



Mise en évidence d'une réaction nucléaire en chaîne au sein d'une masse uranifère

H. Halban, F. Joliot, L. Kowarski, F. Perrin

► To cite this version:

H. Halban, F. Joliot, L. Kowarski, F. Perrin. Mise en évidence d'une réaction nucléaire en chaîne au sein d'une masse uranifère. *Journal de Physique et le Radium*, 1939, 10 (10), pp.428-429. 10.1051/jphysrad:019390010010042800 . jpa-00233696

HAL Id: jpa-00233696

<https://hal.science/jpa-00233696>

Submitted on 4 Feb 2008

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

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

MISE EN ÉVIDENCE D'UNE RÉACTION NUCLÉAIRE EN CHAÎNE AU SEIN D'UNE MASSE URANIFÈRE

Par H. HALBAN JR, F. JOLIOT, L. KOWARSKI et F. PERRIN.

Laboratoire de Chimie nucléaire (Collège de France).

Sommaire. — Les expériences décrites dans cette Note donnent le nombre de neutrons produits dans une sphère d'oxyde d'uranium humide de 50 cm. de diamètre irradiée par une source de photoneutrons primaires. Une discussion de la valeur de ce nombre permet de conclure que les neutrons produits sont d'origine secondaire, tertiaire, etc., mettant en évidence, dans le système utilisé, la production de réactions en chaîne convergente.

Poursuivant l'étude de la libération des neutrons au cours de la rupture nucléaire de l'uranium [1], nous avons étudié la distribution de la densité des neutrons thermiques présents dans une masse à haute teneur d'uranium, irradiée par une source de photoneutrons (1).

Une sphère en cuivre (diamètre 50 cm), immergée dans un réservoir plein d'eau, peut être remplie d'eau ou de 300 kg de poudre de U^3O_8 (sèche ou additionnée d'une quantité variable d'eau). Une source de photoneutrons (1 g Ra + 160 g Be) est placée au centre de la sphère. La densité des neutrons présents dans la sphère est mesurée par l'activité I induite dans des détecteurs en dysprosium placés à l'intérieur de la sphère ou dans l'eau environnante. La courbe $Ir^2 = f(r)$, r étant la distance entre la source et l'un des détecteurs, a été tracée pour les cas suivants :

- sphère pleine d'eau;
- sphère pleine d'oxyde sec d'uranium;
- sphère pleine d'oxyde mouillé de façon à contenir 1 H pour 1 U;
- sphère pleine d'oxyde mouillé à 2 H;
- sphère pleine d'oxyde mouillé à 3 H.

Nous nous sommes assurés que la distribution de l'eau dans la poudre mouillée était suffisamment uniforme.

La forme des courbes obtenues présente des particularités intéressantes, notamment dans le cas 2 H, où deux maxima distincts sont visibles (pour $r = 14$ cm et $r = 28$ cm). Elle montre qu'il est illusoire de tirer des conclusions quantitatives de la détermination de la densité neutronique à une seule distance : les conclusions qu'on tirerait ainsi changeraient avec la distance choisie. L'intérêt principal réside dans la valeur numérique de la surface des courbes obtenues. En effet, cette valeur étant l'intégrale de la densité neutronique étendue sur un volume, la surface de la courbe est proportionnelle au nombre des neutrons thermiques présents à chaque instant dans le système. Rappelons que ce nombre est égal au produit $Q\tau$, Q étant le nombre de neutrons de toute origine qui, par unité de temps, sont ralentis jusqu'à l'état thermique dans le milieu,

et τ la vie moyenne d'un neutron thermique, c'est à-dire le temps moyen pendant lequel il diffuse dans le milieu, en équilibre thermique, avant d'être absorbé. Le produit $Q\tau$ n'est réellement proportionnel à l'intégrale $\int Ir^2 dr$ qu'à condition d'employer un détecteur qui absorbe les neutrons thermiques suivant la loi $1/v$; les données expérimentales dont on dispose actuellement semblent montrer que le dysprosium suit cette loi d'assez près.

