FISSION NUCLEAIRE

B. Leroux, G. Barreau, T. Benfoughal, B. Bruneau, F. Caïtucoli, N. Cârjan, T.P. Doan et A. Sicre.

Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux-Gradignan le Haut Vigneau, 33170 Gradignan, France.

Résumé. - Des progrès importants ont été réalisés ces dernières années dans la compréhension du mécanisme de fission nucléaire ; nous présentons quelques résultats pour illustrer ces progrès.

Abstract. - Important progress have been performed during the last years in nuclear fission ; some results are presented to illustrate these progress.

Introduction.

Un effort très important a été fait depuis une dizaine d'années dans le domaine de la fission tant sur le plan expérimental que sur le plan théorique ; si nous sommes encore loin d'une description complète du mécanisme de fission, cet effort a cependant permis de mieux comprendre certains aspects du mécanisme. Au cours de cet exposé, nous présenterons quelques résultats pour illustrer les progrès effectués ces dernières années.

I. Première étape : passage des barrières de fission.I.1 - Surface énergie potentielle du noyau.

De nombreux auteurs [1-5] ont calculé l'énergie potentielle des noyaux lourds en fonction de leur forme en utilisant la formule de masse basée sur le modèle de la goutte liquide et en effectuant des corrections de couche et d'appariement par la méthode de Strutinsky [6]. Bien qu'utilisant des techniques de calcul différentes, ces différents auteurs ont obtenu des résultats très similaires.

La figure 1, qui représente l'énergie potentielle d'un actinide en fonction de son élongation et de sa striction, sous la forme de courbes de niveau illustre les résultats obtenus.

Pour une faible déformation, nous y trouvons un puits très profond correspondant au noyau dans

son état fondamental, un second puits de potentiel moins profond, correspondant à une forme ellipsoïdale du noyau, avec un rapport 2 entre le grand axe et le petit axe, et un certain nombre de vallées très profondes, correspondant à différents mécanismes et auxquelles on accède par des cols.

fig. 1

Si nous supposons que le noyau fissionne en utilisant le chemin le plus favorable du point de vue énergétique, il suivra la trajectoire IF₁ le long de laquelle son énergie potentielle, représentée sur la figure 2, fait apparaître une barrière de fission présentant deux maxima séparés par un second puits de potentiel (d'une profondeur d'environ 3 MeV

dans la région du Plutonium) alors que le modèle de la goutte liquide prévoyait une barrière de fission présentant un seul maximum.

Fig. 2

La dimension finie du noyau oblige les états de particule indépendante à se regrouper en couches, et la distribution de ces couches dépend de la forme du noyau. Pour les déformations correspondant aux points-selle A et B, la densité des états de particule au voisinage du niveau de Fermi est supérieure à ce qu'elle serait en l'absence d'effet de couche, ce qui se traduit par une correction de couche positive dans le calcul de l'énergie potentielle donnant naissance aux deux maxima. L'effet inverse se produit pour les déformations β_I et β_{II} .

1.2- Le second puits de potentiel : existence et conséquences.

La prédiction par le calcul de l'existence d'un second puits de potentiel dans la barrière de fission des actinides a immédiatement permis d'interpréter de nombreux résultats expérimentaux auxquels aucune explication satisfaisante n'avait pu être donnée jusqu'alors.

a) Isomères de forme :

Depuis la découverte du premier isomère de forme en 1962 par Polikanov [7], une trentaine d'isomères ont été observés dans la région s'étendant de l'Uranium au Berkélium [8-10]. Ces isomères ont des énergies d'excitation d'environ 2 à 3 MeV et ils fissionnent avec des périodes comprises entre 14 ms et quelques dizaines de ps (cette dernière limite étant due aux contraintes ex-

périmentales). Dans le cadre de la barrière à deux bosses, ces isomères sont attribués à l'état fondamental du second puits ou à un état excité du second puits, lorsque plusieurs isomères de forme ont été observés pour le même noyau.

Tout récemment, Specht et al. [11] ont réussi à déterminer le moment quadrupolaire de l'isomère de 8 ps du ^{239}Pu par la mesure des vies moyennes des états de rotation construits sur cet isomère. Ce moment quadrupolaire, compris entre 34 et 39 b, conduit à un rapport $c/a = 2,0 \pm 0,1$ entre le grand axe et le petit axe de l'isomère, en excellent accord avec les prévisions théoriques. L'existence du second puits de potentiel est donc maintenant vérifiée expérimentalement.

