

# PETITE HISTOIRE DE LA PHYSIQUE NUCLÉAIRE

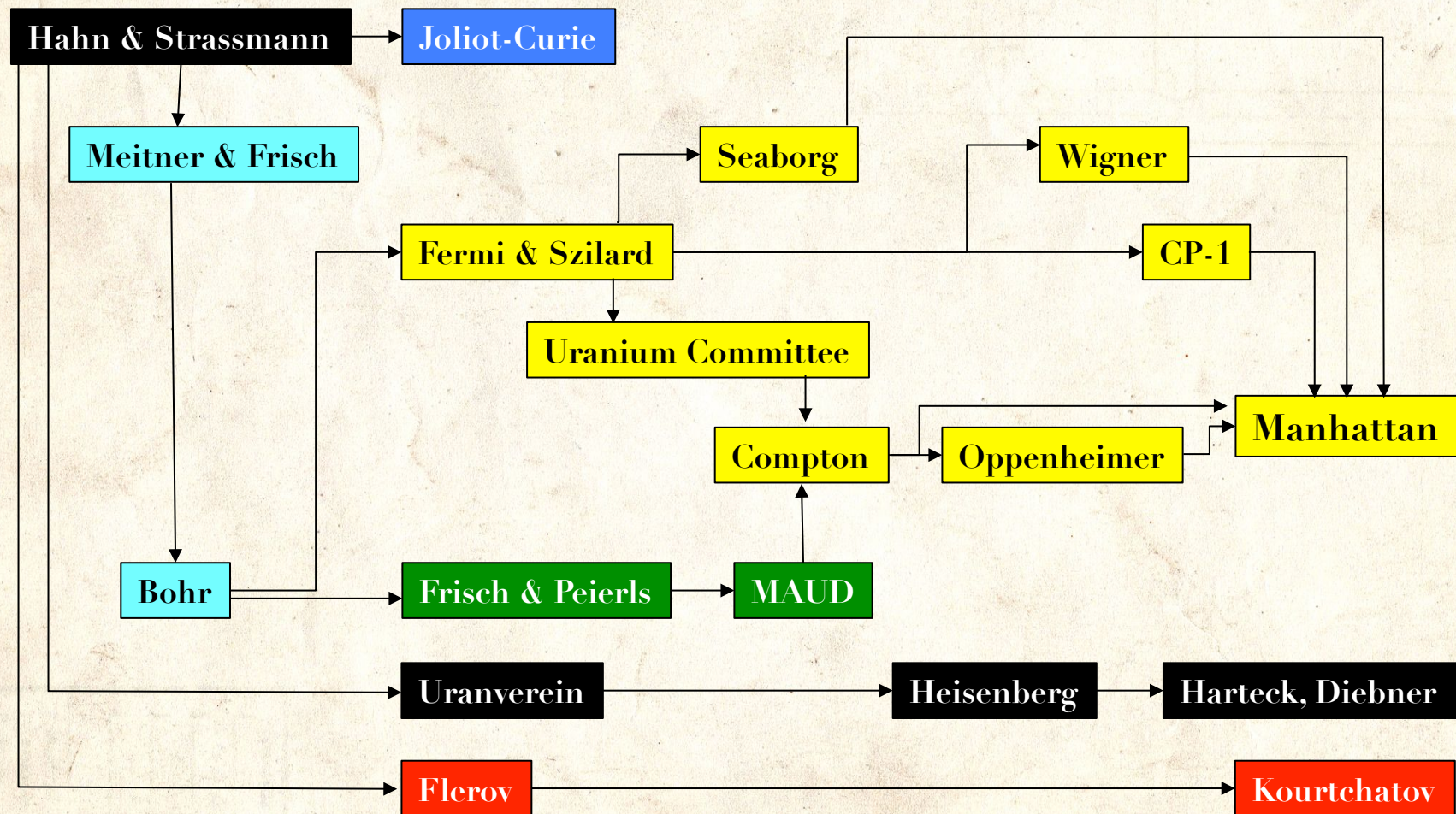
## 14 – JOLIOT ET BOHR

Alain Bouquet

Laboratoire AstroParticule et Cosmologie

CNRS - Université Denis Diderot - CEA - Observatoire de Paris

# PARALLÈLES





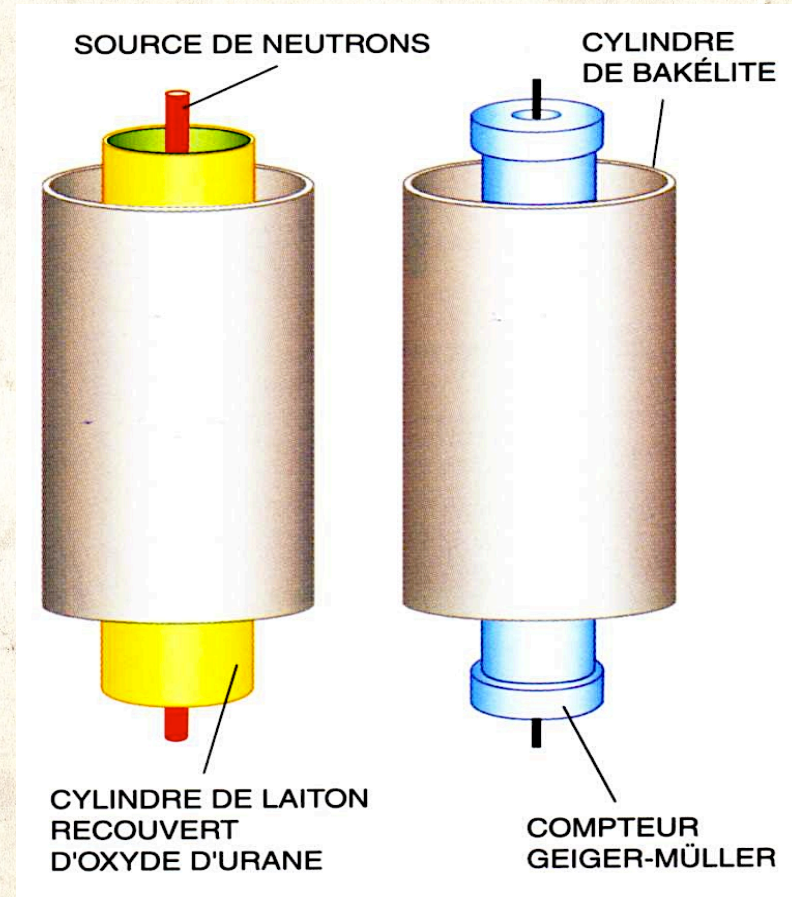
# FRÉDÉRIC JOLIOT-CURIE

# FRÉDÉRIC JOLIOT-CURIE ENTRE EN SCÈNE

- Joliot suivait la controverse entre Paris et Berlin sur le bombardement neutronique de l'uranium
- Mais il était très occupé
  1. Construction du cyclotron du Collège de France
  2. Synthèse de radioéléments pour la biologie et la médecine
- 16 janvier 1933 : Joliot apprit le contenu de l'article (publié le 6) de Hahn et Strassmann « *Sur l'existence de métaux alcalino-terreux à la suite du bombardement de l'uranium par des neutrons* »
- Joliot raisonna ainsi:
  - présence indiscutable de baryum ou de lanthane
  - $\Rightarrow$  le noyau d'uranium se brise dans la collision
  - $\Rightarrow$  second fragment de masse atomique entre 90 et 100
  - $\Rightarrow$  charges des fragments  $Z=56$  et donc  $Z=36$
  - $\Rightarrow$  forte répulsion électrique
  - $\Rightarrow$  énergie élevée
    - $E = e^2 Z_1 Z_2 / r$
    - $r = 10^{-14} \text{ m}, Z_1 = 56, Z_2 = 36$
    - $\Rightarrow E = 200 \text{ MeV}$
  - $\Rightarrow$  grande vitesse
    - $v \sim [2E/M]^{1/2} \sim 3 \times 10^8 [400/100\ 000]^{1/2}$
    - $v \sim 2 \times 10^7 \text{ m/s}$

