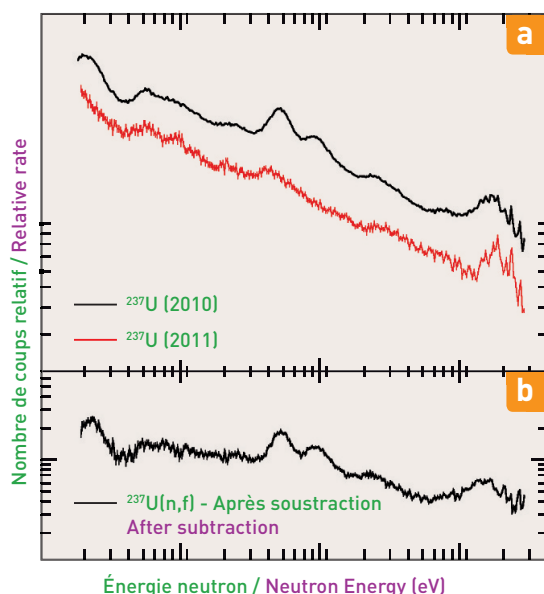


Fig. 2 : Taux de comptage en fonction de l'énergie des neutrons pour $^{237}\text{U}(n,f)$ mesuré par le LSDS avant **a** et après **b** soustraction du bruit de fond. Count rates as a function of neutron energy for $^{237}\text{U}(n,f)$, before **a** and after **b** background subtraction, as measured at the LSDS.

Mesures de sections efficaces de fission à l'aide d'un spectromètre à ralentissement dans le plomb

Un spectromètre à ralentissement dans le plomb (**LSDS**) a été mis en service auprès de l'installation **LANSCE** au **LANL**, afin de réaliser des mesures de sections efficaces de fission induite par neutrons. Cet instrument permet une augmentation du flux d'un facteur 1000 et rend possibles des mesures sur des petits échantillons, ou pour des isotopes ayant de très faibles sections efficaces. Ce spectromètre de 20 tonnes, comprend des canaux d'irradiations, et un canal central pour le

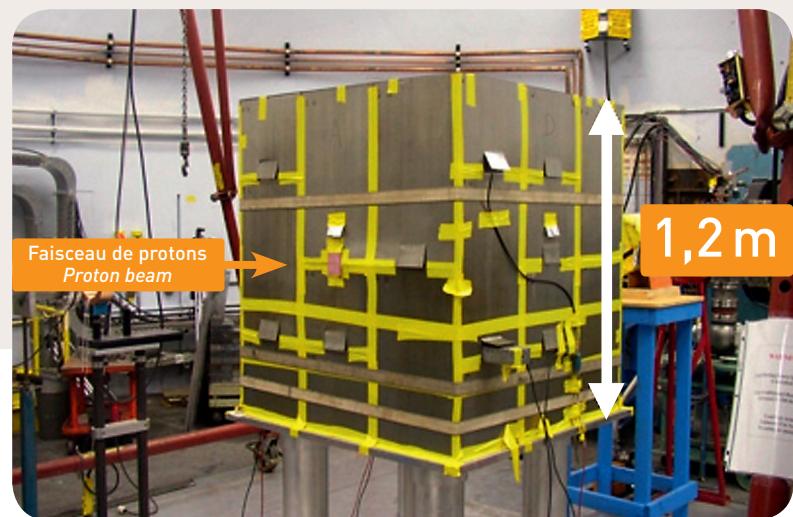
was further characterized with the higher-energy neutron source [Roc05,Pet05,Rom06,Roc06,Dan07], and its capabilities in measurements with nanograms were demonstrated with ^{239}Pu samples. A primary subject of interest for the collaboration was the measurement of the fission cross section of the first excited level of ^{235}U . The isomer's short half-life ($t_{1/2} \approx 26$ min) made sample production a challenge, since 20 ng of isomer had to be extracted from a 50 g ^{239}Pu solution. Several test runs were performed, but it was not possible to reconcile every demand (purity, yield and transportation) in a reasonable time (less than 2 hours). In 2010 a first measurement was made on ^{237}U ($t_{1/2} = 6.75$ days). The sample was prepared by irradiating 1 mg of ^{236}U in the high flux HFIR reactor at ORNL. A sample containing 1 μg of ^{237}U was electroplated after chemical removal of fission products and installed into a dedicated fission chamber. Fig. 2a pre-

sents 2 measurements at 2 different cooling times. The second measurement is used as a background for inferring the background-suppressed rate for fission of ^{237}U (Fig. 2b). Other uses of the spec-

trometer include detector development for measurements of (n,p) and (n, α) cross sections and tests of detectors and electronics in very high radiation fields [Tho12]. ●

Fig. 1 : Photographie du LSDS montrant le cube de plomb de 1,2 m de côté recouvert de cadmium afin de réduire le retour des neutrons diffusés dans la salle. Le faisceau de protons de 800 MeV de l'accélérateur du LANSCE traverse l'air et entre dans le dispositif (comme indiqué par la flèche), puis frappe une cible en tungstène placée au centre du cube. Les échantillons fissiles et les détecteurs sont placés dans des canaux en plomb (les connexions électriques sont visibles sur le côté droit).

Picture of the LSDS showing the 1.2 meter cube of lead covered by cadmium to reduce return of neutrons from scattering in the room. The 800-MeV proton beam from the LANSCE accelerator goes through air and enters the assembly as shown by the arrow and hits a tungsten target in the center of the cube. Fissionable samples and detectors are placed in channels (electrical connections are visible on the right side) in the lead.



faisceau de protons de l'accélérateur du LANSCE (Fig. 1). Une source de neutrons pulsée au centre du massif est obtenue par réactions de spallations des protons de 800 MeV sur une cible de tungstène. Les neutrons sont rapidement ralentis par diverses réactions jusqu'à ce que leur énergie soit inférieure à celle du premier état excité du ^{207}Pb (0,57 MeV). En deçà, ils ne sont plus ralentis que par diffusion élastique avec une perte moyenne d'énergie cinétique de 1% par interaction. Les plus rapides rencontrent davantage de noyaux de plomb par unité de temps et ralentissent plus rapidement. Il se produit ainsi une concentration en énergie cinétique des neutrons, qui conduit à une corrélation statistique entre l'énergie des neutrons et leur temps de propagation [Gra03,Roc05]. La résolution en énergie est d'environ 30% sur la gamme d'énergie 1 eV-1 keV. Les échantillons et les détecteurs sont placés

dans les canaux, et les réactions enregistrées en fonction du temps. L'énergie moyenne des neutrons varie en fonction du temps selon l'équation (1).

Le spectromètre a été construit et caractérisé dans un premier temps au CEA, à l'aide d'une source de neutrons de basse énergie. Il a été caractérisé après son installation au LANL [Roc05,Pet05,Rom06,Roc06,Dan07], et la possibilité de réaliser des mesures sur des nanogrammes a été démontrée sur des échantillons de ^{239}Pu . L'objectif initial de la collaboration était la mesure de la section efficace de fission du premier niveau excité de l'uranium 235. La production de cet isomère, de 26 minutes de période, est un challenge puisqu'il s'agit d'extraire 20 ng d'une solution de ^{239}Pu de 50 g. Après plusieurs

tentatives, la collaboration a renoncé car il n'a pas été possible de satisfaire à tous les critères (pureté, rendement et transport) dans un temps raisonnable (moins de 2 heures). En 2010, une première mesure sur ^{237}U ($t_{1/2} = 6,75$ jours) a été réalisée. Un échantillon contenant 1 μg de ^{237}U a été obtenu par irradiation d'un échantillon pur de ^{236}U dans le réacteur à haut flux de neutrons HFIR du ORNL. La Fig. 2a présente 2 mesures pour 2 temps de refroidissement. La seconde mesure donne le bruit de fond et permet de déduire le taux de fission de ^{237}U par soustraction (Fig. 2b). Le spectromètre a également permis de faire des développements de détecteurs et d'électronique dans le cadre de mesures de sections efficaces (n,p) et (n, α) [Tho12]. ●

Mesure intégrale de l'activation de l'isomère ^{235}U par diffusion inélastique de neutrons de fission

Dans les applications de la fission, tous les processus importants doivent être mesurés afin de calculer la réactivité des assemblages. Habituellement, il est supposé que les noyaux qui fissionnent sont dans leur état fondamental. Or, il faut parfois considérer qu'ils sont excités, et que cela conduit à un changement de comportement du système. Dans le cas de ^{235}U , la section efficace de fission du premier état excité, un isomère de période 26 minutes, dépasse de 147% celle de l'état fondamental pour des neutrons thermiques. Ainsi, il est important de mesurer cette différence à plus haute

énergie, et d'étudier les mécanismes d'excitation de cet isomère. En 2000, l'excitation par voie électromagnétique dans des plasmas denses et chauds a été recherchée sans succès [Méo00]. La mesure de l'excitation de cet isomère par diffusion inélastique de neutrons de fission par la méthode d'activation est présentée. Les échantillons d'uranium ont d'abord été irradiés dans un assemblage critique par des neutrons de fission, puis le nombre d'isomères a été mesuré.

L'énergie d'excitation de cet isomère étant très petite (76,5 eV), et la multipolarité de la transition vers l'état fondamental élevée (E3), il décroît prin-

cipalement par conversion interne. Les électrons émis interagissent fortement dans le dépôt et en sortent à des énergies inférieures à 10 eV. Un détecteur spécial (Fig. 1), composé d'un miroir électrostatique défléchissant et focalisant, et d'un multiplicateur d'électrons (un channeltron), a été construit. Dans un premier temps des irradiations dans le réacteur GODIVA IV (LANL) ont permis de développer la séparation chimique uranium-produit de fission après irradiation [Bon08]. Les activations finales ont été réalisées dans le réacteur pulsé CALIBAN (CEA/Valduc), avec des flux intégrés de 3.10^{14} n.cm⁻² par tir. Le nombre d'isomères est obtenu en mesurant sa décroissance (Fig. 2) et en utilisant l'efficacité de détection mesurée à part. La section efficace d'excitation est finalement obtenue en utilisant une mesure de la fluence neutrons par activation de feuilles d'indium et la masse d'uranium obtenue par comptage α . Une moyenne sur 6 irradiations réalisées sur 6 échantillons distincts fournit une valeur de $1,00 \pm 0,13$ barns pour le processus $^{235}\text{U}(n,n')^{235m}\text{U}$. Ce travail permet de conclure que le premier état excité de ^{235}U est produit de façon significative dans des environnements à fort flux de neutrons, en accord avec des évaluations de données [Rom03, Lyn03]. Ainsi, si la section efficace de fission de l'isomère est plus grande que celle de l'état fondamental, comme mesuré en neutrons thermiques, on peut, dans des forts flux de neutrons, avoir un changement du taux de fissions. ●

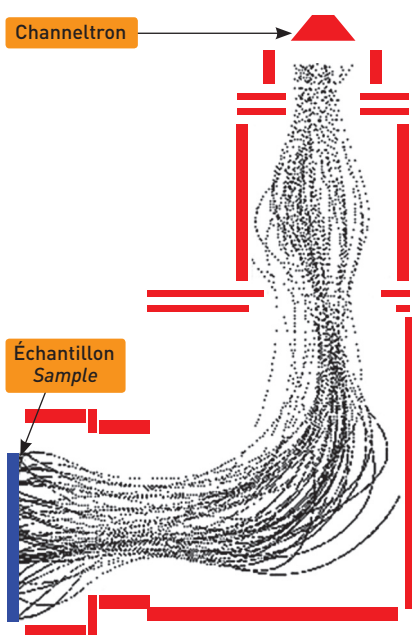


Fig. 1 : Schéma du détecteur d'électrons utilisé pour mesurer la décroissance de ^{235m}U . Les traces noires représentent un échantillonnage de trajectoires simulées d'électrons, focalisés dans le multiplicateur d'électrons (channeltron).

Scheme of the electron detector used for the measurement of ^{235m}U decay. The black traces show a sampling of simulated electron trajectories, focused into the channeltron counter.

Integral measurement of ^{235}U isomer activation by inelastic fission neutron scattering

In the application of nuclear fission all of the contributing processes have to be accurately known in order to calculate the assembly's reactivity. Usually, it is assumed that fissioning nuclei are in the ground state. In some situations excited states need to be considered and the population of these excited states could lead to a change in system behavior. In the case of ^{235}U , the fission cross section for the first excited state, the 26 minute isomer, exceeds that of the ground state fission cross section by 147% at thermal neutron energies. Hence it is important to measure this difference for higher-energy fission neutrons and to study the mechanisms that can efficiently populate the ^{235m}U isomer. In 2000 its excitation by electromagnetic processes in hot dense plasmas was investigated [Meo00] with a negative result. In the present work the excitation of the isomer by neutron inelastic scattering has been measured by the activation method. The uranium samples were first irradiated with fission neutrons in a reactor and then the number of ^{235m}U isomers produced was measured.

Since this isomer excitation energy is very small (76.5 eV), and because of the high multipolarity (E3) of the transition to the ground state, it decays mainly by the internal conversion (IC) process. Considering energy loss upon exiting the sample, the resulting low-energy IC electrons exit the uranium deposit with energies lower than 10 eV. A special detector (Fig. 1) composed of a deflecting and focusing electrostatic mirror and a Channeltron electron counter, was developed. Preliminary studies to

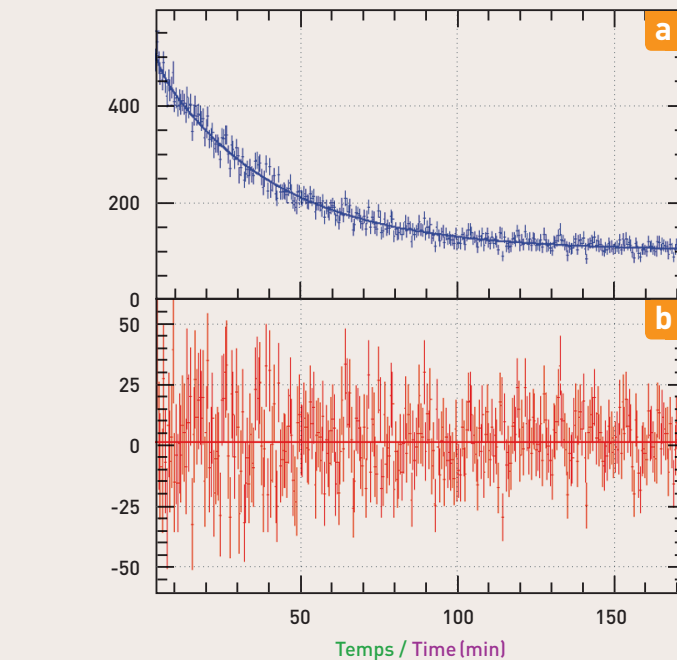


Fig. 2 : a) Décroissance de l'isomère ^{235m}U après activation dans le réacteur pulsé CALIBAN et élimination des produits de fission par séparation chimique. La courbe correspond à un ajustement de la décroissance par la méthode des moindres carrés. b) résidu entre les données et la courbe ajustée.

a) ^{235m}U decay after a CALIBAN shot where fission products have been radiochemically removed. The solid curve is a least-squares decay curve fit. b) residue between the data and fitted curve.

develop the radiochemistry methods to remove fission products [Bon08] were performed at the GODIVA IV reactor (LANL). The final neutron activations were performed in the CALIBAN pulsed reactor (CEA/Valduc) with an integrated flux of 3.10^{14} n.cm⁻² per shot. The isomer decay curve was then measured (Fig. 2) after the fission products were chemically removed and the sample electroplated. From the number of ^{235m}U produced, the detection efficiency measured separately, the mass of each ^{235}U sample determined by alpha counting and the neutron fluence determined by Indium

foil activation measurements, the inelastic neutron cross section to the isomer was determined. An average over 6 irradiations using 6 different samples lead to a cross section of 1.00 ± 0.13 barns for the $^{235}\text{U}(n,n')^{235m}\text{U}$ process. This work concludes that the first excited isomeric state in ^{235}U is significantly populated in high neutron flux environments, in accordance with theoretical evaluations [Rom03, Lyn03]. If the fission cross section on the isomer is different than that of the ground states, as measured at thermal energies, this could lead to a change in the calculated fission rate. ●

Uncertainty quantification methods compared for $n+^{89}\text{Y}$ cross sections

The quantification of the uncertainties associated with nuclear data is of critical interest for both US Stockpile Stewardship and French Simulation programs as well as for nuclear applications at large. The uncertainty quantification methodologies that have been developed and adopted in LANL (GNASH-KALMAN) and in CEA/DAM (TALYS-BFMC [Bau08]) differ significantly, and comparing the covariance information produced by both methods is a step towards the cross-validation of these methods [Her11].

The neutronic reaction data of ^{89}Y were selected for this exercise [Cha07] since experimental data relevant to that system are relatively plentiful and well documented, and a new experimental data set measured with the WNR/GEANIE detector had just become available.

The GNASH-KALMAN method relies on the linear Bayesian update of a GNASH [You98] nuclear model calculation prior with likelihood functions estimated using the experimental nuclear data. The TALYS-BFMC (Backward-Forward

Monte-Carlo) is grounded on the weighted statistical sampling of TALYS [Kon11] model parameters, producing a sampling of the cross section distribution, which is then analyzed in terms of a covariance matrix. Both methods are similar by their reliance on likelihood functions to integrate experimental information into the covariances, but they also differ significantly. Whereas, the GNASH-KALMAN method assesses the best uncertainty information for different reaction channels, independently of each other, the TALYS-BFMC methods evaluates all reaction channels at once.

Comparison between the cross sections (Fig. 1) and relative uncertainties (Fig. 2), obtained with the GNASH-KALMAN and TALYS-BFMC methods, shows excellent agreement on the cross sections, and a

Comparaison des méthodes d'évaluation des incertitudes pour les sections efficaces $n+^{89}\text{Y}$

L'évaluation des incertitudes associées aux données nucléaires est d'un intérêt critique, à la fois pour le programme Stockpile Stewardship américain et le programme Simulation français, de même que pour les applications de l'énergie nucléaire au sens le plus large. Les méthodes d'évaluation des incertitudes, qui ont été développées au LANL (GNASH_KALMAN) et au CEA/DAM (TALYS-BFMC), sont sensiblement différentes, et la compa-

raison des informations de covariances produites par ces deux méthodes constitue un pas vers leur validation croisée [Her11]. Les données de sections efficaces neutroniques sur ^{89}Y ont été choisies pour cet exercice [Cha07] car les données expérimentales pour ces réactions sont relativement abondantes et bien documentées; de plus, une nouvelle mesure réalisée auprès du détecteur WNR/GEANIE venait d'être rendue disponible.

La méthode GNASH-KALMAN est basée sur l'update Bayésien d'une connaissance *a priori* (« prior ») issue d'un calcul du code de réaction nucléaire GNASH [You98], par une fonction de vraisemblance estimée à partir de la comparaison des calculs avec les données expérimentales. La méthode TALYS-BFMC (Backward-Forward Monte-Carlo) s'appuie sur un échantillonnage statistique pondéré des paramètres du modèle TALYS [Kon11], conduisant à un échantillonnage de la distribution des sections efficaces, qui est ensuite analysé en termes de matrice de covariance. Les deux méthodes sont voisines, par leur utilisation de la vraisemblance pour intégrer l'information expérimentale dans les covariances, mais elles diffèrent aussi significativement. Alors que la méthode GNASH-KALMAN évalue les incertitudes

qualitative agreement on uncertainties. The good agreement on cross sections shows that both approaches account equally well for the experimental data, while the quantitative differences on uncertainties can tentatively be attributed to different methodologies (independent evaluation of each channel for GNASH-KALMAN vs all channels at once for TALYS-BFMC).

The two approaches produce a relatively consistent description of the experimental data sets used to drive the evaluation process, which helps build confidence in the covariance evaluation methodologies employed. More work is needed to understand the remaining differences and expand that comparison to other regions like that of actinides [Tal11,Bau11].

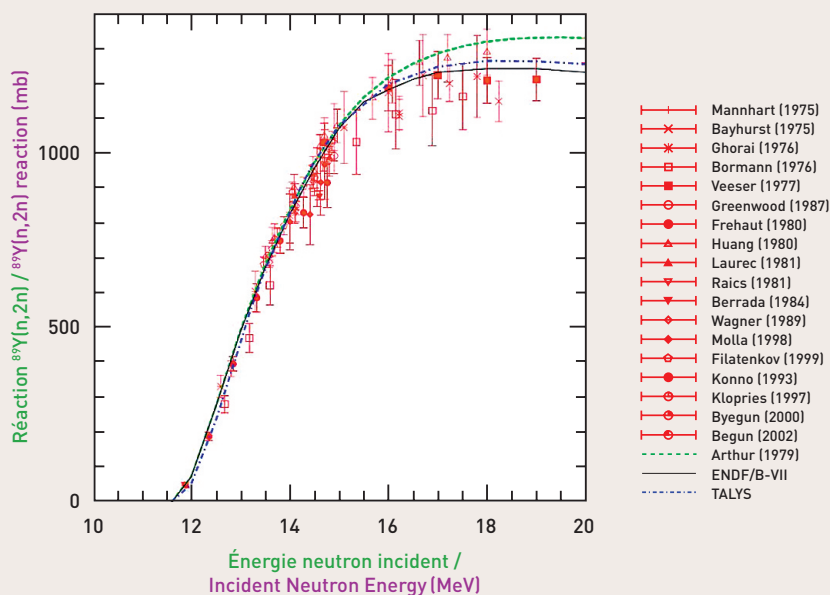


Fig. 1 : Section efficace totale de la réaction $^{89}\text{Y}(n,2n)$. Comparaison entre les évaluations du LANL (courbe noire) et du CEA/DAM (courbe bleue) et les données expérimentales (symboles rouges)
The $^{89}\text{Y}(n,2n)$ total cross section. Comparison between the LANL evaluation (black curve), the CEA/DAM evaluation (blue curve), and experimental data (red symbols).

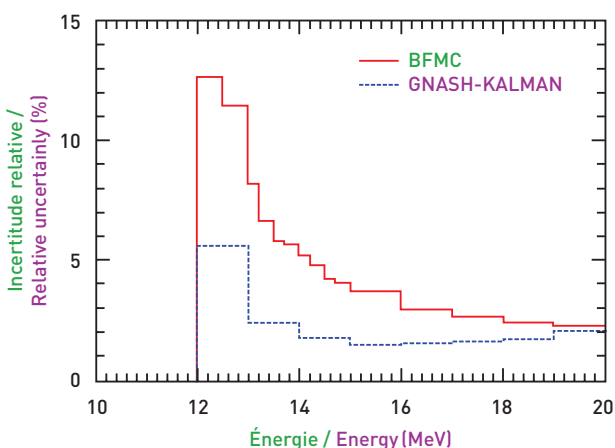


Fig. 2 : Incertitudes relatives pour la réaction $^{89}\text{Y}(n,2n)$ obtenues par les méthodes TALYS-BFMC (histogramme rouge) et GNASH-KALMAN (histogramme bleu).
Relative uncertainties in the $^{89}\text{Y}(n,2n)$ reaction. The red histogram is for the TALYS-BFMC method, and the blue histogram is for the GNASH-KALMAN method.

pour chaque voie de réaction indépendamment, la méthode TALYS-BFMC évalue toutes les voies à la fois. La comparaison entre les sections efficaces (Fig. 1), les incertitudes relatives (Fig. 2),

obtenues par les méthodes GNASH-KALMAN ou TALYS-BFMC révèle un excellent accord entre les sections efficaces et un accord qualitatif entre les incertitudes. Le bon accord des sections

efficaces montre que les deux approches prennent en compte les données expérimentales de façon comparable, alors que les différences sur les incertitudes pourraient être attribuées aux différences méthodologiques (évaluation indépendante de chaque voie de réaction pour GNASH-KALMAN et toutes les voies à la fois pour TALYS-BFMC).

Les deux approches produisent des descriptions relativement cohérentes des données expérimentales qui pilotent le processus d'évaluation, ce qui participe à la validation des deux méthodes employées. Des travaux supplémentaires sont nécessaires pour comprendre les différences qui subsistent et pour étendre cette comparaison à d'autres régions, comme celle des actinides [Tal11,Bau11]. ●

Section efficaces moyennes pour les fragments de fission

Les installations actuelles ou futures visant à produire de l'énergie nucléaire

demandent que soient réduites les incertitudes sur les données nucléaires pour un nombre toujours plus important de noyaux afin de pouvoir quantifier les marges de conception et d'exploitation.

De telles données sont étudiées depuis des décennies et leur précision flirte maintenant avec le pourcent pour les actinides majeurs et les matériaux de structure. La situation est tout autre pour les fragments de fission (FF) qui représentent plusieurs centaines d'isotopes

riches en neutrons pour lesquels quasiment aucune mesure expérimentale n'est disponible, si bien que leurs interactions ne peuvent être décrites que par le biais d'approches théoriques. De plus, le traitement d'un si large ensemble de noyaux n'est pas envisageable dans les codes actuels de simulation de transport de particules.

Une approche raisonnable consiste alors à pondérer leurs sections efficaces d'interaction par leur taux de productions amenant à l'élaboration d'une évaluation pour un fragment de fission dit « moyen ».

Les évaluations de ce type réalisées dans le passé ont été obtenues en utilisant les isotopes les plus abondamment produits [Nel06], et des écarts de l'ordre de 70% entre différentes estimations ont été observés. Ces écarts sont attribués en partie à des choix différents de jeux de noyaux utilisés pour construire cette moyenne. Les développements récents de modèles globaux (microscopiques ou phénoménologiques), combinés avec les moyens de calculs modernes, nous ont permis de supprimer cette source d'incertitude en incluant tous les fragments de fissions dans la construction d'une évaluation moyenne.