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

Pour des énergies d'excitation inférieures à la hauteur des deux barrières, il existe des états localisés soit dans le premier puits (états de classe I), soit dans le second puits (états de classe II); ces états sont illustrés sur la figure 2. Dans le domaine des neutrons de résonance, 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 de classe I. Les états du second puits jouent le rôle d'états-porte vers la fission et sont responsables de ces structures intermédiaires, qui ont été observées pour plusieurs noyaux [12]. En utilisant un faisceau de neutrons polarisé et une cible de ^{237}Np également polarisée, Keyworth et al. [13] ont montré que toutes les résonances appartenant à une même structure intermédiaire correspondaient au même moment angulaire, celui de l'état de classe II responsable de la structure, ce qui confirme l'interprétation donnée précédemment.

c) Résonances de vibration :

Parmi les états localisés dans le premier et dans le second puits, il existe des états de vibration β qui jouent un rôle particulier dans la fission car la quasi-totalité de l'énergie disponible y est concentrée dans le degré de liberté associé à la fission. Aux énergies d'excitation pour lesquelles la section efficace de fission devient mesurable (à partir de 4,5 MeV environ dans le cas des 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; par contre les états de vibration β du second puits, dont l'énergie effective est plus faible, peuvent être assez bien définis en énergie.

La figure 3, qui représente la variation du coefficient T_f à travers la barrière de fission en fonction de l'énergie disponible dans le degré de liberté associé à la fission montre que T_f présente,

Fig. 3

pour des énergies correspondant aux états de vibration β du second puits de potentiel, des résonances qui vont se traduire sous forme de résonances de vibration dans la probabilité de fission du noyau. 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 la position de cet état de vibration dans le second puits, 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 [14, 16], généralement sous le seuil de fission. Certaines résonances présentent une sous-structure attribuée au couplage entre l'état de vibration et les états plus complexes voisins [17, 18]. L'étude de ces résonances permet d'obtenir des informations très variées.

1.3-Détermination des barrières de fission.

La majeure partie des informations dont on

dispose sur la forme et la hauteur des barrières de fission provient de l'analyse des probabilités de fission des noyaux en fonction de leur énergie d'excitation, et de l'analyse des fonctions d'excitation de production des isomères de forme, effectuées principalement par le groupe de Los Alamos [19].

a) Probabilité de fission :

Ces probabilités de fission sont extraites des fonctions d'excitation de réactions (n, f) ou (γ, f) ou plus généralement obtenues par réactions directes (d, pf) , (t, pf) , $(^3\text{He}, df)$ etc... Comme l'illustre la figure 4, la probabilité de fission croît très rapidement pour des énergies d'excitation voisines de la hauteur de la barrière la plus haute; la position du seuil de fission dépend directement de la hauteur de cette barrière, tandis que la pente dépend de la courbure de cette barrière.

Fig. 4

b) Fonction de production des isomères :

Les isomères de forme sont souvent formés après évaporation de neutrons, au cours de réactions du type (α, xn) par exemple, comme l'illustre la figure 5, et l'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 fissions promptes [20 - 22].

Fig. 5

c) Analyse de ces données et symétries du noyau :

Ces données sont analysées à l'aide d'un mo-

dèle statistique rendant compte de la formation du noyau composé et de la compétition entre les différentes voies de sortie : fission, émission de neutron ou émission d'un rayonnement γ . Les nombres effectifs de voies de sortie qui entrent dans cette analyse sont calculés en utilisant des densités de niveaux générées à partir des densités d'états de particules obtenues à l'aide du modèle en couches pour les déformations appropriées du noyau [23].

Pour obtenir un bon accord quantitatif entre les résultats expérimentaux et les valeurs fournies par le modèle statistique, il est nécessaire de supposer que le noyau rompt sa symétrie axiale lorsqu'il franchit la première barrière (déformation γ) et qu'il franchit la seconde barrière en empruntant :

- soit un chemin le long duquel il rompt sa symétrie par réflexion (il prend une forme de poire) tout en conservant une symétrie axiale ;

- soit un chemin légèrement plus élevé le long duquel il rompt sa symétrie axiale mais conserve sa symétrie par réflexion.

Chaque rupture de symétrie a pour conséquence une forte augmentation de la densité de niveaux [24] qui se répercute de façon très importante sur les probabilités de fission calculées à l'aide du modèle statistique. Ces propriétés de symétrie du noyau au niveau des barrières sont très bien expliquées par les calculs d'énergies potentielles [25-26].

d) Systématique des barrières de fission des actinides :

Une cinquantaine d'actinides ont ainsi été étudiés et la figure 6 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.