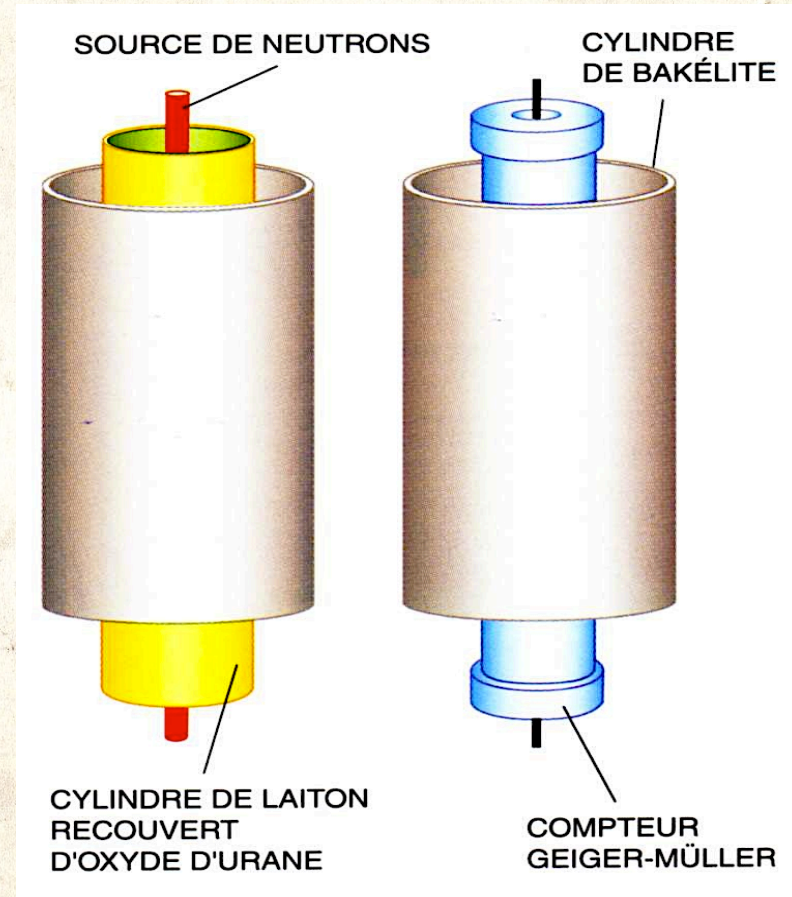
# PREMIÈRE EXPÉRIENCE

- Objectif: détecter 2 noyaux relativement lourds possédant chacun une énergie cinétique  $\sim 100$  MeV
- $\Rightarrow$  ils ne peuvent pas rester sur place
- $\Rightarrow$  ils sont éjectés de l'uranium
- $\Rightarrow$  parcours dans l'air de quelques centimètres (d'après l'expérience acquise)
- $\Rightarrow$  montage
  - cylindre de laiton de 2 cm de diamètre et 5 cm de long
  - recouvert d'oxyde d'uranium
  - inséré dans un cylindre de bakélite de 2,5 cm
  - source de neutrons (Rn-Be)
  - laisser irradier
  - remplacer la source par un compteur Geiger-Müller
  - mesurer la radioactivité