Pour estimer les incertitudes liées aux divers choix possibles pour les ingrédients des modèles de réaction, une comparaison entre les résultats fournis par trois codes de calcul automatisés ([Her07], TALYS [Kon08] et CoH [Kaw03]), dispo-

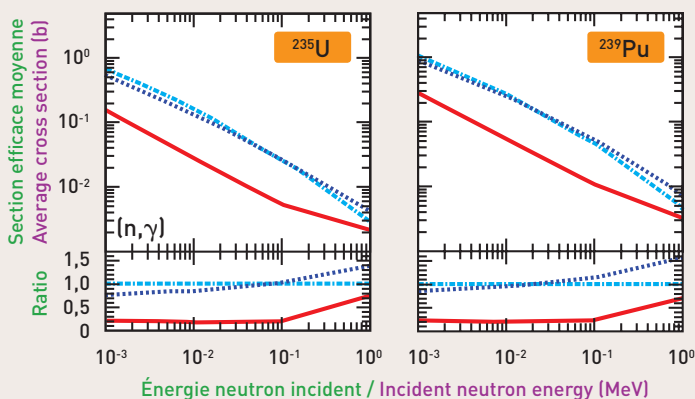


Fig. 2 : Comparaison des sections efficaces moyennes de capture avec différents codes de réaction. Tous les fragments de fission dans des fichiers évalués sont pris en compte dans ces calculs.

Comparison of the calculated average capture cross section with different reaction codes. All FP given in evaluated files are included in these calculations.

Prompt fission product average cross sections

Existing and future nuclear facilities aiming at the production of energy

require the reduction of uncertainties in nuclear data for ever increasing sets of nuclei to quantify design and safety margins. Such data sets have been studied for decades and their accuracy has been improved to the few percent level for major actinides and commonly used construction materials. The situation is not at all the same for fission products (FP). The reason is that FP represent a set of several hundred of unmeasured neutron rich nuclei whose interactions can only be determined through theoretical approaches. Moreover, accounting for such a large set of targets in current radiation transport simulation codes remains impractical. A reasonable approach consists in averaging the FP cross sections with the FP yields to give the so called lumped FP (LFP) evaluations.

sant chacun de diverses options pour le choix de tels ingrédients [Wat10], a ainsi été effectuée. Il est important de souligner qu'en raison du nombre conséquent de noyaux considérés (plus de 1000), ces codes ont été utilisés avec les options par défaut propres à chaque modèle sans chercher d'optimisation particulière. L'analyse des résultats a mis en évidence la sensibilité des sections efficaces moyennes au nombre de noyaux considérés pour les calculer (Fig. 1), et la nécessité d'en considérer un nombre plus important que par le passé pour parvenir à une convergence des calculs. De plus, un meilleur accord est obtenu entre les prédictions de TALYS et CoH qu'avec celles d'EMPIRE, en particulier pour la voie de capture radiative, comme le montre la Fig. 2. Cette observation est cohérente avec le fait que cette voie de capture est la plus sensible aux diverses options considérées dans les calculs. ●

In the past the LFP have been determined by considering only the most commonly produced isotopes [Nel06] and discrepancies among different estimates up to 70% have been observed. This is partly due to the different number of nuclei included in the various averages. Recent developments of global models (phenomenological or microscopic) as well as modern computing capabilities have enabled us to account for all produced FP. Previously, large uncertainties were associated with the high number of neglected nuclei.

In order to estimate uncertainties caused by various nuclear model ingredients, a comparison between three automated codes (EMPIRE [Her07], TALYS [Kon08] and CoH [Kaw03]) each using various modelling options has been performed [Wat10]. It is worth mentioning that

due to the large number of included nuclei (over 1000), the codes have been employed with their default options with no effort to investigate large regions of parameter space. Analysis of the results obtained shows that all calculated cross sections are highly sensitive to the number of nuclei included in the determination of the average (Fig. 1) and that a significantly larger number of nuclei than

those previously considered are required to obtain a stable average. Moreover, the results obtained using TALYS and CoH are in closer agreement than those yielded by EMPIRE, in particular for the capture channel, as shown in Fig. 2. This conclusion is consistent with the fact that the quantity which is the most sensitive to the various nuclear model options is the capture cross section. ●

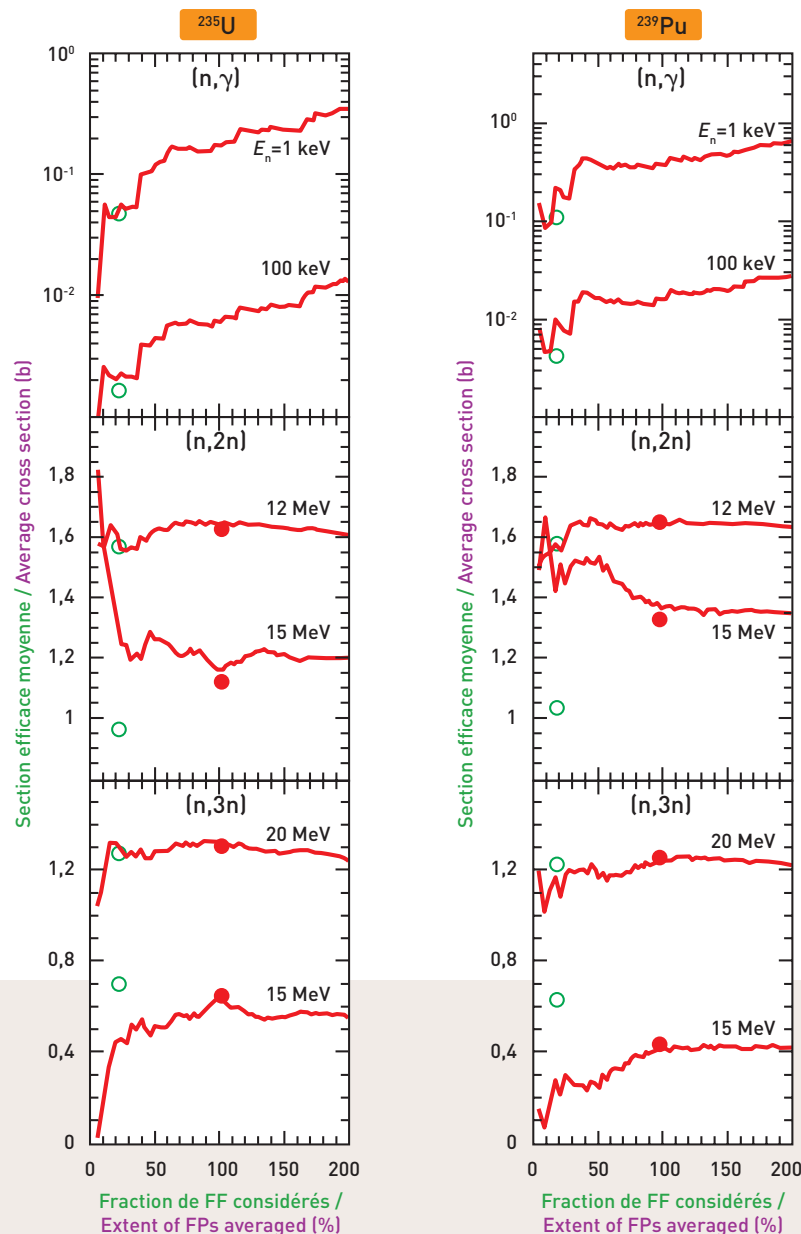


Fig. 1 : Sensibilité des valeurs moyennes des sections efficaces (n,γ), (n,2n) et (n,3n) au nombre de FF considérés pour les déterminer. Sensitivity of the average (n,γ), (n,2n) and (n,3n) cross sections to the number of FP considered to compute them.

Radiative capture on Lu

Neutron radiative capture has been well-studied for most stable nuclei. For unstable nuclei, or excited state nuclei that may be present when the neutron flux initiating the reactions becomes very large, neutron capture cross section measurements are much more difficult to achieve. When it is possible to prepare a suitable radioactive target, new instruments have been constructed, such as the **DANCE** array at **LANL**, to overcome many of the technical difficulties of the measurement. For cases in which it is not feasible to prepare a suitable target some authors have proposed using an indirect approach, commonly referred to as the surrogate reaction method. The study reported here addresses three isotopes of Lu; the natural isotopes ^{175}Lu and ^{176}Lu , and the unstable isotope ^{173}Lu . The experiments were conducted on **DANCE** for the radiative capture measurements and the **Orsay tandem** for the surrogate reaction measurements.

DANCE is a powerful tool for measuring the γ decay cascade of the compound

nucleus following neutron capture. The array is located at the **Manuel Lujan Neutron Scattering Center**, which uses a spallation target to generate high neutron flux over a wide range of energies. A first series of experiments was conducted at the end of 2007 using targets of ^{175}Lu , ^{176}Lu (isotopically enriched at **SIDONIE**) and ^{nat}Lu . A second series of measurements was launched in 2008 focusing on the highly radioactive isotope ^{173}Lu [**Tay09**]. Preparation of the sample material and target fabrication were performed at **LANL**. These campaigns have resulted in high quality absolute neutron capture cross sections for ^{175}Lu and ^{176}Lu (**Fig. 1**), the latter also providing important constraints for reaction models. Efforts to directly measure the neutron capture cross section for ^{173}Lu continue, with the latest campaign in December 2011 providing very promising results.

In the surrogate reaction method an alternate reaction path, using a stable target, is used to produce the same compound nucleus as is produced in the direct reaction. Measurement of the γ

emission probability of the compound nucleus, in coincidence with an ejectile particular to the alternate reaction, provides information that can be used in reaction models to shed light on the real reaction of interest [**Esc10**]. However, the information gained is only relevant if the spin distribution of the compound nucleus is known and does not differ greatly from the spin distribution achieved in the direct reaction [**Sci10**]. An experimental program, in collaboration with the **CENBG** and **LLNL**, was started in 2008 to investigate the surrogate reaction method to indirectly measure the neutron capture cross section for ^{173}Lu . The intent is to study the γ decay probabilities for several potential surrogate reaction channels. The surrogate method was explored for the reactions: $^{174}\text{Yb}(^3\text{He},p\gamma)^{176}\text{Lu}$ and $^{174}\text{Yb}(^3\text{He},\alpha\gamma)^{173}\text{Yb}$, corresponding respectively to the neutron capture reactions $^{175}\text{Lu}(n,\gamma)$ and $^{172}\text{Yb}(n,\gamma)$, both of which are well known. The experiment was conducted in 2010 at the **tandem Van de Graff accelerator** in Orsay. γ decay probabilities were obtained for both stripping and pick-up reactions (**Fig. 2**). These quantities are compared with those calculated using the **TALYS** code, adjusted to the existing experimental data, such as from **DANCE**, for the corresponding radiative capture reactions. Comparison of the curves shows a large discrepancy between the surrogate and radiative capture reactions, mainly due to differences in spin distribution. Consequently, the γ decay probabilities obtained in these transfer reactions cannot be used to extract radiative capture cross sections [**Bou11**]. Other surrogate reactions, such as $^{175}\text{Lu}(p,d\gamma)^{174}\text{Lu}$, will be investigated in an experiment scheduled to be performed using the **STARS-LIBERACE** array of **LLNL**. ●

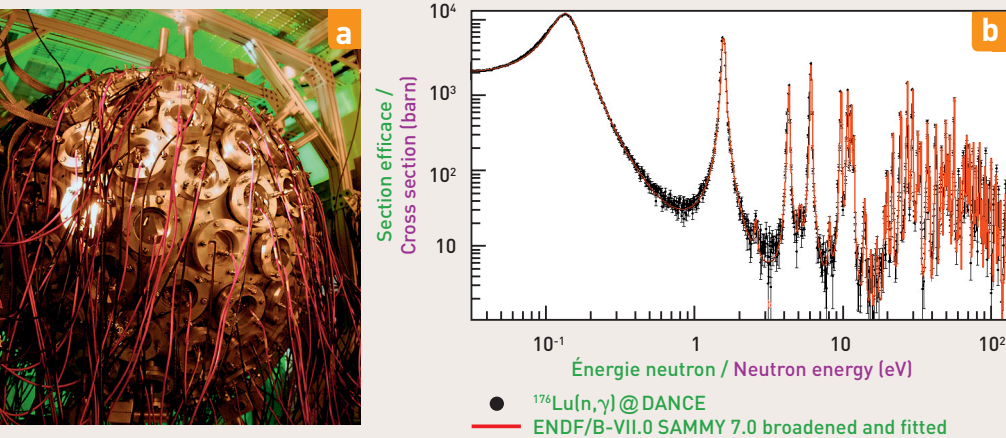
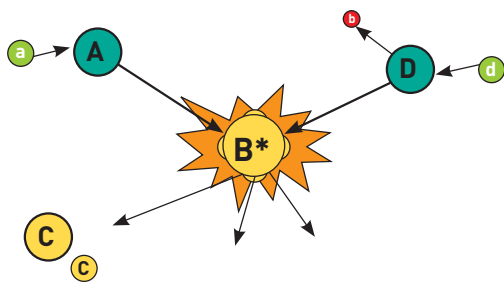


Fig. 1 : **a** Photographie du détecteur **DANCE** au **LANL**. **b** Section efficace de capture radiative de neutrons sur le Lutétium 176 en fonction de l'énergie du neutron incident, comparée aux données évaluées existantes [**Roi10**].

a Picture of the **DANCE** detector at **LANL**. **b** Cross section of radiative capture on ^{176}Lu comparing experimental and evaluated nuclear data [**Roi10**].



Capture radiative sur Lu

La capture radiative de neutrons

est une réaction bien connue pour les noyaux stables. Pour les noyaux instables ou excités qui sont présents dès lors que les flux de neutrons initiant les réactions deviennent très importants, les mesures des sections efficaces sont beaucoup plus compliquées à réaliser. Pour les noyaux radioactifs pour lesquels une cible peut être réalisée, de nouveaux instruments ont été développés tels que le détecteur **DANCE** installé au **LANL**. Pour les autres noyaux, certains auteurs ont proposé d'utiliser des techniques de mesure indirecte telles que la méthode des réactions de substitution. L'étude que nous avons réalisée porte sur trois isotopes du Lu, les isotopes naturels, ^{175}Lu et ^{176}Lu , et un isotope instable, ^{173}Lu . Les expériences se sont déroulées sur **DANCE** pour les réactions de capture radiative et sur le **tandem d'Orsay** pour les réactions de substitution. Bénéficiant d'une conception moderne, **DANCE** est un outil efficace pour la mesure de la décroissance γ du noyau composé formé dans la réaction de capture neutronique. Ce détecteur est associé à un accélérateur de protons et une cible de spallation qui permet d'obtenir de hauts flux de neutrons dans une large gamme en énergie. Une première série d'expériences a été réalisée fin 2007 sur des cibles de ^{175}Lu , ^{176}Lu (enrichie à **SIDONIE**) et de $^{\text{nat}}\text{Lu}$. Une deuxième campagne de mesures avec des cibles de ^{173}Lu , hautement radioactives, fabriquées au **LANL** [Tay09], a été lancée à partir de 2008. Ces expériences ont permis d'extraire des mesures absolues de sections efficaces de capture radia-

tive (Fig. 1). Ce type de mesure sur des noyaux instables de grande durée de vie permet de contraindre les modèles de réactions. Dans la méthode de substitution, le noyau composé est produit par une réaction alternative à la capture neutronique, sur une cible stable, et sa décroissance est mesurée en coïncidence avec l'éjectile de la réaction. La mesure de la probabilité d'émission γ du noyau composé apporte alors des informations utilisées par les modèles de réactions [Esc10]. Ces informations sont pertinentes si, d'une part, la distribution en spin du noyau composé est connue et si, d'autre part, elle n'est pas éloignée de celle mettant en jeu un neutron en voie d'entrée [Sci10]. Un programme expérimental réalisé en collaboration avec le **CENBG** et le **LLNL**, a démarré en 2008. Il vise l'étude de différentes voies de réaction de substitution. En particulier, la méthode a été explorée pour les réactions: $^{174}\text{Yb}(^3\text{He},p\gamma)^{176}\text{Lu}$ et $^{174}\text{Yb}(^3\text{He},\alpha\gamma)^{173}\text{Yb}$, correspondant respectivement, aux réactions de capture $^{175}\text{Lu}(n,\gamma)$ et $^{172}\text{Yb}(n,\gamma)$, bien connues. Cette expérience a été réalisée en 2010, auprès de l'**accélérateur tandem**

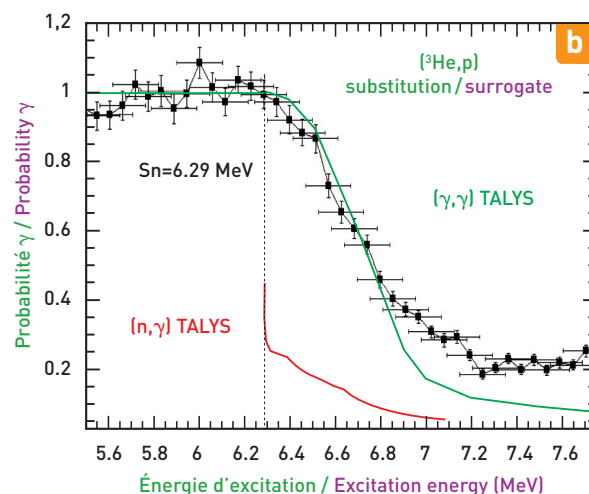
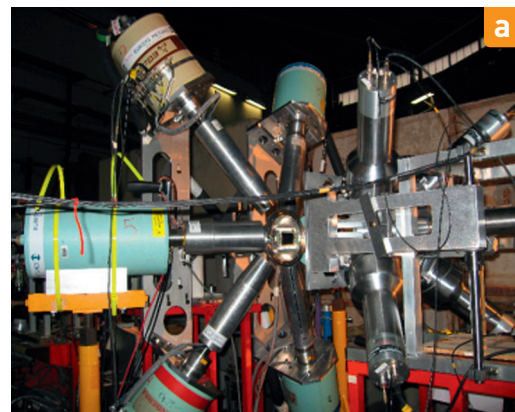


Fig. 2 : **a** Photographie des détecteurs à Orsay. **b** Probabilité d'émission γ pour le noyau composé ^{176}Lu , formé par $(^3\text{He},p)$ comparée aux calculs pour les réactions (n,γ) et (γ,γ) .

a Picture of the detectors at Orsay. **b** Gamma decay probabilities for the compound nucleus ^{176}Lu formed in $(^3\text{He},p)$ reaction compared to the calculated ones for the radiative capture and (γ,γ) reaction.

d'Orsay. Les probabilités d'émission γ ont été obtenues dans les deux réactions de transfert (Fig. 2). Ces quantités sont comparées à celles obtenues à l'aide du code TALYS, ajustées sur les données expérimentales existantes obtenues, par exemple sur **DANCE**, pour les captures radiatives correspondantes. La comparaison des courbes montrent une grande différence entre les réactions de substitution et de capture radiative, essentiellement dues aux différences de distribution en spin. Les probabilités d'émission γ obtenues dans ces réactions de transfert ne peuvent pas être utilisées pour déterminer les sections efficaces de capture radiative [Bou11]. D'autres réactions restent à étudier, notamment (p,d) et (d,p) , prochainement effectuées avec le dispositif du **LLNL: STARS-LIBERACE**. ●

Mesures de sections efficaces de produits de fission

La production et l'accumulation des produits de fission

modifient l'environnement du transport et du bilan neutroniques dans les systèmes nucléaires et affectent ainsi la réactivité. Afin de modéliser précisément ces systèmes, la connaissance des sections efficaces neutroniques pour les réactions de (n,2n) (un neutron entrant-deux neutrons sortants), (n,3n) (un neutron entrant-trois neutrons sortants) et (n, γ) (capture neutronique, un neutron entrant-rayons gamma sortants) sur les produits de fission est nécessaire. Bien que la majorité des produits de fission

promptes ont des demi-vies trop courtes (typiquement quelques heures ou moins) pour des mesures directes avec les techniques actuelles, l'étude des isotopes voisins riches en neutrons peut aider à guider et à éprouver la théorie. Comme il existe peu de mesures sur les isotopes les plus lourds dans la région des produits de fission et que ces mesures présentent souvent un intérêt de physique fondamentale, nous avons entrepris l'étude d'un certain nombre de ces noyaux.

Les premières mesures avec le spectromètre gamma à haute résolution **GEANIE** au **LANSCE** ont porté sur les

sections efficaces de réactions (n,2n) et (n,3n) pour un certain nombre d'isotopes dont : ^{93}Nb , ^{100}Mo , ^{103}Rh , ^{115}In , ^{124}Sn , ^{127}I , ^{130}Te , ^{138}Ba , et plus récemment, à l'aide de cibles gazeuses, ^{86}Kr et ^{136}Xe . À titre d'exemple, les fonctions d'excitation pour la diffusion inélastique et les réactions de (n,2n) et (n,3n) sur le ^{136}Xe sont représentées sur la *Fig. 1 [Fot07]*, et les raies gamma observées pour différents noyaux résiduels sont données sur la *Fig. 2*. Les résultats à partir d'expériences sur le ^{124}Sn sont donnés dans *[Fot11]*. L'analyse de cette grande quantité de données se poursuit.

Fission product cross section measurements

The production and accumulation of fission products

modifies the environment for neutron transport and neutron economy in nuclear systems, thus affecting the system reactivity. In order to accurately model these systems, knowledge of the neutron cross sections for one-neutron-in-two-neutrons-out reactions (n,2n), one-neutron-in-three-neutrons-out reactions (n,3n), and neutron capture reactions (neutron-in-gamma-rays-out reaction - (n, γ)) on fission product nuclei are needed. Although the majority of prompt fission product nuclei have half lives too short (typically hours or less) for direct mea-

surements with current techniques, the study of nearby neutron-rich isotopes, can help guide and benchmark theory. Because there are few measurements on the heaviest stable isotopes in the fission product region, and there is often basic physics interest in these measurements, we have undertaken a study of a number of these nuclei.

First measurements with the **GEANIE** high-resolution gamma-ray spectrometer at **LANSCE** have focused on the (n,2n) and (n,3n) reaction cross sections for a number of isotopes including: ^{93}Nb , ^{100}Mo , ^{103}Rh , ^{115}In , ^{124}Sn , ^{127}I , ^{130}Te , ^{138}Ba , and more recently using gas targets,

^{86}Kr and ^{136}Xe . Excitation functions for inelastic scattering, (n,2n) and (n,3n) reactions on ^{136}Xe are shown in *Fig. 1 [Fot07]*, and the observed gamma rays for different product nuclei are shown in *Fig. 2*. Results from the ^{124}Sn experiment are given in *[Fot11]*. Analysis of these large data sets is continuing.

Recent work using up-to-date nuclear reaction theory to calculate the fission-yield-weighted average cross sections of the full set of fission product nuclei has been performed *[Wat10]*, and demonstrates the importance of including a large sampling of the product nuclei rather than a small subset. Significant

Des travaux récents, basés sur les dernières avancées en théorie des réactions nucléaires, sur le calcul des sections efficaces moyennes de l'ensemble des produits de fission [Wat10] démontrent l'importance de la prise en compte d'un large échantillon de ces noyaux. Des différences significatives dans les sections efficaces moyennes de (n,2n) et (n,3n) et encore plus significatives dans le cas de la capture neutronique sont observées par rapport aux calculs plus anciens. Ces calculs démontrent la nécessité de disposer de modèles nucléaires précis pour prédire les sections efficaces pour un large éventail de noyaux et de réactions. Le cas le plus difficile du point de vue théorique est la capture neutronique, du fait que les calculs dépendent fortement des paramètres de chaque isotope. Plus de données sont nécessaires afin de tester et développer la théorie et les modèles de

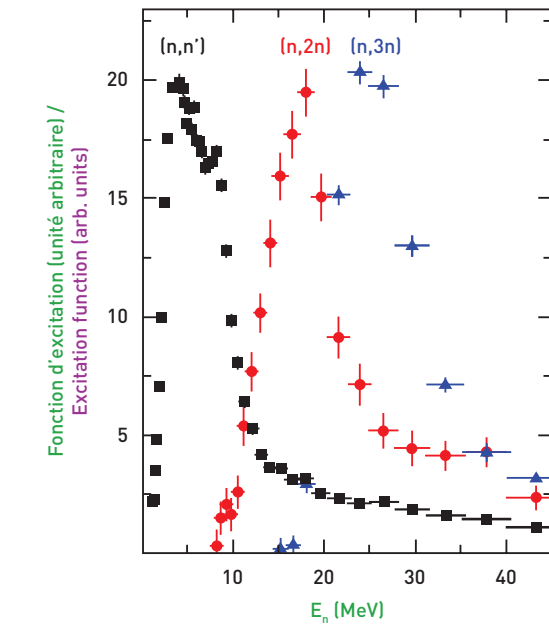


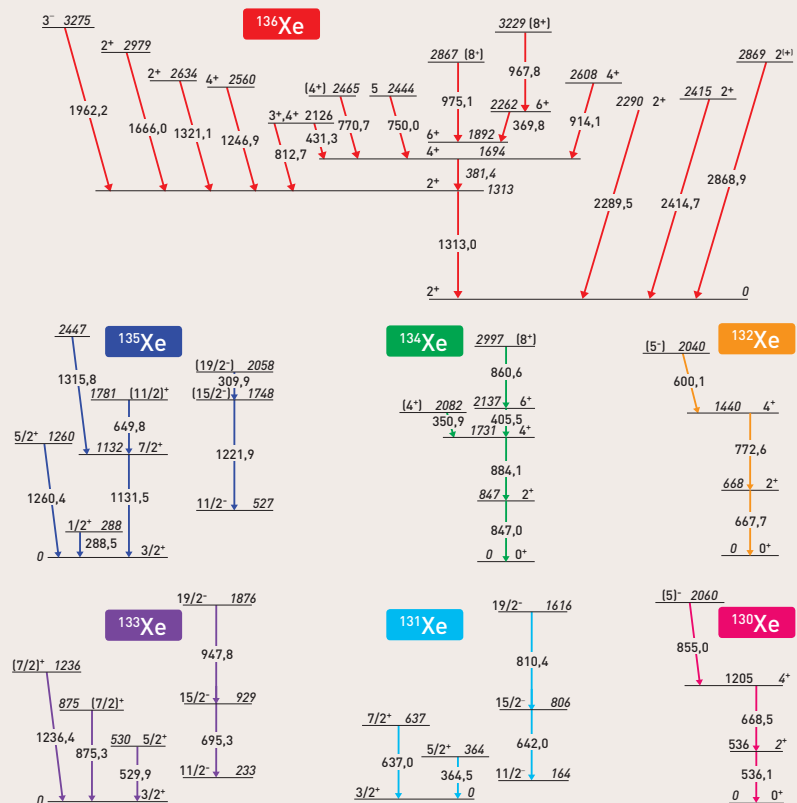
Fig. 1 : Fonctions d'excitation de réactions induites par neutrons sur ^{136}Xe . La diffusion inélastique (n,n') est indiquée par les carrés, et les réactions (n,2n) et (n,3n) par les cercles et triangles respectivement. Les énergies des trois raies γ sélectionnées sont données en légende.