Fig. 6

Nous voyons que la première barrière reste sensi-

blement constante et voisine de 6 MeV alors que la seconde barrière décroît de 6,5 MeV à 4 MeV lorsque l'on passe du Thorium au Curium. Ces résultats sont en accord avec les prévisions théoriques les plus récentes sauf en ce qui concerne les actinides les plus légers pour lesquels les premières barrières théoriques sont nettement plus basses que les valeurs obtenues expérimentalement. Nous allons y revenir.

e) Effets de couche de second ordre dans les barrières de fission :

Dans la région du Thorium, la seconde barrière se trouve juste au-dessus du large maximum prévu par le modèle de la goutte liquide et sa forme exacte est donc très sensible aux effets de couche ; Nix [4] a montré qu'un effet de couche secondaire affaisse la partie centrale de la seconde barrière asymétrique en masse, en faisant apparaître un troisième puits dans lequel le noyau a une forme de poire. Ce résultat, vérifié par d'autres auteurs, lui a permis d'expliquer le désaccord observé entre les barrières théoriques et expérimentales dans la région du Thorium; la première barrière serait effectivement très basse pour ces noyaux, et ce sont les deux barrières provenant de l'éclatement de la seconde barrière que l'on observerait expérimentalement; les très belles résonances de vibration observées dans les réactions $^{230}\text{Th}(n,f)$ [14], $^{232}\text{Th}(n,f)$ [27] et $^{231}\text{Pa}(n,f)$ [28] seraient alors dues à des états de vibration du troisième puits. Comme ce troisième puits est asymétrique en masse, son état fondamental se scinde en deux états de parités opposées séparés d'environ 10 keV; il en résulte que chacune des résonances de vibration observées devrait être formée de la superposition des résonances associées aux deux bandes de rotation construites sur ces deux états de parités opposées. Tout récemment, Blons [29] a mis en évidence dans la résonance à 720 keV observée dans la réaction $^{230}\text{Th}(n,f)$ une sous-structure qui semble confirmer cette hypothèse.

Dans la région du Californium, c'est la première barrière qui se trouve juste au-dessus du maximum prévu par le modèle de la goutte liquide ;

les résonances de vibration observées tout récemment par Britt [30] dans les probabilités de fission des noyaux ^{252}Cf et ^{255}Es , montrent qu'un phénomène analogue se produit ici; un effet de couche secondaire ferait éclater la première barrière, donnant naissance à un puits capable d'assurer une certaine stabilité à des états de vibration. En effet la seconde barrière est très basse pour ces noyaux, et les états de vibration du second puits sont beaucoup trop larges pour être observables à l'énergie d'excitation où ces résonances ont été vues.

II. Deuxième étape : transition du point-selle au point de scission.

Lorsqu'un actinide évolue du dernier point-selle au point de scission, il récupère environ 30 MeV d'énergie potentielle et il s'agit de savoir comment se répartit cette énergie entre les différents degrés de liberté du noyau. Cette seconde étape est encore mal connue car elle est beaucoup plus difficile à atteindre expérimentalement. Plusieurs hypothèses ont été proposées :

- Modèle adiabatique : Dans ce modèle, on suppose que le degré de liberté collectif associé à la fission n'est couplé ni aux degrés de liberté intrinsèques du noyau (ce qui revient à négliger la viscosité nucléaire), ni aux autres degrés de liberté collectifs. Dans cette hypothèse, le mouvement d'élongation du noyau s'accélère et les 30 MeV d'énergie potentielle vont se retrouver sous forme d'énergie cinétique de pré-scission. Le calcul dynamique complet effectué par Nix [31] dans le cadre de ce modèle conduit à des configurations de scission très allongées et à des temps de quelques 10^{-21} s pour la transition. L'introduction d'une viscosité nucléaire à 2 corps [32] permet de mieux reproduire les énergies cinétiques finales des fragments; elle freine le mouvement d'élongation du noyau mais conduit à des configurations de scission encore plus allongées.

- Modèle statistique : Dans ce modèle, développé par Fong [33], on suppose un couplage fort entre tous les degrés de liberté du noyau (fort couplage entre les degrés de liberté collectifs et viscosité nucléaire importante) de telle sorte qu'il y ait équilibre

statistique au point de scission. Ce modèle prévoit une configuration de scission compacte et une très faible énergie cinétique de pré-scission (de l'ordre de 0,5 MeV).