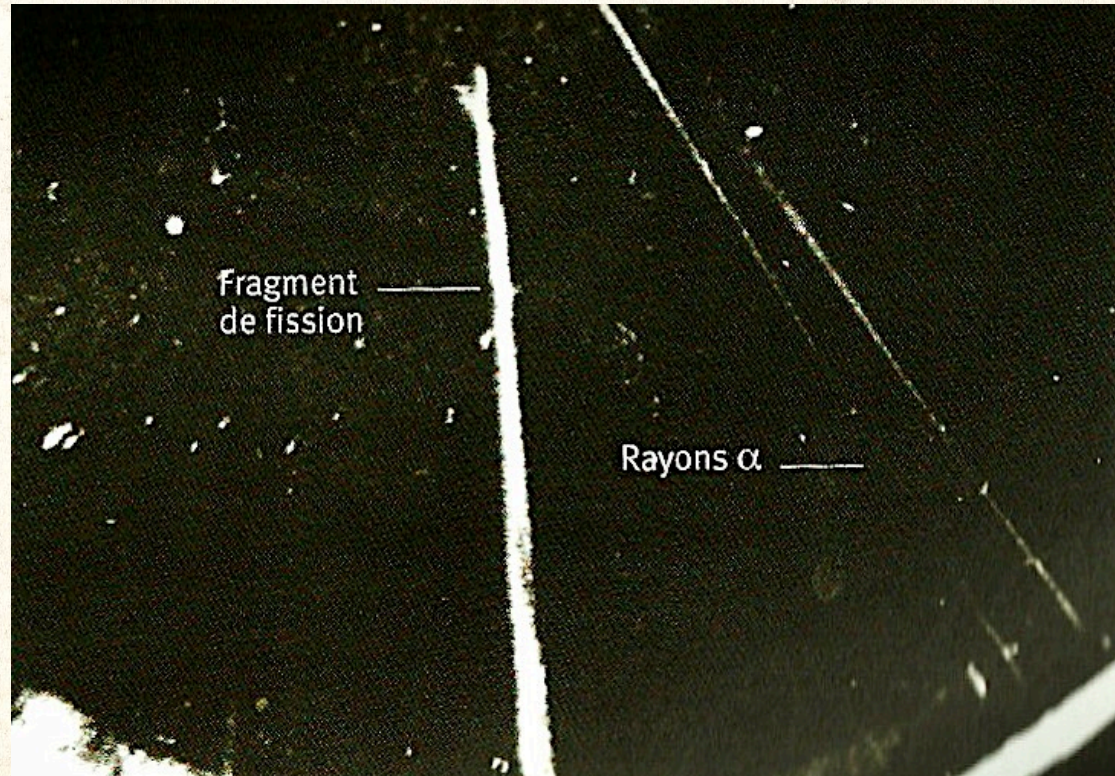
# PREUVE EXPÉRIMENTALE DE LA FISSION

- Joliot mesura la décroissance de la radioactivité du cylindre de bakélite
- Pas de radioactivité si
  - source de neutrons mais pas d'uranium
  - uranium mais pas de source de neutrons
- ⇒ la radioactivité venait bien des fragments éjectés du noyau d'uranium
- ⇒ note « *Preuve expérimentale de la rupture explosive des noyaux d'uranium et de thorium sous l'action des neutrons* » présentée le 30 janvier à l'Académie des Sciences



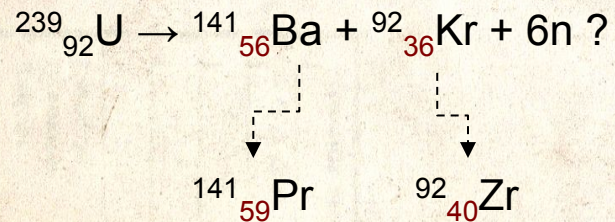
# CONFIRMATION

- Joliot examina si d'autres éléments étaient susceptibles de se fragmenter par bombardement de neutrons
- Résultat positif pour le thorium ( $Z=90$ ), mais pas pour le plomb (82), le thallium (81), le mercure (80), l'or (79) ou le platine (78)
- Confirmation de ces observations dans le courant de février avec une chambre de Wilson



# NEUTRONS SECONDAIRES ?

- Note du 30 janvier : « *Il se peut qu'un petit nombre de neutrons s'évaporent* »
- Joliot savait que les noyaux étaient d'autant plus riches en neutrons qu'ils étaient lourds
- Les deux fragments seraient donc trop riches en neutrons
- On devait donc observer
  - une **transmutation bêta** ( $n \rightarrow p$ ) intense
  - et/ou une **libération de neutrons**

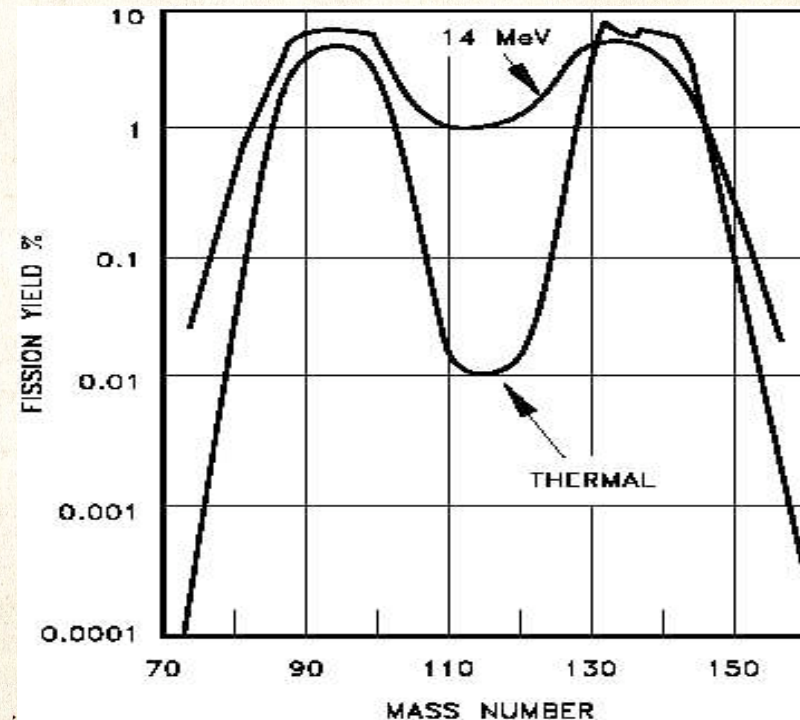


Joliot, Halban et Kowarski



# (PARENTHÈSE)

- La fission de l'uranium donne toute une gamme de « produits de fission »
- Toute combinaison de noyaux donnant  $Z=92$  est *a priori* acceptable
- ☞ difficultés rencontrées par les radiochimistes pendant quatre ans
- Plus de deux cents noyaux différents peuvent apparaître
  - un « petit » fragment de masse entre 90 et 100
  - un « gros » fragment de masse entre 130 et 140
- La plupart sont extrêmement instables → origine des déchets radioactifs produits dans un réacteur (césium 137, strontium 90...)



