FISSION NUCLEAIRE DE BASSE ENERGIE ET REACTIONS INDUITES PAR NEUTRONS

G. BARREAU
CEN Bordeaux
Le Haut Vigneau
F-33175 GRADIGNAN Cedex

LA FISSION NUCLEAIRE

- 1932** : Découverte du neutron par G. CHADWICK
- 1934** : Découverte de la radioactivité artificielle par F. JOLIOT et I. CURIE.
Théorie de la radioactivité β^- par E. FERMI
Première utilisation des neutrons pour produire les éléments de $Z > 92$ à partir d'une cible d'Uranium naturel. L'origine des nombreuses radioactivités observées soulèvent des problèmes.
- 1938** : P. SAVITCH du groupe de F. JOLIOT isole un radioélément dont les propriétés sont proches de celles du Lanthane ($Z=57$).
- 1938** : O. HAHN et F. STRASSMANN mettent clairement en évidence, par séparation chimique, la présence de Barium radioactif dans une cible d'Uranium bombardée par des neutrons. Preuve est faite que toutes les radioactivités nouvelles observées appartiennent à des éléments du milieu du tableau de MENDELEEV.
- 1939** : L. MEITNER et O. FRISCH donnent le nom de **FISSION NUCLEAIRE** à ce nouveau phénomène. Preuves physiques par O. FRISCH et par F. JOLIOT (ch. Ionisation)
- 1939** : N. BOHR et J.A. WHEELER interprètent la fission dans le cadre de la goutte liquide. Ils suggèrent que seul l'isotope ^{235}U , contenu à dans l'Uranium naturel, subit la fission ; cette première description du mécanisme de fission est déjà globalement satisfaisante. Dès la fin de 1939, plus d'une centaine de publications sur la fission ont été publiées.
- 1939** : V. HALBAN, F. JOLIOT, L. KOWARSKI et F. PERRIN découvrent l'émission de neutrons au cours du processus de fission. Ils déposent deux brevets intitulés :
- Dispositif de production d'énergie.
- Perfectionnements aux charges explosives.
- 1942** : Divergence à Chicago du premier réacteur nucléaire construit sous la direction de E. FERMI
- 1945** : Première explosion nucléaire à Alamogordo (Nouveau Mexique USA)

A - APPROCHE MACROSCOPIQUE DE LA FISSION

A-1 - LE MODELE DE LA GOUTTE LIQUIDE

Dès 1939, et grâce aux premiers travaux de BOHR et WHEELER, le modèle de la goutte liquide a servi de cadre théorique au phénomène de fission et notamment pour calculer l'énergie libérée et préciser le concept de barrière de fission. Pendant longtemps, l'histoire de la fission s'est confondue avec celle de la barrière de fission qui joue un rôle capital dans les propriétés du phénomène de fission. Malgré ses lacunes, ce modèle de la goutte liquide contient l'essentiel de ce qu'il faut savoir pour comprendre le phénomène de fission, c'est donc par lui que je commencerai.

Dans ce modèle, le noyau est assimilé à une goutte liquide incompressible, uniformément chargée. Les forces en jeu au sein du noyau sont les forces nucléaires à courte portée et attractives auxquelles s'ajoutent les forces coulombiennes répulsives entre les protons. Pour une forme donnée du noyau, son énergie totale est calculée en représentant l'interaction nucléaire comme une tension superficielle dont les propriétés sont extraites de la formule semi-empirique des masses. Puisque le volume de la goutte chargée est incompressible, sa stabilité est essentiellement gouvernée par l'antagonisme de ces deux forces.

Pour un noyau sphérique, l'énergie de surface augmente comme $A^{2/3}$ alors que l'énergie de répulsion coulombienne croît, à densité constante, comme $Z^2 / A^{1/3}$.

On peut donc comprendre que le processus de fission est un phénomène qui apparaît le plus aisément dans les noyaux lourds.

Lorsqu'un noyau lourd est excité, certaines distorsions de sa surface peuvent apparaître. Les forces de tension superficielle tendent à lui redonner sa forme initiale tandis que les forces de répulsion coulombienne tendent au contraire à augmenter la distorsion. Si ces forces répulsives l'emportent sur les forces attractives, la déformation de la goutte liquide peut augmenter et conduire à la fission. Nous allons maintenant étudier plus quantitativement ce mécanisme.

- **Comportement du noyau pour de petites déformations : paramètre de fissilité**

Pour de faibles distorsions de la goutte liquide à partir de la forme sphérique initiale, la variation de son énergie potentielle peut se calculer à partir de la formule de masse de BETHE et WEISZACKER. Il est facile de montrer la relation suivante :

$$\Delta V(\alpha) = a_s A^{2/3} [f(\alpha) - 1] + a_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} [g(\alpha) - 1]$$

Pour aboutir à cette expression nous avons supposé que seuls les termes de surface et de répulsion coulombienne dépendaient de la déformation caractérisée par le paramètre α .

Pour une goutte chargée sphérique, les énergies potentielles associées à ces deux termes s'écrivent sous les formes suivantes :

$$V_s(0) = a_s A^{2/3} \quad \text{Energie de surface du noyau sphérique initial}$$

$$V_c(0) = a_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} \quad \text{Energie coulombienne du noyau sphérique.}$$

La fonction $f(\alpha)$ représente le rapport entre la surface de la goutte à la déformation α et la surface de la goutte sphérique initiale. Tandis que $g(\alpha)$ désigne ce rapport pour les énergies coulombiennes. Pour expliciter ces deux fonctions, nous allons comme BOHR et WHEELER considérer une faible déformation quadripolaire.

En coordonnées polaires, le rayon du noyau est représenté par un développement en polynôme de LEGENDRE arrêté à l'ordre 2 :

$$R(\theta) = R_0 (1 + \alpha_2 P_2(\cos(\theta)))$$

On peut montrer que les facteurs $f(\alpha)$ et $g(\alpha)$ introduits ci-dessus s'expriment simplement par :

$$f(\alpha) = 1 + \frac{2\alpha_2^2}{5} + \dots \text{soit : } V_s(\alpha) \approx V_s(0) \left(1 + \frac{2\alpha^2}{5} \right)$$

$$g(\alpha) = 1 - \frac{\alpha_2^2}{5} + \dots \text{soit : } V_c(\alpha) \approx V_c(0) \left(1 - \frac{\alpha^2}{5} \right)$$

Nous obtenons alors la variation d'énergie potentielle suivante :

$$\Delta V(\alpha) \approx V_s(0) \frac{2\alpha^2}{5} - V_c(0) \frac{\alpha^2}{5} = \frac{2\alpha^2}{5} V_s(0) (1 - x)$$

$$\text{où } x = \frac{V_c(0)}{2V_s(0)} = \frac{3}{5} \frac{e^2}{r_0} \cdot \frac{Z^2/A}{2a_s'(1-KI^2)} \approx \frac{Z^2/A}{47}$$

x est appelé le paramètre de fissilité, il est donc proportionnel à Z^2/A

Lorsqu'on déforme le noyau, son énergie de surface augmente et son énergie coulombienne diminue ; ce paramètre x contrôle donc les amplitudes relatives de ces variations, on notera :

- pour $x < 1$ $V(\alpha)$ augmente avec la déformation, le noyau est stable vis à vis de la fission
- pour $x > 1$ le noyau est complètement instable, y compris dans la forme sphérique.

A titre indicatif, les valeurs du paramètre de fissilité pour quelques noyaux lourds sont les suivantes :

	^{209}Bi	^{232}Th	^{235}U	^{238}U	^{254}Fm
$X =$	0.7	0.74	0.77	0.76	0.84.

Pour tous les noyaux stables connus, le paramètre de fissilité est inférieur à 1, la fission spontanée de ces noyaux n'est en principe pas possible ; nous savons qu'il n'en est rien et nous allons montrer comment le modèle de la goutte liquide permet de le montrer.

• Chaleur de réaction dans le cas d'une fission symétrique

A partir des relations établies ci-dessus nous allons considérer maintenant la fission d'un noyau en deux fragments identiques. La chaleur de réaction va s'écrire :

$$Q = \left[M(N, Z) - 2M\left(\frac{N}{2}, \frac{Z}{2}\right) \right] c^2 = V_s(0) \left(2^{1/3} - 1 \right) + \frac{V_c(0)}{2} \left(2^{1/3} - 2 \right)$$

$$Q = V_s(0)(0.260 - 0.740x)$$

La fission symétrique n'est énergétiquement possible que pour les noyaux dont le paramètre de fissilité $x > 0.35$.

Pour les noyaux tels que $0.35 < x < 1$, l'énergie potentielle croît tout d'abord avec la déformation, et elle devient négative pour une déformation infinie (fragments séparés) ; il doit donc y avoir au moins un maximum dans la fonction $V(\alpha)$.

Ce maximum est assimilable à une barrière, c'est la barrière de fission. Classiquement, elle représente l'énergie supplémentaire qu'il faut fournir au noyau pour qu'il puisse fissionner, cette barrière peut être franchie :

- par effet tunnel, elle explique donc la fission spontanée des noyaux lourds
- par apport d'une énergie d'excitation suffisante : de 5 à 6 MeV pour les actinides.

Quelques ordres de grandeur : il n'est peut être pas inutile de donner, dans le cadre de la goutte liquide, les ordres de grandeur des énergies mises en jeu dans le calcul simple qui nous a conduit au calcul de cette barrière de fission: au niveau de la barrière de fission les variations relatives des énergies de surface et coulombienne avoisinent la centaine de MeV, la barrière de fission est donc une différence entre des valeurs d'énergies très importantes : une précision de 100 keV sur cette barrière exige en fait une précision meilleure que 1/1000 sur les énergies de surface et coulombienne

précision impossible à atteindre avec le modèle de la goutte liquide et ce malgré les nombreuses améliorations apportées depuis son introduction.

- **Surface d'énergie potentielle**

Les relations établies ci-dessus font intervenir les déformations du type les plus simples, on doit en principe considérer un espace à plusieurs dimensions. Le problème est d'évaluer correctement et en continu l'évolution de la forme du noyau fissionnant et la modification des énergies de surface et coulombienne lorsqu'une sphère se déforme. Ce type de calcul nécessite l'utilisation d'ordinateurs très puissants car il n'est pas possible de trouver des formes analytiques simples pour décrire un processus aussi complexe que la fission.

Depuis les premiers travaux de BOHR et WHEELER, les calculs les plus complets effectués à partir du modèle de la goutte liquide ont été réalisés par SWIATECKI et ses élèves COHEN et NIX en utilisant :

- un développement en polynôme de LEGENDRE du rayon vecteur de la goutte chargée pour en décrire la forme.

- deux sphéroïdes reliés par un hyperboloïde de révolution, un modèle de déformation plus adapté que le précédent pour décrire les configurations proches de la scission.

En dépit de leur complexité, ces calculs ont permis de dresser la surfaces d'énergie potentielle du noyau en fonction des différents axes de déformations.

La figure (A-1) représente schématiquement cette surface d'énergie potentielle ainsi obtenue en fonction des paramètres les plus importants : α_2 qui décrit l'élongation du noyau et α_4 qui décrit sa striction ou la formation du col entre les deux fragments.

Fig.A1: Surface d'énergie potentielle (goutte liquide) d'un noyau lourd en fonction de son élongation (α_2) et de sa striction (α_4).
Energie potentielle le long de la trajectoire OF: Barrière de fission.

Les lignes de niveaux reportés sur cette surface font apparaître :

- un puits profond sphérique qui correspond au noyau dans son état fondamental,
- la vallée de la fission binaire qui débouche elle-même dans la vallée de la fusion,
- la vallée de la fission ternaire ou division du noyau en trois fragments symétriques.

Ces deux vallées sont séparées de l'état fondamental par des cols dont la hauteur par rapport à ce fondamental est caractéristique d'un seuil de fission; la valeur la plus faible étant atteinte pour la fission binaire. L'évolution du système fissionnant entre l'état initial et la scission peut être représentée par une ligne de cette surface que l'on appelle le chemin de la fission et la variation de l'énergie potentielle le long de ce chemin s'apparente à celle d'une barrière, la barrière de fission.

Les calculs ont été effectués pour les configurations symétriques et asymétriques et pour toutes les valeurs de x entre 0 et 1. De ces études systématiques, émergent plusieurs résultats intéressants que nous rappellerons brièvement.