- Modèle thermodynamique : Ce modèle, développé par Nörenberg [34], est basé sur l'hypothèse d'une faible viscosité nucléaire et d'un couplage entre les degrés de liberté collectifs du noyau assez fort pour assurer leur équilibre statistique au point de scission. Ce modèle prévoit une énergie cinétique de pré-scission de quelques MeV et une configuration de scission assez compacte.

Du point de vue expérimental, on a observé que les fragments de fission dont le nombre de protons ou le nombre de neutrons est pair ont un rendement nettement plus élevé que les autres fragments dans la fission des noyaux pair - pairs [35-37]. L'existence de ces effets pair - impairs montre que la probabilité de briser des paires de nucléons au cours de la descente du point-selle au point de scission est certainement faible dans la fission à basse énergie, ce qui conduit à penser que la viscosité nucléaire est peu importante.

L'étude des particules α émises avec une probabilité de l'ordre de $\frac{1}{500}$ entre les deux gros fragments, à un instant très proche de la scission, permet également d'obtenir des informations sur la dynamique de la transition du point-selle au point de scission. Ces particules α sont focalisées normalement à l'axe de fission par les forces coulombiennes dues aux fragments et l'on s'attend à ce que la distribution angulaire de ces particules α soit relativement large si l'énergie cinétique de pré-scission est grande et très étroite dans le cas contraire. Jusqu'à ces dernières années, les mesures effectuées [38] souffraient d'un manque de résolution angulaire pour des raisons évidentes de statistique, et les distributions angulaires mesurées plaidaient en faveur du modèle adiabatique. Les expériences effectuées récemment auprès du réacteur à haut flux de Grenoble [39] avec une très bonne résolution angulaire fournissent une distribution angulaire beaucoup plus étroite ($18,5^\circ$ à mi-hauteur), dont la largeur décroît avec l'énergie cinétique totale des fragments de

fission. Ces résultats plaident en faveur d'une énergie cinétique de pré-scission relativement faible et de configurations de scission relativement compactes.

Conclusion. - Le moment quadrupolaire d'un isomère de forme a été mesuré ; il en résulte que la barrière de fission des actinides présente bien un second puits de potentiel. Une spectroscopie des états très déformés de ce second puits a été amorcée. Les hauteurs des barrières de fission ont été établies expérimentalement avec une précision d'environ ± 300 keV pour la plupart des actinides accessibles ; elles sont en bon accord avec les prévisions théoriques mais celles-ci souffrent d'un manque de

précision (1 - 2 MeV) que l'on attribue plus aux problèmes inhérents à la goutte liquide qu'à la méthode de correction de couches de Strutinsky.

Des effets de couches secondaires viennent d'être observés (3ème puits asymétrique du Thorium - puits intermédiaire dans le Californium).

Les résultats expérimentaux concernant les effets pair-impairs et la tripartition sont beaucoup plus précis qu'autrefois et ils plaident en faveur d'une transition du point-selle au point de scission faiblement visqueuse, mais fortement amortie par un fort couplage entre degrés de liberté collectifs, aboutissant à des configurations de scission compactes.

Bibliographie.