Excitation functions for neutron-induced reactions on ^{136}Xe . Inelastic scattering (n,n') is shown as square points, (n,2n) as circles, and (n,3n) as triangles. Gamma-ray energies for the three selected transitions are given in the legend.

la capture neutronique et à terme augmenter la précision des prédictions et étendre ces prédictions aux régions des noyaux plus riches en neutrons. Ce sera l'objectif des travaux futurs. ●

Fig. 2 : Niveaux d'énergie nucléaire et raies γ observés par l'expérience GEANIE sur ^{136}Xe indiqués pour les noyaux produits par diffusion inélastique et les réactions (n,2n) à (n,7n).

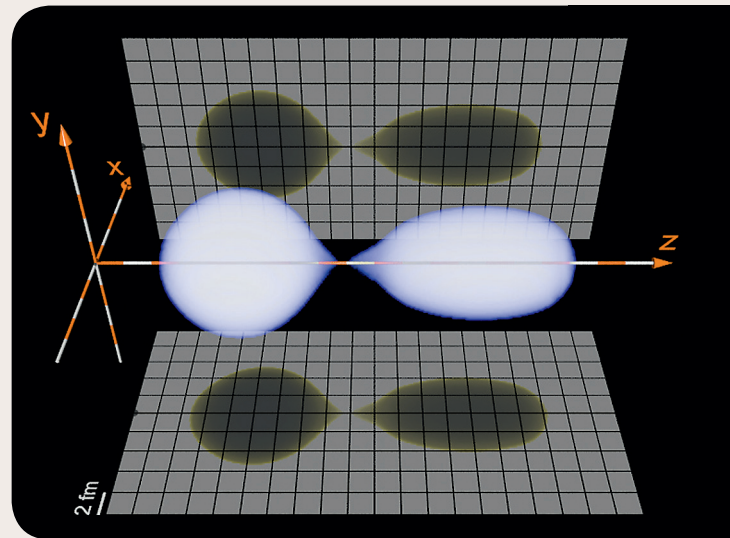
Nuclear energy levels and gamma-ray transitions observed in the GEANIE experiment on ^{136}Xe are shown for product nuclei following inelastic scattering, and (n,2n) to (n,7n) reactions.



changes in the (n,2n) and (n,3n) average cross sections were calculated and even more significant differences in the average neutron capture cross sections compared to previous calculations were observed. These calculations show the importance of having accurate nuclear models to predict cross sections for a wide range of nuclei and reactions. ●

Microscopic description of nuclear fission

More than 70 years after its discovery, an accurate description of nuclear fission based on the laws of quantum mechanics remains a formidable challenge. Yet, such a predictive theory remains the key to precise simulations of the aging of nuclear material in the current stockpile, criticality in new generations of nuclear reactors or the formation of the elements in the universe. The science involved requires detailed knowledge of the quantum many-body problem, the nature of the interactions between nucleons, the emergence of collectivity from intrinsic degrees of freedom, etc. Last but not least, it is also an extremely complex computational problem, with some of the largest supercomputers in the world being put to the task. A collaboration between the **CEA/DAM** and **LLNL** was formed a couple of years ago to tackle some of these aspects. On the physics side, some effort was put on achieving a better quantum-mechanical description of the scission point (the



Description microscopique de la fission nucléaire

Plus de 70 ans après la découverte du processus de fission nucléaire, en proposer une description précise basée exclusivement sur les lois de la mécanique quantique reste un challenge complexe. Le pouvoir prédictif d'une telle théorie est pourtant une nécessité pour pouvoir simuler précisément le vieillissement des matières nucléaires utilisées actuellement, la criticité des nouvelles générations de réacteurs nucléaires, ou encore la formation des éléments dans l'univers. Cette théorie doit traiter simultanément plu-

sieurs problèmes tels que le problème à N corps quantiques, l'interaction effective nucléon-nucléon, l'émergence d'un comportement collectif depuis des degrés de liberté intrinsèques, etc. Enfin, la complexité numérique de cette approche est très importante, et requiert l'utilisation de supercalculateurs parmi les plus puissants au monde. Une collaboration entre le **CEA/DAM** et le **LLNL** a été lancée ces dernières années pour développer cette théorie. La description quantique du point de scission (le point où le noyau se sépare

en deux – ou plus – fragments) (*Fig. 1*) a été améliorée récemment. Alors que les deux fragments devraient être indépendants l'un de l'autre, ils restent liés dans la formulation standard du problème. Le groupe du **LLNL** a montré qu'une transformation mathématique permet de lever cette liaison artificielle [*You11*]. Un autre aspect important du processus de fission qui est négligé par les modèles standards théoriques est la dissipation de l'énergie dans les modes collectifs. Pendant le processus de séparation du noyau en fragments, il y a un échange permanent d'énergie entre les degrés de liberté nucléoniques et collectifs. Cette dissipation a des conséquences sur l'énergie libérée au cours du processus total, mais est particulièrement difficile à modéliser. Dans un article commun **CEA/LLNL** publié récemment [*Ber11*], un cadre théorique

point where the nucleus finally breaks into two or more fragments) (Fig. 1). Indeed, while the two fragments are in principle independent of one another, they remain entangled when the standard formulation of the problem is used. The LLNL group showed that by performing an adequate mathematical transformation, this artificial entanglement could be practically removed [You11].

< Fig. 1 : Exemple de configuration de scission calculée pour le noyau ^{240}Pu . Le fragment gauche est un noyau sphérique ^{132}Sn , le fragment droit est un noyau déformé ^{108}Ru .
Example of a calculated scission configuration for ^{240}Pu . The left fragment is a spherical ^{132}Sn , the right fragment is a deformed ^{108}Ru .

Another important aspect of the fission process that is poorly accounted for by standard theoretical models is the dissipation of energy in the collective modes. While the nucleus is in the process of splitting, there is a constant exchange of energy between nucleonic and collective degrees of freedom: this dissipation has an impact on the energy release in the whole process, but is especially difficult to model. In a joint article between LLNL and CEA recently published [Ber11], the theoretical framework to describe this phenomenon was presented, and the practical implementation is under way. The collaboration is currently working on the dynamics of neutron-induced fission in actinide nuclei. The CEA group has shown that additional degrees of

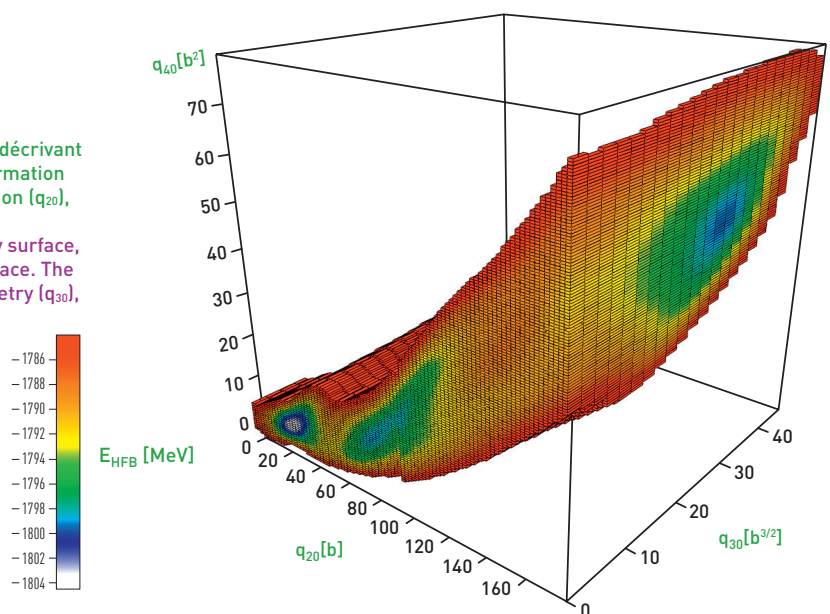
freedom have to be explored, in order to allow a continuous evolution of the fissioning system in the deformation subspace [Dub11]. This latest becomes a 3-, 4- or even 5-dimensional subspace, and this leads to a very heavy computational problem (Fig. 2). Visualizing the results is also quite challenging, even with recently developed specific tools. In addition to these scientific results and developments, the collaboration was also among the organizers of a topical meeting on the “Theory of Nuclear Fission” that took place in January 2012 at GANIL. The meeting was funded under the FUSTIPEN and provided a venue to discuss the latest advances in the theoretical models used to describe the nuclear fission process. ●

Fig. 2 : Exemple de carte d'énergie potentielle calculée décrivant l'évolution du noyau ^{240}Pu dans un sous-espace de déformation à trois dimensions. Les degrés de liberté sont l'élongation (q_{20}), l'asymétrie (q_{30}), et le moment hexadécapolaire (q_{40}).
Example of a calculated 3-dimensional potential energy surface, describing the evolution of ^{240}Pu in a deformation subspace. The degrees of freedom are the elongation (q_{20}), the asymmetry (q_{30}), and the hexadecapolar moment (q_{40}).

de description de la dissipation a été proposé, et une implémentation numérique est en cours de développement. La collaboration se concentre actuellement sur la dynamique de la fission induite par neutron des actinides. Le groupe du CEA a montré que de nouveaux degrés de libertés doivent être explorés afin d'obtenir une évolution continue du système fissionnant dans le sous-espace de déformation [Dub11]. Les sous-espaces de déformation sont alors de dimension 3 ou 4 et rendent la résolution numérique très lourde (Fig. 2). La visualisation des résultats est également

complexe, même en utilisant des outils récents spécifiquement développés à cet effet. En plus de ces résultats et développements scientifiques, la collaboration a participé à l'organisation d'une conférence sur le thème de la “Théorie de la

fission nucléaire” qui a eu lieu en janvier 2012 au GANIL. Cette conférence a été financée dans le cadre de FUSTIPEN et a permis de comparer et discuter les dernières avancées dans les modèles permettant la description de la fission. ●



Initiation par choc et détonations dans les explosifs

Les explosifs sont des composés chimiques métastables

qui, lorsqu'ils sont soumis à des chocs suffisamment intenses, libèrent très rapidement l'énergie par des réactions exothermiques de décomposition. Un aperçu des processus d'initiation peut être obtenu en réalisant des expériences de chocs bien définies, dans lesquelles les profils d'ondes associés à la transition choc-détonation (TCD) sont mesurés *in situ* par des jauges électromagnétiques placées au sein de l'explosif. Les explosifs liquides homogènes sont initiés sous choc par un mécanisme d'explosion thermique, alors que les explosifs solides hétérogènes sont initiés par des points chauds localisés près des inhomogénéités [She09]. La transition vers une détonation stationnaire est un processus transitoire qui dure

quelques μs . L'onde de détonation stationnaire est un processus bien défini caractérisé par un front de choc inerte (pic de von Neumann - vN), suivi d'une zone de réaction (CRZ) dans laquelle les réactions chimiques entretiennent la détonation, et d'une onde de raréfaction de Taylor dépendant du diamètre de la charge. Dans le cadre de deux projets communs LANL-SNL-CEA, nous nous intéressons plus particulièrement : *i*) à la mesure de profils d'ondes associés à l'initiation et à la TCD afin de mieux comprendre la chimie mise en jeu, et *ii*) à mesurer les caractéristiques temporelles et spatiales de la zone de réaction pour des écoulement mono et bidimensionnels. Nos recherches ont porté principalement sur un explosif liquide écolo, le nitrométhane (CH_3NO_2 , NM), et sur diverses compositions solides.

Les expériences d'initiation par choc utilisent la technique des jauges électromagnétiques multibrins développée au LANL, qui permet de mesurer *in situ*, les profils de vitesse matérielle associés à la TCD en 10 positions Lagrangiennes. Des études ont ainsi été réalisées sur l'initiation homogène du NM sensibilisé par l'ajout d'une base organique de diéthylènetriamine (DETA). Afin d'induire des chocs bien calibrés dans des solutions NM/DETA contenant respectivement 0,25, 0,75, 2,0 et 5,0 % de DETA massiques, les expériences ont été réalisées sur un canon à gaz de gros calibre au LANL, et sur canon à poudre simple étage au CEA. Des profils de vitesse matérielle représentatifs, mesurés par jauges lors d'une expérience sur un mélange DETA/NM (99,75/0,25% massique) choqué à 8,5 GPa, sont présentés sur la Fig. 1a. Des profils d'ondes très similaires ont été obtenus dans chaque laboratoire. Les résultats de ces expériences sont présentés sur la Fig. 1b. La sensibilité à l'initiation par choc des mélanges DETA/NM augmente assez rapidement entre 0 et 2% de DETA, puis elle augmente ensuite faiblement de 2 à 5% de DETA [She06,Cro07].

Bien que la détonation des explosifs ait fait l'objet de nombreux travaux, les mesures précises du pic de von Neumann et de la zone de réaction sont encore rares. Ainsi, les estimations de la largeur de la zone de réaction du NM vont de 1 μm à 1 mm. Ces incohérences sont dues principalement aux difficultés de la mesure. Le travail de nos trois laboratoires s'est donc focalisé récemment sur l'obtention de mesures précises de la zone de réaction, en utilisant les dernières techniques d'interférométrie laser permettant d'obtenir une résolution temporelle de 1-2 ns. La Fig. 2a présente les résultats des mesures réalisées sur NM, à partir desquelles nous estimons la durée de la zone de réactions à 100–150 ns et sa largeur à 600–900 μm [Bou09]. Nous sommes actuellement en train d'étendre ces mesures en 2-D en utilisant un ORVIS permettant de réaliser la mesure le long d'un segment sur la cible (Fig. 2b). ●

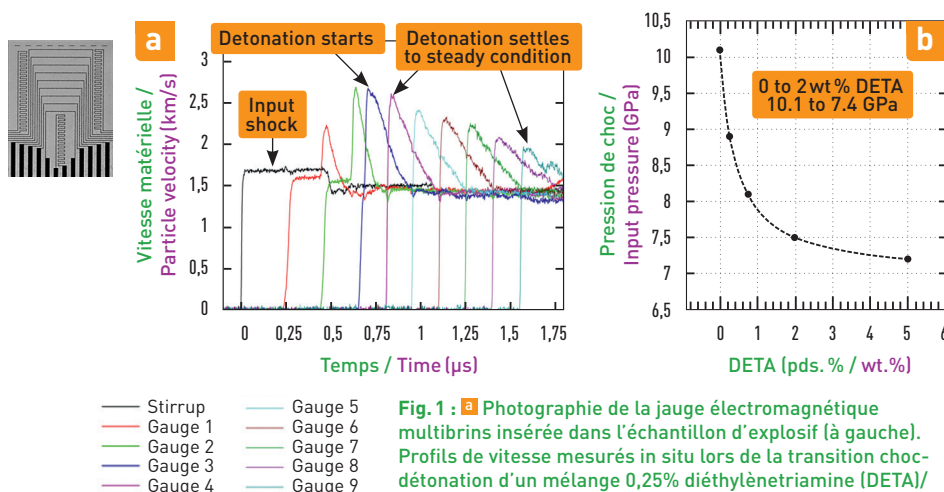


Fig. 1 : **a**) Photographie de la jauge électromagnétique multibrins insérée dans l'échantillon d'explosif (à gauche). Profils de vitesse mesurés *in situ* lors de la transition choc-détonation d'un mélange 0,25% diéthylènetriamine (DETA)/nitrométhane choqué à 8,5 GPa (à droite). **b**) Évolution de la

pression de choc nécessaire pour obtenir une transition choc-détonation en 0,5 μs dans des solutions NM/DETA en fonction du pourcentage massique de DETA. L'addition de 2 % de DETA permet de diminuer la pression d'initiation de 10,1 à 7,4 GPa.

a) Photograph of the electromagnetic gauge package that is inserted into the explosive sample (left). In-situ shock-to-detonation wave profiles for 0.25% diethylenetriamine (DETA)/nitromethane shocked to 8.5 GPa (right). **b**) Shock input pressure required to obtain a time-to-detonation of 0.5 μs in NM/DETA solutions as a function of wt.% DETA. Addition of just 2 wt% DETA decreases the initiation pressure for this time-to-detonation from 10.1 to 7.4 GPa.

Shock initiation and detonation of high explosives

High explosives (HE) are metastable chemical compounds that rapidly release energy in exothermic decomposition reactions when initiated by shock compression and during subsequent detonation. Insights into the initiation process can be obtained by performing well-defined shock experiments, in which wave profiles associated with the build-up to detonation are measured *in-situ* using embedded gauging. Liquid (homogeneous) HE shock initiates by a thermal explosion mechanism, whereas solid (heterogeneous) HE initiates by “hot-spots” with chemistry initiating near heterogeneities [She09]. The buildup to a steady detonation is an orderly process occurring over a few μs . A steady detonation is also a well-defined process with a nearly non-reactive shock in the front (von Neumann spike - vN), followed by the “chemical reaction zone” (CRZ) where chemical reactions sustain the detonation, and a “Taylor Wave” which depends on the charge size. The chemical processes in the CRZ are unknown, but details of the wave dynamics are necessary for modeling detonation propagation. Under two joint LANL-SNL-CEA projects, we are focusing on: *i*) measuring the wave processes associated with shock initiation to aid understanding the chemistry, and *ii*) quantifying the temporal and spatial characteristics of the CRZ in 1- and 2-dimensions. Our investigations have focused on the liquid HE nitromethane (CH_3NO_2 , NM), and solid weapons-type HEs. Shock initiation experiments employ an electromagnetic gauging technique developed at LANL and transitioned to CEA, which is used to measure, *in-situ*, the reactive wave build-up process at 10 Lagrangian positions. Homogeneous initiation studies were done on liquid NM chemically sensitized with an organic base diethyl-

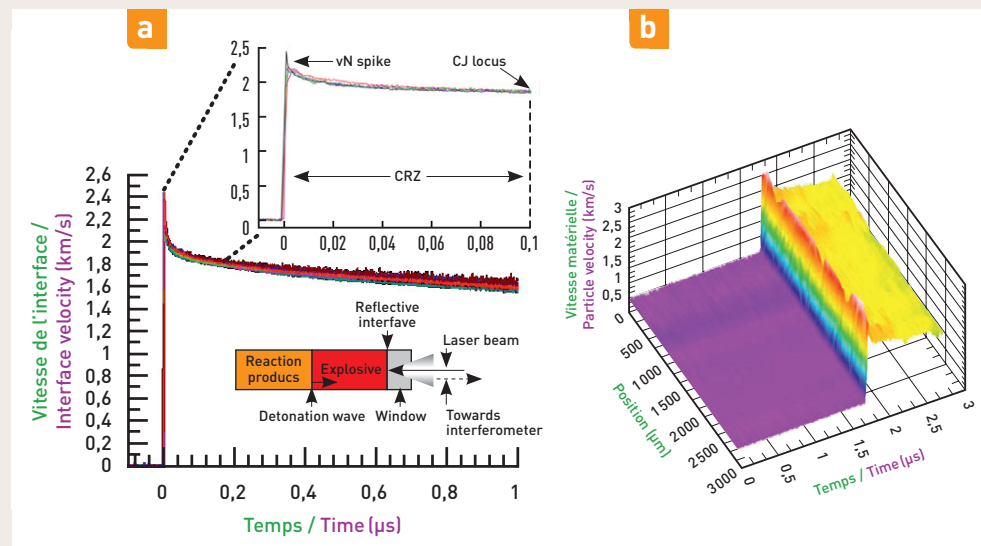


Fig. 2 : **a** Profils de vitesse mesurés par VISAR à l'interface NM/PMMA dans différentes expériences. Un schéma du dispositif expérimental est présenté dans l'insert. La zone de réaction (CRZ) est délimitée par le pic de von Neumann au niveau du front de choc, et par le point sonique de Chapman-Jouguet (CJ) à l'autre extrémité. La zone de réaction du NM dure environ 100–150 ns et mesure entre 600 et 900 μm [Bou09]. **b** Profils de vitesse d'interface NM/PMMA mesurés par ORVIS (VISAR ligne) sur une largeur d'environ 2 mm pour du NM contenant 1.2 % en masse de micro ballons de verre creux.

a Measured detonation profiles of NM from several experiments at a NM/PMMA interface obtained using VISAR interferometry. The chemical reaction zone (CRZ) is defined by the vN spike at the leading edge, and sonic/CJ locus behind the front. The experimental set-up is shown in the inset. The reaction zone is determined to be 100–150 ns (600–900 μm) [Bou09]. **b** Particle velocity profiles recorded spatially over a ~ 2 mm line at NM/PMMA interface similar to **a** but for detonating NM containing 1.2 wt% hollow glass microballoons.

entriamine (DETA). Experiments were performed using a large bore gas gun at LANL and single stage powder gun at CEA to drive well-defined shocks into NM/DETA solutions with 0.25, 0.75, 2.0 and 5.0 wt% DETA. Representative particle velocity profiles obtained from embedded gauges are shown in Fig. 1a from an experiment on DETA/NM (99.75/0.25 wt%) with an input shock of 8.5 GPa. Similar waveforms were obtained at each Laboratory. The results from these experiments are plotted in Fig. 1b. The shock initiation sensitivity of the DETA/NM mixtures increases from 0 to 2 wt% DETA rather rapidly but only a small increase occurs from 2 to 5 wt% DETA solutions [She06, Cro07].

Although HE detonations have been extensively studied, accurate measurements of the vN and CRZ are sparse. For example, estimates for the NM CRZ range from 1 μm to 1 mm. These discrepancies are due to measurement difficulties. Our work at all three Laboratories has been centered on accurate measurements of the CRZ using the newest laser-based interferometry techniques available (VISAR, PDV, line ORVIS), with 1-2 ns time resolution. Interferometry measurements of steady detonation in NM are shown in Fig. 2a from which we estimate the CRZ of NM to be 100–150 ns (600–900 μm) [Bou09]. We are currently expanding our measurements to 2-D using line ORVIS which measures the detonation profile across a line on the target (Fig. 2b). ●

Experimental study of shock induced chemistry in explosives

The goal of this collaboration is to improve explosive decomposition modeling

by enhancing our knowledge of the involved molecular processes through spectroscopy of reactive materials under static and dynamic high pressure. We concentrated on studies of small molecules, which are the intermediates and end products of detonations. Diamond anvil cells were used to compress CO₂ to high pressures and temperatures, simulating the environment encountered in the explosive detonation. We found that the harmonics $\nu_3+2\nu_2+\nu_1$ were not observed above 20 GPa, probably due to the I-III phase transition. At 10 GPa, a dramatic frequency decrease

and peak narrowing were observed at 100°C. At 30 GPa and 150°C, we observed a splitting of the harmonic $\nu_3+2\nu_2$. *Fig. 1* shows this evolution of the spectra and the splitting of the $\nu_3+2\nu_2$ harmonics between 50°C and 220°C.

Nitrogen dioxide is implicated as an intermediate in one of the possible pathways for initiation of RDX (cyclotrimethylenetrinitramine). We measured the temperature and pressure dependence of the $\nu_2+\nu_3$, $\nu_1+\nu_3$ combination bands, which shifted to higher frequencies with pressure as expected. The observations were consistent with earlier results as being from N₂O₄ converted to the ionic form NO⁺:NO₃⁻.

We studied the laser shock behavior of nitromethane as the first member of a homologous series of nitroaliphatic compounds. We used our previously developed ultrafast dynamic ellipsometry (UDE) method to measure the time dependent shock and particle velocities as well as the index of refraction of the shocked material for liquid nitromethane. A very interesting effect was discovered for liquid nitromethane shocked above 7.9 GPa and shown in the two portions of *Fig. 2*. *Fig. 2a* is the time dependent phase measured for liquid nitromethane shocked to 7.0 GPa, showing normal behavior. However, *Fig. 2b* from liquid nitromethane shocked

Étude expérimentale de la réactivité chimique des explosifs sous choc

L'objectif de cette collaboration est d'améliorer les modèles

descriptifs de la décomposition réactive des explosifs en approfondissant notre connaissance des mécanismes moléculaires mis en jeu à l'aide d'expériences de spectroscopie sous pression statique et dynamique. Nous nous sommes concentrés sur l'étude de molécules que l'on peut trouver comme intermédiaires réactionnels ou comme produits de détonation.

Les cellules à enclumes de diamant ont été utilisées pour étudier le comportement du CO₂ par spectroscopie vibra-

tionnelle dans des gammes de pressions et températures rencontrées en régime de détonation. Au-delà de 20 GPa, le mode de vibration harmonique $\nu_3+2\nu_2+\nu_1$ n'est plus observé, probablement en raison de la transition de phase I-III. À 10 GPa, une chute de fréquence brutale et un affinement de raie ont été observés à partir de 100°C. À 30 GPa et 150°C, un dédoublement de la bande harmonique $\nu_3+2\nu_2$ a été observé. La *Fig. 1* montre l'évolution des spectres et le dédoublement de ce mode entre 50 et 220°C.

Le dioxyde d'azote est un intermédiaire intervenant dans l'un des chemins

réactionnels envisagés pour décrire l'initiation du RDX (cyclotriméthylènetrinitramine). Nous avons déterminé l'évolution sous pression et température des bandes de combinaison $\nu_2+\nu_3$ et $\nu_1+\nu_3$. Celles-ci se déplacent vers les hautes fréquences avec la pression. Nos observations sont en accord avec la littérature et révèlent une transformation du dioxyde d'azote en espèce ionique NO⁺:NO₃⁻.

Le comportement sous choc laser du nitrométhane, petite molécule de la série des nitroaliphatiques, a été étudié par ellipsométrie dynamique ultrarapide (EDU). Cette technique permet de déterminer les vitesses de choc et de particules, ainsi que de mesurer l'indice de réfraction du matériau sous choc. Un effet très intéressant a été observé pour du nitrométhane choqué au-delà de 7,9 GPa. La *Fig. 2a* montre une évolution temporelle du signal de phase à 7 GPa

to 7.9 GPa shows a sudden decrease in the velocity of the Al surface shortly after the arrival of the shock wave, which could be explained by the material near the nitromethane/Al interface becoming less compressible, the material near the interface expanding, or the energy near the Al interface being absorbed in an early endothermic reaction step. Future spectroscopy experiments will be performed to provide chemically specific information on this puzzle.