- **Configurations de point-selle dans la région des actinides**

Lorsque $x > 0.67$, on observe un premier col pour le passage de la goutte sphérique à une forme cylindrique intermédiaire et un second col entre cette vallée de potentiel et la vallée des deux fragments séparés ; en revanche pour $x < 0.67$, la goutte sphérique se déformerait directement en deux fragments après passage par un seul col.

- **Stabilité de la goutte liquide vis à vis de l'asymétrie de masse**

Les résultats montrent que c'est seulement en dessous de $x = 0.396$ que la fission asymétrique est la plus stable ; cette valeur de x que nous avons déjà rencontrée est connue sous le nom de point de Businaro-Gallone. Au-delà, et contrairement à l'évidence expérimentale, la fission symétrique est toujours la plus favorable.

A-2 - CONFRONTATION AVEC L'EXPERIENCE

Le modèle de la goutte liquide, malgré sa simplicité, a permis d'expliquer les grandes tendances de la fission :

- la fissilité des noyaux croît avec le facteur Z^2/A , ceci apparaît clairement dans la fission spontanée dont les demi-vies sont de plus en plus courtes au fur et à mesure que l'on atteint les transuraniens les plus lointains; cette tendance observée expérimentalement est reproduite seulement en moyenne avec des écarts importants au niveau des éléments les plus lourds pour reproduire notamment la forte dépendance des demi-vies avec :
 - l'excès de neutrons pour un Z donné
 - la parité en Z (ou en N) des demi-vies puisque on observe expérimentalement des vies moyennes pour les noyaux impairs plus élevées que pour les noyaux pair-pair voisins - figure (A2-1).
- Les mêmes remarques s'appliquent également pour les barrières de fission dont l'évolution générale avec le paramètre de fissilité x est globalement bien reproduite avec néanmoins des écarts importants - figure (A2-2) :
 - dans la région du Plomb ($Z=82$)
 - dans la région des noyaux lourds où la variation des barrières calculées s'avère beaucoup plus forte que ne le prévoit l'expérience : nous verrons plus loin que ces barrières se situent

toutes au voisinage de 6 MeV entre l'Uranium et le Fermium. On rapprochera ce dernier point de l'énorme variation (10^{20}) des demi-vies de fission spontanée observée à travers cette région.

Fig.A2-1: Périodes mesurées de fission spontanée des noyaux lourds en fonction de leur paramètre de fissilité (x) et comparaison avec les prévisions de la goutte liquide (LDM).

Fig.A2-2: Barrières de fission des noyaux lourds en fonction de leur paramètre de fissilité (x) et comparaison avec les prévisions de la goutte liquide

- Le plus grand succès de la goutte liquide se situe au niveau des prédictions des caractéristiques des noyaux fissionnants dont la division en masse est symétrique. C'est le cas notamment :
 - des noyaux plus légers que le radium dont on sait que les configurations de point-selle sont très proches de celles de deux fragments séparés
 - des noyaux fissionnants formés à grande énergie d'excitation.

L'échec le plus évident du modèle de la goutte liquide se situe certainement dans son incapacité à reproduire, à faible énergie d'excitation, la fission asymétrique des noyaux lourds depuis le Thorium et jusqu'aux isotopes du Fermium alors qu'une transition vers la fission symétrique réapparaît dans la région des ^{257}Fm - ^{258}Fm , tandis que, la région des Radium avec une distribution en masse à trois bosses marque la transition vers la fission symétrique des noyaux plus légers.

Le fait le plus remarquable de cette asymétrie prononcée de la fission de basse énergie réside dans la relative stabilité du fragment lourd de ces distributions de masse autour d'un ensemble qui favorise la formation d'un fragment lourd stabilisé par les couches magiques ($Z=50$ et $N=82$). Figure (A2-3).

Fig.A2-3: Allure des distributions en masse pour différents noyaux lourds de $Z > 85$.

Ces insuffisances du modèle de la goutte liquide ont été reconnues dès la fin des années 50, elles expliquent en partie pourquoi la fission est restée pendant des années un domaine à part de la physique nucléaire. Cette situation va changer très rapidement au cours des années 60 par

l'émergence de nouveaux concepts pour aborder les déformations nucléaires à travers les approches développées par BOHR et MOTTELSON puis par NILSSON.

Sur le plan expérimental c'est surtout la découverte de nouveaux phénomènes de la fission complètement inexplicables dans le cadre de la goutte liquide ; pour les plus significatifs :

- La découverte d'une activité de fission spontanée dite anormale par une équipe de Dubna lancée à l'époque dans la recherche des éléments lourds de $Z > 104$. Au cours d'irradiation de cibles de ^{238}U par un faisceau de Ne il apparût qu'un des produits de réaction fissionnait spontanément avec une période de 14 ms. Plusieurs expériences croisées permirent d'attribuer cette activité de fission au noyau ^{242}Am dont la période connue de fission spontanée est beaucoup plus longue. Des expériences complémentaires montrèrent rapidement qu'il s'agissait d'un état excité de ce noyau qui fissionnait mais que sa fonction d'excitation n'était pas celle d'un isomère de spin dont de nombreux exemples étaient déjà connus à l'époque.
- Les structures intermédiaires observées sous le seuil de fission des noyaux dits non-fissiles comme le ^{237}Np (figure A2-4). Il s'agissait là de résonances de faible amplitude dont l'espacement régulier allait à l'encontre de la répartition statistique de ces résonances telles qu'on peut les observer dans les noyaux fissiles voisins ^{235}U et ^{239}Pu .

Fig.A2-4: Sections efficaces totale et de fission de ^{237}Np par neutrons de résonances.
(on notera le regroupement des résonances dans la section efficace de fission)

B - APPROCHE MICROSCOPIQUE DE LA FISSION

B-1 - NAISSANCE ET TRIOMPHE DE LA DOUBLE BARRIERE DE FISSION

Le début des années 60 se traduit par des progrès importants concernant le traitement microscopique des déformations nucléaires par le biais du modèle de Nilsson et le plein essor de la spectroscopie des états déformés observés dans la région des terres rares.

A cette époque, le surcroît de stabilité des noyaux comportant un nombre de neutrons et/ou de protons dit magique (2, 8, 20, 28, 50, 82, 126) était déjà attribué à la structure en couches des nucléons dans le noyau dont la structure microscopique était explorée à partir du modèle de particules indépendantes se déplaçant dans un potentiel moyen du type potentiel harmonique ou du type Wood-Saxon. Comme le montre la figure(x), ces états de particules indépendantes se groupent en paquets dans un noyau sphérique pour former des couches au lieu d'être régulièrement espacés en $\sqrt{E}$ tel que le laissait prévoir le modèle de la goutte liquide (ou le modèle de Thomas-Fermi). L'existence de ces couches est due au fait que les longueurs d'onde des nucléons sont du même ordre de grandeur que les dimensions du noyau. Un noyau comportant un nombre magique de neutrons ou de protons aura une énergie de liaison par nucléon plus grande qu'un noyau ayant quelques nucléons supplémentaires; ces quelques nucléons devront en effet se placer dans la couche supérieure, et ils seront moins liés malgré un tassement général des niveaux dû à l'augmentation du rayon du noyau (le niveau de Fermi se maintiendrait à la même énergie s'il n'y avait pas de couches). Comme l'existence des couches profondes a peu d'incidence sur l'énergie de liaison globale des nucléons qui les occupent, l'énergie de liaison moyenne par nucléon (ou la masse par nucléon) d'un noyau sera modulée en fonction de N et de Z, suivant le degré d'occupation des dernières couches de protons et de neutrons ou suivant leur densité d'états au voisinage de leur énergie de Fermi respective.

Dès le début des années 50, le modèle en couches sphériques s'avéra incapable d'expliquer les moments quadripolaires anormalement élevés des noyaux situés entre deux couches magiques $150 < A < 190$ et $A > 220$ (tel que ^{176}Lu dont le moment quadripolaire est 30 fois plus élevé que celui prévu par le modèle en couches sphériques), J. RAINWATER postule pour la première fois l'existence de noyaux stables déformés et propose un modèle en couches déformées dans lequel les nucléons se meuvent librement dans un potentiel dont la déformation est la même que celle du noyau, J. RAINWATER suggère que le couplage à un coeur sphérique de particules hors des couches magiques polarise ce coeur et entraîne sa déformation.

Peu de temps après, A. BOHR suggère qu'un mode d'excitation collectif soit associée à la déformation : mode vibrationnel ou rotationnel; c'est le point de départ du modèle unifié développé par A. BOHR et B. MOTTELSON qui rend compte à la fois de l'aspect macroscopique et du comportement individuel des nucléons couplés à un coeur pair. Le succès de ce modèle est

rapidement confirmé par l'observation d'un grand nombre de bandes de rotation dans la région des terres rares et des actinides qui signent ainsi la déformation permanente des noyaux de ces régions. C'est dans ce contexte que se situe le modèle en couches déformées développé par S.G. NILSSON en 1955. Nous allons en rappeler les principales caractéristiques :

- Le potentiel considéré par NILSSON est celui d'un oscillateur harmonique anisotrope dont l'Hamiltonien s'exprime par :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + \frac{1}{2m} \left[\omega_{\perp}^2 (x^2 + y^2) + \omega_z^2 z^2 \right] + C \bar{I} \bar{s} + D \bar{I}^2$$

- C'est un potentiel à symétrie axiale définie par les fréquences d'oscillation : $\omega_{\perp}$ et ω_z qui s'expriment en fonction des paramètres de déformation ε et ε_4 par :

$$\omega_{\perp} = \omega_0(\varepsilon, \varepsilon_4) \left(1 + \frac{1}{3} \varepsilon \right) \quad \text{et} \quad \omega_z = \omega_0(\varepsilon, \varepsilon_4) \left(1 - \frac{2}{3} \varepsilon \right)$$

Les paramètres ε et ε_4 décrivent respectivement la déformation suivant l'axe oz et l'écart par rapport aux déformations sphéroïdales.

Les paramètres C et D sont déterminés empiriquement pour obtenir le meilleur accord possible avec l'expérience.

Les états propres de cet Hamiltonien sont ceux de l'oscillateur harmonique anisotrope $[N, n_z, \Lambda, \Omega, \pi]$:

N est le nombre quantique principal de l'oscillateur harmonique.

Λ est la projection du moment angulaire orbital $\bar{I}$ sur l'axe de symétrie

Ω est la projection du moment angulaire $\bar{j} = \bar{I} + \bar{s}$ sur l'axe de symétrie

$$\Omega = \Lambda \pm \frac{1}{2}$$

$\pi = (-1)^N$ est la parité de la fonction d'onde :

Dans le cadre de cet Hamiltonien, Ω et π sont de bons nombres quantiques. Ceci entraîne les conséquences suivantes sur les diagrammes indiquant les niveaux d'énergie des différents états en fonction de la déformation, communément appelés diagrammes de Nilsson dont un exemple est montré sur la figure (B1 -1) :

- si on déforme le noyau, la dégénérescence des niveaux d'énergie du potentiel sphérique est partiellement levée, chaque niveau de moment angulaire total j donnant naissance à $(2j+1)/2$ niveaux doublement dégénérés et caractérisés par $|\Omega|$.

Fig.B1-1: Diagramme de Nilsson pour les protons $82 < Z < 126$.

- L'étalement en énergie de ces niveaux augmente avec la déformation, pour de faible déformation, cet étalement conduit à une répartition uniforme des niveaux visible sur la figure autour de $\epsilon = 0.15$
- A grandes déformations ($\epsilon = 0.5$) on voit réapparaître les effets de couches dus au regroupement des niveaux de Nilsson venant de couches initialement différentes.

La présence de ces regroupements, parce qu'ils abaissent la densité de niveaux est à l'origine de la déformation permanente de certains noyaux dans leur état fondamental.

C'est dans le cadre de ce modèle que MOTTELSON et NILSSON ont pu montrer que la déformation d'équilibre correspond au minimum dans l'énergie totale du noyau calculée en fonction de sa déformation; cette énergie totale est obtenue en sommant pour chaque déformation les plus bas états d'énergie de N neutrons et de Z protons.