Le Tableau suivant résume les résultats numériques de nos expériences :

Teneur en eau du milieu (atomes H par atome U).	0 H.	1 H.	2 H	3 H.	eau pure.
Surface totale de la courbe (unité arbitraire).....	0,78	0,98	1,04	1,17	1,00
Surface correspondant à l'intérieur de la sphère.	0,21	0,37	0,57	0,72	—
Surface correspondant à l'extérieur de la sphère.	0,57	0,61	0,47	0,45	—

Nous essayerons de dégager le sens physique de ces données et plus particulièrement de celles concernant le cas 3 H. On peut écrire, notamment :

$$Q_{\text{int.}}\tau_{\text{int.}} = 0,72 \quad Q_{\text{ext.}}\tau_{\text{ext.}} = 0,45.$$

$Q_{\text{int.}}$ et $Q_{\text{ext.}}$: nombre de neutrons qui, par unité de temps, deviennent thermiques dans le milieu intérieur (extérieur), dans notre expérience avec 3 H;
 $\tau_{\text{int.}}$ et $\tau_{\text{ext.}}$: vie moyenne d'un neutron thermique dans le milieu intérieur (extérieur), dans la même expérience.

Les unités de Q et τ sont choisies de façon à avoir $Q = 1$ et $\tau = 1$ dans notre expérience avec l'eau pure; dans ces conditions les surfaces indiquées dans le tableau ci-dessus sont numériquement égales aux produits $Q\tau$ correspondants.

Il faut, cependant, discuter l'influence des phénomènes d'échange de neutrons à la surface de discontinuité entre les deux milieux. Des neutrons *lents* ($E < 100$ eV) traversent cette surface dans les deux sens; un neutron absorbé dans un milieu n'a donc pas nécessairement passé toute sa vie de neutron *lent* dans ce même milieu. Cet effet, qui intéresse deux couches sphériques de faible épaisseur de part et d'autre de la surface de discontinuité, entraîne deux corrections de sens contraire sur les vies moyennes $\tau_{\text{int.}}$ et $\tau_{\text{ext.}}$ des neutrons observés

(1) Les résultats donnés ici correspondent à des expériences faites avant le 1^{er} septembre 1939.

dans cette région. Un calcul approximatif montre que la résultante de ces deux corrections peut être négligée.

Nous pouvons évaluer $\tau_{\text{int.}}$ en tenant compte des concentrations et des sections efficaces connues. Avec 3 H pour 1 U, en posant pour les neutrons thermiques

$$\sigma_{\text{cap. H}} = 0,98 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2, \quad \sigma_{\text{rup. U}} = 2,5 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2, \\ \sigma_{\text{cap. U}} = 1,3 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2,$$

et en négligeant la capture par l'oxygène, nous avons $\tau_{\text{int.}} = 0,43$, d'où nous tirons $Q_{\text{int.}} = 1,67$. En y ajoutant $Q_{\text{ext.}} = 0,45$ (puisque $\tau_{\text{ext.}} = 1$), nous obtenons un total de 2,12. Ainsi, malgré le fait que la présence de l'uranium empêche, par absorption par résonance une partie notable des neutrons primaires de devenir thermiques, la production des neutrons thermiques dans le système est *plus que doublée* du fait de l'introduction de l'uranium.

Essayons de distinguer, dans le total observé de 2,12, l'apport des neutrons primaires (issus de la source) de celui des neutrons non primaires (issus de l'uranium). Tout neutron primaire a la probabilité $1 - \varphi$ de devenir thermique dans le milieu $U + H$ en ne tenant pas compte de l'absorption par résonance. Dans ce milieu, au cours du ralentissement, le neutron a la probabilité p d'être absorbé par résonance. Ainsi, seule la fraction $(1 - \varphi)(1 - p)$ arrive à l'état thermique à l'intérieur du milieu et parmi ces neutrons thermiques une fraction w seulement produit des ruptures (le reste étant absorbé par simple capture dans l'uranium et l'hydrogène). Ces ruptures produisent tous les neutrons non primaires, soit

$$Q_{\text{ext.}} = \varphi \text{ à l'extérieur}$$

et

$$\frac{Q_{\text{int.}} - (1 - \varphi)(1 - p)}{1 - p} = \frac{Q_{\text{int.}}}{1 - p} - 1 + \varphi \text{ à l'intérieur}$$

(la division par $1 - p$ est nécessaire pour remonter des neutrons *thermiques* observés à l'intérieur aux neutrons *lents* produits et demeurés à l'intérieur). Le quotient

$$\frac{Q_{\text{ext.}} + \frac{Q_{\text{int.}}}{1 - p} - 1}{w(1 - \varphi)(1 - p)}$$

représente donc le nombre total des neutrons issus d'une rupture produite par un neutron primaire.