# KOWARSKI ET HALBAN

- Joliot n'était pas un expert en neutrons et il collabora avec Lew Kowarski et Hans von Halban

## ○ **Lew Kowarski (1907-1979)**

- Assistant de Joliot depuis 1934
- Rejoignit le Cavendish en 1940 puis partit à Montréal en 1944
- Dirigea la construction du réacteur à eau lourde ZEEP à Chalk River (divergence le 5 septembre 1945)
- Revint à Paris à la création du CEA diriger la construction des premiers réacteurs français: ZOE/EL1 (15-12-1948) et EL2 (1952)
- Un des créateurs du CERN avec Amaldi et Auger



## ○ **Hans von Halban (1908-1964)**

- Collabora en 1937 avec Frisch à Copenhague sur l'absorption de neutrons par l'eau lourde
- Rejoignit ensuite le groupe de Joliot au Collège de France
- Rejoignit le Cavendish en 1940 puis dirigea le laboratoire de Montréal de 1942 à 1944
- À Oxford de 1945 à 1954, puis revint en France diriger la construction du LAL à Orsay

# NEUTRONS SECONDAIRES

- Kowarski imagina une série d'expériences pour détecter l'augmentation du nombre de neutrons lors de l'irradiation de l'uranium
- Difficulté : différencier les neutrons irradiant l'uranium de ceux produits

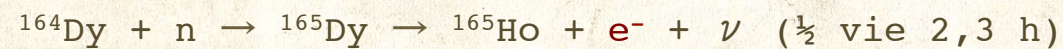
- Cuve de 80x15x3 cm

- nitrate d'uranyle  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$

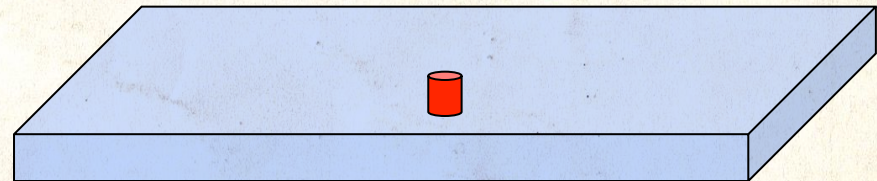
- en solution dans l'eau (ralentisseur de neutrons)

- source de neutrons (Ra-Be)

- dysprosium (Z=66) servant de détecteur de neutrons



- radioactivité  $\beta$  du dysprosium détectée par un compteur Geiger-Müller

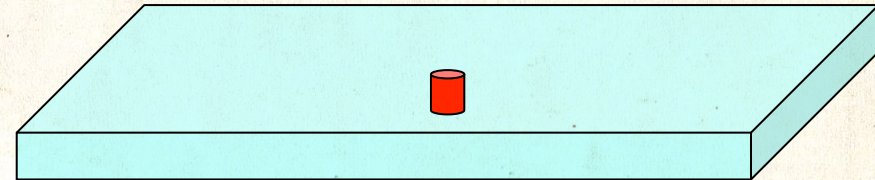


# RÉSULTATS PRÉLIMINAIRES

- Radioactivité mesurée du dysprosium
  - ↘ en s'éloignant de la source
  - puis ↗ ⇔ neutrons ralentis plus efficaces → fissions ↗ ?
  - puis ↘ à nouveau ⇔ moins de neutrons pour provoquer la fission ?