On a pu ainsi reproduire les déformations des terres rares et des actinides que l'on savait déformés. La fission s'est avérée être un objet unique pour l'étude des effets de couches à grande déformation. D'où l'idée d'utiliser ce modèle pour calculer les barrières de fission; ces calculs ont été entrepris par NILSSON, les résultats obtenus sont illustrés par la figure B1-2 où l'on a reporté pour plusieurs actinides la variation de leur énergie potentielle en fonction du paramètre de déformation ϵ .

On notera que le type de barrière obtenue présente un minimum pour une forme non sphérique en bon accord avec l'expérience, néanmoins et à grande déformation, le modèle ne reproduit pas la décroissance de l'énergie potentielle : bien qu'un point-selle se dessine pour ^{238}U vers $\epsilon \approx 0.5$, on constate que l'énergie croît rapidement lorsque la déformation augmente.

Fig.B1-2: Barrières de fission calculées pour un puits de potentiel déformé.

Les raisons de cet échec sont maintenant bien comprises, elles proviennent de l'hypothèse propre au modèle de Nilsson, selon laquelle les surfaces équipotentielles engendrent des volumes constants dans lesquels la densité de matière nucléaire est supposée constante. Cette hypothèse entraîne que l'énergie totale obtenue par simple sommation des énergies individuelles est surestimée aux grandes déformations. Le modèle en couches déformées entraîne ainsi une erreur systématique qui devient considérable à partir de $\epsilon \geq 0.6$.

On remarquera que l'énergie potentielle totale calculée à partir du modèle de Nilsson présente des oscillations autour d'une valeur moyenne qui croît régulièrement avec la déformation, ces oscillations représentent des fluctuations de la densité des états de Nilsson au voisinage de l'énergie de Fermi. L'étude de ces oscillations à grandes déformations, à partir d'un formalisme approprié, constitue ce que l'on a appelé la méthode de STRUTINSKI.

B-2 - LA METHODE DE STRUTINSKI

La méthode proposée par STRUTINSKI reprend la sommation sur les énergies de particules tout en normalisant cette somme (dont la valeur absolue est erronée) sur la valeur moyenne fournie par la goutte liquide, cette idée de renormalisation avait déjà été entrevue par MYERS et SWIATECKI mais la première prescription quantitative en fut donnée par STRUTINSKI.

La méthode proposée par STRUTINSKI consiste donc à réaliser la synthèse du modèle de la goutte liquide et du modèle en couches déformées pour décrire simultanément la valeur moyenne de l'énergie potentielle et les fluctuations locales de cette énergie potentielle en fonction du nombre de nucléons et de la déformation du noyau; la méthode proposée débouche donc sur un modèle macroscopique-microscopique de la fission.

Quantitativement la méthode de STRUTINSKI fait intervenir les opérations suivantes :

- il faut choisir un ensemble de paramètres $\{\alpha\}$ permettant de décrire les différentes formes du noyau au cours de son évolution vers la fission
- on calcule l'énergie potentielle goutte liquide $V_{GL}(\alpha)$ pour les différentes formes du noyau
- on génère pour ces différentes formes, le puits de potentiel dont on détermine les états de particules (neutrons et protons) par résolution de l'équation de Schrödinger.

L'évolution de l'énergie potentielle du noyau avec sa déformation s'écrit sous la forme suivante :

$$V(\alpha) = V_{GL}(\alpha) + \sum_{p,n} [\Delta V_c(\alpha) + \Delta V_p(\alpha)]$$

Dans cette expression, $\Delta V_c(\alpha)$ est la correction de couches, $\Delta V_p(\alpha)$ est la correction des effets d'appariement., ces corrections sont effectuées indépendamment pour les protons et les neutrons.

Considérons par exemple la corrections de couches pour les protons, elle s'exprime par :

$$\Delta V_c(\alpha) = \sum_Z \varepsilon_i - \sum_Z \bar{\varepsilon}_i$$

où les ε_i représentent les énergies des Z états de protons les plus liés tandis que les $\bar{\varepsilon}_i$ représentent les énergies «moyennes» qu'auraient ces états s'il n'y avait pas d'effet de couches.

La densité des états discrets est définie par : $g(\varepsilon) = \sum_i \delta(\varepsilon - \varepsilon_i)$

L'énergie totale issue du modèle en couches est définie par : $\sum_i \varepsilon_i = \int_{-\infty}^{\lambda} \varepsilon g(\varepsilon) d\varepsilon$

où λ , le niveau de Fermi est défini à partir du nombre de protons par la relation :

$$Z = 2 \int_{-\infty}^{\lambda} g(\varepsilon) d\varepsilon$$

Pour calculer $\sum_Z \bar{\varepsilon}_i$ on définit une densité de niveaux lissée $\bar{g}(\varepsilon')$ par l'intermédiaire d'une fonction de pondération $f(\varepsilon, \varepsilon')$ telle que :

$$\bar{g}(\varepsilon') = \sum_{i=1}^Z f(\varepsilon' - \varepsilon_i) \delta(\varepsilon - \varepsilon_i) = \sum_{i=1}^Z \frac{1}{\gamma \sqrt{\pi}} e^{-\left(\frac{\varepsilon_i - \varepsilon'}{\gamma}\right)^2} \cdot P\left(\frac{\varepsilon_i - \varepsilon'}{\gamma}\right)$$

La densité des états discrets $g(\varepsilon)$ croît de façon non linéaire et présente des oscillations de fréquence $\hbar\omega_0$, il convient donc de prendre γ de l'ordre de 1 à $1.5 \hbar\omega_0$ si l'on veut lisser ces oscillations tout en conservant l'allure générale de $g(\varepsilon)$.

Le choix de la fonction de pondération doit répondre à deux critères importants :

- convergence, celle-ci est réalisée à partir du produit d'une gaussienne par un polynôme de degré pair $2M$
- la correction de couche doit être, à partir d'une valeur donnée de M , indépendante de γ , ceci est généralement bien réalisé dès que $M \geq 2$.

Dans la pratique, un polynôme d'ordre pair limité à l'ordre 6 et une valeur de γ voisine de

$$41 \text{ MeV} / A^{1/3}$$

assurent une variation correcte de $\bar{g}(\varepsilon')$ et une stabilisation de la correction de

couche. La correction de couche calculée est surtout sensible au degré de remplissage de la dernière couche mise en jeu; elle est négative si cette dernière couche est presque remplie et positive dans le cas contraire. Cet effet est illustré par la figure B2-1 qui montre les oscillations de la correction de couche en fonction de la déformation pour un nombre de neutron N pair compris entre 100 et 126 ainsi que la variation du rapport entre la densités d'états au voisinage de l'énergie de Fermi est la densité lissée pour quelques valeurs de N . La corrélation entre les variations de ces deux grandeurs apparaît très nettement. On vérifiera que la correction de couche est minimale pour la forme sphérique à $N=126$ alors qu'un minimum déformé se développe à $\beta \approx 0.3$ pour $N=106$.

Fig.B2-1: Correction de couches pour les neutrons en fonction de la déformation dans la région $100 < N < 126$.

B-3 - SURFACE D'ENERGIE POTENTIELLE CALCULEE PAR LA METHODE DE STRUTINSKI

Le caractère oscillatoire des corrections de couche va modifier considérablement la surface d'énergie potentielle goutte liquide. La figure B3-1 représente la surface d'énergie potentielle d'un actinide en fonction de son élongation et de sa striction. En comparaison avec celle obtenue pour la goutte liquide on constate en outre la déformation de l'état fondamental, l'apparition d'un second puits de potentiel situé à environ 3 Mev au-dessus du fondamental associé à une forme prolate du noyau assimilable à un ellipsoïde dont le rapport des axes est voisin de 2. On aboutit ainsi à une barrière de fission à deux bosses dont l'allure générale est représentée sur la figure B3-2 pour 3 noyaux lourds de la région Thorium-Californium. On notera que les hauteurs relatives des deux barrières et la profondeur du second puits qu'elles encadrent varient de façon importante avec le numéro atomique Z du noyau. Dans la région des Thorium la seconde barrière est plus élevée que la première alors que l'effet inverse est observé pour les noyaux de Z plus élevé, la barrière la plus haute se situant entre 5 et 6 Mev c'est dans la région Uranium-Plutonium que les deux barrières atteignent des hauteurs voisines et c'est dans cette région que le second minimum est le plus prononcé (~ 3 Mev). Cette évolution trouve son origine dans la variation du point selle goutte liquide dont la déformation se rapproche de celle de la sphère lorsque Z augmente (voir figure B3-2), il est dû à une augmentation plus rapide du terme coulombien par rapport au terme de surface.

A la fin des années 70 la méthode de STRUTINSKI s'est imposée très rapidement dans l'étude du phénomène de fission alors qu'initialement cette méthode était orientée vers la recherche des noyaux dits super lourds ($A \approx 300$) dont il fallait préciser l'existence sur le plan théorique. On sait maintenant, et malgré de très nombreuses recherches, que de tels noyaux n'ont pas encore été observés. Sur le plan théorique, la méthode de STRUTINSKI est un succès puisqu'elle est à l'origine de la prédiction d'un deuxième puits à grande déformation. Néanmoins, elle fut dès l'origine qualifiée d'approche phénoménologique ou encore semi classique puisqu'elle ne part pas d'un modèle unique et qu'elle combine sans l'expliquer les aspects classiques et quantiques du noyau.

Fig. B3-1: Surface d'énergie potentielle suivant la méthode de strutinski.

Fig.B3-2: Allure des barrières de fission calculées par la méthode de Strutinski et comparées aux barrières type goutte liquide (B_n est l'énergie de liaison d'un neutron pour le noyau considéré).

B-4 - CALCULS HARTREE-FOCK ET DOUBLE BARRIERE DE FISSION

A la même époque des progrès décisifs sont obtenus pour décrire la force nucléon-nucléon, l'augmentation de la puissance de calcul des ordinateurs va permettre les premières approches microscopiques du phénomène de fission. C'est ainsi qu'en 1974, M. BRACK et Ph. QUENTIN apportent une justification microscopique à la méthode de Strutinski, la même année H. FLOCARD réalise le premier calcul self-consistant de la barrière du ^{240}Pu à partir d'une force nucléon-nucléon du type Skyrme. Le calcul conduit bien à une barrière à deux bosses mais les barrières obtenues s'avèrent beaucoup plus élevées que celles obtenues par la méthode de Strutinski. Malgré cet échec, les approches microscopiques vont connaître une progression régulière pour aboutir à la fin des années 80 à des barrières de fission compatibles avec l'expérience. Les progrès réalisés reposent essentiellement sur les points suivants :

- La maîtrise des techniques HFB pour décrire notamment les corrélations d'appariement et les inclure dans les effets de champs moyens. Ces calculs sont du type contraints : des champs extérieurs auxiliaires permettent de rendre compte des aspects collectifs et de la

dynamique du processus de fission. Cette approche permet de générer un ensemble continu d'états qui représentent la totalité des configurations que le système est susceptible d'adopter au cours de son évolution.

- Une nouvelle paramétrisation de la force nucléon-nucléon (interaction D1) développée par GOGNY et employée avec succès pour décrire les noyaux dans leur état fondamental (énergies de liaison, déformations, excitations de basses énergies). La souplesse de sa paramétrisation en fait un outil bien adapté pour décrire les processus nucléaires de grandes amplitudes.

- La prise en compte des ruptures de symétrie du noyau sur le chemin de la fission en considérant que le noyau peut rompre sa symétrie axiale au niveau de la première barrière et qu'il peut être instable vis à vis de l'asymétrie de masse au niveau de la deuxième barrière.

La figure B4-1 illustre, pour le ^{240}Pu , l'influence des ruptures de symétrie sur la hauteur des barrières, on notera la correction importante introduite par la prise en compte de l'asymétrie de masse au niveau de la deuxième barrière.

Fig. B4-1: Barrière de fission calculée par la méthode Hartree-Fock-Bogolyubov en fonction de la déformation quadrupolaire (on notera l'effet des ruptures de symétrie aux sommets de la barrière).