- 1 JOHANSSON, T., NILSSON, S. G., SZYMANSKI, Z., Ann. Phys. (Paris) 5 (1970) 377.
- 2 BRACK, M., DAMGAARD, J., JENSEN, A. S., PAULI, H. C., STRUTINSKY, V. M., WONG, G. Y., Rev. Mod. Phys. 44 (1972) 320.
- 3 NIX, J. R., Ann. Rev. Nucl. Sci. 22 (1972) 65.
- 4 MÖLLER, P., NIX, J. R., Phys. and Chem. of Fission 1973 IAEA Vienna (1974) Vol. I, p. 103.
- 5 PAULI, H. C., Phys. Rep. 7 (1973) 35.
- 6 STRUTINSKY, V. M., Sov. J. Nucl. Phys. 3 (1966) 449.
- 7 POLIKANOV, S. M., DRUIN, V. A., KARNAUKHOV, V. A., MIKHEEV, V. L., PLEVE, A. A., SKOBEVEV, N. K., SUBROTIN, V. G., TERAKOPJAN, G. M., FOMICHEV, V. A., Sov. Phys. JETP 15, 1016.
- 8 BRITT, H. C., Atomic and Nuclear Data Tables 12 (1973) 407.
- 9 METAG, V., Nucleonics 20 (1975) 789.
- 10 VANDENBOSCH, R., Phys. and Chem. of Fission 1973 IAEA Vienna (1974) Vol. I, p. 251.
- 11 Habs, D., METAG, V., SPECHT, H. J., ULFERT, G., Phys. Rev. Lett. 38 (1977) 387.
- 12 MICHAUDON, A., Advanced in Nucl. Phys. 6 p. 84.
- 13 KEYWORTH, G. A., LEMLEY, J. R., OLSON, C. E., SEIBEL, F. T., DABBS, J. W. T., HILL, N. W., Phys. and Chem. of Fission 1973 IAEA Vienna (1974), Vol. I, 85.
- 14 JAMES, G. D., EARWAKER, L. G., LYNN, I. E., Nucl. Phys. A 189 (1972) 225.
- 15 BACK, B. B., HANSEN, O., BRITT, H. C., GARRETT, J. D., Phys. Rev. C 9 (1974) 1924.
- 16 SICRE, A., BARREAU, G., CHASTEL, R., DOAN, T. P., LEROUX, B., SAGEAUX, J. C., Phys. and Chem. of Fission 1973 IAEA Vienna (1974) Vol. I, p. 71.
- 17 BARREAU, G., Thèse Univ. Bordeaux (1977).
- 18 GLASSÉL, P., RÖSSLER, H., SPECHT, H. J., Nucl. Phys. A 256 (1976) 220.
- 19 BACK, B. B., BRITT, H. C., HANSEN, O., LEROUX, B., GARRETT, J. D., Phys. Rev. C 10 (1974) 1948.
- BRITT, H. C., BOLSTERLE, M., NIX, J. R., NORTON, J. L., Phys. Rev. C 7 (1973) 801.
- GAVRON, A., BRITT, H. C., KONECKNY, E., WEBER, J., WILHELMY, J., Phys. Rev. C 13 (1974) 2374.
- 20 LIMKILDE, P., SLETTEN, G., Nucl. Phys. A 199 (1973) 504.
- 21 FLEURY, A., DELAGRANGE, H., ALEXANDER, J. M., Phys. Rev. C 17 (1978) 1721.
- 22 BRITT, H. C., BOSTERLI, M., NIX, J. R., NORTON, J. L., Phys. Rev. C 7 (1973) 801.
- 23 BACK, B. B., HANSEN, O., BRITT, H. C., GARRETT, J. D., LEROUX, B., Phys. and Chem. of Fission 1973 IAEA Vienna (1974), Vol. I, p. 3.
- 24 BJORNHOLM, S., BOHR, A., MOTTELSON, B. R., Phys. and Chem. of Fission 1973 IAEA Vienna (1974), Vol. I, p. 367.
- 25 LARSSON, S. E., LEANDER, G., Phys. and Chem. of Fission 1973 IAEA Vienna (1974), Vol. I, p. 177.
- 26 MÖLLER, P., NIX, J. R., Nucl. Phys. A 229 (1974) 269.
- 27 BLONS, J., MAZUR, C., PAYA, D., Phys. Rev. Lett. 35 (1975) 1749.
- 28 SICRE, A., Thèse, Univ. Bordeaux (1976).
- 29 BLONS, J., MAZUR, C., PAYA, D., RIBRAG, M., WEIGMANN, H., Phys. Rev. Lett. 41 (1978) 1282.
- 30 BRITT, H. C., BACK, B. B., à paraître.
- 31 NIX, J. R., Nucl. Phys. A 130 (1969) 241.
- 32 DAVIES, K. T. R., SIERK, A. J., NIX, J. R., Phys. Rev. C 13 (1976) 2385.
- 33 FONG, P., Phys. Rev. 102 (1956) 434.
- 34 NÖRENBERG, W., Phys. and Chem. of Fission 1973 IAEA Vienna (1974), Vol. I, p. 547.
- 35 WHAL, A. C., NORRIS, A. E., ROOSE, R. A., WILLIAMS, J. C., Phys. and Chem. of Fission IAEA Vienna (1968), p. 813.
- 36 AMIEL, S., FELDSTEIN, H., Phys. and Chem. of Fission 1973 IAEA Vienna (1974), Vol. II, p. 65.
- 37 CLERC, H. G., LANG, W., WOHLFARTH, H., SCHMIDT, K. H., SCHRADER, H., PFERDEKÄMPER, K. E., JUNGSMANN(R.), Z. Physik A 274 (1975) 203.
- 38 HALPERN, I., Ann. Rev. Nucl. Sci. 21 (1971) 245.
- 39 GUET, C., SIGNARBIÉUX, C., PERRIN, P., NIFENNECKER, H., ASGHAR, M., CAITUCOLI, F., LEROUX, B., Nucl. Phys. A 324 (1979) 1.