La valeur numérique de w résulte immédiatement des sections efficaces et des concentrations données plus haut; elle est égale à 0,54.

La valeur de p dépend dans une certaine mesure (déterminée par la forme de la raie de résonance) de la teneur en uranium du milieu. Nous l'avons estimée en utilisant une série de mesures pour des

concentrations plus faibles en uranium faites d'après une méthode décrite par ailleurs [2].

$$\begin{aligned} 140 \text{ H pour } 1 \text{ U} : & \quad p = 0,11 \pm 0,02, \\ 65 \text{ H pour } 1 \text{ U} : & \quad p = 0,14 \pm 0,02 \\ & \quad (\text{contre } 0,16 \pm 0,025 \text{ publié antérieurement}), \\ 30 \text{ H pour } 1 \text{ U} : & \quad p = 0,20 \pm 0,02. \end{aligned}$$

Pour des raisons théoriques on peut s'attendre à ce que, pour des teneurs plus élevées en U, p croisse beaucoup plus lentement et qu'il soit voisin de 0,50 pour la teneur 3 H/1 U. Pour le calcul ci-dessus nous adopterons par prudence $p = 0,40$. Ce chiffre comprendra également la perte des neutrons par absorption à l'état semi-rapide qui ne doit pas être négligeable (cf. [3]), ainsi que le confirme d'ailleurs notre expérience avec l'oxyde sec (voir le Tableau ci-dessus).

La valeur de φ peut être évaluée en assimilant les 25 cm d'épaisseur d'oxyde mouillé à un certain équivalent d'eau pure. Pour calculer cet équivalent nous adoptons, pour les sections efficaces de diffusion élastique des neutrons, la valeur $13 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ pour $\frac{1}{2} \text{ H}_2\text{O}$ et $15 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ pour $\frac{1}{3} \text{ U}_3\text{O}_8$. Le milieu renfermant 0,42 g d'eau par centimètre cube, 25 cm de mélange équivalent à $25 \times 0,42 = 10,5 \text{ cm}$ d'eau. Cependant, la diffusion contre l'uranium conduit à un nombre de chocs contre l'hydrogène qui est d'un facteur $(13 + \frac{15}{3})/13$ plus grand que dans un milieu contenant 0,42 g d'eau par centimètre cube sans autre centre diffusant. L'équivalent s'établit ainsi à 15 cm d'eau et la distribution bien connue de la densité des photoneutrons dans l'eau (voir, par exemple, [4]) montre que la proportion des neutrons devenant thermiques à des distances = 15 cm de la source est égale à 85 %, d'où $\varphi = 0,15$.

En introduisant les valeurs numériques de $Q_{\text{int.}}$, $Q_{\text{ext.}}$, w , p , φ dans l'expression ci-dessus, nous constatons qu'une rupture primaire produit un total d'au moins 8 neutrons non primaires. Comme il paraît difficile d'admettre que tous ces neutrons proviennent d'un noyau unique d'uranium (cf. la valeur de $3,5 \pm 0,7$ neutrons par rupture que nous avons annoncée précédemment), nous en concluons que *des ruptures secondaires, tertiaires, etc., ont eu lieu et que nous sommes en présence d'une réaction en chaîne convergente.*

Manuscrit reçu le 19 septembre 1939.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] H. HALBAN, F. JOLIOT et L. KOWARSKI, *Nature*, **143**, p. 470, 680 et 939. — H. ANDERSON, E. FERMI et H. HANSTEIN, 1939, **55**, p. 797. — L. SZILARD et W. ZINN, *Phys. Rev.*, 1939, **55**, p. 799. — H. ANDERSON, E. FERMI et L. SZILARD, *Phys. Rev.*, 1939, **56**, p. 284.
- [2] H. HALBAN, L. KOWARSKI et P. SAVITCH, *C. R. Acad. Sc.*, 1939, **208**, p. 1396.
- [3] H. HALBAN et L. KOWARSKI, *Nature*, 1938, **142**, p. 392.
- [4] O. FRISCH, H. HALBAN et J. KOCH, *Kgl. Danske Vid. Seb. Math. Phys. Med.*, 1937, **15**, p. 10.