- Expérience de contrôle : nitrate d'ammonium à la place du nitrate d'uranyle

- **Résultats**

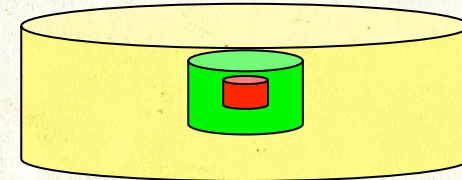


1. flux de neutrons de 5% supérieur avec l'uranium
2. diminution plus lente du flux avec la distance à la source  
⇔ des neutrons étaient produits en dehors de la source

- ⇒ la rupture des noyaux d'uranium libérait des neutrons secondaires
- ⇒ article « *Liberation of Neutrons in the Nuclear Explosion of Uranium* » envoyé le 8 mars (paru le 18) à la revue *Nature*

# DEUXIÈME EXPÉRIENCE

- La présence de neutrons secondaires fut corroborée simultanément par Anderson et Fermi (à Columbia), par Szilárd et Zinn (à Columbia aussi), et par Flerov et Rusinov à Léninegrad
- Kowarski imagina une deuxième expérience pour montrer que la rupture de l'uranium était provoquée par des neutrons lents et qu'elle produisait des neutrons rapides
- Montage
  - source de neutrons lents
  - entourée de nitrate d'uranyle
  - entouré de phosphore ( $^{31}\text{P}$ ) dissous dans du sulfure de carbone
- **SI** l'énergie du neutron dépasse 0,9 MeV, la réaction  $^{31}\text{P} + n \rightarrow ^{32}\text{P}$  est possible, suivie d'une transmutation  $\beta$ :  $^{32}\text{P} \rightarrow ^{32}\text{S}$  (avec une  $\frac{1}{2}$  vie de 14 jours)
- Six jours d'irradiation  $\Rightarrow$  extraction du phosphore  $\Rightarrow$  activité mesurable  $\Rightarrow$  la fission par neutrons lents libère des neutrons rapides ( $E > 1\text{MeV}$ )  $\Rightarrow$  note le 27 mars « *Sur l'énergie des neutrons libérés lors de la partition nucléaire de l'uranium* »

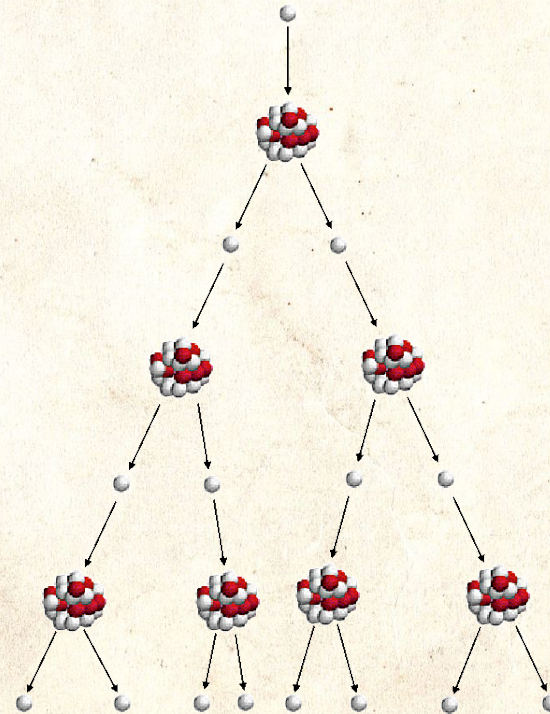


# RÉACTION EN CHAÎNE

# NOMBRE DE NEUTRONS SECONDAIRES

- Quantité essentielle pour savoir si une réaction en chaîne est possible
- $N < 1 \Rightarrow$  réaction convergente
- $N \gg 1 \Rightarrow$  réaction divergente
- $N \sim 1 \text{ à } 3 \Rightarrow$  cela... dépend
  - des pertes de neutrons
  - [donc de la géométrie et des absorbants]
  - et des valeurs comparées des sections efficaces
    1. de capture sans fission ( $^{239}\text{U}$ )
    2. de **capture avec fission**
    3. de diffusion avec – ou sans – perte d'énergie

- Remarque : l'uranium naturel ne subit pas de réaction en chaîne spontanée. Pourquoi ?
  - pas assez de neutrons ?
  - pas assez d'énergie pour provoquer une fission ?