Un résultat particulièrement intéressant de ces calculs concerne la surface d'énergie potentielle qui gouverne la scission du noyau ^{240}Pu . La figure B4-2 illustre cette surface dans la région des grands allongements pour lesquels le noyau va se séparer en deux fragments (sur cette figure la surface est portée en fonction des déformations contraintes d'élongation et de striction : Il apparaît nettement deux vallées qui correspondent respectivement au noyau ^{240}Pu avant (vallée de la fission) et après (vallée de la fusion) la scission. Ces deux vallées sont séparées par une barrière dont la hauteur

diminue avec l'élongation pour s'annuler autour de $Q_2 = 370 \text{ barns}$. En partant du second point selle, la scission peut s'effectuer soit à faible déformation par franchissement de la barrière qui sépare les deux vallées soit à déformation plus grande quand cette barrière a disparu. La première éventualité, relativement rare, correspond au processus de fission froide où les fragments de fission sont formés avec une faible énergie d'excitation (qq MeV) et une grande énergie cinétique : c'est le processus de fission sans émission de neutrons observée expérimentalement.

Le second type de scission correspond à la fission dite normale associée à des fragments excités (20 à 30 MeV) avec une énergie cinétique plus faible que dans le premier cas.

Ces résultats montrent s'il en est, la topologie très complexe de la surface d'énergie potentielle d'un noyau fissionnant, complexité déjà remarquée et prise en compte dans les calculs fondés sur la méthode de Strutinski.

Fig.B4-2: Allure de la surface d'énergie potentielle du noyau ^{240}Pu au-delà de la seconde barrière (Calculs du type Hartree-Fock-Bogolyubov contraint)

C - LA DOUBLE BARRIERE DE FISSION ET L'EXPERIENCE

C-1 - CONSEQUENCES EXPERIMENTALES

La présence d'un second puits assure une certaine stabilité au noyau lorsque sa déformation correspond à ce puits. Pour des énergies d'excitation proches du sommet des barrières et dans le cas d'un second puits prononcé (région des Uranium-Plutonium), la double barrière de fission fait apparaître une véritable hiérarchie des états du noyau fissionnant en fonction de sa déformation. Comme l'illustre la figure C1-1 on peut distinguer :

- les états composés de classe I, normalement déformés et très denses ($D_I = 0.1 / 1 \text{ eV}$)
- les états composés de classe II, superdéformés, à une énergie d'excitation réduite ($E_{II} \approx 2 \text{ à } 3 \text{ MeV}$) avec une densité de niveaux plus faible ($D_{II} = 0.05 / 10 \text{ keV}$).

Ces états ont des propriétés comparables : leur présence et leur couplage par effet tunnel à travers la barrière intermédiaire ont permis une interprétation cohérente de nombreux faits expérimentaux en désaccord avec les prévisions du modèle de la goutte liquide.

Fig.C1-1: Hiérarchie des états du système fissionnant en fonction de sa déformation et conséquences expérimentales.

• Isomères de fission :

Ils correspondent aux états de classe II les plus bas du second puits. La désexcitation de ces états se fait soit par fission après traversée de la seconde barrière soit par émission γ par retour dans le

premier puits après traversée de la première barrière. Ce sont des isomères de forme puisqu'ils correspondent à une déformation plus grande que celle de l'état fondamental du premier puits. Depuis la découverte du premier isomère de forme par Polikanov en 1962, une trentaine de ces isomères ont été observés dans la région Uranium-Berkelium (voir figure C1-2). Leur énergie d'excitation est comprise entre 2 et 3 MeV au-dessus de l'état fondamental de classe I et ils fissionnent avec des périodes de fission spontanée comprises entre 14 ms et quelques dizaines de picosecondes (cette dernière limite étant imposée par les contraintes expérimentales).

Fig.C1-2: Les isomères de fission observés dans la région des actinides.

Plusieurs mesures ont permis de préciser les propriétés de ces isomères de forme dont une étude spectroscopique détaillée a pu être effectuée par différentes méthodes expérimentales :

- mesure du moment d'inertie associé à la bande de rotation construite sur l'isomère par spectroscopie d'électrons de conversion ($^{236,238}\text{U}$ et ^{240}Pu) quantité mesurée : paramètre d'inertie $\hbar^2/2J$ du second puits environ deux fois plus faible que celui du premier puits (3.3 keV contre 7 keV)
- mesure du moment quadripolaire pour cinq de ces isomères (U, Pu et Am) à partir de mesures de vies moyennes ou mesure du déplacement en fréquence d'une transition atomique lorsqu'on passe du noyau dans son état fondamental à l'isomère (la déformation induit une variation du champ coulombien vu par les électrons).

Les valeurs des moments quadripolaires en bon accord avec les prédictions théoriques, elles correspondent à des noyaux déformés prolates dont le rapport grand axe/petit axe est voisin de 2. (figure C1-3).

Noyau	Isomère			Etat fondamental	
	Q (b)	c/a	Q _{calc} (b)	Q (b)	c/a
²³⁶ U	32 ± 5	1.9 ± 0.1	33.1	10.81 ± 0.11	1.29 ± 0.02
²³⁸ U	29 ± 3	1.8 ± 0.1	33.3	10.84 ± 0.07	1.29 ± 0.02
²³⁶ Pu	37 ± 8	2.0 ± 0.3	34.8 ; 36.7	(11.27 ± 0.15)	1.31 ± 0.02
²³⁹ Pu	36 ± 4	2.0 ± 0.1		(11.3 ± 0.5)	1.31 ± 0.05
²⁴⁰ Am	32.7 ± 2	2.0 ± 0.1			

Fig.C1-3: Moments Quadrupolaires des isomères de fission (II) et des états fondamentaux (I) des actinides. Les valeurs mesurées et les rapports c/a des ellipsoïdes correspondants sont reportés dans le tableau ci-dessous.

• Structures intermédiaires dans les sections efficaces de réaction (n,f)

Dans le domaine des neutrons de résonances, la section efficace totale de capture de neutrons par les actinides présente un grand nombre de résonances correspondant aux états du noyau composé qui sont très voisins des états de classe I mais ces résonances n'apparaissent dans la section efficace de fission de certains noyaux qu'au voisinage de certaines énergies particulières correspondant à la position des états de classe II qui sont moins denses que les états classe I. Les états du second puits jouent le rôle d'état-porte (figure C1-4) vers la fission et sont responsables de ces structures intermédiaires qui ont été observées pour plusieurs noyaux dont le ²³⁷Np.

En utilisant un faisceau de neutrons polarisés sur une cible de ²³⁷Np également polarisée on a pu montré que toutes les résonances fines d'une même structure intermédiaire possédaient le spin et la parité de l'état de classe II responsable de la structure, ce qui confirmait l'interprétation donnée précédemment.

Fig.C1-4: Illustration schématique du phénomène de structure intermédiaire.

• Les résonances de vibration

Parmi les états du premier et du second puits, les états de vibration β vont jouer un rôle particulier dans la fission car la quasi totalité de l'énergie disponible y est concentré dans le degré de liberté associé à la fission. Aux énergies d'excitation pour lesquelles la section efficace de fission devient mesurable (de 4 à 5 Mev pour les actinides), les états de vibration du premier puits sont complètement amortis et ils se retrouvent sous forme de composantes dans les états de classe I ; en revanche les états de vibration β du second puits dont l'énergie effective est plus faible, peuvent être assez bien définis en énergie. Aux énergies de ces états, et comme l'illustre la figure C1-5, le coefficient de transmission de la barrière de fission présente des résonances qui vont se traduire sous forme de résonances de vibration dans la probabilité de fission du noyau.

Fig.C1-5: Illustration schématique du phénomène de résonances de vibration sous le seuil de fission (voir texte).

La largeur d'une résonance est directement liée au temps de vie de l'état de vibration qui lui a donné naissance ; elle dépend de sa position en énergie et d'un éventuel couplage de cet état de vibration avec les états de classe II voisins.

De nombreuses résonances de vibration ont été observées, généralement sous le seuil de fission ; certaines de ces résonances présentent une sous-structure attribuée au couplage mentionné ci-dessus. Nous verrons plus tard comment l'étude de ces résonances a permis d'obtenir des informations sur la double barrière de fission.

C-2 - DETERMINATIONS EXPERIMENTALES DES BARRIERES DE FISSION

La majeure partie des informations dont on dispose provient de l'analyse des probabilités de fission et des fonctions d'excitation de production des isomères de forme.

Il faut souligner que ces analyses fournissent généralement les extrema de la double barrière (hauteur des barrière de fission et du second puits) et éventuellement sa forme à partir d'une paramétrisation en série de paraboles jointives (figure C2-1) proposée à l'origine par Los-Alamos et reprise ensuite par l'ensemble de la communauté.

Chaque barrière est définie par sa hauteur E et sa courbure $\hbar\omega$, cette dernière valeur détermine l'épaisseur de la barrière.

• Les isomères de fission

La plupart de ces isomères de forme a été formée par réaction du type (α, xn) , donc par évaporation successives de neutrons et dont une fraction permet d'alimenter l'état fondamental (ou l'un des états excités) du second puits (figure C2-2). On mesure la variation, avec l'énergie de la particule incidente, du rapport entre le nombre de fissions retardées (provenant de

l'isomère) et le nombre de fission promptes; on sait que les taux de production (par rapport à la fission prompt) varient entre 10^{-4} et 10^{-6} , les fonctions d'excitation présentent l'allure caractéristique des réactions à seuil et dont une analyse à partir d'un modèle statistique permet généralement d'extraire la hauteur du second puits E_{II} et la forme de la seconde barrière ($E_B, \hbar\omega_B$).

Fig.C2-1: Paramétrisation de la double barrière de fission en série de paraboles jointives et les faits expérimentaux permettant d'en déterminer les paramètres:

$E_A, E_B, \hbar\omega_A$ et $\hbar\omega_B$: Les hauteurs et les courbures des barrières
 E_{II} : La hauteur du second puits.

Fig.C2-2: Alimentation des états du second puits par évaporation successive de neutrons.

Soulignons les inconvénients de cette approche indirecte :

- **Sur le plan expérimental :**

pour apprécier le seuil d'ouverture de la fission isomérique dont la section efficace ne dépasse jamais quelques microbarns. Il est fréquent, c'est le cas dans la région des Pu d'alimenter non seulement l'état fondamental mais aussi un état excité du second puits. Par ailleurs, il est souvent difficile d'identifier précisément le noyau fissionnant surtout lorsque plusieurs voies d'évaporation sont ouvertes comme c'est le cas dans les réactions du type (p, xn) ou (α, xn) et il est souvent nécessaire d'utiliser plusieurs réactions croisées pour une bonne identification du noyau recherché.

- **Sur le plan de l'analyse des données :**

cette analyse fait appel à un modèle statistique qui dépend pour décrire la chaîne d'évaporation des densités de niveaux et du paramètre de température, des quantités souvent très mal maîtrisées.

Dans deux cas seulement, une méthode plus directe a permis de situer précisément la hauteur du second puits à partir de la spectroscopie des transitions γ de désexcitation du second puits vers le premier puits; encore s'agit-il de deux cas très favorables (^{236}U et ^{238}U) et uniques jusqu'à ce jour.

- **Les probabilités de fission**

La probabilité de fission d'un noyau peut être obtenue en fonction de son énergie d'excitation

- soit directement par réaction de transfert à partir de projectiles chargés légers
- soit indirectement par capture de neutron ou par photofission en divisant la section efficace de fission mesurée par la section efficace de capture des neutrons ou de gammas incidents.

Pour les noyaux non fissiles par neutrons lents, c.a.d. pour ceux dont le seuil de fission est supérieure à l'énergie de liaison d'un neutron on utilise les réactions du type (n, f) (ou (γ, f)), malheureusement les noyaux accessibles dans ces mesures sont toujours très proches de la vallée de stabilité ($^{232, 233}\text{Th}$, ^{232}Pa , $^{235, 237, 239}\text{U}$).

Pour les noyaux appelés fissiles dont le seuil de fission est inférieur à l'énergie de liaison d'un neutron, on utilise des réactions de transferts du type (d, pf) , (t, pf) , $(^3\text{He}, df)$ pour des énergies de projectiles variant de quelques 10 MeV à 30 MeV; une partie importante de l'énergie cinétique du projectile peut être transmise à la particule légère émise de telle sorte que le nucléon (ou le groupe de nucléons) transféré peut conduire à un niveau d'énergie d'excitation inférieure à l'énergie de liaison d'un neutron dans le noyau résiduel formé. Contrairement aux réactions induites par neutrons, le grand choix des faisceaux de particules chargées légères autorise une très grande souplesse dans le choix de la cible et du noyau fissionnant.