We have added UV/visible spectroscopy capability to our UDE experiments at LANL to be used to measure species evolution as a function of time after the shock. In parallel, at Le Ripault we are using time resolved UV/visible spectroscopy to observe laser-induced decomposition at high pressures and temperatures in a diamond anvil cell. In addition, we are developing at Le Ripault a laser shock/spectroscopy

capability in the nanosecond regime to bridge the gap between the LANL “first half nanosecond” experiments and more traditional plate impact experiments. ●

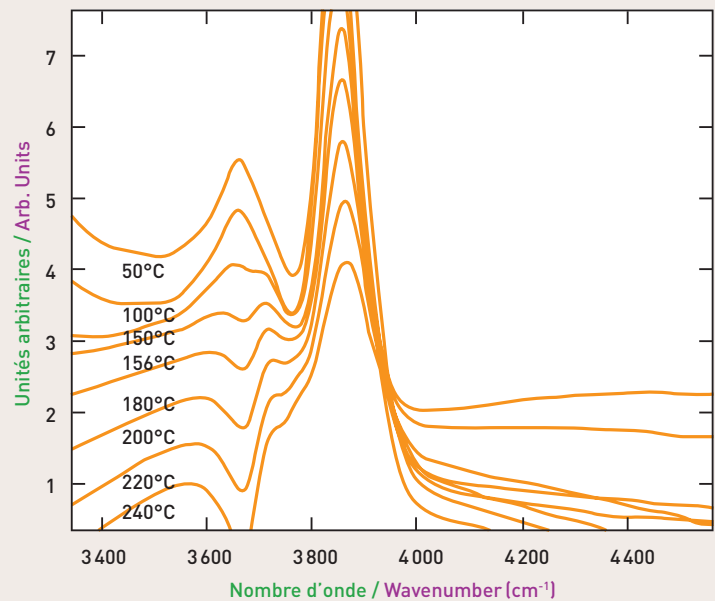


Fig. 1 : Dépendance en température des spectres d'absorption IR du CO₂ dans la région des harmoniques $\nu_3+2\nu_2$. Temperature dependence of the IR absorption spectrum of the $\nu_3+2\nu_2$ harmonic of CO₂.

qui présente un comportement normal. En revanche, à 7,9 GPa (Fig. 2b), on observe une chute soudaine de la vitesse de la surface d'Al peu après l'arrivée du choc. Ceci pourrait être expliqué par une chute de compressibilité ou une expansion du matériau près de l'interface nitrométhane/Al, ou encore par une absorption d'énergie près de l'interface d'Al, due à une étape réactionnelle endothermique. Des expériences de spectroscopie spécifiquement dédiées à l'étude des mécanismes réactionnels seront entreprises prochainement pour éclaircir ce point.

La technique de spectroscopie d'absorption UV/visible a été implantée au sein du dispositif d'EDU du LANL afin d'étudier l'évolution des espèces en fonction du temps après l'arrivée du choc. En parallèle, au Ripault, on utilise ce même type de technique pour étudier la décomposition induite par

laser de matériaux confinés en cellule à enclumes de diamant. D'autre part, nous développons également au Ripault une expérience de spectroscopie sous choc laser à l'échelle de la nanoseconde.

Celle-ci permettra de faire la jonction entre les expériences du LANL dédiées à l'étude des 500 premières picosecondes et les expériences plus traditionnelles d'impact de plaque. ●

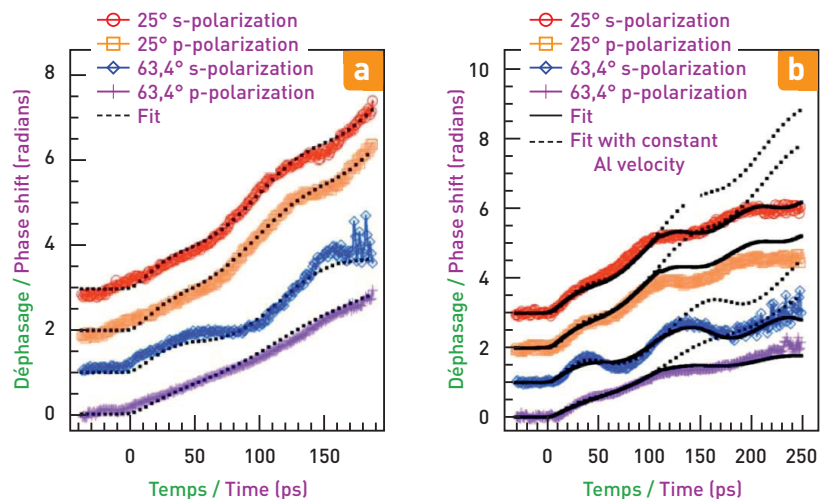


Fig. 2 : Données obtenues par ellipsométrie dynamique ultra-rapide sur du nitrométhane liquide choqué à 7 GPa a) et 7,9 GPa b) (voir le texte pour plus de détails). Ultrafast dynamic ellipsometry data from liquid nitromethane shocked to a) 7.0 GPa and b) 7.9 GPa (see text for further details).

Simulations de dynamique moléculaire quantique de mélanges sous conditions extrêmes

Ce projet porte sur la modélisation du comportement des matériaux dans des conditions extrêmes de température et de densité en utilisant des simulations de dynamique moléculaire quantique (QMD), avec une attention particulière au régime dit de la « Warm Dense Matter ». Ce régime s'étend de la densité du solide à plusieurs fois cette dernière, et des températures comprises entre quelques électrons-volts à plusieurs centaines d'électrons-volts (10^4 - 10^7 K). Il recouvre des environnements divers rencontrés dans l'intérieur des planètes géantes ou des exoplanètes, ou les capsules

à fusion par confinement inertiel. Cet état complexe (*Fig. 1*) est caractérisé par un mélange d'atomes, de molécules, d'ions et d'électrons libres et nécessite un traitement faisant appel à la mécanique quantique, très coûteux en temps de calcul. Nous avons appliqué et utilisé plusieurs approximations basées sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) [*Blo03, Maz04a, Maz04b, Col05a, Col05b, Maz05*] pour couvrir la totalité de ce domaine thermodynamique. La méthode permet d'obtenir de manière auto-cohérente les propriétés statiques (équations d'état), dynamiques (dif-

fusion/viscosité), optiques (opacité, absorption) à partir des trajectoires et des fonctions d'ondes.

Nous avons appliqué cette technique à de nombreux systèmes simples tels que l'hydrogène, l'oxygène, l'azote, l'aluminium [*Maz05*], l'étain [*Kre07*], ou le lithium ou des éléments complexes comme les isotopes d'hydrogène (DT) [*Kre11*], l'hydruide de lithium (LiH) [*Hor08, Hor09a, Hor09b*], les matériaux hydrocarbonés comme le CH [*Maz04a*] ou le monoxyde de carbone et d'azote (CO et NO) [*Maz04a, Maz04b*]. La comparaison avec les expériences de com-

Quantum molecular dynamics simulations of mixtures at extreme conditions

The project concentrates on modeling materials at extreme conditions, especially within the Warm Dense Matter (WDM) regime, through sophisticated quantum molecular dynamics (QMD) simulations. The WDM regime spans conditions from near to many-times-compressed solid density and from a few to many hundreds of electron volts (10^4 - 10^7 K) covering a diverse set of environments, including the interiors of giant and exo-planets, plasmas in high-energy

density generators, inertial confinement capsules, and nuclear weapons. The material state (*Fig. 1*) resembles a "roiling soup" of atoms, molecules, ions, and free electrons whose complexity necessitates a quantum mechanical treatment of the electrons, thereby requiring substantial computational resources. We have applied and developed several flavors of finite-temperature density functional theory (DFT) in order to span this broad range of temperature and densities [*Blo03,*

Maz04a, Maz04b, Col05a, Col05b, Maz05].

The methods produce a self-consistent set of static (equation-of-state), dynamical (diffusion/viscosity), and optical (opacities) properties from the MD ion trajectories and electronic state functions. We have applied this technique to a wide variety of pure systems consisting of, for example, hydrogen, oxygen, nitrogen, aluminum [*Maz05*], tin [*Kre07*], and lithium as well as mixtures of hydrogen isotopes (DT) [*Kre10*], lithium hydride (LiH) [*Hor08, Hor09a, Hor09b*], hydrocarbons (CH) [*Maz04b*] in addition to nitrogen (NO) [*Maz04a*] and carbon (CO) [*Maz04b*] oxides. Comparisons with exploding wire and shock compression experiments, either gas gun or Z-pinch, yield particularly good agreement over a range of conditions (*Fig.2*). The QMD approach has proved particularly effective in treating mixtures by including all inter- and intra-species interactions for the full composite fluid.

pression par choc obtenues par canon à gaz ou Z-pinch donne un bon accord avec les simulations sur une gamme de température et de densité assez étendue (Fig.2). La dynamique moléculaire quantique est particulièrement efficace pour le traitement des mélanges car elle inclut toutes les interactions entre les espèces. Elle a ainsi permis de générer un standard pour les lois de mélanges largement utilisées pour produire des équations d'états et des opacités pour des éléments complexes à partir des résultats obtenus sur des éléments simples. Nous avons ainsi étudié plusieurs lois de mélanges pour des systèmes tels que LiH et DT [Hor08,Hor09a,Hor09b,Kre10]. Nous avons ainsi trouvé que celles basées sur l'égalité des pressions (isobare-isotherme) sont les plus efficaces. Nous avons aussi combiné plusieurs formulations de la DFT invoquant ainsi plu-

sieurs niveaux d'approximations afin de couvrir la totalité du régime WDM. Cette stratégie nous a permis de modéliser plusieurs situations allant du solide froid au liquide chaud et jusqu'au plasma complètement ionisé de manière consistante. Nous avons, par exemple, étudié les règles de sélection pour le mélange LiH du liquide chaud jusqu'au plasma complètement ionisé et sur 3 ordres de grandeur en température. La dynamique moléculaire quantique a également été appliquée à de nombreuses autres situations, telles que la fusion hors équilibre, l'ablation laser et les chocs, en la combinant avec la dynamique moléculaire classique, ainsi que le transport au travers d'interfaces. Le succès de la méthode à reproduire les données expérimentales valide aussi son utilisation bien au delà des conditions atteignables en laboratoire. ●

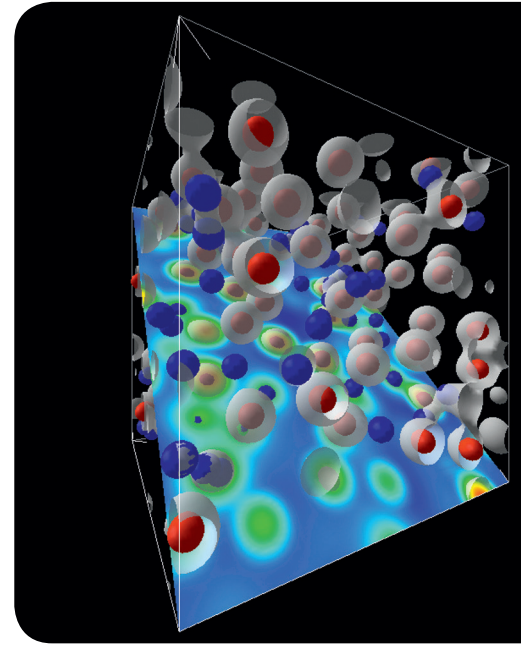


Fig. 1 : Configuration le long d'une trajectoire de QMD où la densité électronique est montrée en gris, bleu et vert, et les ions en bleu et rouge.
Representative snap shot in a QMD simulation showing electron probability density (gray, blue, green) and ion positions (blue/red).

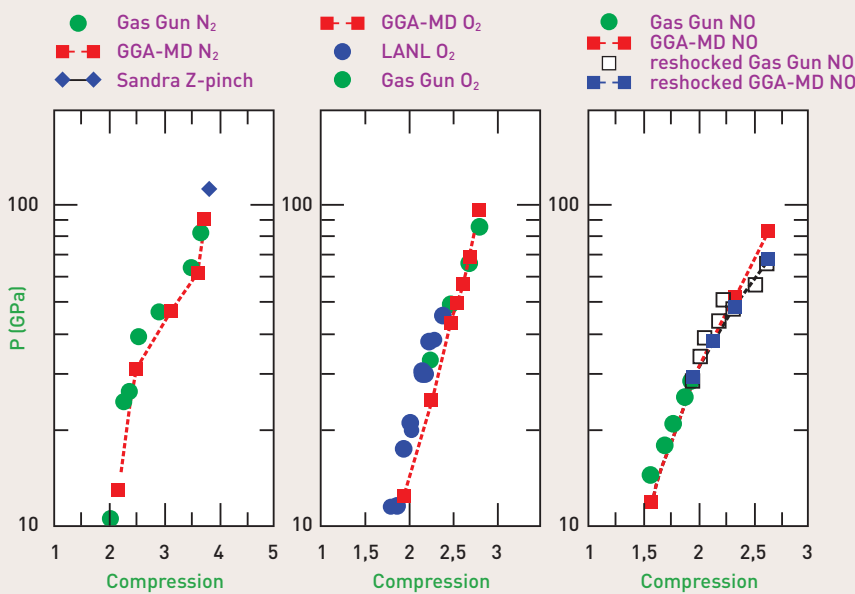


Fig. 2 : Comparaison des résultats expérimentaux avec les simulations de QMD le long de l'Hugoniot principal pour l'azote, l'oxygène et le monoxyde d'azote.
Comparison of experimental results with QMD simulations for the principal Hugoniot of molecular nitrogen and oxygen as well as nitrogen oxide.

Therefore, the technique provides a benchmark for the mixing rules commonly used to produce multi-species equation-of-states and opacities from combinations of pure-species results. We have studied several mixing rule prescrip-

tions [Hor08,Hor09a,Hor09b,Kre10] for such systems as LiH and DT and found those based on pressure matching generally better. We have also combined several DFT formulations at different levels of approximation in order to span the complete WDM regime. This strategy has allowed us to model a wide range of cases from low-temperature, solid density fluids to hot, highly-ionized plasmas in a consistent manner. For example, we have examined LiH mixtures from the warm liquid to the fully-ionized plasma over three-orders of magnitude in temperature. In addition to the above examples, the QMD approach has been applied to a variety of other situations, especially non-equilibrium processes such as melt, laser heating and shocks in combination with classical MD techniques, and transport through interfaces. Its demonstrated validity permits its use in providing reliable results in the WDM regime beyond current experimental reach. ●

Fine-grained polycrystalline tin for the study of structural phase transformations under dynamic compression

Fundamental research on polymorphic phase transitions

(changes in crystal structure) in solids under dynamic high pressures is important to the stockpile stewardship missions of both **NNSA** and **CEA**. A deeper understanding of such phase transitions is needed to improve material models used in state-of-the-art hydrocodes. Pure tin is a good model for the study of such transitions because the $\beta \rightarrow \gamma$ phase transition occurs at relatively low pressure (9.4 GPa at 300 K), making it easy to access by a variety of experimental techniques. In addition, the volume change of the transition at 300 K is approximately 3%, easily detectable in velocimetry measurements.

A common difficulty with the study of tin in dynamic experiments is its propensity toward large grain sizes, on the order of 1 mm or more. This prevents accurate measurement of averaged bulk polycrystalline response for typical ramp-compression experiments that probe velocity in a region less than 1 mm in diameter (*Fig. 1*) on samples less than 1 mm thick. Investigations into the metallurgy of tin are being conducted at **CEA-Valduc**, with the goal of producing stable fine-grained tin samples for use in dynamic high-pressure experiments at both **CEA** and **NNSA**.

The phenomenon of recrystallization governs grain size attained through deformational and thermal treatment, and is classified as either static (recrystallization during thermal treatment subsequent to plastic deformation at ambient temperature) or dynamic (recrystallization during plastic deformation at temperature $T/T_{melt} > 0.5$). The melting point of tin is near 505 K, thus at ambient conditions the reduced temperature $T/T_{melt} = 0.58$. For most metals, this temperature level is enough to initiate static recrystallization immediately following any plastic deformation. Due to uncontrolled static recrystallization, low-rate processing of tin leads invariably to heterogeneous microstructures, often with small grains embedded inside large grains. High-rate processes might avoid this by generating large numbers of nucleating sites for dynamic recrystallization.

At **CEA-Valduc**, we have used an existing Split Hopkinson Pressure Bar (SHPB) apparatus to deform pure (99.5%) tin samples of 6 mm diameter and 6 mm thickness to total strains of 10-40% under strain rates of 2000-4000 s^{-1} . The best results were obtained for the highest strain (40%) and highest strain rate (4000 s^{-1}) at 300 K, which produced a homogeneous microstructure with

average grain size of about 50 μm as shown in *Fig. 2b*. Repeating this experiment at 273 K resulted in larger average grain size, indicating that grain refinement is sensitive to temperature. More work is needed to quantify the effect of initial temperature. Higher purity (99.99%) tin produced a less homogeneous microstructure, possibly due to influence of the initial microstructure (as received, this material has grains larger than 1 mm). The difference might also be explained by impurities inhibiting movement of dislocations, which would promote defect storage and enhance driving energy for recrystallization. Future work will be aimed at producing tin samples of 99.99% purity up to 10 mm in diameter with homogeneous fine-grained microstructure. For this purpose, we have constructed a new SHPB apparatus that handles billets up to 16 mm in diameter (*Fig. 2a*).

To address stability of the microstructure during storage and transport, the best sample with 50- μm grain size from the SHPB studies was stored for 100 days at room temperature, and then reanalyzed to find the average grain size increased at most 10% to about 55 μm (*Fig. 2b*). This result suggests that storage and transport at controlled temperature will not compromise samples used for experiments within several months after being processed. Further work is planned to study grain growth on the time scale of minutes during and after ramped temperature increases typical of preheating just prior to dynamic experiments at elevated initial temperature. ●

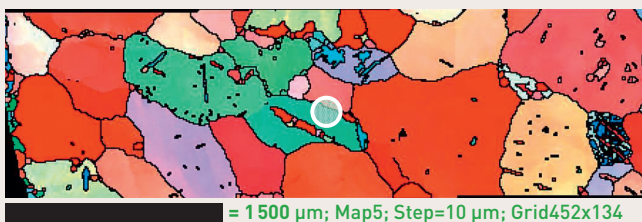


Fig. 1 : Image de diffraction des électrons rétrodiffusés pour un échantillon d'étain approvisionné auprès d'une source commerciale. Le cercle blanc de 200 μm de diamètre représente la zone analysée par le laser de la mesure de velocimétrie.

Electron backscatter diffraction (EBSD) image of as-received commercially available pure tin, with grains color-coded by crystal orientation. The white circle is 200 μm in diameter and represents the measurement collection area for fiber-based laser velocimetry.

Étain polycristallin à grain fin pour l'étude de changements de phase sous compression dynamique

L'étude des changements de phases polymorphiques (changement de structures cristallographiques) sous haute pression dynamique des matériaux à l'état solide est importante pour les programmes Simulation de la **NNSA** et du **CEA**. Une compréhension accrue de telles transitions de phases, est nécessaire pour améliorer les modèles de comportement des matériaux utilisés dans les codes de calculs hydrodynamiques actuels. L'étain pur est un bon modèle pour l'étude d'une telle transition puisque le changement de phase $\beta \rightarrow \gamma$ se produit à une pression relativement basse (9,4 GPa à 300K), celle-ci étant accessible à l'aide de techniques expérimentales variées. De plus, le changement de volume à la transition à 300K, de l'ordre de 3%, est facilement détectable par vélocimétrie. Une difficulté majeure dans l'étude de l'étain dans les expériences dynamiques est sa propension à former de gros grains, de l'ordre du millimètre ou plus. Cela interdit des mesures précises de la réponse du matériau polycristallin pour les expériences dynamiques nécessitant des échantillons inférieurs au mm afin d'être analysés par vélocimétrie (Fig.1). Des études sur la métallurgie de l'étain sont donc menées au **CEA-Valduc** avec comme objectif de produire des échantillons à grain fin nécessaires aux expériences de hautes pressions dynamiques aussi bien au **CEA** qu'au **NNSA**.

Pour obtenir la taille de grain la plus fine possible, nous utilisons le phénomène de recristallisation. Celui-ci peut être de caractère *statique* (recristallisation apparaissant durant un traitement thermique suite à déformation plastique) ou *dynamique* (recristallisation apparaissant lors de la déformation plastique pour une température réduite $T/T_{fusion} > 0,5$). Le point de fusion de l'étain est de 505 K; ainsi, à température ambiante, la tem-

pérature réduite T/T_{fusion} est égale à 0,58. Pour la plupart des métaux, ce niveau de température est suffisant pour déclencher la recristallisation statique. Celle-ci s'est toutefois révélée inappropriée dans le cas de l'étain, les essais à faible vitesse de déformation conduisant à des microstructures hétérogènes, caractérisées par la présence de petits grains au sein d'une matrice à gros grains. Ce grossissement du grain peut être évité par déformation plastique à grande vitesse de déformation, par la génération de nombreux sites de nucléation favorables à la recristallisation dynamique.

Au **CEA-Valduc**, nous avons utilisé des barres de compression de type Hopkinson pour déformer des pions d'étain (de pureté supérieure à 99,5%) de 6 mm d'épaisseur et 6 mm de diamètre. Les taux de déformations sont entre 10 et 40% avec des vitesses de déformation plastiques de 2000 à 4000 s^{-1} . Les meilleurs résultats sont obtenus pour le taux de déformation de 40% et la vitesse de déformation de 4000 s^{-1} à 300 K. Nous obtenons une microstructure homogène avec une taille moyenne de grains de l'ordre de 50 μm (Fig. 2b). Cette même expérience conduite à 273 K conduit à une taille moyenne de grain plus importante. Cela démontre que l'affinage du grain est sensible à la température. Des travaux complémentaires seraient nécessaires afin de quantifier l'influence de la température initiale sur l'affinage du grain. Dans les conditions d'expérience optimales, de l'étain avec une pureté plus élevée (99,99%) produit une microstructure moins homogène; ceci peut être la conséquence de l'influence de la microstructure initiale (l'étain de plus grande pureté possède des grains de l'ordre du mm). Cette différence de comportement entre deux étains de pureté différente, peut être expliquée par le blocage du

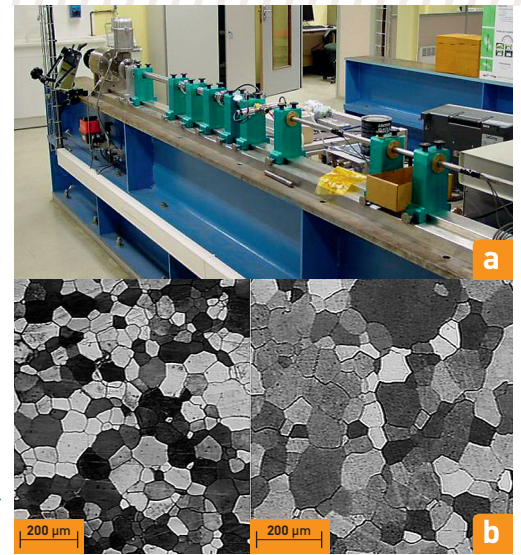


Fig. 2 : **a** Dispositif de compression par barres d'Hopkinson; **b** Deux micrographies du même échantillon d'étain, après recristallisation dynamique (à gauche), après un stockage de 100 jours à 300 K (à droite).
a Split Hopkinson Pressure Bar apparatus;
b Two micrographs of the same tin sample, just after recrystallization (left), and after storage for 100 days at 300 K (right).

mouvement des dislocations, lors de la déformation, par les impuretés. Ce phénomène augmente la quantité de défauts, donc l'énergie emmagasinée. Ainsi, il y a plus d'énergie motrice disponible pour la recristallisation. Il pourrait être intéressant de fournir des échantillons d'étain de pureté 99,99%, d'un diamètre de 10 mm et avec une structure à grains fins. À cette fin, nous avons construit des barres de compression de type Hopkinson de diamètre 16 mm (Fig. 2a).

La stabilité dans le temps de la microstructure durant le stockage et le transport est aussi importante. Un échantillon issu des essais de compression par barres d'Hopkinson présentant la microstructure la plus fine (50 μm de taille de grain en moyenne) a été entreposé à température ambiante pendant 100 jours. Après une nouvelle analyse métallographique, la taille de grain a augmenté de 10% à 55 μm (Fig. 2b). Ce résultat suggère que le stockage ou le transport à température contrôlée ne compromet pas la microstructure d'échantillons destinés aux expériences dans un délai de plusieurs mois après leur fabrication. Des travaux ultérieurs sont planifiés afin d'étudier le grossissement du grain pour une échelle de temps de quelques minutes pendant et après une élévation de température de l'échantillon comme pratiqué lors du préchauffage lors d'expériences dynamiques à haute température. ●

Propriétés dynamiques des actinides

Les propriétés dynamiques des matériaux sont d'un intérêt fondamental. Elles sont reliées à d'importantes propriétés de l'état solide, comme les constantes élastiques, les potentiels interatomiques, les équations d'état ou les propriétés thermodynamiques. Elles fournissent également des indications précieuses quant à la stabilité structurelle et les mécanismes de transition de phase, en particulier au regard de l'incroyable diversité des structures mise en évidence par le diagramme de phase des actinides.

Pendant longtemps, la complexité des structures cristallines impliquées, com-

binée aux effets relativistes et aux corrélations électron-électron, a contrarié les tentatives des théoriciens de la physique du solide pour comprendre les structures des actinides à l'état fondamental. Grâce aux énormes progrès réalisés ces 15 dernières années en structure électronique et notamment en théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), nous avons pu reproduire et comprendre les mécanismes à l'origine de cette diversité structurale. Pourtant, en dépit de ces succès, on en sait toujours peu sur les propriétés dynamiques des actinides légers.