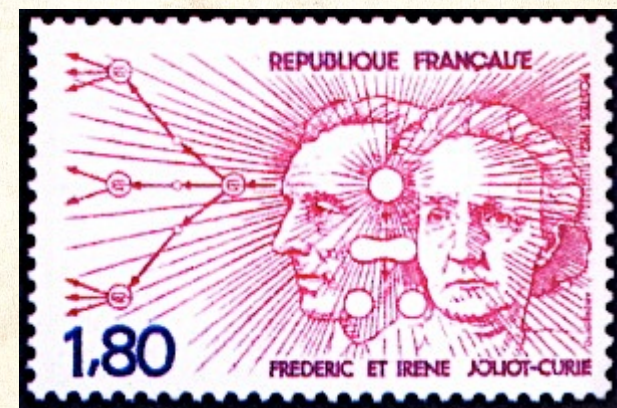


# RÉACTION EN CHAÎNE

- Joliot, Halban et Kowarski réanalysèrent soigneusement leurs expériences et conclurent

$$N = 3.5 \pm 0.7$$

- Article envoyé le 7 avril à *Nature* « *Liberation of neutrons in the nuclear explosions of uranium* »
- **Énorme retentissement** : même si une part importante des neutrons était perdue, une réaction en chaîne était a priori possible
- En réalité, le nombre moyen de neutrons est de 2,5 (ironiquement, Joliot n'avait pas tenu compte de la réaction en chaîne)
- La multiplication du nombre de fissions pouvait être
  - contrôlée → **réacteur**
  - explosive → **bombe**





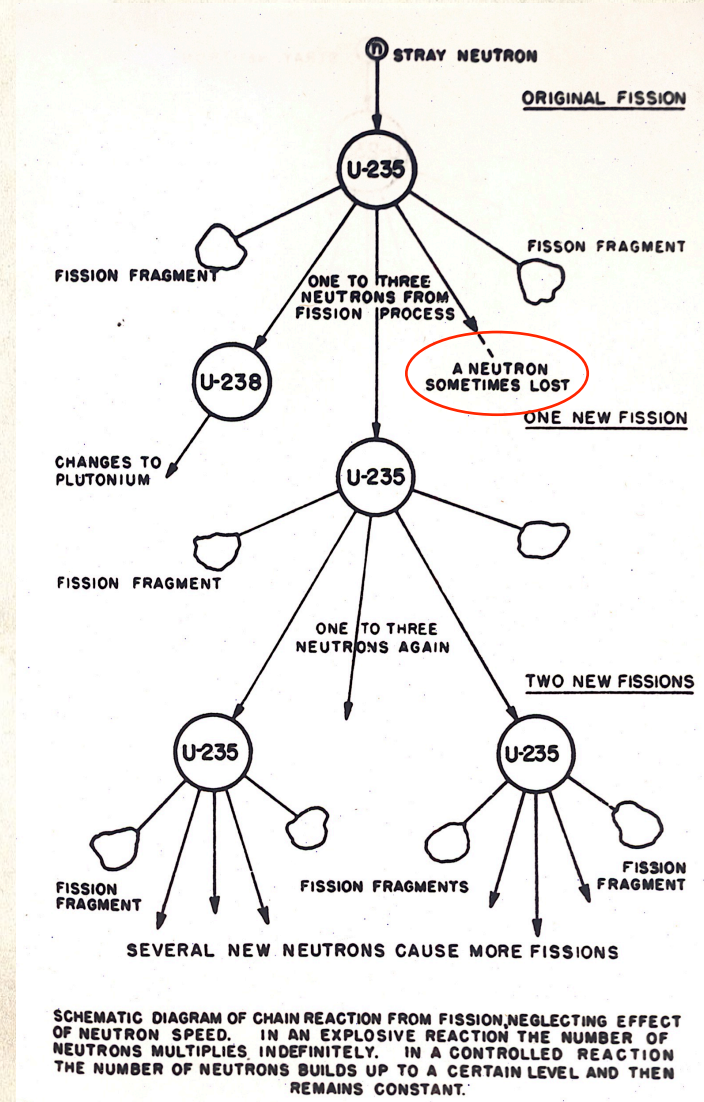
# ÉNERGIE DE LA RÉACTION EN CHAÎNE

- Chaque «rupture explosive» d'un noyau d'uranium libère ~ 200 MeV
- La combustion d'un atome de carbone ( $C \rightarrow CO_2$ ) libère 4 eV
- D'où l'équation grossière  
1 kg d'uranium = 25 000 tonnes de charbon...  
ou de dynamite

○ (uranium : 238 g ; carbone : 12 g)

## ○ Mais

- $^{238}\text{U}$  n'est fissible que par des neutrons rapides
- $^{235}\text{U}$  est fissible par des neutrons lents et rapides
- $^{235}\text{U}$  ne représente que 0,7% de l'uranium naturel
- $\Rightarrow$  seulement un ordre de grandeur