Le mécanisme de ces réactions est bien maîtrisé : son analyse théorique se fait dans le cadre du formalisme DWBA (voir cours spécialisés) en outre le bilan énergétique est bien défini et pourra être mesuré puisque l'on a une interaction à deux corps dans l'état final : il s'agit donc

de neutrons ou de γ , les largeurs partielles associées sont calculées en utilisant des densités de niveaux calculées pour les déformations appropriées du noyau.

Pour obtenir un bon accord avec les résultats expérimentaux il est nécessaire de supposer que le noyau perd sa symétrie axiale quand il franchit la première barrière et qu'il franchit la seconde barrière en empruntant :

- soit un chemin le long duquel il rompt sa symétrie par réflexion (déformation octupolaire d'asymétrie de masse) tout en conservant sa symétrie axiale.
- soit un chemin légèrement plus élevé où il rompt sa symétrie axiale mais conserve sa symétrie par réflexion.

Ces ruptures de symétrie du noyau au niveau des barrières sont, comme nous l'avons vu, très bien expliquées par les calculs de surfaces d'énergie potentielle.

• Systématiques des barrières de fission des actinides

Une cinquantaine d'actinides ont ainsi été étudiés, la figure C2-4 représente les résultats obtenus pour la hauteur des deux barrières E_A et E_B . La précision sur ces valeurs est estimée à ± 300 keV. On constate que la première barrière est sensiblement constante et voisine de 6 MeV alors que la seconde barrière décroît de 6.5 MeV à 4 MeV quand on passe du Thorium au Curium.

Fig. C2-4: Comparaison des barrières de fission expérimentales à plusieurs calculs théoriques fondés sur la méthode de Strutinski.

On notera que dans la région des Thorium, les premières barrières théoriques sont nettement plus basses que les valeurs expérimentales. Cette anomalie du Thorium est maintenant bien

comprise en considérant un effet de couche secondaire qui creuse le sommet de la seconde barrière asymétrique en masse des noyaux de cette région (figure C2-5) : la première barrière est effectivement très basse, ce sont les deux barrières suivantes que l'on observerait expérimentalement. Les résonances de vibration observées dans les réactions $^{230,232}\text{Th}(n,f)$ et $^{231}\text{Pa}(n,f)$ devraient être dues à des états de vibration du troisième puits. Comme ce troisième puits peu profond ($< 2 \text{ MeV}$) est asymétrique en masse, son état fondamental se scinde en deux états de parité opposées séparées d'environ 10 keV : chaque résonance de vibration devrait être formée de la superposition des résonances associées aux deux bandes de rotation construites sur les états de parités opposées.

Fig. C2-5: Barrière de fission d'un noyau de la région du Thorium, on notera l'apparition d'un troisième puits au sommet de la seconde barrière.

Dans la région des thorium, nous avons vu que la seconde barrière est en phase avec la barrière goutte liquide, sa forme exacte est donc très sensible aux effets de couche.

Dans la région des Californium et Einsteinium c'est la première barrière qui est en phase avec la barrière goutte liquide ; les résonances de vibration observées dans les probabilités de fission de ces noyaux suggèrent qu'un effet de couche secondaire creuse le sommet de la première barrière pour donner naissance à un puits capable d'assurer une certaine stabilité à des états de vibration. En effet la seconde barrière de ces noyaux est trop basse et les états de vibration du second puits trop larges pour apparaître dans les probabilités de fission.

D - APRES LE POINT DE SCISSION

Après le passage des barrières, le système fissionnant évolue irréversiblement vers la scission. Cette transition est très rapide (quelques 10^{-22} s) et comme l'illustre très schématiquement la figure (D-1), le système y récupère, aux dépens de son énergie potentielle une quantité importante d'énergie (de 20 à 30 MeV) que l'on retrouve essentiellement sous forme d'énergie de déformation des fragments. Juste après la scission, les fragments convertissent leur énergie de répulsion coulombienne en énergie cinétique de translation ; ils atteignent ainsi 90% de leur énergie cinétique finale en $1.3 \cdot 10^{-20}$ s. Dès que la distance entre les deux fragments dépasse la portée des forces nucléaires ($\sim 2.5 \cdot 10^{-13}$ cm), ils disposent d'une énergie de déformation qu'ils convertissent très rapidement en énergie d'excitation interne (cette conversion se fait par amortissement de vibration collectives en $\sim 10^{-21}$ s). Les fragments vont se désexciter tout d'abord en évaporant des neutrons puis des gammas. L'émission des neutrons prompts se fait en 10^{-14} s (la distance entre les fragments est alors de $2 \cdot 10^{-8}$ cm), l'émission des gamma s'effectuant sur une plage en temps beaucoup plus large qui peut atteindre quelques μ s.

Fig. D-1: Illustration schématique des étapes du processus de fission

Les fragments de fission ainsi formés sont instables car trop riches en neutrons, on les distingue des produits de fission qui rejoignent la vallée de stabilité par désintégration β^- successives (4 en moyenne par fragment). L'émission de neutrons retardés entre parfois en compétition avec une désintégration β^- et si leur contribution ne représente qu'un 1% de l'émission total des neutrons il n'est pas inutile de rappeler leur importance dans le contrôle de la réactivité des réacteurs.

Pour la fission thermique du noyau ^{235}U , les énergies (moyennes) mises en jeu dans l'ensemble des processus prompts et retardés sont les suivantes :

<u>Energie dite prompte</u>	(MeV)
énergie cinétique des fragments	169.0
émission des neutrons	4.8
émission du rayonnement γ	7.0
	180.8
<u>Energie dite retardée</u>	
émission β^-	6.4
émission des neutrons retardés	0.010
émission du rayonnement γ	6.2
émission $\bar{\nu}$	10.0
	22.610
<u>Energie totale libérée</u>	203.410

• Distribution en masse et en énergie cinétique des fragments

Les distributions en masse ont d'abord été mesurées par des méthodes radiochimiques c'est à dire quelques millisecondes après l'instant de scission. Il s'agit donc des produits de fission, les méthodes physiques (détecteurs à barrière de surface ou spectromètre de masse en ligne) ont permis de ramener ce temps de mesure à quelques microsecondes après la scission donc avant la désintégration β^- mais toujours après l'émission de neutrons prompts. La distribution des fragments avant cette émission de neutrons est en général inaccessible expérimentalement (à l'exception toutefois des événements rares associés au phénomène de fission froide sans émission de neutrons). La fission asymétrique en masse est la caractéristique essentielle de la fission induite par neutrons thermiques (ou fission spontanée) des noyaux de la région Thorium-Californium ($Z=90-98$). Les distributions de masses correspondantes sont reportées sur la figure (D-2). On vérifiera que la fission symétrique est largement défavorisée. Le rapport pic/vallée est d'environ 600 pour la fission thermique de ^{235}U .

Fig. D -2: Distributions en masse des produits de fission de plusieurs actinides. Evolution des masses moyennes légères et lourdes en fonction de la masse du système fissionnant.

Ces distributions présentent un pic associé aux fragments lourds autour de la masse 139 alors que le pic des fragments légers se déplace vers les masses plus lourdes lorsque la masse du noyau fissionnant augmente, ce qui conduit à une vallée (symétrique) de plus en plus étroite entre ces deux pics. Cette caractéristique est maintenant bien comprise en termes d'effet couches sphériques ($Z=50$ et $N=82$) qui stabilisent le flanc de montée de la distribution des fragments lourds.

La forme de ces distributions de masses varie avec l'énergie d'excitation du noyau fissionnant comme le montre la figure (D-3) concernant la fission induite de ^{235}U par neutrons rapides, le changement le plus important concerne l'augmentation de la fission symétrique.

Fig. D-3: Distributions en masse de la fission induite de ^{235}U pour différentes énergies des neutrons incidents.

Le bilan en énergie de la fission thermique de ^{235}U montre qu'en moyenne une énergie d'environ 200 MeV est libérée par la perte de masse (Q de réaction), la majeure partie (environ 170 MeV) de cette énergie se retrouve sous la forme d'énergie cinétique des fragments : la figure (D-4) montre la distribution en énergie cinétique totale des fragments (corrigée de l'émission de neutrons) pour les trois principaux noyaux fissiles ^{233}U , ^{235}U et ^{239}Pu .

L'énergie cinétique totale (EKT) moyenne des fragments augmente avec la masse et la charge du noyau fissionnant comme $(Z^2/A^{1/3})$ en revanche elle est indépendante de l'énergie d'excitation du système fissionnant : on retrouve là l'effet de la répulsion coulombienne des fragments libérés à la scission. La déformation des fragments, puisqu'elle modifie la distance entre les centres de charge des fragments, explique la variation de l'énergie cinétique totale en fonction du rapport de masse des fragments.

Comme le montre la figure (D-5) cette énergie est maximum pour les fragmentations les plus probables (le fragment lourd M_H est quasi-sphérique), en revanche les fragmentations voisines de la

symétrie de masse correspondent à des noyaux déformés qui conduisent à une diminution de leur répulsion coulombienne et par suite à une diminution de l'énergie cinétique totale. Ce déficit en énergie cinétique totale (comparée à la fragmentation la plus probable) est d'environ 20 MeV pour la fission thermique de ^{235}U .

Fig. D-4: Distributions en énergie cinétique totale des fragments de la fission induite par neutrons thermiques des noyaux $^{235,238}\text{U}$ et ^{239}Pu .

Fig. D-5: Fission induite par neutrons thermiques de ^{239}Pu .

- (a) les distributions en masse avant ($N(m)$) et après ($N(m^*)$) émission des neutrons.
- (b) énergie cinétique moyenne par masse ($\bar{E}_{K1}^*$) et énergie cinétique totale ($\bar{E}_K^*$).
- (c) variance σ_{EK} de l'énergie cinétique totale en fonction de la masse des fragments.

- **Emission de neutrons**

La multiplicité d'émission a fait l'objet de très nombreuses études, c'est le cas du nombre total moyen de neutrons ν_T et de la probabilité d'émission.

- 2.4 neutrons sont émis en moyenne dans la fission thermique de ^{235}U .
- 2.88 dans le cas de la fission thermique de ^{239}Pu .

Ce nombre moyen augmente régulièrement avec la masse du noyau fissionnant, il est de 4 pour la fission thermique de ^{249}Cf .

Il augmente avec l'énergie des neutrons induisant la fission, l'énergie cinétique des fragments restant constante, l'énergie d'excitation supplémentaire est évacuée sous forme de neutron. Pour les principaux noyaux fissiles l'émission d'un neutron correspond à un incrément en énergie d'excitation de 8 MeV environ.

Une caractéristique importante concerne le nombre moyen de neutron prompts par mode de fission c'est à dire en fonction de la masse du fragment émetteur M.

La variation de ce nombre $\nu(M)$ est représentée sur la figure (D-6) pour différents système fissionnants. Nous retrouvons l'allure classique en dent de scie où, quelque soit le système, $\nu(M)$ présente un minimum au voisinage de la masse 130. Ce minimum est à relier à la très faible déformation des noyaux de cette région de masse dominée par les effets de couches sphériques $N=82$ et $Z=50$.

Fig. D-6: Nombre moyen $\nu(M)$ de neutron émis par fragment pour la fission thermique de $^{233,235}\text{U}$ et ^{239}Pu et la fission spontanée de ^{252}Cf .

- **Spectre en énergie et distributions angulaires des neutrons :**

Ces distributions ont été particulièrement bien étudiées dans le cas de la fission spontanée de ^{252}Cf . A partir des mesures les plus récentes on peut dégager les caractéristiques suivantes :

- La distribution angulaire des neutrons est isotrope dans le référentiel de masse de ces fragments. Dans le laboratoire, l'émission des neutrons est fortement piquée dans la direction de vol des fragments
- Le spectre en énergie mesuré dans le laboratoire est distribué entre 0 et 12 MeV environ avec une énergie moyenne de 2 MeV. L'allure de ce spectre en énergie est représentée sur la

figure (D-7) où il est comparé à deux formules semi-empiriques. La formule de Watt est l'expression dans le laboratoire d'un spectre d'évaporation dans le référentiel des fragments de la forme : $\varepsilon \exp(-\varepsilon/\tau)$ avec une valeur de τ voisine de 1 MeV.