Pour obtenir ces propriétés, nous avons effectué des calculs en utilisant

la théorie de la fonctionnelle densité perturbée, afin d'obtenir le spectre de phonons et les constantes élastiques des actinides légers en fonction de la pression. L'exemple des constantes élastiques du thorium est ainsi présenté sur la Fig.1 [Bou11]. La structure cubique à faces centrées devient mécaniquement instable vers 79 GPa, où le critère de stabilité, $C' > 0$, est violé. Nous observons un comportement similaire pour le protactinium, qui subit une transition de phase vers la structure α -U sous pression. L'uranium existe à température ambiante dans une structure orthorhombique et ne se déforme pas jusqu'à 100 GPa. Des structures similaires sont observées dans l'Am et le Cm à haute pression. Elles sont une conséquence du déplacement des électrons 5f d'états localisés vers des états itinérants avec la pression. Dans l'uranium, il existe des

Lattice dynamics of the actinides

The dynamic properties of materials are of fundamental interest. They are related to important solid-state properties, such as elastic constants, equations of state or thermodynamic properties. They also provide valuable insight as to structural stability, and phase transition mechanisms, along with crucial information, bearing in mind the incredible diversity of structures evidenced by the actinide phase diagram.

For a long time, the complexity of the crystal structures involved, combined

with relativistic effects, and electron-electron correlations, thwarted the attempts of solid-state theorists to understand the ground state structures of the actinides. However, owing to the tremendous advances achieved in the past 15 years, as regards electronic structure, such calculations are nowadays routinely undertaken using density-functional theory (DFT). Such great achievements notwithstanding, little is known as to the dynamic properties of the light actinides.

To shed light on this matter we have carried out density functional perturbation

theory (DFPT) on the light actinides to obtain their phonon spectrum and the elastic constants in pressure. A result for thorium [Bou11] is shown in Fig. 1. The Th fcc structure becomes mechanically unstable around 79 GPa, at which point the Born stability criterion, $C' > 0$, is violated. We found a similar behavior in Pa, which undergoes a phase transition from the bct to the α -U structure under pressure.

Uranium exists at room temperature in an orthorhombic structure and does not distort up to 100 GPa. Similar orthorhombic structures are found in Am and Cm at higher pressures, and are understood as a consequence of the 5f electrons in these materials being squeezed into itinerant states at high pressure [Bou08]. At low temperature

anomalies de phonons remarquables dans la direction [100] [Bou08]. À basse température (43 K), ces anomalies sont responsables d'une transition de phase vers une structure complexe. Cette transition est décrite comme une onde de densité de charge (ODC). L'uranium est le seul élément découvert à ce jour qui présente une telle transition de phase à pression ambiante. En fonction de la pression l'ODC disparaît (1,5 GPa), et, à la même pression, la température supraconductrice atteint un maximum de 2 K, puis diminue avec la pression (Fig. 2). Pour expliquer cette interaction entre ODC et supraconductivité, nous avons effectué des calculs couplés à des expériences de diffusion inélastique des rayons X à l'ESRF. Nous avons notamment mis en évidence l'importance du couplage électron-phonon pour décrire la variation de T_c [Ray11]. ●

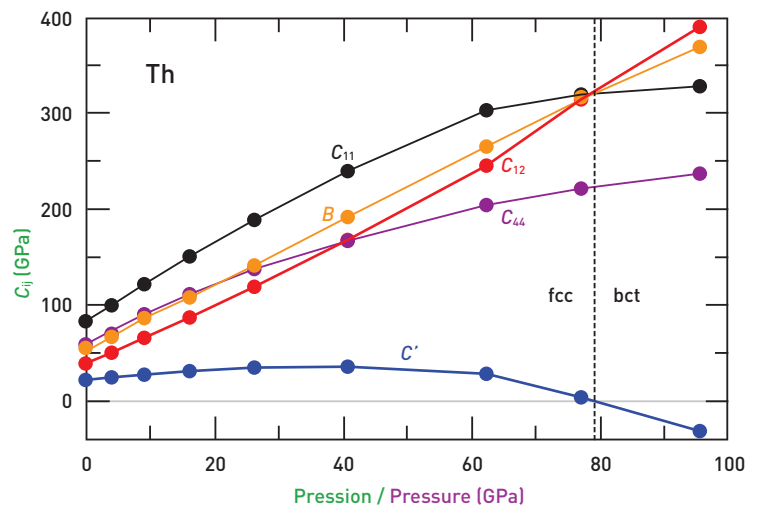


Fig. 1 : Constantes élastiques (en GPa) du Th fcc en fonction de la pression. La ligne pointillée indique la transition entre les structures fcc et quadratique quand $C_{11} = C_{12}$. Elastic constants (in GPa) of fcc Th as a function of pressure. The dashed line indicates the transition between fcc and bct structures when $C_{11} = C_{12}$.

($T_0 = 43$ K) a phase transition takes place to a new complicated structure, which is described as a charge-density wave (CDW). Uranium is the only element discovered so far to exhibit such a phase transition at ambient pressure. As a function of pressure the CDW disappears at ~ 1.5 GPa, and, at the same pressure, the superconducting temperature reaches a maximum of ~ 2 K, and then decreases with further pressure. To explain this interplay between CDW and superconductivity we have performed both calculations and inelastic x-ray scattering experiments at the ESRF. The existence of the CDW is understood as a consequence of the electron-phonon coupling and the pressure dependence of the latter [Ray11] permits a description of the variation of T_c (Fig. 2). ●

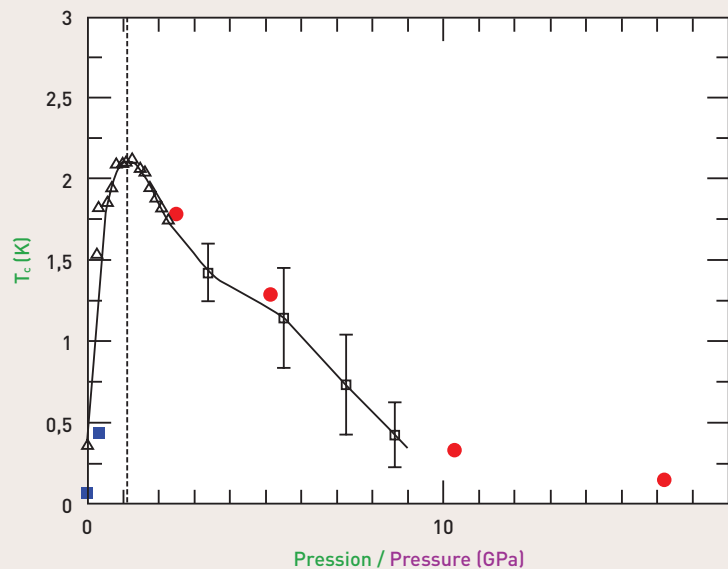


Fig. 2 : Diagramme de phase T-P de l'uranium dans la région supraconductrice. La ligne verticale indique la transition théorique entre les phases α_1 -U et α -U. Les symboles ouverts (pleins) sont les données expérimentales (théoriques). T-P phase diagram of uranium in the superconducting region. The vertical line indicates the calculated transition between α_1 -U and α -U phases. The open (filled) symbols are experimental (theoretical) data.

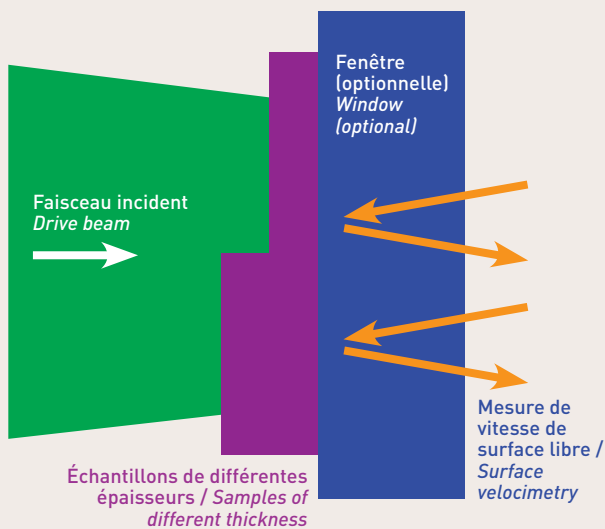


Fig. 1 : Montage expérimental / Experimental set up.

Multiphase equation of state and kinetics of phase changes

The thermodynamic properties and especially the equation of state of materials under shock waves or high dynamic pressures are well-established for single phases. When phase transitions occur, there are significant complications. For instance, the solid or liquid state of materials inside the Earth is still controversial.

A few decades ago, projectile/target impact experiments provided measurements of the mass velocity and shock speed.

Équation d'état multiphase et cinétique des changements de phase

Les propriétés thermodynamiques, et en particulier l'équation d'état des matériaux sous choc ou hautes pressions dynamiques sont bien connues depuis longtemps, tant que le matériau ne change pas d'état. Au-delà, notre connaissance de la matière est encore très confuse. Par exemple, l'état solide ou liquide des matériaux à l'intérieur de la Terre soulève encore aujourd'hui de nombreuses controverses. Il y a quelques décennies, des expériences d'impact projectile/cible fournissaient la vitesse matérielle et la célérité du choc. À l'aide des équations de conservation appliquées entre l'état initial et l'état final, on déduisait par un calcul simple la pression, la densité et

l'énergie interne d'un état thermodynamique. Mais lors d'un changement de phase, le choc peut se dédoubler, les calculs se compliquent et les données physiques des matériaux étaient alors insuffisantes.

Depuis, la vitesse de surface libre, en sortie de la cible, est mesurée au cours du temps, et des codes de simulation résolvent les équations de conservation en temps et en espace. Le projectile a été remplacé par un dépôt d'énergie laser. Sa mise en forme en fonction du temps permet de combiner des rampes et des chocs, d'amplitude, de durée et de pentes différentes (Fig. 1), ce qui ouvre ainsi d'énormes possibilités, précédemment inaccessibles en laboratoire. La caracté-

térisation du dépôt d'énergie laser, qui restait l'un des derniers obstacles, est aujourd'hui bien maîtrisée au LLNL. Parallèlement, le CEA/DAM a développé des compétences pour traiter les changements de phases dans les codes de simulation. Ceci permet d'analyser les signaux expérimentaux complexes mélangeant chocs et changements de phase. Ces développements complémentaires ont naturellement abouti à une collaboration mettant en commun des expériences effectuées au LLNL avec des calculs réalisés au CEA/DAM.

Les deux premières séries d'expériences menées sur le titane et le zirconium ont mis en évidence un double choc, reflet d'un changement de phase. Nous avons

Conservation equations between initial and final states easily yield pressure, density and internal energy of a thermodynamic state. However, phase transitions can cause a shock wave to split, complicating the analysis and requiring knowledge of additional parameters. More recently, common practice has become the measurement of surface velocity versus time, and the use of hydrocodes solving the conservation equations in space and time. The projectile may be replaced by the deposition of energy at a surface. With lasers, the drive may be controlled in time, making it possible to combine ramps and shocks of different amplitudes, durations and slopes (Fig. 1).

This opens huge possibilities which were not accessible before at the laboratory scale. One of the last main issues, the characterization of the laser drive, is now well-established at LLNL.

In parallel, CEA/DAM has developed methods for treating multiphase thermodynamics in hydrocodes. This allows the analysis of complicated experimental signals involving both shocks and phase transitions. These complementary developments led naturally to a collaboration combining experiments from LLNL and calculations from CEA/DAM.

The two first sets of experiments on titanium and zirconium showed a double shock, indicating a phase transition.

Initially, we assumed thermodynamic equilibrium so as to use the static (P,T) phase diagram to derive material parameters for each phase. Our calculations (Fig. 2) could then reproduce the amplitude and timing of shocks [Heu11]. However, some rise times indicated that the kinetics of the corresponding phase transitions were not negligible. These encouraging, preliminary results enable us to optimize the design of experiments to determine material parameters with greater accuracy, and to investigate the kinetics of phase transitions. Moreover, we have made significant progress in elucidating the properties of periclase (cubic phase of MgO), relevant to the Earth's mantle [Swi12]. ●

d'abord supposé l'équilibre thermodynamique afin d'utiliser le diagramme de phase statique (P,T) pour initialiser les constantes physiques de chaque phase. Nos calculs, représentés sur la Fig. 2, ont pu restituer ainsi la chronométrie et les niveaux des chocs [Heu11]. Certains temps de montée montrent que les cinétiques des changements de phase correspondants n'ont pas des constantes de temps négligeables. Ces premiers résultats encourageants nous permettent maintenant d'optimiser le dimensionnement des expériences afin d'améliorer la précision des constantes physiques du matériau et étudier les cinétiques de changement de phase. Plus récemment, nous avons sensiblement amélioré la connaissance de la périclase (forme cubique de l'oxyde de magnésium MgO), composant important du manteau terrestre [Swi12]. ●

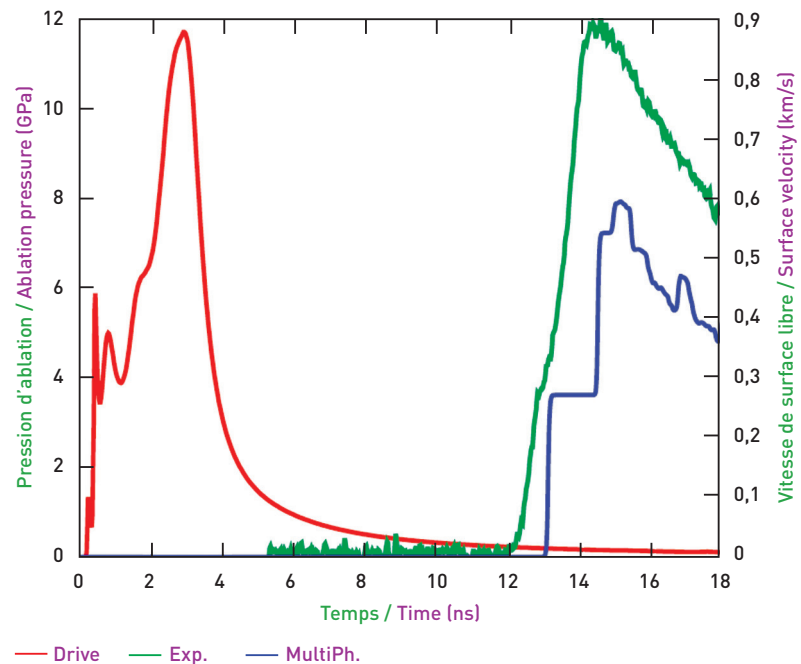


Fig. 2 : Rampe sur un échantillon de zirconium (épaisseur 26 μm). Équivalent pression du dépôt laser (rouge), vitesse expérimentale en sortie d'échantillon (vert) et modélisation (bleu).
Ramp on a 26 μm Zr sample. Laser energy deposit converted into pressure (red), experimental signal (green) and modelling (blue).

Opacité des intérieurs stellaires : mesures et modèles

Notre connaissance du Soleil progresse. Depuis une vingtaine d'années, des données toujours plus précises sur sa structure interne sont fournies par l'héliosismologie. Ainsi, la vitesse du son en fonction du rayon, déduite de l'observation de ses modes d'oscillations, apporte des contraintes fortes sur sa description thermodynamique. Or, ces nouveaux résultats invalident pour partie les prédictions théoriques, qui reposent sur des ingrédients tels que la composition chimique, l'équation d'état et l'opacité. Le but de notre projet est de déterminer si ce

désaccord peut être imputé aux calculs d'opacité. L'opacité et l'émissivité spectrales sont des quantités fondamentales pour caractériser la résistance d'un milieu au transport du rayonnement, et donc pour décrire le transfert d'énergie depuis le cœur des étoiles de type solaire. La matière et le rayonnement y étant en équilibre thermodynamique local, l'émissivité peut être déduite de l'opacité par la loi de Kirchhoff, et l'équation d'état du plasma grandement simplifiée par la thermodynamique. Cependant, les opacités spectrales restent des quantités complexes à évaluer : elles peuvent

inclure des milliards de structures spectroscopiques (connectant essentiellement des états quantiques électroniques liés et/ou libres). La position, l'intensité et la forme de ces structures dépendent fortement des caractéristiques du plasma. Des mesures précises dans des conditions pertinentes représentent donc un apport inestimable. Notre collaboration est focalisée sur un élément de premier plan pour l'astrophysique : le fer. Si le Soleil est principalement composé d'hydrogène et d'hélium, le nombre relativement important d'électrons liés du fer rend sa contribu-

Stellar interior opacity: measurements and models

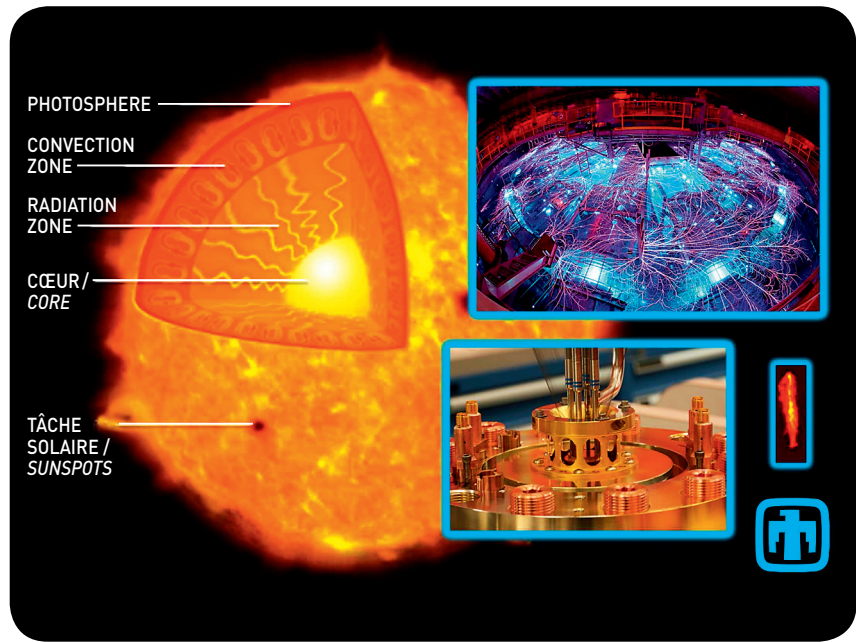
Our knowledge of the sun is in progress. In the last two decades, accurate data about its internal structure were supplied by helioseismology. For instance, the sound speed as a function of the radius, deduced from the observation of its oscillation modes, brings strong constraints upon its thermodynamic description. Yet, these new results partially invalidate theoretical predictions that rely on input information such as elemental composition, equation of state, and opacity. The goal of our project is to determine whether the disagreement arises from opacity model uncertainties. Spectral opacity and emissivity are key quantities to characterize the resistance of a medium to the transport of radia-

tion, and hence to describe the energy transfer from the inner part of sun-like stars. Because matter and radiation are in thermal equilibrium in these media, emissivity can be deduced from opacity using Kirchhoff's law, and the equation of state of the plasma is greatly simplified by thermodynamics. Even so, spectral opacities remain complex quantities to be evaluated: they can include billions of spectroscopic features (essentially connecting quantum states of the bound and/or free electrons). The photon energy, intensity, and shape of the spectral features strongly depend on the plasma characteristics. Precise measurements in relevant conditions thus represent an invaluable contribution.

Our collaboration is focused on a leading element for astrophysics: iron. The solar composition is mainly hydrogen and helium, but the relatively large number of bound electrons in iron renders its contribution to the mean opacity large. Roughly 10 to 30% of the mean opacity comes from iron, throughout the solar radiation zone. Iron L-shell opacities have been measured [Bai07] at the Z facility for plasmas in which the iron charge state distribution is very close to the one expected at the base of the solar convection zone (Fig.1). In these well characterized experiments [Bai08, Bai09] the transmission of local thermodynamic equilibrated iron is measured at a temperature of 156 ± 6 eV and electron den-

Fig. 1 : Fond : schéma en coupe du Soleil.
En médaillons : tir de la machine Z, base d'un
réseau de fils Z-pinch, et rayons X produits
(image centimétrique d'une caméra pinhole).
Background: schematic section of the sun.
Boxed: Z machine firing, base of a z-pinch
wire array, and the produced x rays (pinhole
camera centimeter-scaled image).

tion à l'opacité moyenne importante: de 10 à 30 %, dans toute la zone radiative. Des opacités en couche L du fer ont été mesurées [Bai07] sur la machine Z pour des plasmas dont la distribution de charge est très proche de celle attendue à la base de la zone convective solaire (Fig.1). Dans ces expériences très bien caractérisées [Bai08,Bai09], la transmission du fer à l'équilibre thermodynamique local est mesurée à une température de 156 ± 6 eV et une densité électronique de $(6,9 \pm 1,7) \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. Les transmissions théoriques, déduites de calculs intensifs d'opacités détaillées, ont ensuite été calculées, révélant un excellent accord avec l'expérience (Fig.2). À partir de ce constat, nous avons développé un outil numérique, basé sur le code OPAS, pour aider à caractériser les plasmas obtenus sur la machine Z. Cet



outil autonome fournit rapidement le meilleur triplet (température, densité, masse surfacique) reproduisant une transmission donnée à partir d'opacités spectrales tabulées, ainsi que les incertitudes associées. Il sera utilisé comme support lors des prochaines campagnes

sur la machine Z. Celles-ci visent à atteindre de réelles conditions de la zone radiative solaire (190 eV et $9 \times 10^{22} \text{ e/cm}^3$) et apporteront, en cas de succès, de nouvelles perspectives passionnantes pour la structure physique du Soleil et des étoiles. ●

sity of $(6.9 \pm 1.7) \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. Theoretical transmissions deduced from extensive detailed line-by-line opacity calculations have been computed, revealing an excellent agreement with the experimental one (Fig.2). From this result, we have developed a numerical tool, based on the OPAS code, to help in characterizing plasmas produced at the Z facility. This stand-alone tool quickly provides the best (temperature, density, areal mass) triplet to reproduce a given measured transmission using tabulated spectral opacities, including the associated uncertainties. It will be used to support the next measurement campaigns on the Z machine. This new research is aimed at reaching actual solar radiation zone conditions (190 eV and $9 \times 10^{22} \text{ e/cm}^3$) and, if successful, is certain to provide exciting new insights into the physical structure of the sun and stars. ●

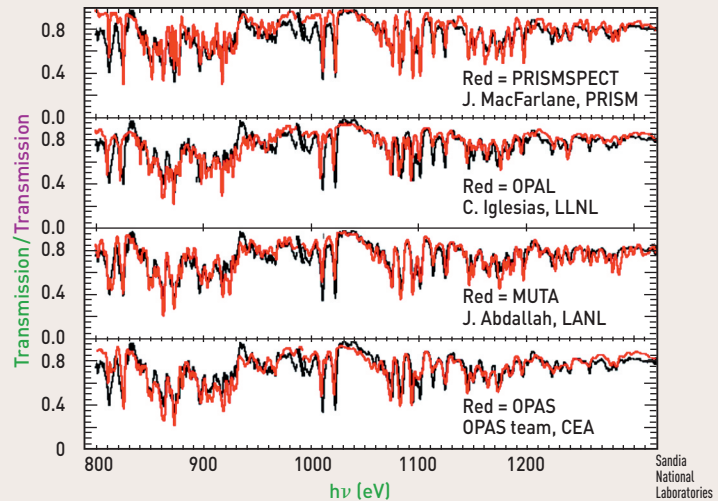


Fig. 2 : Comparaison de la transmission mesurée (en noir) avec quatre modèles (en rouge) dans la gamme spectrale de la couche L du fer. Les calculs théoriques utilisent les mêmes conditions plasma : $N_e = 8,6 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ et $k_B T = 150 \text{ eV}$.
Comparison of measured transmission (black line) with four models (red lines) in the Fe L shell spectral range. The model calculations use the same plasma conditions: $N_e = 8,6 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ and $k_B T = 150 \text{ eV}$.

Linear Transformer Driver (LTD) development for flash x-ray radiography

The Linear Transformer Driver (LTD) is a variant of the more well-known Inductive Voltage Adder (IVA) accelerator architecture. The primary energy storage in a LTD is configured inside the accelerating cavities in a low inductance geometry. The LTD architecture is more compact than typical IVA systems because it lacks large oil tanks and pulse compression stages that are common to IVA systems. LTD technology is being developed at **CEA** and **SNL** for flash x-ray radiography applications. The research and development goals of both laboratories are complimentary in that each group is addressing different aspects and issues associated with the physics and engineering of a new pulsed power accelerator architecture.

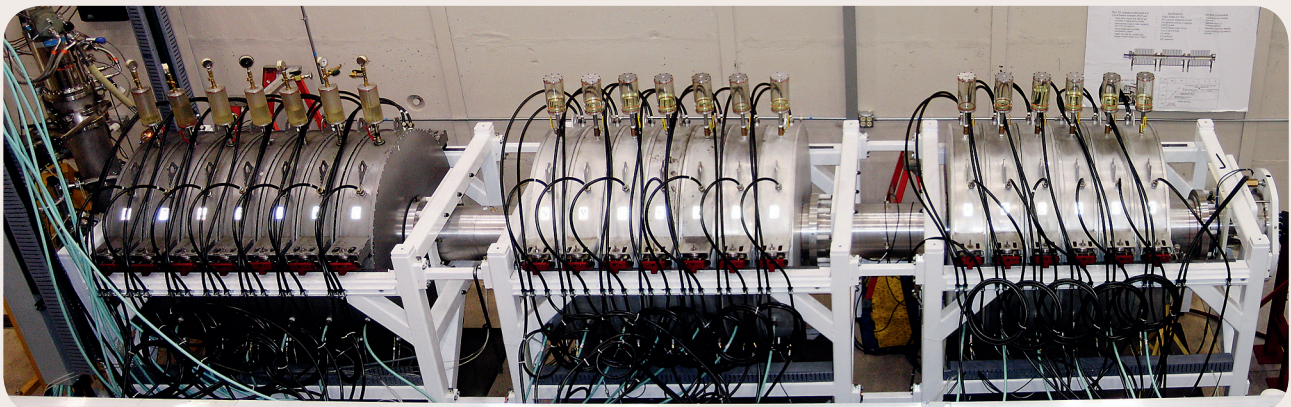
Over the past three years, the Sandia LTD system has been upgraded from seven series cavities capable of pro-

ducing 800 kV pulses to the **URSA Minor LTD** (Fig. 1) with 21 series cavities capable of operation up to 2.5 MV [Lec11]. The 21 cavities of URSA-Minor are connected in series by a coaxial magnetically insulated transmission line (MITL). At voltages > 1 MV, electrons are emitted along the length of the central cathode stalk of the MITL. In ideal conditions, the magnetic fields generated by the current running in the cathode stalk are high enough to alter the trajectories of the emitted electrons so that they are insulated from crossing the radial gap and hitting the anode. The magnetic insulation ensures efficient power coupling from the cavities to the diode load region of the accelerator. One of the primary goals of the **URSA Minor LTD** system is to evaluate the efficiency of power flow in the presence of electron emission and magnetic insulation. In addition, experiments will evaluate the

ability of such an accelerator to drive an x-ray radiography diode.

During the same three year period, the **CEA LTD** has been expanded and upgraded from a single prototype cavity to a 1-MV accelerator with 10 series cavities (Fig. 2). The **CEA LTD** was developed through a contract with the private company ITHPP [Bay11]. The **1-MV LTD** was assembled and tested at ITHPP before being relocated in 2010 to the **CEA** facility at **Moronvilliers**. The 10-cavity system is part of a modular design that can be expanded to provide up to 8-MV in 1-MV increments. The primary goals of ongoing LTD system testing are to evaluate component and system reliability and to determine maintenance requirements. This information is a key part of defining requirement for a larger LTD system that could be used as a radiography diagnostic for dynamic experiments. ●

Fig. 1 : L'installation LTD Minor URSA avec trois groupes de sept cavités au SNL.
URSA Minor LTD system at Sandia with three groups of seven cavities.



Développement du LTD (Linear Transformer Driver) pour la radiographie éclair

Un générateur LTD (Linear Transformer Driver) est une variante des générateurs IVA (Inductive Voltage Adder). Dans un LTD, le stockage de l'énergie est directement intégré à l'intérieur des cellules à induction avec une géométrie peu inductive. L'architecture LTD est ainsi plus compacte puisqu'elle ne nécessite ni cuve d'huile de volume important ni lignes de mise en forme indispensables au fonctionnement des générateurs IVA. La technologie LTD a été développée au CEA et au SNL pour des applications en radiographie éclair. Les objectifs de recherche et développement des deux laboratoires sont complémentaires dans le sens où chaque équipe s'intéresse à différents sujets et aspects liés à la physique et à l'ingénierie de cette nouvelle architecture de générateur de hautes puissances pulsées.

Au cours de ces trois dernières années, le système LTD du SNL avec 7 cellules en série et capables de produire une impulsion de 800 kV, a évolué vers l'installation LTD Minor URSA (Fig. 1) avec 21 cellules en série permettant de fonctionner jusqu'à 2,5 MV [Lec11]. Ces 21 cellules sont connectées en série par une ligne de transmission à isolement magnétique, MITL (Magnetically Insulated Transmission Line). À des tensions supérieures à 1 MV, des électrons sont émis sous l'effet du champ électrique tout le long du conducteur central de la ligne MITL. Dans les conditions idéales, le champ magnétique induit par le courant circulant dans la ligne, est suffisant pour modifier les trajectoires des électrons émis et les isoler du conducteur externe. L'isolation magnétique assure un couplage efficace de la



Fig. 2 : Le module LTD 1 MV au CEA-DAM.
1-MV LTD module at CEA-DAM.

puissance entre les étages et la diode du générateur. Un des objectifs premiers de l'installation URSA Minor est d'évaluer l'efficacité de ce couplage en présence d'émission électronique et d'isolation magnétique. De plus, ces expériences permettront d'évaluer la capacité d'un générateur de ce type à alimenter une diode de radiographie éclair.

Pendant cette période, le CEA est passé d'une cellule LTD prototype à un démonstrateur LTD 1 MV constitué de 10 cellules en série (Fig. 2). Ce démonstrateur a été développé et réalisé pour le CEA par la société ITHPP [Bay11]. Il a été assemblé

puis testé chez cet industriel avant son remontage sur le site de Moronvilliers. Ce démonstrateur a été défini comme un premier module d'un générateur 8 MV, module qu'il suffit de dupliquer pour augmenter la tension délivrée à la diode. Les principaux objectifs des tests réalisés avec ce démonstrateur sont d'évaluer la fiabilité de ce système et de ses composants et de déterminer le plan de maintenance associé à ce type de générateur. Ces informations sont des éléments clés pour la définition d'un générateur LTD plus important qui serait utilisé comme diagnostic de radiographie pour des expériences hydrodynamiques. ●

Radiographie et intercomparaisons de codes

La conception et l'analyse des expériences de radiographie

nécessitent de simuler avec précision la diffusion multiple de photons dans la matière. En radiographie X, toute la difficulté est de calculer la composante diffusée du flux de photons.

L'objectif de la collaboration DAM/NNSA est d'améliorer l'efficacité et la précision des calculs de diffusés en radiographie X. Pour cela, deux codes Monte-Carlo 3D ont été utilisés: MCNP (LANL) et DIANE (CEA).

MCNP [MCNP6] est le code de transport à énergie continue du LANL [MCNP03].

Il traite des problèmes qui mettent en jeu des neutrons, des photons et des électrons.

DIANE est le code de transport multigroupe du CEA. Il permet de traiter des problèmes de neutronique, photonique et de particules chargées. Les données multigroupes nécessaires au transport des particules sont mises en forme par le code ZADIG [Riz00] à partir des bibliothèques internationales.

Nous illustrons ci-après, l'apport scientifique de la collaboration DIF/LLNL :

Estimation de flux par la méthode du flux ponctuel

Des comparaisons code à code sur un problème de radiographie [Fla07] ont mis en évidence, sur les images calculées par MCNP, des pics de large variance, absents des images calculées par DIANE. L'analyse de ces résultats a mis en cause l'estimateur de type flux ponctuel, utilisé par MCNP, en lien avec la diffusion cohérente de photons. L'équipe MCNP a développé une version améliorée de cet estimateur [Swe08, Swe11a] basée sur celui de DIANE. Cette stratégie s'est avérée payante; en effet, le nouvel estimateur de flux du code MCNP a permis d'éliminer les pics (Fig. 1).

Modèle de Bremsstrahlung et diffusion incohérente

DIANE a bénéficié du retour d'expérience du code MCNP pour la validation du modèle de source secondaire de

Computational radiography and cross code comparisons

Design and analysis of radiographic

experiments require a precise understanding on how photons scatter through matter. In x-ray radiography, the difficulty is restricted to the calculation of the scattered component of the photon flux.

The primary goal of the project is to improve the efficiency and accuracy of the simulated scattered radiographs. For that purpose, two 3D Monte-Carlo codes are used: MCNP (LANL) and DIANE (CEA).

MCNP [MCNP6] is a continuous energy transport code from LANL [MCNP03] that can be used for neutron, photon and electron transport problems.

DIANE is a multigroup transport code from CEA that is used for neutron, photon and charged particles calculations. Multigroup reaction cross sections are provided by ZADIG code [Riz00] which groups cross sections from international libraries.

Benefits gained from the LANL/DIF collaboration are illustrated below:

Next event estimator methodology

A test problem described in [Fla07] demonstrated a longstanding issue in MCNP simulated radiographs that is, sharp peaks with large variances. It was found that those were due to contribu-

tions to the next event estimator from photons that undergo coherent scattering. The MCNP team developed a modified version of the next event estimator [Swe08, Swe11a] based on DIANE methodology. This technique has proved to be a good strategy as previous peaks were removed from scattered radiographs as can be seen in Fig. 1.

Bremsstrahlung model and incoherent scattering

DIANE benefited from MCNP experience through validation of the Secondary Source of Bremsstrahlung model (SSB) implemented in ZADIG with a fully coupled electron-photon transport simu-

Bremsstrahlung (SSB) de ZADIG sur des problèmes de transport couplés électron-photon [Riz00,Toc09]. Un accord meilleur que 4% a été atteint entre les deux codes. Ce benchmark a également permis à DIANE d'améliorer son traitement de la diffusion Compton par la prise en compte de corrections dans la section efficace différentielle en angle des photons diffusés.

► Extension aux neutrons et autres benchmarks

Plus récemment, un ensemble de benchmarks neutron et gamma ont été définis pour plusieurs combinaisons énergies-type de matériaux dans le cadre d'un problème 2D cylindrique [Swe11b,Lem12]. Nous avons vérifié la convergence du flux de particules grâce à huit détecteurs points placés autour du cylindre. Sur la Fig. 2, nous montrons les différences entre les flux calculés par les deux codes.

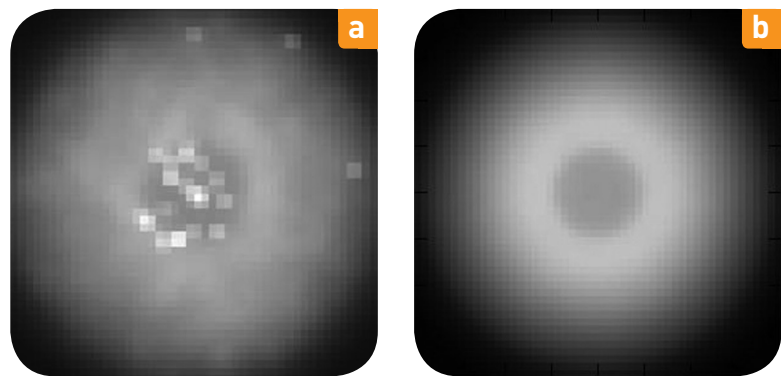


Fig. 1 : **a** Radiographie des photons diffusés calculés avec MCNP à partir de l'estimateur de flux ponctuel - **b** une version améliorée.
a Result of MCNP simulated radiograph of scattered photons with next event estimator - **b** a modified version.

Pour conclure, les comparaisons code à code ont conduit à de meilleurs prédictions des flux de neutrons et gamma par la méthode du flux ponctuel. Pour le futur, nous envisageons d'étendre à d'autres techniques l'évaluation du flux de particules comme par exemple

la méthode du « last event ». Également, nous allons pousser plus loin l'analyse des résultats déjà obtenus et comparer les spectres de particules ; il serait également intéressant, pour l'avenir, d'inclure le transport des électrons dans les simulations. ●

lation from MCNP on a 1D spherical problem and a 2D plate test problem [Riz00,Toc09]. A discrepancy of less than 4% is achieved. The benchmark also leads DIANE to a better description of incoherent scattering by taking into account scattering function in the angular distribution used for photon transport.

► Extension to neutrons and more

More recently, neutron and gamma benchmarks were carried out for several energy-material combinations for a 2D cylindrical case [Swe11b,Lem12]. We verified the convergence of the problem through eight point estimators positioned symmetrically around the cylinder. In Fig. 2, we show that the difference on neutron flux calculation is less than 1%.

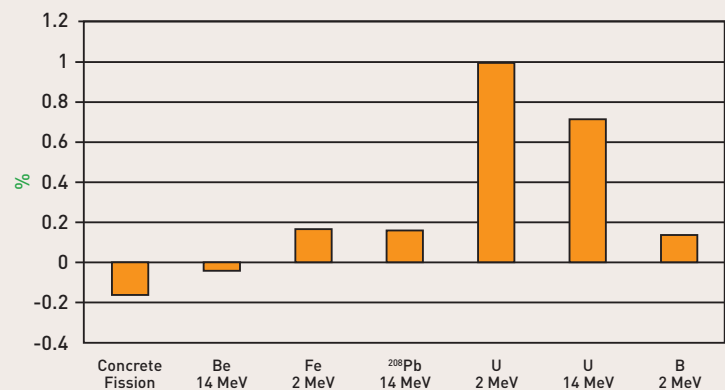


Fig. 2 : Comparaisons code à code pour les problèmes neutrons.
Code comparisons for neutron problem.

As a conclusion, cross code comparisons lead to an improved prediction of neutron and photon flux through next event estimator. In the future, we would like to use other methodology to evaluate neutron or gamma flux at a point such as

the last event estimator. Also, we would like to continue the analysis started with neutron and photon benchmarks problems and compare simulated spectra with the two codes as well as include electron transport in the simulations. ●

NEMS nanoscale resonator gas sensors

Miniature instruments capable of detecting and identifying chemical vapors at low concentrations could enhance monitoring of materials aging in stockpile components. Such detection systems also have military (chemical agent warning), anti-terrorism (explosives), industrial (toxic chemicals, fuel monitoring) and public health (food safety) applications. Laboratory instruments combining gas chromatography (GC) separation of mixed samples with mass spectrometry (MS) detection and identification of separated components are the most versatile and powerful tools for such analyses. However, GC-MS

systems are difficult to miniaturize, not least because of vacuum pumping required for the MS. Micro or Nano Electromechanical Systems (M/NEMS) that respond to changing adsorbed mass can “weigh” eluted component vapors at ambient pressure and are therefore promising candidates as detectors for miniaturized GC instruments [Fan11]. NEMS resonators have demonstrated mass detection sensitivity in the attogram (10^{-18} g) range [Li07]. Because the chemical identification capabilities of NEMS detectors are determined by differential adsorption or solvation on coated devices and are therefore inferior

to MS, we are developing a system that uses 2-dimensional gas chromatography (GCxGC). Increasing GC separation capacity reduces the chemical specificity required at the detector stage while maintaining adequately low false alarm rates for detection of dangerous gases.

GC columns (SNL) and NEMS resonator sensors (Caltech and CEA-LETI) are microfabricated using lithography and etch tools developed for integrated circuit manufacture (Fig. 1). The single-clamped beam resonators can be driven piezo- or thermo-electrically. GCxGC separations are performed using two GC columns (with chemically different wall coatings) in series. By periodically stopping eluent flow from the first column and reinjecting eluted samples onto the second column, chemical species that coelute from the first column can be separated by differen-

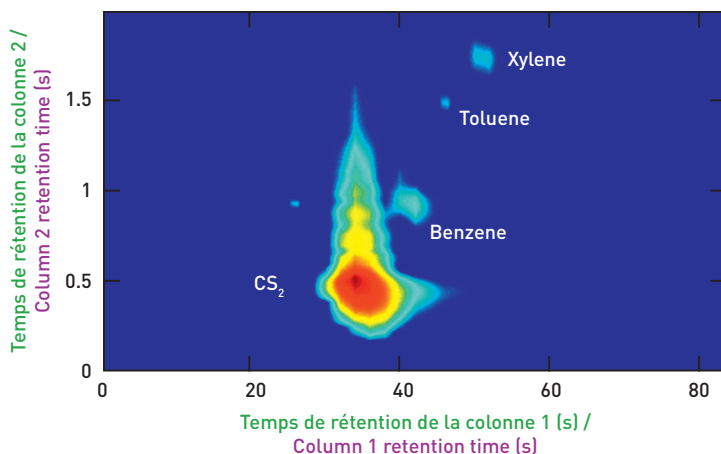


Fig. 2 : Séparation GCxGC d'hydrocarbures aromatiques avec une détection à base de NEMS. La séparation et la détection de benzène, toluène et xylène sont utiles pour la surveillance des atmosphères de travail toxiques comme dans les raffineries et les usines de produits chimiques. Les composés ont été injectés en quantité équivalente (0,25 %) en présence d'un solvant CS_2 qui représentait 99,25 % de l'échantillon.

GCxGC separation of aromatic hydrocarbons with NEMS resonator detection. Separation and detection of benzene, toluene, and xylene is useful for workplace exposure monitoring in refineries and chemical production facilities. Components were injected as a mixture in CS_2 solvent. Benzene, toluene, and xylene were each present at 0.25 volume % in the mixture, while 99.25% of the injected sample was the CS_2 solvent.

Analyseurs de gaz à base de nano-résonateurs NEMS

Le développement d'instruments miniaturisés

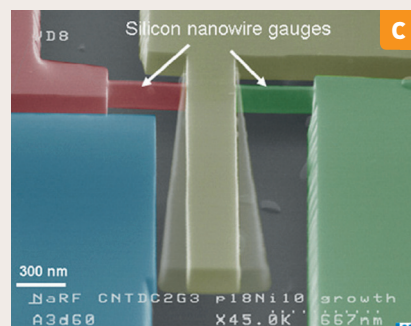
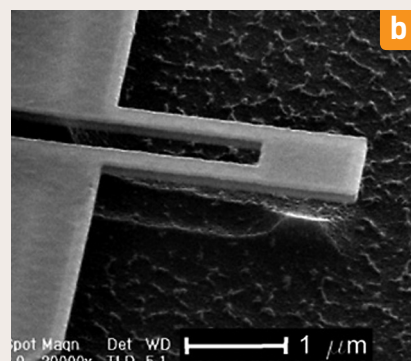
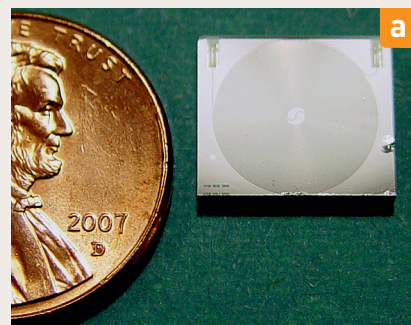
capables de détecter et identifier diverses espèces chimiques sous forme gazeuse à faible concentration pourrait améliorer le suivi du vieillissement des matériaux stockés. De tels systèmes de détection trouvent aussi des applications dans le domaine militaire (détection précoce d'agents chimiques), dans la lutte contre le terrorisme (explosifs), dans les domaines industriels (espèces chimiques toxiques, monitoring de procédés) ou la santé publique (sécurité alimentaire, qualité d'air). Les instruments de laboratoire les plus polyvalents et performants pour de telles analyses sont ceux qui combinent des fonctions de séparation d'échantillons complexes par chromatographie en phase gazeuse (GC) avec la détection et l'identification par spectrométrie de masse (MS) des espèces ainsi séparées. Cependant, ces systèmes de type GC-MS sont difficiles à miniaturiser en

tial absorption on the second column. The resulting temporally-separated chemical vapors flow over NEMS resonators at the outlet of the second column. As these vapors serially adsorb and desorb from the NEMS structures, the effective mass and therefore the resonant frequency of the NEMS will vary. By monitoring the frequency and/or phase shift of the NEMS resonators, signals proportional to the amount of eluting material are obtained and can be plotted against the retention times measured for that specific material on each of the two GC columns (Fig. 2). The position of the signal in the retention time plane can be calibrated to yield information on the chemical identity of the separated vapor, while the NEMS frequency shift can be calibrated to measure the concentration of the identified chemical compound. ●

Fig. 1 : Détecteurs de masse ultra-sensibles de type NEMS et colonnes GC à section rectangulaire.

a les colonnes sont de section $30\ \mu\text{m} \times 685\ \mu\text{m}$. **b** résonateur NEMS représentatif (poutre ancrée-libre) Le mode résonant fondamental pour ce dispositif est une flexion hors plan (Caltech). **c** l'image MEB (microscope électronique à balayage) modifiée et en couleurs illustre le mode de vibration dans le plan de la poutre NEMS (CEA-LETI).

Micrographs of NEMS mass-sensitive detectors and rectangular cross-section GC columns. **a** GC column cross-section dimensions are $30\ \mu\text{m} \times 685\ \mu\text{m}$. **b** Representative single-clamped beam NEMS resonator. Typically the fundamental out-of-plane resonant bending mode is monitored for this device (Caltech). **c** Artificially colored and modified SEM image illustrating the in-plane vibration mode monitored for this beam (CEA-LETI).



partie à cause de la mise sous vide nécessaire à l'étage de spectrométrie de masse. Les Micro et Nanosystèmes électromécaniques (M/NEMS) sensibles à toute modification de masses adsorbées à leur surface peuvent « peser » les composés sous forme gazeuse à pression ambiante. Ils sont ainsi des candidats très prometteurs en tant que détecteurs pour les instruments de GC miniaturisés [Fan11].

Les résonateurs NEMS ont déjà démontré des résolutions de détection en masse de l'ordre de l'attogramme ($10^{-18}\ \text{g}$) [Li07]. Parce que les capacités d'identification chimique des détecteurs NEMS sont déterminées par les mécanismes d'adsorption différentielle ou de solvatation sur les dispositifs fonctionnalisés, elles sont de fait inférieures aux performances des MS (en matière d'identification). Pour y pallier, nous développons donc un système utilisant des fonctions de chromatographie gazeuse à deux dimensions (GCxGC). L'amélioration de la capacité de sépara-

tion des GC apportée par cette approche permet de réduire les contraintes de spécificité requises au niveau de l'étage de détection tout en maintenant un taux de fausse alarme adéquat pour les espèces gazeuses dangereuses.

Les colonnes GC (SNL) et les détecteurs à base de résonateurs NEMS (Caltech et CEA-LETI) sont fabriqués aux échelles micro et nanométriques à partir des mêmes outils de lithographie et de gravure utilisés en microélectronique pour la réalisation de circuits intégrés (Fig. 1). Les résonateurs (de type poutre ancrée-libre) peuvent être actionnés de manière thermo-élastique, électrostatique ou piézoélectrique. La séparation GCxGC est réalisée en utilisant deux colonnes en série (avec deux phases stationnaires distinctes). En stoppant périodiquement le flux d'espèces éluées issues de la première colonne et en réinjectant ces échantillons dans la seconde colonne, les espèces chimiques susceptibles de ne pas être

séparées du premier coup peuvent l'être par absorption différentielle sur la phase stationnaire de la seconde colonne. Les espèces gazeuses ainsi temporairement séparées se dirigent vers les résonateurs NEMS positionnés en sortie de la deuxième colonne de chromatographie. Les composés arrivent les uns après les autres. Leur adsorption puis désorption sur les NEMS modifie la masse effective des résonateurs et ainsi leur fréquence de résonance. Le suivi des sauts de fréquence et/ou de phase des nanorésonateurs permet d'obtenir des signaux proportionnels à la quantité d'espèces détectées, tracés en fonction des temps de rétention de chaque espèce sur chacune des deux colonnes (Fig. 2). La position du signal dans le plan relatif au temps de rétention peut être calibrée pour identifier chacune des espèces chimiques séparées. La calibration des variations de fréquence des résonateurs NEMS permet de déterminer la concentration des composés chimiques identifiés. ●

Glossaire / Glossary

Organismes partenaires / Partner agencies

CALTECH : California Institute of Technology, USA.

CEA : Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, France. French Alternative Energies and Atomic Energy Commission, France.

CENBG : Centre d'études nucléaires de Bordeaux-Gradignan, France. Nuclear Research Center of Bordeaux Gradignan, France.

DAM : Direction des applications militaires du CEA. French Military Applications Division within CEA.

DIF ou/or CEA/DIF : Centre Île-de-France de la Direction des applications militaires (DAM) du CEA. One of the centers within CEA French Military Applications Division.

DOE : Department of Energy, USA.

EC-JRC-IRMM : The Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM) is one of the seven institutes of the Joint Research Centre (JRC), a Directorate-General of the European Commission (EC), Geel, Belgium.

ESRF : European Synchrotron Radiation Facility, Grenoble, France.

FUSTIPEN : Institut franco-américain de physique théorique dédié à l'étude des noyaux exotiques au GANIL, Caen, France. French – US. Theory Institute for Physics with Exotic Nuclei at GANIL, Caen, France. <http://fustipen.ganil.fr/>

Gramat ou/or CEA/Gramat : Centre de la Direction des applications militaires (DAM) du CEA.

One of the centers within CEA French Military Applications Division.

LANL : Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, USA.

LETI : Laboratoire d'électronique et de technologies de l'information de la Direction de la recherche technologique du CEA, Grenoble, France. Electronics and information technologies laboratory within the CEA Technological Research Division (DRT), Grenoble, France.

LLNL : Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, California, USA.

Le Ripault ou/or CEA Le Ripault : Centre de la Direction des applications militaires (DAM) du CEA. One of the centers within CEA French Military Applications Division.

NNSA : National Nuclear Security Administration, USA.

ORNL : Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, USA.

Rensselaer Polytechnic Institute : School of Engineering, Department of Mechanical, Aerospace, and Nuclear Engineering (MANE), Troy, New York, USA.

SNL : Sandia National Laboratories, Albuquerque, New Mexico, USA.

3 Degrees of Separation (3DS), Inc. : Consulting and instrument development company specializing in multi-dimensional, high-speed and micro-fabricated gas chromatography. Dayton, Ohio, USA.

Valduc ou/or CEA Valduc : Centre de la Direction des applications militaires (DAM) du CEA. One of the centers within CEA French Military Applications Division.

Grands instruments / Large facilities

CALIBAN : Réacteur nucléaire pulsé à cœur métallique fortement enrichi au CEA Valduc. Compact experimental pulsed-type reactor with a highly enriched metallic core at CEA Valduc (*article 7*).

DANCE : Detector for Advanced Neutron Capture Experiments at LANSCE (*article 10*).

FIGARO : Fast Neutron-Induced Gamma-Ray Observer at LANSCE (*articles 3, 4*).

GANIL : Grand accélérateur national d'ions lourds, Caen, France. National Large Heavy Ion Accelerator, Caen, France (*article 12*).

GEANIE : Germanium Array for Neutron Induced Excitations (*articles 5, 8, 11*).

GODIVA IV : Réacteur nucléaire pulsé à cœur métallique fortement enrichi au LANL. Pulsed-type nuclear reactor with a highly enriched metallic core at LANL (*article 7*).

HFIR : High Flux Isotope Reactor at ORNL (*article 6*).

LANSCE : Los Alamos Neutron Science Center Los Alamos, New Mexico, USA.

LSDS : Spectromètre à ralentissement dans le plomb au LANSCE.

Lead Slowing-Down Spectrometer at LANSCE (*article 6*).

LTD 1 MV : Linear Transformer Driver pour la radiographie X éclair au PEM.

Linear Transformer Driver (LTD) Development for Flash X-ray Radiography at PEM (*article 20*).

MLNSC : Manuel Lujan Neutron Scattering Center (*article 10*).

Moronvilliers and/or PEM : Polygone d'expérimentation de Moronvilliers rattaché au CEA/DIF.

Experimental facility within CEA/DIF.

Accélérateur tandem / Tandem Accelerator : Accélérateur électrostatique de type Van

de Graaff dont la tension maximale est de 15 MV. Orsay, France. Van de Graaff electrostatic accelerator type with a nominal voltage of 15 MV, Orsay, France (*article 10*).

SIDONIE : Séparateur d'isotopes électromagnétique à Orsay, France. Electromagnetic isotope separator at Orsay, France (*article 10*).

STARS-LIBERACE : Silicon Telescope Array for Reaction Studies (STARS) - Livermore Berkeley Array for Collaborative Experiments (LiBerACE) at Livermore, California. Such detector arrays consist of charged-particle and γ -ray detection capabilities (*article 10*).