Fig. D-7: Spectre des neutrons prompts de la fission thermique de ^{235}U . Le spectre expérimental est comparé à deux représentations semi-empiriques.

• Emission de rayonnements gamma

Cette émission γ est moins bien connue que celle des neutrons prompts en raison des difficultés expérimentales qu'elle soulève :

- présence d'un bruit de fond γ important provenant des captures de neutron ou de diffusion élastique.
- distribution très large des temps d'émission qui s'étale de quelques 10^{-14} s à plusieurs μs .
- la faible anisotropie (10 à 20 %) des γ comparée à celle des neutrons ce qui rend difficile la séparation des contributions de chaque fragments.

Néanmoins il faut retenir que l'énergie totale moyenne emmenée par les γ est d'environ 7 MeV avec une multiplicité moyenne voisine de 7 pour tous les systèmes étudiés.

La figure (D-8) présente le spectre total en énergie relatif à la fission thermique de ^{235}U .

Il est constitué à basse énergie (non visible sur la figure) des γ de désexcitation yrast des fragments. Cette région a fait l'objet de très nombreuses études concernant la spectroscopie des noyaux riches en neutrons dont la fission est une source de production abondante. Cette région de basse énergie est suivie d'un spectre continu qui s'étale jusqu'à 10 MeV environ (voire au-delà pour la fission spontanée de ^{252}Cf).

Comme le montre la figure (D-9), la variation du nombre de γ émis en fonction de la masse des fragments présente également une allure en dent de scie très semblable en position à celle des neutrons.

Fig. D-8: Spectre des gamma prompts de la fission thermique de ^{235}U .

Fig.D-9: Energie moyenne (a) et multiplicité moyenne des γ émis par les fragments dans la fission thermique de ^{235}U .

E - REACTIONS NUCLEAIRES INDUITES PAR NEUTRONS

La mise en évidence de ces résonances est à l'origine du concept de noyau composé proposé dès 1936 par N. BOHR et encore largement utilisé par la communauté des physiciens nucléaires.

L'interaction d'un neutron avec un noyau cible se déroule en deux étapes :

1. Formation d'un noyau composé de vie longue comparée à la durée de la collision ($\approx 10^{-22}$ s)
2. Désexcitation de ce composite indépendamment de son mécanisme de formation.

L'énergie d'excitation apportée par le neutron est progressivement répartie dans le noyau composé par une série de collisions à deux corps par le biais d'excitations du type n-particules n-1 trous qui vont conduire à des mélanges de configurations complexes dans le noyau à l'issue desquelles le noyau a perdu la mémoire du processus qui l'a provoqué. Néanmoins, certaines configurations peuvent émerger au cours de ce long processus pour lesquelles l'énergie est suffisamment concentrée pour que l'émission d'un nucléon, une transition électromagnétique ou le franchissement d'une barrière autorisée par cette configuration puisse se produire. Ces configurations sont une extension au-delà de l'énergie de séparation du neutron des états discrets (liés) de plus basse énergie, on les qualifie d'états quasi liés ou virtuels.

Ils ont une «énergie», un spin et une parité bien définie, leur durée de vie est plus courte que les niveaux liés puisque l'émission de particule s'ajoute à l'émission γ , mais leur durée de vie reste longue devant la durée d'une simple collision. Pour les noyaux lourds et de masse moyenne, les largeurs totales associées varient entre 0.01 et 2 eV ce qui conduit à des vies moyennes variant de quelques 10^{-13} à 10^{-16} s donc proches des temps caractéristiques des transitions électromagnétiques. C'est ce que confirme l'expérience puisque la capture radiative est souvent le processus dominant de désexcitation.

E-1 - ALLURE DES SECTIONS EFFICACES DANS LE DOMAINE DES RESONANCES

Les hypothèses présentées permettent d'écrire la section efficace de réalisation d'un processus de désexcitation ($n \rightarrow i$) sous la forme suivante :

$$\sigma(n, i) = \sigma_{NC}(E_n) \cdot \frac{\Gamma_i}{\Gamma_T}$$

où : Γ_i est la largeur partielle associée à la voie de désexcitation i

Γ_T est la somme des largeurs partielles ouvertes.

Dans la voie d'entrée (définie dans le CM) le noyau composé est défini par :

- son énergie d'excitation : $E^* = S_n + E_n \cdot \frac{A}{A+1}$

- son moment angulaire $\bar{J}$ résultant du couplage du spin de la cible $\bar{I}$ et du moment orbital $\bar{l}$ dans son mouvement relatif tel que $\bar{J} = \bar{I} + \bar{l} + \frac{1}{2}$; à basse énergie.

Dans le domaine des résonances résolues, les neutrons incidents sont du type $l=0$ et pour un noyau cible de spin non nul deux familles de résonances peuvent être alimentées :

$$J_+ = I + \frac{1}{2} \text{ et } J_- = I - \frac{1}{2}$$

- sa parité telle que: $\pi_{NC} = \pi_c \cdot (-1)^l$, c'est celle (π_c) du noyau cible pour $l=0$

Au voisinage d'un niveau résonant situé à l'énergie E_R , un calcul complet permet de montrer que la section efficace de réaction $\sigma(n, i)$ peut s'écrire :

$$\sigma(n, i) = \pi \lambda^2 g(J) \frac{\Gamma_n \cdot \Gamma_i}{(E_n - E_R)^2 + \frac{\Gamma_T^2}{4}}$$

où $g(J) = \frac{2J+1}{2(2I+1)}$ est le poids statistique du moment angulaire J dans la réaction, il reflète, dans

le cas où ni la cible et ni le neutron incident ne sont polarisés, les différentes orientations des moments angulaires dans la voie d'entrée et dans la voie de sortie. C'est la formule de BREIT et WIGNER.

Cette relation est valable pour toutes les voies de réactions à l'exception de la voie de diffusion élastique dans laquelle on doit tenir compte du terme d'interférence entre la diffusion résonante et la diffusion potentielle.

Une expression simple et largement utilisée est celle où la diffusion potentielle est traitée dans le cadre de la diffusion par une sphère impénétrable (ce qui facilite le calcul des facteurs de déphasage) en se limitant à des neutrons incidents dans l'état $l=0$, il vient :

$$\sigma(n, n) = \frac{\pi \lambda^2 g(J)}{(E_n - E_R)^2 + \frac{\Gamma_T^2}{4}} \left[\Gamma_n^2 + 4\Gamma_n(E_n - E_R) \frac{R}{\lambda} \right] + \sigma_P$$

Le second terme représente la diffusion potentielle incohérente, c'est la limite théorique vers laquelle tend la section efficace de diffusion en l'absence de résonances.

Le premier terme représente la diffusion élastique résonante dont l'interférence avec la diffusion potentielle est représentée par l'expression entre [].

C'est le changement de signe de cette expression de part et d'autre de l'énergie de la résonance qui est responsable de l'asymétrie de ces résonances de diffusion élastique, caractéristique qui les distingue nettement des résonances de réaction comme le montre la figure E1-1, ce profil caractéristique est très bien illustré par la résonance à 29 Kev du ^{56}Fe .

Fig.E1-1: section efficace de diffusion élastique au voisinage de la résonance à 29 KeV de la réaction $^{56}\text{Fe}(n,n)$.

Quelques exemples caractéristiques:

Depuis la découverte de ces résonances, un travail considérable a été effectué pour les répertorier. Les résultats obtenus ont fait l'objet de nombreuses compilations. On peut dégager de ces résultats un certain nombre de grandes tendances :

- à l'exception des noyaux légers et des noyaux lourds, la capture radiative (n,γ) est la réaction dominante dans la région des résonances et à plus basse énergie, mais contrairement aux largeurs partielles élastique et de fission, les largeurs partielles de capture radiative Γ_γ varient peu de résonance en résonance.
- la densité de ces résonances varie considérablement en fonction de la masse du noyau cible :
 - dans les noyaux légers, l'espacement atteint plusieurs centaines de kev, c'est le cas pour les $^6,7\text{Li}$ où les résonances les plus basses apparaissent à environ 250 kev avec des largeurs supérieures à plusieurs dizaines de kev.

- pour les noyaux de masse 40 à 100 les espacements diminuent rapidement du kev à la centaine d'ev, alors que pour les actinides, la région des résonances résolues ne dépasse pas les 300 ev (60 ev) pour le noyau ^{239}Pu (^{235}U) avec des largeurs totales qui dépassent souvent l'ev.

Cette évolution rapide de la densité des résonances reflète naturellement la densité des niveaux excités du noyau composé à l'énergie de liaison du neutron. Leur étude constitue d'ailleurs la principale source d'informations de ces densités de niveaux.

Dans le domaine des résonances résolues, leur densité est bien représentée par une expression de la forme :

$$\rho_R(E, J, \pi) \propto e^{2\sqrt{aE}} \cdot (2J+1) \cdot e^{\left(\frac{-J(J+1)}{2\sigma^2}\right)}$$

où a est le paramètre de densité de niveaux. En dehors des couches fermées, ce paramètre varie linéairement avec la masse : $a \propto (A/8, A/10)$. σ est un paramètre dont la valeur est comprise entre 5 et 7.

En général, les moments angulaires mis en jeu sont suffisamment faibles (< 4 ou 5) pour qu'on puisse négliger le terme exponentiel, la dépendance en moment angulaire des résonances se réduit à la loi simple en $2J+1$ qui se vérifie généralement assez bien.

E-2 - ALLURE DES SECTIONS EFFICACES DANS LE DOMAINE DES NEUTRONS THERMIQUES

Un traitement plus complet montre que la largeur partielle de diffusion élastique est proportionnelle à la vitesse du neutron incident. Il est d'usage de définir une largeur d'émission réduite telle que

$$\Gamma_n^0 = \frac{\Gamma_n^R}{\sqrt{E_R}} = \frac{\Gamma_n}{\sqrt{E_n}} \text{ pour une résonance isolée induite par un neutron } l=0.$$

Dans ces conditions, la section efficace de réaction peut alors s'écrire :

$$\sigma(n, i) = \pi \lambda \lambda_R g(J) \frac{\Gamma_i \Gamma_n}{(E - E_R)^2 + \Gamma^2/4}$$

Dans le cas d'une résonance très large : $\Gamma^2/4 \gg (E - E_R)^2$ ou encore si l'on est très loin de cette résonance $E_R \gg E$, le terme de résonance varie très peu avec l'énergie, on retrouve alors la variation en $1/v$ contenue implicitement dans la longueur d'onde λ . Cette loi est bien vérifiée pour les noyaux légers où les résonances sont bien séparées et apparaissent dans le domaine de la dizaine de kev, c'est le cas des réactions $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ et $^6\text{Li}(n, \alpha)$ où les sections efficaces de ces réactions dépassent le millier de barn à $E_N=0.025$ ev (figure E2-1).

Fig.E2-1: Sections efficaces des réactions $^3\text{He}(n,p)$, $^6\text{Li}(n,\alpha)$, $^{10}\text{B}(n,\alpha)$.

Dans la région des noyaux moyens et lourds, cette relation en $1/v$ est observée dans une gamme plus étroite d'énergie quand elle n'est pas perturbée par une ou plusieurs résonances intenses. C'est le cas des sections efficaces de capture radiative sur les noyaux ^{113}Cd ou ^{115}In où les ailes des résonances à 0.178 eV et 1.45 eV contribuent pour plus de 90 % à la section efficace par neutrons thermiques et dont elles expliquent la valeur anormalement élevée, c'est le cas aussi des sections efficaces très élevées observées pour certains produits de fission tels que: ^{149}Sm ou ^{135}Xe dont les sections efficaces de capture radiative (n,γ) atteignent respectivement 41000 barns et $2.6 \cdot 10^6$ barns (figure E2-2).

Fig.E2-2: Sections efficaces de capture radiative (n,γ) à faible énergie de neutron pour les noyaux ^{135}Xe , ^{149}Sm et ^{239}Pu .

E-3 - DOMAINE DES RESONANCES NON RESOLUES : LE CONTINUUM

Pour les noyaux moyens et lourds, dès que l'énergie des neutrons dépasse le kev la densité des niveaux excités devient telle que l'on atteint très rapidement le domaine du continuum. L'augmentation des voies de désintégration et en particulier des voies de diffusion inélastique conduit à une augmentation rapide de l'espace de phase. Dans ces conditions, les résonances échappent à l'observation et chaque point de mesure est une moyenne sur plusieurs résonances appartenant à un intervalle Δ correspondant à la résolution expérimentale et supérieur à leur espacement D .