URSA Minor LTD : Upgraded Sandia LTD system for Flash X-ray Radiography at SNL (*article 20*).

WNR : Weapons Neutron Research facility at LANSCE (*articles 2, 3, 5, 8*).

Références / References

Note de la rédaction / Note from the editorial board:

La liste des références ci-dessous concerne uniquement l'accord CEA/DAM - DOE / NNSA. De plus, en raison de leur quantité importante, la rédaction a décidé de sélectionner principalement les publications soumises dans les revues à comité de lecture.

The references listed below only concern the CEA/DAM - DOE/NNSA Agreement, and due to the huge quantity of references the editorial board has decided to mainly select publications in refereed journals in the interest of space.

1 / Projets en cours / Active projects

Article 2: Investigation of the $^{238}\text{Pu}(n,f)$ cross section

- [Cha11] Chadwick M. *et al.*, "ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data", *Nuclear Data Sheets*, 112(12), pp. 2997-3036 (2011).
- [Gra09] Granier T. *et al.*, "New Measurement of the (238)Pu(n,f) Cross-section", *4th International Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy*, Cadarache, France 13-16 May 2009, AIP Conference Proceedings, p. 227 (2009).
- [Mor09] Morillon B. *et al.*, "New BRC Evaluations of Actinides with the TALYS code", *4th International Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy*, Cadarache, France 13-16 May 2009, AIP Conference Proceedings, p. 79 (2009).
- [Nel97] Nelson R. O. *et al.*, "GEANIE at WNR/LANSCE: A New Instrument for Neutron Science", *Italian Physical Society Conference Proceedings*, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, May 19-24, 1997, Trieste, Italy - 59, pp. 445-449 (1997).

Article 3: Prompt fission neutron studies

- [Cha10] Chatillon A. *et al.*, "Energy measurement of prompt fission neutrons in $^{239}\text{Pu}(n,f)$ for incident neutron energies from 1 to 200 MeV", *Proc. International Seminar on Fission*, May 17-20, 2010 Gent Belgium, Editors C. Wagemans, J. Wagemans and P. D'hondt, World Scientific, 173-180 (2010).
- [Eth03] Ethvignot T. *et al.*, "Prompt-fission-neutron average energy for $^{238}\text{U}(n,f)$ from threshold to 200 MeV", *Phys. Lett. B*, **575**, pp. 221-228 (2003).
- [Eth05] Ethvignot T. *et al.*, "Neutron multiplicity in the fission of ^{238}U and ^{235}U with neutrons up to 200 MeV", *Phys. Rev. Lett.*, **94** (5), 052701 (2005).
- [Eth08] Ethvignot T. *et al.*, "Reply to Comment on "Neutron multiplicity in the fission of ^{238}U and ^{235}U with neutrons up to 200 MeV", *Phys. Rev. Lett.*, **101**(3), 039202 (2008).
- [Nod11] Noda S. *et al.*, "Prompt fission neutron spectra from fission induced by 1 to 8 MeV neutrons on (235)U and (239)Pu using the double time-of-flight technique", *Phys. Rev. C*, **83**, 034604 (2011).
- [Roc04] Rochman D. *et al.*, "Neutron-induced reaction studies at FIGARO using a spallation source", *Nucl. Instrum. Meth.*, A 523, pp. 102-115 (2004).
- [Tai07] Taieb J., "Measurement of the average energy and multiplicity of prompt-fission neutrons from $^{238}\text{U}(n,f)$ and $^{237}\text{Np}(n,f)$ from 1 to 200 MeV", *Proc. International Conference on Nuclear Data for*

Science and Technology, April 22-27, 2007, Nice, France, editors O. Bersillon, F. Gunsing, E. Bauge, R. Jacqmin, and S. Leray, EDP Sciences, p. 429-432 (2007).

Article 4: Measurements of fission mass yields and neutron multiplicity

- [Eth05] Ethvignot T. *et al.*, "Neutron multiplicity in the fission of ^{238}U and ^{235}U with neutrons up to 200 MeV", *Phys. Rev. Lett.*, **94** (5), 052701 (2005).
- [Hai12] Haight R. C. *et al.*, "Prompt Fission Neutron Studies", this issue.
- [Hen11] Henderson R.A. *et al.*, "Electrodeposition of U and Pu on thin C and Ti substrates", *Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res.*, A **655**, p. 66 (2011).
- [Lau12] Laurent B. *et al.*, "Measurement of the prompt neutron multiplicity and mass distribution of the fission fragments in neutron-induced fission reaction as a function of neutron energy at the WNR facility", *Proc. 7th International Conference on Dynamical Aspects of Nuclear Fission*, Slovakia, 2011, to be published.

Article 5: Investigation of prompt photon emission in fission

- [Eth01] Ethvignot T. *et al.*, "A fission-fragment-sensitive target for X-ray spectroscopy in neutron-induced fission", *Nucl. Instrum. Meth. A* **490**(3), pp. 559-565 (2002).
- [Eth02] Ethvignot T. *et al.*, "Intermediate-energy neutron-induced fission of uranium: fragment yields and isomer studies", *J. Nucl. Sci. Tech.*, Supplement 2, pp. 254-257 (2002).
- [Eth08] Ethvignot T., "Fission product yield data for the transmutation of minor actinide nuclear waste", Publication 1286, International Atomic Energy Agency, Vienna, p. 16 (2008).
- [Wu11] Wu C.-Y., personal communication (2011).

Article 6: Fission cross section measurements with a Lead Slowing-Down Spectrometer

- [Dan07] Danon Y. *et al.*, "Measurements with the high flux lead slowing-down spectrometer at LANL", *Nucl. Instr. and Meth. B* **261**, 1-2, 953-955 (2007).
- [Gra03] Ethvignot T. *et al.*, "Measuring neutron-induced fission cross-section of short-lived actinides using a lead neutron-slowing-down spectrometer", *Nucl. Instr. and Meth. A* **506**, 149-159 (2003).
- [Pet05] Petit M. *et al.*, "A Compensated Solid State Fission Detector Based on Solar Cells", *Nucl. Instr. and Meth. A* **554**, pp. 340-346 (2005).

- [Rom06] Romano C. *et al.*, "Measurements of (n, γ) cross-section of small samples using a lead-slowing-down-spectrometer", *Nucl. Instr. and Meth. A* **562**, pp. 771-773 (2006).
- [Roc05] Rochman D. *et al.*, "Characteristics of a Lead Slowing-Down Spectrometer Coupled to the LANSCE Accelerator", *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., A* **550**, pp. 397-413 (2005).
- [Roc06] Rochman D. *et al.*, "Cross Section Measurements for $^{239}\text{Pu}(n,f)$ and $^6\text{Li}(n,\alpha)$ with a Lead Slowing-Down Spectrometer", *Nucl. Instr. and Meth. A* **564**, pp. 400-404 (2006).
- [Tho12] Thompson J.T. *et al.*, "Measurement of (n, α) reactions on ^{147}Sm and ^{149}Sm using a lead slowing-down spectrometer", *Nucl. Instr. and Meth. A*, **673**, pp. 16-21 (2012).

Article 7: Integral measurement of ^{235}U isomer activation by inelastic fission neutron scattering

- [Bon08] Bond E. *et al.*, "Preparation of U-235m targets for U-235(n,n')U-235m cross section measurements", *J. Rad. Nucl. Chem.* **276**, pp. 549-554 (2008).
- [Meo00] Meot V. *et al.*, "Expérience isomère sur Phébus", CEA Report R-5944 (2000).
- [Rom03] Romain P., private communication (2003).
- [Lyn03] Lynn J.E., A.C. Hayes, "Theoretical evaluations of the fission cross section of the 77 eV isomer of U-235", *Phys. Rev. C*, **67**, 014607 (2003).

Article 8: Uncertainty quantification methods compared for n+ ^{89}Y cross sections

- [Bau08] Bauge E., P. Dossantos-Uzarralde, "Evaluation of the covariance matrix of neutronic cross sections with the Backward-Forward Monte-Carlo method", *Proc. of the International Conference on Nuclear Data For Science and Technology*, Nice, France Avril 2007, Ed. O. Bersillon, F. Gunsing, E. Bauge, R. Jacqmin, S. Leray, (EDP sciences, Paris), pp. 259-264 (2008).
- [Bau11] Bauge E., P. Dossantos-Uzarralde, "Evaluation of the covariance matrix of the ^{239}Pu neutronic cross sections in the continuum using the Backward-forward Monte-Carlo method", *J. Korean Phys. Soc.*, pp. **59**, pp. 1218-1223 (2011).
- [Cha07] Chadwick M.B. *et al.*, "Yttrium ENDF/B-VII data from theory and LANSCE/GEANIE measurements and covariances estimated using Bayesian and Monte-Carlo methods", *Nucl. Data Sheets*, **108**, pp. 2742-2755 (2007).
- [Her11] Hermann M. *et al.*, "Covariance data in the fast region", *International Evaluation co-operation volume 24*, OECD, NEA/ WPEC-24 (2011).
- [Kon08] Koning A.J. *et al.*, "TALYS-1.0", *Proc. of the International Conference on Nuclear Data For Science and Technology*, Nice, France Avril 2007, Ed. O. Bersillon, F. Gunsing, E. Bauge, R. Jacqmin, S. Leray, (EDP sciences, Paris), pp. 211-214 (2008).
- [Tal11] Talou P. *et al.*, "Quantification of uncertainties for evaluated neutron-induced reactions on actinides in the fast energy range", *Nucl. Data Sheets*, **112**, pp. 3054-3074 (2011).

- [You98] Young P.G. *et al.*, "Comprehensive nuclear models calculations: theory and use of the GNASH code, Proceedings of the workshop on nuclear reactions data and nuclear reactors", ICTP Trieste Avril 1996, Ed. A. Gandini, G. Reffo, (World Scientific Publ. Co. Singapore 1998), pp. 227-404 (1998).

Article 9: Prompt fission product average cross sections

- [Her07] Herman M., *et al.*, "EMPIRE: Nuclear reaction model code system for data evaluation", *Nucl. Data Sheets*, **108**, 2655 (2007).
- [Kon08] See ref. of article 8.
- [Kaw03] Kawano T., "The Hauser-Feshbach-Moldauer statistical model with the coupled channels theory" (unpublished).
- [Nel06] Nelson R.O., M. Devlin, "A Reexamination of Average Prompt Fission Products (n,xn) Cross Sections", LA-UR-06-7612, Los Alamos National Laboratory (2006).
- [Wat10] Watanabe T. *et al.*, "Calculation of Prompt Fission Product Average Cross Sections for Neutron-Induced Fission of ^{235}U and ^{239}Pu ", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **47**, 470 (2010).

Article 10: Radiative capture on Lu

- [Bou11] Boutoux G. *et al.*, "Neutron-Induced Capture Cross Sections via the Surrogate Reaction Method", *J. Korean Phys. Soc.*, **59**, pp. 1924-1927 (2011).
- [Cha04] Chauvin N. *et al.*, "SIDONIE: an electromagnetic isotope separator for preparation of high purity thin targets", *Nucl. Instr. and Meth. A*, **521**, pp. 149-155 (2004).
- [Esc10] Escher J. E., F. S. Dietrich, "Cross sections for neutron capture from surrogate measurements: An examination of Weisskopf-Ewing and ratio approximations", *Phys. Rev. C*, **81**, 024612 (2010).
- [Hei01] Heil M. *et al.*, "A 4π BaF₂ detector for (n, γ) cross-section measurements at a spallation neutron source", *Nucl. Instr. and Meth. A*, **459**, pp. 229-246 (2001).
- [Roi10] Roig O. *et al.*, "Neutron capture reactions on Lu isotopes at DANCE", *Proc. 12th International Conference on Nuclear Reaction Mechanisms*, CERN-Proceedings-2010-001, vol. 1, pp. 217-221 (2010).
- [Sci10] Scielzo N. D. *et al.*, "Measurement of γ -emission branching ratios for $^{154,156,158}\text{Gd}$ compound nuclei: Tests of surrogate nuclear reaction approximations for (n, γ) cross sections", *Phys. Rev. C*, **81**, 034608 (2010).
- [Tay09] Taylor W. A. *et al.*, "Production of a ^{173}Lu target for neutron capture cross section measurements", *J. Rad. Nucl. Chem.*, **282**, pp. 391-394 (2009).

Article 11: Fission product cross section measurements

- [Fot07] Fotiades N. *et al.*, "High-spin states in Xe-135", *Phys. Rev. C*, **75**, 054322 (2007).
- [Fot11] Fotiades N. *et al.* "States built on the 10(+) isomers in ($^{118,120,122,124}\text{Sn}$)", *Phys. Rev. C*, **84**, 054310 (2011).

[Wat10] Watanabe T. *et al.*, "Calculation of Prompt Fission Product Average Cross Sections for Neutron-Induced Fission of (235)U and (239)Pu", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **47**, pp. 470-481 (2010).

Article 12: Microscopic description of nuclear fission

[Ber11] Bernard R. *et al.*, "Microscopic and nonadiabatic Schrodinger equation derived from the generator coordinate method based on zero- and two-quasiparticle states", *Phys. Rev. C*, **84**, 044308 (2011).

[Dub11] Dubray N., Regnier D., "Numerical search of discontinuities in self-consistent potential energy surfaces", *Nuclear Theory*, Cornell University Library, arXiv:1112.4196 (2011).

[You11] Younes W., Gogny D., "Nuclear Scission and Quantum Localization", *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 132501 (2011).

Article 13: Shock initiation and detonation of high explosives

[Bou09] Bouyer V. *et al.*, "Experimental Measurements of the Chemical Reaction Zone of Detonating Liquid Explosives", in *Shock Compression of Condensed Matter – 2009*, AIP Conference Proceedings, **1195**, pp. 177 (2009).

[Cro07] Crouzet B. *et al.*, "Homogeneous Shock Initiation Process in Neat and Chemically-Sensitized Nitromethane", *EUROPYRO 2007-34th IPS* (2007).

[She06] Sheffield S.A. *et al.*, "Homogeneous Shock Initiation Process in Neat and Chemically Sensitized Nitromethane", *Proc. 13th International Detonation Symposium*, July 23-28, 2006 Norfolk, VA (2006).

[She09] Sheffield S. A., R. Engelke, "Condensed-phase explosives: shock initiation and detonation phenomena," in *Shock Wave Science and Technology Reference Library*, vol. 3, Y. Horie, Editor, Springer-Verlag, Berlin, 2009.

Article 15: Quantum molecular dynamics simulations of mixtures at extreme conditions

[Blo03] Blottiau P. *et al.*, "Ab-initio Molecular Dynamics applied to Hugoniot and Empirical Potential determination", *Proc. 5th Int. Symposium High Dynamic Pressures*, CEA, v. II, p. 227 (2003).

[Col05a] Collins L. *et al.*, "Quantum Molecular Dynamics Simulations of Dense Plasmas", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **33**, p. 586 (2005).

[Col05b] Collins L. *et al.*, "Quantum Molecular Dynamics Simulations of Warm, Dense Matter", *LA Science*, **29**, p. 70 (2005).

[Hor08] Horner D. *et al.*, "Quantum Molecular Dynamics Simulations of Warm, Dense Lithium Hydride: Examination of Mixing Rules", *Phys. Rev. B*, **77**, 064102 (2008).

[Hor09a] Horner D. *et al.*, "Transport Properties of Lithium Hydride from Quantum Molecular Dynamics and Orbital-Free Molecular Dynamics", *Phys. Rev. B*, **80**, 024305 (2009).

[Hor09b] Horner D. *et al.*, "Mixing Rules for Optical and

Transport Properties of Warm, Dense Matter", *Proc. AIP Conf.*, **1195**, p. 931 (2009).

[Kre07] Kress J. *et al.*, "Quantum Molecular Dynamics Simulations of Optical Reflectivity of Shock-Compressed Tin", *Proc. AIP Conf.*, **995**, 1433 (2007).

[Kre10] Kress J. *et al.*, "Viscosity and Mutual Diffusion In Deuterium-Tritium mixtures in the warm dense matter region", *Phys. Rev. E*, **82**, 036404 (2010).

[Maz04a] Mazevet S. *et al.*, "Quantum Molecular Dynamics Simulations of Shocked Nitrogen Oxide", *Phys. Rev. B*, **69**, 224207 (2004).

[Maz04b] Mazevet S. *et al.*, "Quantum Molecular Dynamics Simulations of Warm, Dense Matter", *Proc. AIP Conf.*, **730**, p. 139 (2004).

[Maz05] Mazevet S. *et al.*, "Simulations of the Optical Properties of Warm, Dense Aluminum", *Phys. Rev. E*, **71**, 016409 (2005).

Article 17: Lattice dynamics of the actinides

[Bou04] Bouchet J. *et al.*, "New Pseudo-Phase Structure for Alpha-Pu," *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 95503 (2004).

[Bou07] Bouchet J. *et al.*, "GGA and LDA+U Calculations of Pu Phases", *J. Alloys Compd.*, **444-445**, p. 246 (2007).

[Bou08] Bouchet J., "Lattice Dynamics of α Uranium", *Phys. Rev. B*, **77**, 024113 (2008).

[Bou11] Bouchet J., Albers R.C., "Elastic Properties of the Light Actinides at High Pressure", *J. Phys.: Condens. Matter*, **23**, 215402 (2011).

[Jul07] Julien J.P. *et al.*, "Effect of spin-orbit coupling on an ab initio Gutwiller approach for Pu", *J. Alloys and Comp.* **444**, pp. 285-287 (2007).

[Ray11] Raymond S. *et al.*, "Understanding the Complex Phase Diagram of Uranium: the Role of the Electron-Phonon Coupling", *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 136401 (2011).

Article 18: Multiphase equation of state and kinetics of phase changes

[Heu11] Heuzé O., Swift D.C., "Analysis and modelling of laser ramps and shocks in Ti and Zr with phase transition", *Proc. APS-SCCM Conference*, Chicago (2011).

[Swi12] SWIFT D.C. *et al.*, "Analytic multiphase equation of state for MgO", *Proc. 43rd LPS Conference*, The Woodlands (2012).

Article 19: Stellar interior opacity: measurements and models

[Bai07] Bailey J.E. *et al.*, "Iron-plasma transmission measurements at temperatures above 150 eV", *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 265002 (2007).

[Bai08] Bailey J.E. *et al.*, "Diagnosis of x-ray heated Mg/Fe opacity research plasmas", *Rev. Sci. Instrum.*, **79**, 113104 (2008).

[Bai09] Bailey J.E. *et al.*, "Experimental investigation of opacity models for stellar interior, inertial fusion, and high energy density plasmas", *Phys. Plasmas*, **16**, 058101 (2009).

Article 20: Linear Transformer Driver (LTD) development for flash x-ray radiography

- [Bay11] Bayol F. *et al.*, "Development of a 1 MV ultra-fast LTD generator", *Proc. 18th IEEE Int. Pulsed Power Conf.*, Chicago, IL, 2011.
- [Lec11] Leckbee J. *et al.*, "Linear transformer driver (LTD) research for radiographic applications", *Proc. 18th IEEE Int. Pulsed Power Conf.*, Chicago, IL, 2011.

Article 21: Computational radiography and cross code comparisons

- [Fla07] Flamig D., "Test Problem for Coherent and Incoherent Scatter", Los Alamos report LA-UR-07-5124 (2007).
- [Lem12] Lemaire S. *et al.*, "Neutron and Photon Next-Event Estimator Benchmarks for Inter-Code Comparison", *Proc. 10th international conference on Monte-Carlo and Quasi Monte-Carlo methods in scientific computing*, February 13-17, 2012, Sydney, Australia.
- [MCNP03] "MCNP: A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 Voll", LA-UR_03-1987, Los Alamos National Laboratory (2003).
- [MCNP6] Updates to the MCNP6 code manual to include information on the pre-collision next-event estimator developed under P168. To be released with the release of MCNP6.
- [Riz00] Riz D., "Calculation and use of Multigroup Cross Sections Including Electron-Photon cascade for a 3D monte Carlo neutron-Gamma Transport Code", *Proc. Topl. Mtg. Advances in Reactor Physics and Mathematics and Computation into the Next Millennium*, Pittsburgh, Pennsylvania, May 7-12, 2000, American Nuclear Society (2000).
- [Swe08] Sweezy J., Flamig D., "Improvements in MCNP's Next-Event Estimator Methodology for Radiographic Simulations", *Proc. 11th International Conference on Radiation Shielding*, Pine Mountain Georgia (2008).
- [Swe11a] Sweezy J., "Implementation of Pre-Collision Next-Event Estimators in MCNP", 2011. To be published.
- [Swe11b] Sweezy J. *et al.*, "Neutron and Photon Next-Event Estimator Benchmarks for Inter-Code Comparison", 2011, presently under revision for publication.
- [Toc09] Toccoli C. *et al.*, "Specific Treatment of DIANE for Radiographic Applications", *Nuclear Technology*, **168**(3), pp. 933-937 (2009).

Article 22: Nanoscale resonator gas sensors

- [Fan11] Fanget S. *et al.*, "Gas sensors based on gravimetric detection-A review", *Sensors and Actuators*, **B 160**, pp. 804-821 (2011).
- [Li07] Li M. *et al.*, "Ultra-sensitive NEMS-based cantilevers for sensing, scanned probe and very high-frequency applications", *Nature Nanotechnology*, **2**, pp. 114-120 (2007).

Collaborative exchanges of nuclear reaction algorithms and data

- [Cha07] Chadwick M.B. *et al.*, "Yttrium ENDF/B-VII data from theory and LANSCE/GEANIE measurements

and covariances estimated using Bayesian and Monte-Carlo methods", *Nucl. Data Sheets*, **108**, pp. 2742-2755 (2007).

- [Cha10] Chadwick M.B. *et al.*, "Fission product yields from fission spectrum n+²³⁹Pu for ENDF/B-VII.1", *Nuclear Data Sheets*, **111**, pp. 2923-2964 (2010).
- [Dup11] Dupuis M. *et al.*, "Microscopic model approach to (n,xn) pre-equilibrium reactions for medium-energy neutrons", *Phys. Rev. C*, **83**, 014602 (2011).
- [Kaw10] Kawano T. *et al.*, "Monte Carlo simulation for particle and gamma-ray emissions in statistical Hauser-Feshbach model", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **47**, p. 62 (2010).
- [Lau10] Laurec J. *et al.*, "Fission product yields of ²³³U, ²³⁵U, ²³⁸U, and ²³⁹Pu in fields of thermal neutrons, fission neutrons and 14.7 MeV neutrons", *Nuclear Data Sheets*, **111**, pp. 2965-2980 (2010).
- [Tal11] Talou P. *et al.*, "Advanced Monte Carlo modeling of prompt fission neutrons for thermal and fast neutron-induced fission reaction on Pu-239", *Phys. Rev. C*, **83**(6), 064612 (2011).
- [WEP11] WPEC Subgroup 24 Report, "Covariance Data in the Fast Neutron Region", NEA/NSC/WPEC/DOC (2010) 427, OECD (2011).

Studying dense fluid hydrogen with laser shocks in pre-compressed targets

- [Bry07] Brygoo S. *et al.*, "Laser-shock compression of diamond and evidence of a negative-slope melting curve", *Nature Materials*, **6**(4), pp. 274-277 (2007).
- [Cel10] Celliers P. *et al.*, "The insulator to conducting transition in dense fluid helium", *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 184503 (2010).
- [Lou04a] Loubeyre P. *et al.*, "Coupling Static and Dynamic Compressions: First Measurements In Dense Hydrogen", *High Pres. Res.*, **24**, pp. 25-31 (2004).
- [Lou04b] Loubeyre P. *et al.* "Coupling Static and Dynamic Compressions with a Laser Shock in a Diamond Anvil Cell and the Properties of Dense Fluid Hydrogen", *J. High Pres. Phys.*, January 1, 2004.
- [Lou04c] Loubeyre P. *et al.*, "Coupling Static and Dynamic Compressions: First Measurements In Dense Hydrogen", *High Pres. Res.*, **24**, pp. 25-31 (2004).
- [Egg08] Eggert J.H. *et al.*, "Hugoniot data for helium in the ionization regime", *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 124503 (2008).

Transport properties of dense plasmas

- [Lec07] Lecherbourg L. *et al.*, "X-ray absorption of a warm dense aluminum plasma created by an ultra-short laser pulse", *High Energy Density Physics*, **3**(1-2), pp. 175-180 (2007).
- [Aud08] Audebert P. *et al.*, "Atomic processes in plasmas created by an ultra-short laser pulse", *J. Phys.: Conf. Ser.*, 112 042001 (2008).
- [Man10] Mancic A. *et al.*, "Isochoric heating of solids by laser-accelerated protons: Experimental characterization and self-consistent hydrodynamic modeling Isochoric heating of solids by laser-accelerated protons: Experimental characterization and self-consistent hydrodynamic modeling", *High Energy Density Physics*, **6**, pp. 21-28 (2010).

2 / Projets achevés / Completed projects

Fission/Capture measurements on actinides using DANCE

- [Bon09] Bond E.M. *et al.*, "Preparation of targets for nuclear chemistry experiments at DANCE", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **282**(2), pp. 379-384 (2009).
- [Bre07] Bredeweg T.A. *et al.*, "Simultaneous measurement of (n,gamma) and (n, fission) cross sections with the DANCE 4 π BaF₂ array", *Nucl. Instrum. Meth.*, **B261**(1-2), pp. 986-989 (2007).
- [Wou06] Wouters J.M. *et al.*, "Acquisition - Analysis system for the DANCE (Detector for Advanced Neutron Capture Experiments) BaF₂ gamma-ray calorimeter", *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **53**(3), pp. 880-885 (2006).
- [Cle06b] Clerouin J. *et al.*, "Exploring Warm Dense Matter with Quantum Molecular Dynamics", *J. Phys. IV France*, **133**, pp. 1071-1075 (2006).
- [Lam06] Lambert F. *et al.*, "Structural and dynamical properties of hot dense matter by a Thomas-Fermi-Dirac molecular dynamics", *Europhys. Lett.*, **75**, pp. 681-687 (2006).
- [Lau04] Laudernet Y. *et al.*, "Ab initio simulations of the electrical and optical properties of shock compressed SiO₂", *Phys. Rev. B*, **70**, 165108 (2004).
- [Maz05] Mazevet S. *et al.*, "Ab-initio simulations of the optical properties of warm dense gold", *Phys. Rev. Lett.* **95**, 085002 (2005).
- [Rec06] Recoules V. *et al.*, "Effect of intense laser irradiation on the lattice stability of semiconductors and metals", *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 055503 (2006).