On peut définir une section efficace moyenne de réaction telle que :

$$\bar{\sigma}_R = \frac{1}{\Delta} \int \sigma_R(E) dE = \frac{D}{\Delta} \frac{1}{D} \int \sigma_R(E) dE$$

L'intégrale calculée sur une résonance est égale à : $2\pi^2 \lambda^2 g(J) \frac{\Gamma_n \Gamma_R}{\Gamma_T}$

Dans le domaine des résonances non résolues, à grande énergie, nous savons que : $\Gamma_n \gg \Gamma_T$ donc

$\Gamma_T = \Gamma_n$ et l'intégrale sur chaque résonance s'écrit comme :

$$2\pi^2 \lambda^2 g(J) \Gamma_n$$

Pour les n résonances comprises dans l'intervalle Δ cette intégrale peut s'écrire :

$$2\pi^2 \lambda^2 g(J) \sum_i \Gamma_n^i$$

On obtient finalement pour la section efficace moyenne :

$$\bar{\sigma}_R = \frac{1}{\Delta} \int \sigma_R(E) dE = 2\pi^2 \lambda^2 \frac{\bar{\Gamma}_n}{D}$$

Nous voyons apparaître dans cette expression la quantité Γ_n/D appelée encore fonction densité neutronique (Strength Function en anglais).

Cette quantité a joué un rôle essentiel dans l'analyse des sections efficaces neutroniques et de leurs études systématiques en fonction de l'énergie des neutrons et du nombre de masse du noyau cible. Historiquement, son interprétation est, en grande partie, à l'origine des développements du modèle optique.

Un calcul simple va nous permettre d'en donner un ordre de grandeur pour des neutrons du type $l=0$, nous utiliserons pour cela les arguments avancés par Blatt et Weisskopf pour définir le facteur de transmission associé à la désexcitation du noyau composé dans une voie de sortie (i).

Formellement, ce facteur de transmission est égal au rapport du nombre d'essais réussis (N_i) et du nombre total N_0 pour sortir du noyau.

- Le nombre d'essais réussis par seconde est déterminé à partir de la vie moyenne associée à la

voie de sortie (i): $N_0 = \frac{1}{\tau_i} = \frac{\Gamma_i}{\hbar}$.

- Pour déterminer le nombre total d'essais, nous pouvons tout d'abord déterminer le temps au bout duquel le noyau composé a la possibilité de se désexciter dans la voie (i), ceci revient à rechercher quand la fonction d'onde du système revient dans cette configuration particulière : pour l'émission de neutron c'est le temps séparant deux réflexions du neutron à la surface du noyau. Une image simple de ce mouvement nous est fournie par un noyau composé dont le spectre des énergies propres est supposé équidistant autour de l'énergie E_0 de cette configuration particulière et tel que: $E_n = E_0 + nD$.

L'évolution du noyau en fonction du temps peut alors s'exprimer sur la base des fonctions propres φ_n associées à ce spectre :

$$\Psi(t) = \sum_n a_n \varphi_n \exp\left(-i \frac{E_n t}{\hbar}\right) = \exp\left(-i \frac{E_0 t}{\hbar}\right) \sum_n a_n \varphi_n \exp\left(-i \frac{nDt}{\hbar}\right)$$

Cette expression fait apparaître un mouvement périodique de fréquence : $N_i = \frac{D}{2\pi\hbar}$

La largeur totale du niveau (i) devrait être $\Gamma \approx D/2\pi$ si chaque réflexion sur la surface était réussie, nous savons qu'il n'en est rien à cause des effets quantiques qui contrôlent la traversée de la barrière de potentiel associée à la surface du noyau. Le facteur de transmission T_i de la voie de sortie (i) du noyau composé va alors s'écrire :

$$T_i = 2\pi \frac{\Gamma_i}{D}$$

Dans le cas simple d'un potentiel nucléaire à bord franc et de profondeur V_0 , le potentiel de cette barrière peut s'écrire pour des neutrons du type $l=0$:

$$T_{l=0} = 4 \sqrt{\frac{\varepsilon_n}{V_0}} = 2\pi \frac{\Gamma_n}{D} \Rightarrow \frac{\Gamma_n}{D} = \frac{2}{\pi} \sqrt{\frac{\varepsilon_n}{V_0}}$$

où ε_n est l'énergie du neutron dans le centre de masse du système.

En considérant la largeur réduite ramenée à 1 ev on peut encore écrire :

$$\Gamma_n^0 = \frac{\Gamma_n}{\sqrt{\epsilon_n}}$$

$$\frac{\Gamma_n^0}{D} = \frac{2}{\pi\sqrt{V_0}}$$

Pour un puits dont la profondeur est de 40 MeV on obtient : $\frac{\Gamma_n^0}{D} = 10^{-4}$

Cette valeur est comme nous allons le voir proche des valeurs expérimentales représentées sur la figure E3-1 en fonction de la masse du noyau cible.

Fig.E3-1: Fonction densité et comparaison avec les prévisions du modèle optique.

On remarquera que cette fonction densité présente des oscillations autour de notre estimation avec des extréma centrés autour des masses : $A \approx 50, 90$ et 160 . On a souvent assimilé les maxima à des résonances de forme en fonction du nombre de masse. Elles s'interprètent aisément dans le modèle simple que nous avons utilisé précédemment en considérant que le rayon du noyau est proportionnel à la longueur d'onde réduite du neutron incident. On peut montrer que cette condition est

approximativement remplie pour les états de particules $3s\frac{1}{2}$ et $4s\frac{1}{2}$ quasiment libres dans le puits de potentiel caractéristiques des noyaux de masse $A=90$ et 160 .

La double structure autour de $A=160$ est attribuée à la déformation des noyaux de cette région. Le minimum autour de $A=90$ est associé à la contribution des captures de neutron de $l=1$ prépondérantes dans cette région de masse (états de particules $2p\frac{1}{2}$ et $2p\frac{3}{2}$). Comme le montre la courbe en trait plein, les tendances mentionnées ci-dessus sont bien reproduites par un calcul de modèle optique.

E-4 - LES CARACTERISTIQUES DE LA FISSION INDUITE PAR NEUTRONS

Comme nous allons le voir à partir de quelques exemples, le formalisme développé précédemment s'applique aux noyaux les plus lourds existants dans la nature : ^{232}Th , $^{235,238}\text{U}$. La présence de la barrière de fission va jouer un rôle essentiel dans la fission induite par neutrons thermiques de ces noyaux. A des énergies aussi basses, l'énergie d'excitation du noyau composé formé par capture de neutron est pratiquement égale à l'énergie de liaison du dernier neutron dans le noyau composé formé. Nous savons que cette énergie de liaison présente un effet de structure (effet pair-impair) dont est responsable la force d'appariement: cette énergie de liaison est systématiquement plus élevée lorsque le noyau composé comporte un nombre pair de neutrons. Comme le montre le tableau ci-contre :

⇒ Energie d'excitation (capture de neutrons thermiques) $E^* \cong S_N(A+1)$

Noyau cible (A)	S _n	B _f	Pf	σ _c	σ _f
	(MeV)			(barn)	
²³² Th	4.78	6.40	4.10 ⁻⁵	7.56	3.10 ⁻⁴
²³⁸ U	4.81	6.20	1.610 ⁻⁴	2.73	---
²³³ U	6.84	6.00	0.99	48	531
²³⁵ U	6.50	5.90	0.977	98	582

Cet effet pair-impair peut atteindre les 2 MeV, en revanche la barrière de fission varie peu d'un noyau à un autre, elle reste voisine de 6 MeV avec des variations de faible amplitude et de signe opposé à l'effet observé sur les énergies de liaison.

L'instabilité de ces noyaux lourds vis à vis de la fission induite est contrôlée par la différence $S_N(A+1)-B_f(A+1)$, il suffit pour s'en convaincre de calculer la pénétrabilité P_f d'une barrière de fission de forme parabolique pour laquelle il existe une expression analytique simple:

$$P_f = \frac{1}{1 + \exp\left(-2\pi \frac{E^* - B_f}{\hbar\omega}\right)}$$

où $\hbar\omega$ est un paramètre de forme de la barrière de fission et dont la valeur est proche de 0.5 MeV pour les actinides considérés.

Les pénétrabilités ont été reportées en colonne 4 du tableau où l'on remarque que :

- elles sont proches de l'unité pour les noyaux fissionnants (A+1) à N pair.
- elles sont très faibles pour les noyaux fissionnants (A+1) à N impair.

Ces considérations nous permettent donc de dégager deux familles de noyaux cibles :

- les noyaux fissiles ^{235}U , ^{239}Pu , qui conduisent par capture de neutron à des noyaux fissionnants dont l'énergie d'excitation est supérieure à la barrière de fission
- les noyaux non fissiles ^{232}Th , ^{238}U , qui conduisent par capture de neutron à des noyaux fissionnants dont l'énergie d'excitation est inférieure à la barrière de fission.

Ces noyaux non fissiles fissionnent plus difficilement et par effet tunnel, c'est ce que l'on a appelé la fission sous le seuil. On les désigne aussi sous le nom de noyaux fertiles car par capture de neutron et désintégration β ils conduisent aux noyaux fissiles ^{235}U et ^{239}Pu .

L'allure des sections efficaces et leurs valeurs absolues distinguent nettement ces deux familles de noyaux : voir figure (E4-1).

Fig.E4-1: Allure des sections efficaces de fission pour:
(a) les noyaux fissiles (^{239}Pu)
(b) les noyaux non fissiles

• Noyaux fissiles

Les noyaux ^{229}Th , $^{233,235}\text{U}$, ^{238}Np , $^{238,241}\text{Pu}$, ^{242}Am de nombre de neutron N impair.

L'allure des sections efficaces fait apparaître trois domaines d'énergie :

- **Domaine thermique :** $E_N < 0.1 \text{ eV}$

Les sections efficaces de fission par neutrons thermiques atteignent plusieurs centaines de barns, (1000 barns pour le ^{239}Pu), l'allure des sections efficaces, dans ce domaine d'énergie s'apparente à la variation en $1/v$ que l'on observe pour les noyaux plus légers.

- **Domaine des résonances :** $0.1 < E_N < 1\text{-}10 \text{ Kev}$

Pour les deux noyaux fissiles les plus connus, les variations locales de sections efficaces de fission peuvent atteindre ou dépasser le millier de barn.

- **Domaine rapide :**

Ces résonances reposent sur un fond continu qui décroît avec l'énergie pour se stabiliser entre 1 et 2 barns à 10 MeV d'énergie de neutron.

Un nombre considérable de données sur les résonances neutroniques a été accumulé sur les réacteurs rapides. C'est de cette époque que date le développement des sources pulsées de neutrons très intenses obtenues à partir d'accélérateurs de particules chargées. Les fortes intensités de ces sources de neutrons allaient permettre par la méthode du temps de vol de séparer plusieurs centaines de résonances dont les caractéristiques ont été répertoriées.

A cet effet, des formalismes plus élaborés que celui de Breit et Wigner à un niveau ont été développés pour traiter simultanément plusieurs centaines de résonances dont l'espacement Γ et la largeur D ne correspondaient plus à la validité de cette approche ($\Gamma/D \ll 1$). Ces formalismes découlent de la théorie de la matrice R étudiée par Wigner et Eisenbud au début des années 50, c'est le cas notamment des approches multiniveaux développées aux Etats-Unis dans les années 60.

La forte densité de résonances et l'apparition des premiers niveaux résonants à très basse énergie (autour de 0.3 eV pour ^{235}U et ^{239}Pu) expliquent en partie les déviations des sections efficaces de fission par rapport à la loi en $1/v$ dans la région des neutrons thermiques.

C'est le cas en particulier pour le ^{239}Pu dont la section efficace de fission décroît moins vite que la loi en $1/v$. Pour ^{235}U , le comportement inverse est observé, il est attribué à un effet de résonance sur un niveau lié, proche des premiers niveaux résonants.