^{235m}U excitation on laser plasma

- [Luu06] Luu, T.C. *et al.*, "Electromagnetic excitation rates for nuclear isomers in a hot dense plasma", *Nuclear Science and Engineering*, **152**(1), pp. 98-105 (2006).
- [Mor04] Morel P. *et al.*, "Evaluation of nuclear excitation by electronic transition in ²³⁵U plasma at local thermodynamic equilibrium", *Phys. Rev. A* **69**, 063414 (2004).

Molecular Dynamics Simulations of Detonation in Energetic Materials

- [Hol02] Holian B.L. *et al.*, "Atomistic Mechanism for Hot Spot Initiation", *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 285501 (2002).
- [Hol05] Holian B.L. *et al.*, "Non-Equilibrium Molecular Dynamics Studies of Shock and Detonation Processes in Energetic Materials", in *Chemistry at Extreme Conditions*, R. Manaa, ed. (Elsevier Science Ltd.) pp. 269-296 (2005).

Equations of state, conductivities, and optical properties of dense metal plasmas and liquids

- [Cle03] Clerouin J. *et al.*, "Equation of state and electrical conductivity of strongly correlated aluminum and copper plasmas", *Contributions to Plasma Physics*, **43**, pp. 269-272 (2003).
- [Cle05a] Clerouin J. *et al.*, "Ab initio study of the optical properties of shocked LiF", *Phys. Rev. B*, **72**, 155122 (2005).
- [Cle05b] Clerouin J. *et al.*, "Electrical conductivity and equation-of-state study of warm dense copper: Measurements and quantum molecular dynamics calculations", *Phys. Rev. B*, **71**, 064203 (2005).
- [Cle06a] Clerouin J. *et al.*, "Ab initio study of optical properties of shock compressed silica and lithium fluoride", *J. Phys. A: Math. Gen.*, **39**, pp. 4387-4391 (2006).

Two simple molecular fluids at high density: H₂O and O₂

- [Bon04a] Bonev S.A. *et al.*, "Ab-initio simulations of dense liquid deuterium: comparison with gas gun shock wave experiments", *Phys. Rev. B*, **69**, 014101 (2004).
- [Bon04b] Bonev S.A. *et al.*, "A quantum fluid of metallic hydrogen suggested by first-principles calculations", *Nature*, **431**, 669 (2004).
- [Egg02a] Eggert J.H. *et al.*, "Quantitative structure factor and density measurements of high-pressure fluids in diamond anvil cells by x-ray diffraction: argon and water", *Phys. Rev. B*, **65**, 174105 (2002).
- [Egg02b] Eggert J.H. *et al.*, "Structure of liquid water at high pressures and temperatures", *J. Phys.: Condens. Matter*, **14**(44), pp. 11385-11394 (2002).
- [Hoo04] Hood R.Q., G. Galli, "Insulator to metal transition in fluid hydrogen", *J. Chem. Phys.*, **120**(12), pp. 5691-5694 (2004).
- [Mil03] Militzer B. *et al.*, "Structure and bonding of dense liquid oxygen from first-principles simulations", *Phys.Rev.Lett.*, **91**, 265503(2003).
- [Wec07] Weck G. *et al.*, "Melting line and fluid structure factor of oxygen up to 24 GPa", *Phys. Rev. B*, **76**, 054121 (2007).
- [Wec09] Weck G. *et al.*, "Phase diagrams and isotopic effects of normal and deuterated water studied via x-ray diffraction up to 4.5 GPa and 500 K", *Phys. Rev. B*, **80**(18), 180202 (2009).

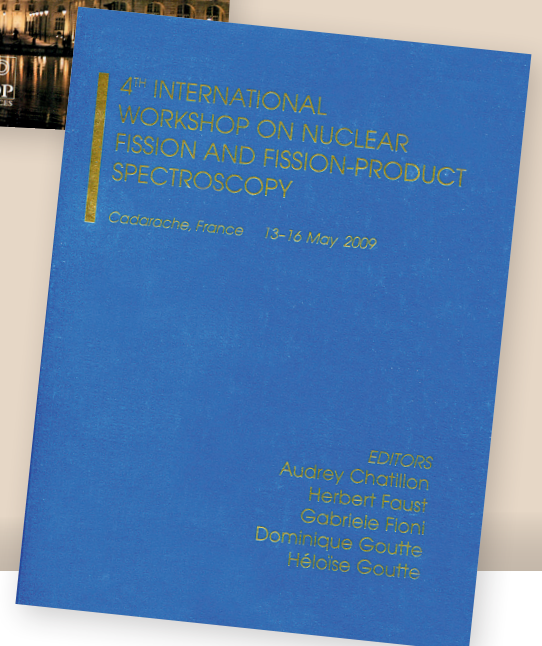
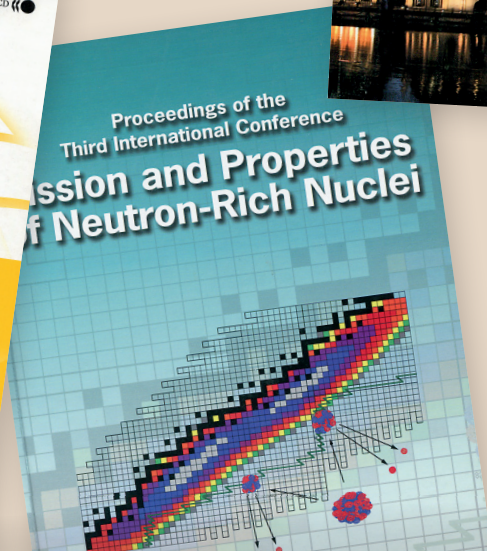
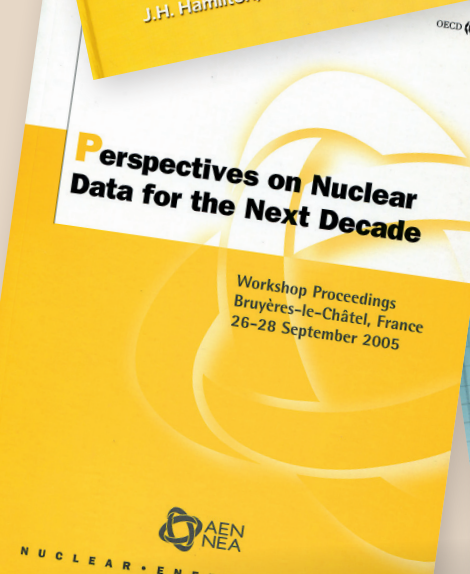
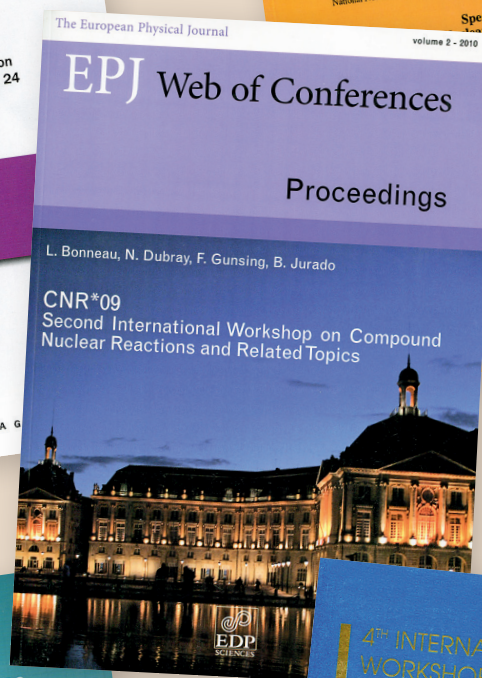
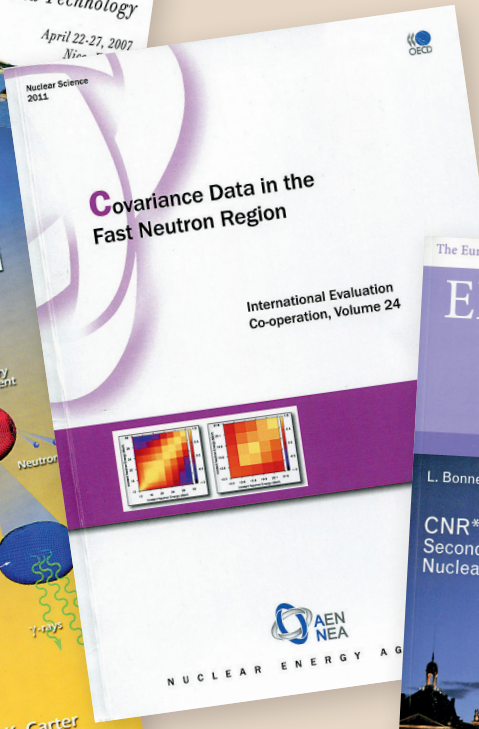
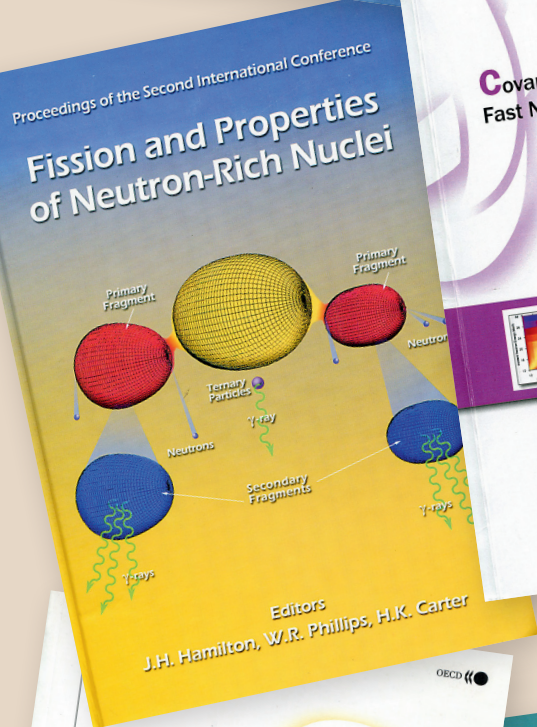
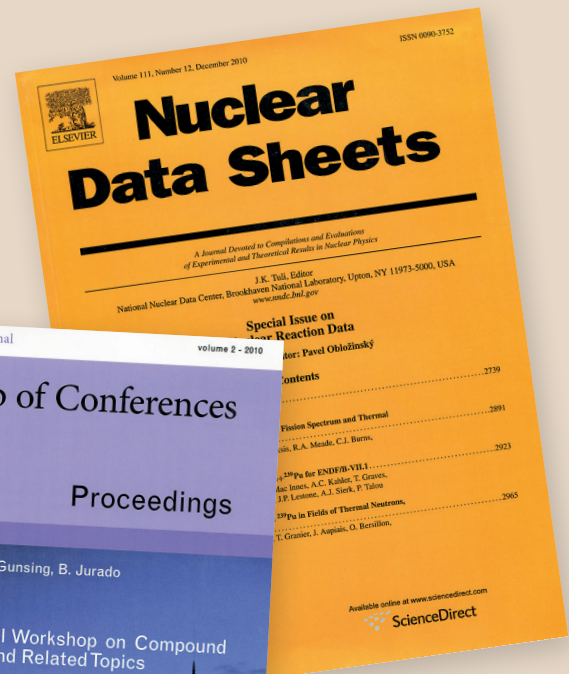
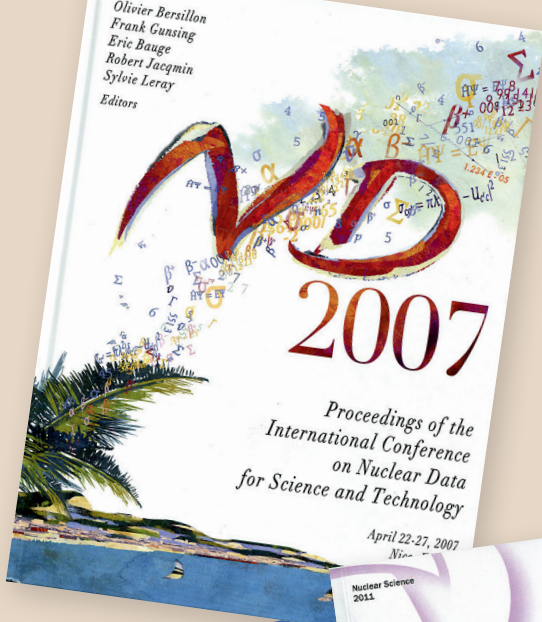
Electronic structure measurements of dense plasmas

- [Gre04] Gregori G. *et al.*, "Electronic structure measurements of dense plasmas", *Phys. Plasmas*, **11**, pp. 2754-2762 (2004).

Actes de conférences / Conference proceedings

De nombreux articles issus de l'Accord CEA/DAM-DOE/NNSA ont été publiés dans des actes de conférence dont une sélection de couvertures est présentée ci-dessous.

Many of the CEA/DAM - DOE/NNSA Agreement's articles have been published in conference proceedings. A selection of covers is presented below.



Commissariat   l' nergie atomique et aux  nergies alternatives

10 ans de l'accord CEA/DAM - DOE/NNSA

Image de couverture : Photographie du d tecteur DANCE au Los Alamos National Laboratory (cr dit photo : Robert Kramer, LANL).

Image de 4^e de couverture : Photographie de la machine Z du Sandia National Laboratories (cr dit photo : Randy Montoya, SNL).

Directeurs de la publication : Thierry Massard & Chris Deeney. / Comit  scientifique : Catherine Cherfils, Paul Dotson, Michael Kreisler, Christian Mailhiot, John Porter.

R dacteur en chef : Michel Boivineau / Secr tariat et abonnement : R gis Vizet. / Cr ation : EFIL - www.efil.fr. / Impression : Gibert & Clarey,

Chambrey-l s-Tours. / Production et  dition : CEA - DAM, Bruy res-le-Ch tel, F-91297 Arpajon cedex - France / E-mail : chocs@cea.fr / ISSN 2115-7057

Sélection d'articles publiés dans des revues à comité de lecture / Selection of articles published in refereed journals

Europhys. Lett., 75 (5), p. 681 (2006)
DOI: 10.1209/epl/2006-10184-7

Structural and dynamical properties of hot dense matter by a Thomas-Fermi-Dirac molecular dynamics

F. Lambert¹ - J. Clérouin¹ - S. Mazevet²

¹ Département de Physique Théorique et Appliquée, CEA/DAM Ile-de-France BP 12, 91680 Bruyères-le-Châtel Cedex, France
² Los Alamos National Laboratory Los Alamos, NM 87545, USA

IEEE TRANSACTIONS ON PLASMA SCIENCE, VOL. 33, NO. 2, APRIL 2005

Quantum Molecular Dynamics Simulations of Dense Plasmas

Lee A. Collins, Joel D. Kress, Stephane F. Mazevet, and Michael P. Desjarlais

JOURNAL OF PHYSICS: CONDENSED MATTER
doi:10.1088/0953-8984/23/21/215402

IOP PUBLISHING
J. Phys.: Condens. Matter 23 (2011) 215402 (7pp)

Elastic properties of the light actinides at high pressure

J. Bouchet¹ and R. C. Albers²

¹ CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon, France
² Theoretical Division, Los Alamos National Laboratory

Available online at www.sciencedirect.com
SCIENCE @ DIRECT®
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 506 (2003) 149-159
www.elsevier.com/locate/nucinst

Measuring neutron-induced fission cross-section of shortlived actinides using a lead neutron-slowing-down spectrometer

T. Granier^{a,*}, L. Pangault^{b,1}, T. Ethvignot^a, R. C. Haight^b, X. Ledoux^a, V. Méot^a, Y. Patin^a, P. Pras^a, M. Szmigiel^a, R. S. Rundberg^b, J.B. Wilhelmy^b

PHYSICS OF PLASMAS 16, 058101 (2009)

Experimental investigation of opacity models for stellar interior, inertial fusion, and high energy density plasmas^{a)}

J. E. Bailey,^{1,b)} G. A. Rochau,¹ R. C. Mancini,² C. A. Iglesias,³ J. J. MacFarlane,⁴ I. E. Golovkin,⁴ C. Blancard,⁵ Ph. Cosse,⁶ and G. Faussurier⁵

PHYSICAL REVIEW A 69, 063414 (2004)

Evaluation of nuclear excitation by electronic transition in ²³⁵U plasma at local thermodynamic equilibrium

P. Morel, V. Méot, and G. Gosselin
Commissariat à l'Energie Atomique, Service de Physique Nucléaire, Boîte Postale 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France
D. Gogny and W. Younes
Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, California 94551, USA

Available online at www.sciencedirect.com
SCIENCE @ DIRECT®
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 550 (2005) 397-413

Characteristics of a lead slowing-down spectrometer coupled to the LANSCE accelerator

D. Rochman^{a,1}, R. C. Haight^{a,*}, J. M. O' Donnell^a, A. Michaudon^a, S. A. Wender^a, D. J. Vieira^b, E. M. Bond^b, T. A. Bredeweg^b, A. Kronenberg^{b,2}, J. B. Wilhelmy^b, T. Ethvignot^c, T. Granier^c, M. Petit^c, Y. Danon^d

VOLUME 92, NUMBER 9 PHYSICAL REVIEW LETTERS

New Pseudophase Structure for α -Pu

J. Bouchet,¹ R. C. Albers,¹ M. D. Jones,² and G. Jomard³

¹ Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico 87545, USA

² Department of Physics and Center for Computational Research, The State University of New York, Buffalo, NY 14260, USA

³ Centre d'études de Bruyères le Chatel, France

Available online at www.sciencedirect.com
SCIENCE @ DIRECT®

Physics Letters B 575 (2003) 221-228

PHYSICS LETTERS B

Prompt-fission-neutron average energy for ²³⁸U(n, f) from threshold to 200 MeV

T. Ethvignot^{a,1}, M. Devlin^b, R. Drosig^b, T. Granier^a, R. C. Haight^b, B. Morillon^a, R. O. Nelson^a, J. M. O'Donnell^b, D. Rochman^b

^a Commissariat à l'Energie Atomique, DAM Ile-de-France, BP 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France
^b Los Alamos National Laboratory, Science Center, MS B535, Los Alamos National Laboratory, NM 87545, USA
Received 27 June 2003; received in revised form 8 September 2003

Available online at www.sciencedirect.com
ScienceDirect

High Energy Density Physics 3 (2007) 175-180

High Energy Density Physics

X-ray absorption of a warm dense aluminum plasma created by an ultra-short laser pulse

L. Lecherbourg^{a,b}, P. Renaudin^{c,d}, S. Bastiani-Ceccotti^a, J.-P. Geindre^a, C. Blancard^e, P. Cossé^a, G. Faussurier^e, R. Shepherd^d, P. Audebert^a

^a Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, UMR 7065, CNRS-CEA-Université Paris VI-Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau, France
^b Université du Québec, INRS Energie et matériaux, Vancouver, Québec, Canada
^c Université de Québec, INRS-Énergie et matériaux, Québec, Canada
^d Département de Physique Théorique et Appliquée, CEA/DAM Ile-de-France, BP 12, 91680 Bruyères-le-Châtel Cedex, France
^e Lawrence Livermore National Laboratory, University of California, Livermore, CA 94550, USA

PR 107, 136401 (2011)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

week ending 23 SEPTEMBER 2011

Understanding the Complex Phase Diagram of Uranium: The Role of Electron-Phonon Coupling

S. Raymond,¹ J. Bouchet,² G. H. Lander,³ M. Le Tacon,^{4,5} G. Garbarino,⁴ M. Hoesch,⁴ J.-P. Rueff,^{6,7} M. Krisch,⁴ J. C. Lashley,⁸ R. K. Schulze,⁸ and R. C. Albers⁸

¹ SPSMS, UMR-E 9001, CEA-DMAC/JIF-Grenoble 1, 38054 Grenoble, France
² CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon, France
³ European Commission, Joint Research Centre, Institute for Transuranium Elements, Postfach 2340, D-76125 Karlsruhe, Germany
⁴ Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Heisenbergstraße 1, D-70569 Stuttgart, Germany
⁵ Synchrotron SOLEIL, L'Orme des Merisiers, Saint Aubin, BP 48, 91192 Gif-sur-Yvette, France
⁶ Laboratoire de Chimie Physique-Matière et Rayonnement, CNRS-UMR 7641, Université Paris Diderot, Paris 75205, France
⁷ Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA 94550, USA

week ending 7 MAY 2010

PR 104, 184503 (2010)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

Insulator-to-Conducting Transition in Dense Fluid Helium

P. M. Celliers,¹ P. Loubeyre,² J. H. Eggert,¹ S. Brygoo,² R. S. McWilliams,^{3,5} D. G. Hicks,¹ T. R. Boehly,⁴ R. Jeanloz,⁵ and G. W. Collins¹

¹ Lawrence Livermore National Laboratory, Post Office Box 808, Livermore, California 94551, USA
² CEA/DAM/DIF, 91297 Arpajon, France
³ Institute for Shock Physics, Washington State University, Pullman, Washington 99164, USA
⁴ Laboratory for Laser Energetics, University of Rochester, Rochester, New York 14623, USA
⁵ University of California, Berkeley, California 94720, USA

Department of Energy - National Nuclear Security Administration

10 years of the CEA/DAM - DOE/NNSA Agreement

Image of front cover: Picture of the DANCE detector at Los Alamos National Laboratory (Courtesy of Robert Kramer, LANL).

Image of back cover: Picture of the Z Pulsed Power Facility at Sandia National Laboratories (Courtesy of Randy Montoya, SNL).

Publishers: Thierry Massard & Chris Deeney. / Scientific committee: Catherine Cherfils, Paul Dotson, Michael Kreisler, Christian Mailhot, John Porter.

Editor in Chief: Michel Boivineau. / Assistant editorship and subscription: Régis Vizet / Designer: EFIL - www.efil.fr. / Printing: Gibert & Clarey,

Chambray-lès-Tours. / Production and edition: CEA - DAM, Bruyères-le-Châtel, F-91297 Arpajon cedex - France / E-mail: chocs@cea.fr / ISSN 2115-7057

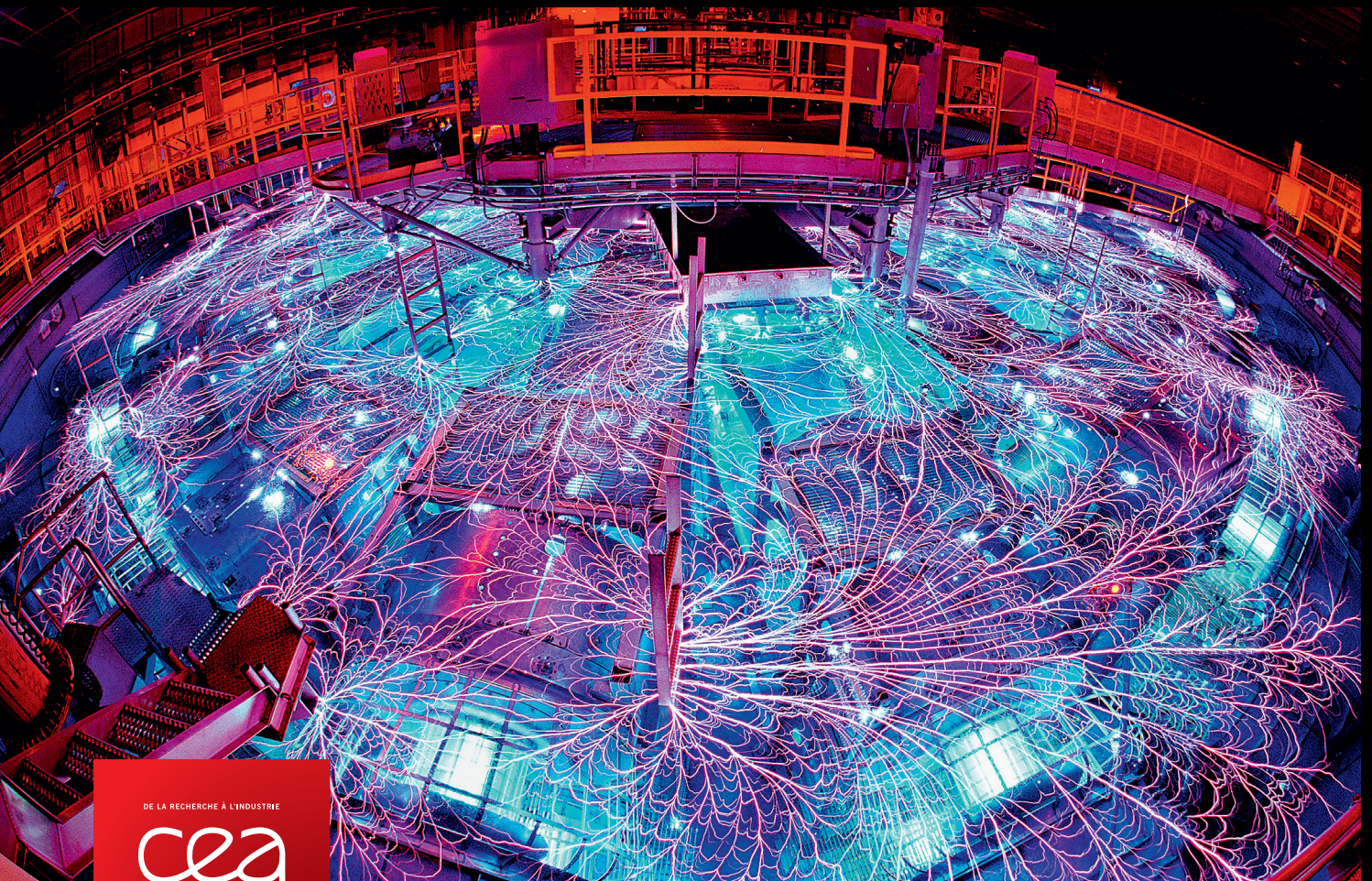
CHOCs **FOCUS** n°3 Juin 2012
Actualités scientifiques à la Direction des applications militaires

2002-2012

10

**ans de l'Accord
CEA/DAM - DOE/NNSA**

**years of the CEA/DAM -
DOE/NNSA Agreement**



DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

cea