- **Noyaux non fissiles**

Les noyaux ^{232}Th , $^{236,238}\text{U}$, ^{237}Np , $^{240,242}\text{Pu}$, ^{241}Am de nombre de neutrons pair.

leurs sections efficaces de fission ne débutent réellement qu'au-delà de la zone de résonance par une augmentation brutale de la section efficace : l'énergie seuil correspondante varie de plusieurs centaines de keV à 2 MeV environ (au voisinage du MeV pour ^{238}U). Au delà de cet énergie seuil, le profil de section efficace rejoint celui des sections efficaces des noyaux fissiles : c'est en particulier le cas pour le plateau de section efficace qui précède, au voisinage d'une énergie de neutron de 6 MeV, l'ouverture du seuil de fission de seconde chance qui correspond à l'évaporation d'un neutron suivi de la fission d'un noyau résiduel dont l'énergie d'excitation est encore au-dessus de son seuil de fission.

On conçoit facilement que la section efficace de ces noyaux non fissiles va être très sensible à la forme de la barrière de la barrière de fission, c'est le cas de la fission sous le seuil dont les caractéristiques ont permis l'exploration de la double barrière de fission.

E-5 - PROPRIETES CARACTERISTIQUES DES NIVEAUX DE RESONANCES

Les énergies des niveaux excités que l'on peut atteindre expérimentalement sont à peine supérieures à l'énergie de liaison du neutron dans le noyau composé formé, c.a.d comprise entre 5 et 8 MeV. L'énergie et la densité de ces niveaux sont trop élevées pour que la théorie puisse prévoir les propriétés individuelles de ces niveaux dans le cas des noyaux lourds ; on ne peut que traiter leurs propriétés statistiques obtenues à partir d'un grand nombre de niveaux résonnants.

Quelques propriétés de cet échantillon :

➡ cet échantillon est prélevé dans un intervalle d'énergie (qq 100 eV) autour de 6 MeV donc une infime partie de l'énergie d'excitation du noyau composé en ce qui concerne la gamme d'énergie où les résonances sont résolues.

➡ Cet échantillon ne contient que les niveaux pour lesquels les conditions quantiques de spin et de parité imposées par le noyau cible et le neutron incident sont remplies. Dans le cas le plus simple des neutrons dits «s» notre échantillon comprendra l'ensemble des deux populations de spin et de même parité.

➡ Expérimentalement, cet échantillon est caractérisé par l'espacement des niveaux résonnants et de leurs largeurs partielles de désexcitation, ce sont leurs distributions dont nous allons maintenant parler.

• Espacement des niveaux résonnants

Les espacements des niveaux appartenant à une même famille de spin et de parité suivent une distribution dite loi de Wigner qui a été vérifiée expérimentalement. La probabilité pour qu'un

espacement réduit : $x = \frac{s}{\langle D \rangle}$ soit compris entre x et $x+dx$ s'écrit :

$$F(x) = \frac{\pi}{2} x \bullet \exp\left(-\frac{\pi}{4} x^2\right)$$

On notera que la probabilité de trouver un espacement nul est extrêmement faible, c'est ce que l'on a appelé la loi de répulsion des niveaux.

L'étude de la distribution des espacements de niveaux a fait l'objet de très nombreux travaux théoriques, néanmoins la loi simple proposée par Wigner a toujours eu la préférence des expérimentateurs car en pratique l'écart entre la loi de Wigner et une loi plus élaborée n'est pas décelable expérimentalement.

REM : à partir de cette loi on peut dégager la loi décrivant la superposition des espacements relatifs à deux états de spin. Cette loi dépend du rapport des populations (k).

• Distributions des largeurs partielles

Comme nous l'avons déjà souligné, un état du noyau composé est la superposition

d'un très grand nombre de configurations différentes du couple neutron incident noyau cible. Néanmoins, l'analyse statistique des données expérimentales a permis de dégager le concept de **voies de sortie** dans la désexcitation du noyau composé.

Ce concept découle des études théoriques menées par PORTER et THOMAS dans les années 60 pour décrire les fluctuations des largeurs partielles des niveaux résonants.

Formellement, les auteurs ont montré que ces fluctuations obéissaient aux lois de distributions en $Ki-2$ à ν degrés de liberté:

$$P(x, \nu) = \frac{\nu/2}{\Gamma(\nu/2)} \left(\frac{\nu x}{2}\right)^{\nu/2-1} \exp\left(-\frac{\nu x}{2}\right)$$

$$x = \frac{\Gamma_i}{\langle \Gamma_i \rangle} \quad \text{et} \quad \nu \quad \text{nombre de voies de sortie}$$

La variance d'une telle distribution est: $\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2 = \frac{2}{\nu}$.

La dispersion est d'autant plus faible que le nombre ν de voies de sortie est grand.

Dans la pratique, les distributions expérimentales ne coïncident pas toujours avec un terme de la famille définie ci-dessus où le nombre de degré de liberté est égal au nombre réel de voies de sortie ; on choisira plutôt une distribution théorique correspondant à un nombre de degrés de liberté **apparent** ν_{ap} , non nécessairement entier, inférieur au nombre réel de voies de sortie ν telle que : $\nu_{ap} \langle \nu \rangle$.

Dans le cas d'un mode de désexcitation à peu de voies de sortie, la comparaison entre ν_{ap} et le nombre attendu de voies de sortie peut donner des renseignements sur le degré d'ouverture des voies comme nous allons le voir pour la fission.

Nous commencerons par les cas les plus simples :

- **La diffusion élastique** dont les largeurs partielles Γ_n présentent des fluctuations très importantes avec une concentration très inférieure à la valeur moyenne. La distribution correspondante est compatible avec une distribution à **une voie de sortie** (émission du neutron dans la voie d'entrée). $\nu=1$.
- **Les largeurs partielles Γ_γ** varient peu d'une résonance à une autre avec une forte concentration autour de la valeur moyenne, caractéristique d'une distribution dont le **nombre de voies de sortie peut atteindre ou dépasser 50**. Cette valeur reflète simplement le grand nombre de voies de désexcitation possibles associées à la capture radiative.

- **Les largeurs de fission**

L'expérience montre de fortes fluctuations dans les largeurs de fission de résonance à résonance incompatibles avec un processus à grand nombre de voies de sortie identifiées à toutes les paires différentes de fragments produits dans la fission ; la solution de ce problème fut apportée par BOHR à partir d'une redéfinition de la notion de voies de fission compatible avec les distributions expérimentales des largeurs de fission.

- **La théorie des voies de fission (A.Bohr 1955)**

L'idée de Bohr part du fait que, pour les actinides de A impair, l'énergie d'excitation du noyau composé pair-pair formé par capture de neutron lent est voisin de la hauteur de la barrière de fission, une étape intermédiaire importante devrait donc être le passage du point selle que le noyau fissionnant franchit avec peu d'énergie d'excitation puisque la plus grande partie de celle-ci a été utilisée en énergie de déformation. Les états quantiques énergétiquement accessibles au sommet de la barrière de fission devraient être peu nombreux et similaires aux premiers états collectifs du noyau dans sa forme d'équilibre stable. Le schéma de ces états collectifs constitue donc une base pour la recherche des voies de fission possibles. Prenons l'exemple de ^{236}U formé par capture de neutrons s: les voies de fission sont définies par les nombres quantiques J, K, Π : 3- (deux voies de sortie possibles) et 4- (une voie de sortie possible). Chaque voie de sortie définit une barrière de fission dont la hauteur dépend de l'énergie d'excitation de l'état de transition. La pénétrabilité d'une telle barrière (supposée parabolique) est donnée par la formule de HILL et WHEELER:

$$P_f^{J,\pi} = \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{E - E_B^{J,\pi}}{\hbar\omega}\right)}$$

A partir de cette expression on peut définir une largeur de fission à partir des arguments suivants : le temps moyen au bout duquel le noyau retrouve cette configuration de point selle est défini par: $\tau_0 = 2\pi / \langle D \rangle$, à partir du principe d'incertitude on définit une largeur moyenne de fission : de la

probabilité moyenne de fission par seconde : $\lambda_f^{J,\pi} = P_f^{J,\pi} / \tau_0$, il vient : $\langle \Gamma_f^{J,\pi} \rangle = \hbar \lambda_f^{J,\pi} = \langle D \rangle P_f^{J,\pi} / 2\pi$

- **Degré d'ouverture d'une voie** : elle dépend de la pénétrabilité de la barrière correspondante : la

voie est complètement ouverte ($P_f^{J,\pi} \approx 1$) si $\frac{E_f^{J,\pi} - E}{\hbar\omega}$ est inférieur à -0.4 ; elle est

pratiquement fermée ($P_f^{J,\pi} \langle 0.01$) si $\frac{E_f^{J,\pi} - E}{\hbar\omega}$ est supérieur à 0.7.

On peut alors définir pour un état quantique J^π du noyau composé une fonction densité donnée par la relation :

$$2\pi \frac{\langle \Gamma_f^{J,\pi} \rangle}{\langle D_f^{J,\pi} \rangle} = \sum_{J,\pi} P_f^{J,\pi}$$

La sommation porte sur toutes les voies de spin et de parité disponibles à l'énergie d'excitation E.

La somme $\sum_{J,\pi} P_f^{J,\pi} \equiv N_{eff}$ représente le nombre effectif de voies de sortie de fission, elle est égale

au nombre de voies de fission ν si toutes les pénétrabilités sont égales à 1.

Par exemple dans le cas de ^{239}Pu deux familles :

$$\begin{aligned} \text{famille 1} \quad \nu_{app} &= 1, \dots, \langle \Gamma_f \rangle = 34.3 \text{ meV} \dots, \langle D \rangle = 3.2 \text{ eV} \\ J^\pi &= 1^+ \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{famille 2} \quad \nu_{app} &= 1.47, \dots, \langle \Gamma_f \rangle = 2219 \text{ meV} \dots, \langle D \rangle = 9.6 \text{ eV} \\ J^\pi &= 0^+ \end{aligned}$$

L'existence de deux familles de résonances dont une avec des résonances très larges (pour $J=0^+$) s'explique très bien dans le cadre de la théorie des voies de fission de BOHR appliquée au ^{239}Pu . Il s'agit là d'un cas très favorable où d'une part le spin de plusieurs résonances a pu être déterminé et d'autre part, les états de transition (de parité positive) identifiés correctement au passage de la barrière.

BIBLIOGRAPHIE

- S. Bjornholm, J.E. Lynn, Rev. Mod. Phys. 52, 4, (1980)
- H.C. Britt, Proc. of Phys. and Chem. of Fission, Julich(1979), Vol 1, p3
- N. Bohr, J. Wheeler, Phys. Rev. 56, 426,(1939)
- A Bohr, B. Mottelson , Kgl. Dan. Vid. Selsk. Mat. Fys. Medd.30, 1, (1955)
- A Bohr, B. Mottelson , Nuclear Structure , Benjamin 1975
- S. Cohen, W.J. Swiatecki Ann. Phys. (NY) 19 (1962) 67
- S. Cohen, W.J. Swiatecki Ann. Phys. (NY) 22 (1963) 406
- H. Flocard, Ph. Quentin, A.K. Kerman et D. Vautherin Nucl. Phys. A203, 433, (1973)
- D. Gogny, Nuclear Self Consistent fields Ed. G. Ripka Amsterdam p333 (1975)
- J.E. Lynn, the theory of neutron resonance
- V.Metag, Phys. Reports, vol.65, 1, (1980)
- A. Michaudon, Advances in Nuclear Physics, Plenum Press 6, 1, (1973)
- W.D. Myers , W.J. Swiatecki, Nucl. Phys. 81, 1, (1966)
- H. Nifenecker et al , Phys. and Chem. of Fission, vol 2, 117, (1973) Rochester (NY)
- S.G. Nilsson, Kgl. Dan. Vid. Selsk. Mat. Fys. Medd 29,16, (1955)
- S. Polikanov et al., Sov. Phys. JETP 15 , 1016 (1962)
- J. Rainwater. Rev. Mod. Phys. 48, 385, (1950)
- V.M. Strutinski, Yad. Fis 3, 614, (1966)
- V.M. Strutinski, Nucl. Phys. A95, 420, (1967)
- V.M. Strutinski, Nucl. Phys. A212, 1, (1968)
- C. Wagemans, (editeur) **The Nuclear Fission Process**, CRC Press (1990)
- R. Vandenbosch, J. Huizenga, Nuclear fission (1973) Academic Press New York.