# MASSE CRITIQUE

## ○ Masse critique

○ un neutron parcourt en moyenne une distance  $\lambda$  avant d'interagir

1. Sphère de diamètre  $\ll \lambda \Rightarrow$  la plupart des neutrons sortent sans interagir  $\Rightarrow$  **la réaction en chaîne s'arrête**

2. Sphère de diamètre  $\gg \lambda \Rightarrow$  la plupart des neutrons provoquent une nouvelle réaction  $\Rightarrow$  **la réaction en chaîne diverge** exponentiellement

○  $\Rightarrow$  **taille critique**  $\sim \lambda$  (et donc masse critique  $\sim \rho \lambda^3$ )

## ○ Ordre de grandeur

○ densité  $n \sim 5 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ , section efficace de fission  $\sigma \sim 10^{-28} \text{ m}^2$  (1 barn)

○  $\Rightarrow \lambda = 1/n\sigma = 0,2 \text{ m} = 20 \text{ cm}$

○ sphère d'uranium (densité 19) de 20 cm de diamètre  $\rightarrow$  **masse 80 kg**

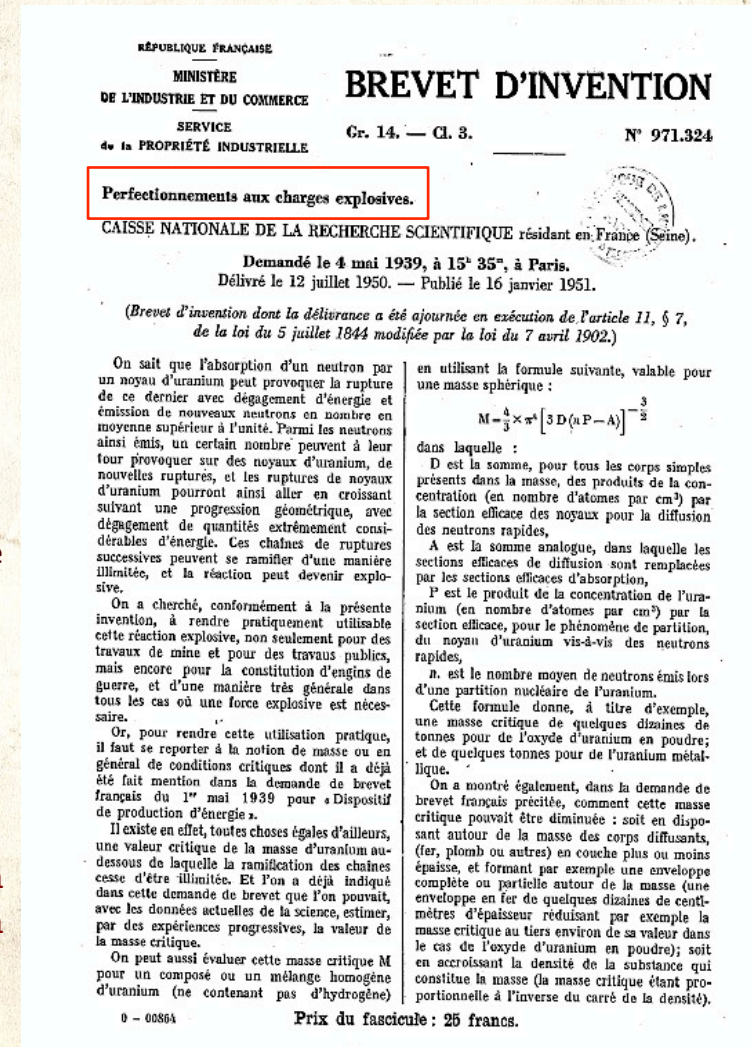
## ○ Francis Perrin : *«Calcul relatif aux conditions éventuelles de transmutation en chaîne de l'uranium»*, 1<sup>o</sup> mai 1939

○ oxyde d'uranium (densité 8 à 10), diamètre =  $10 \lambda \rightarrow$  **40 tonnes nécessaires pour maintenir une réaction en chaîne**

○  $\rightarrow$  suggestion d'entourer la sphère d'un réflecteur de neutrons (*tamper*)

# BREVETS JOLIOT, HALBAN, KOWARSKI ET PERRIN

- Brevets secrets pour un réacteur nucléaire (1° et 2 mai 1939)
  1. Matériau fissile
  2. Modérateur
  3. Fluide caloporteur
  4. Systèmes de pilotage
- ☞ production d'énergie électrique
- ☞ **moteur** de navire ou de sous-marin (en raison du poids)
  
- Brevet secret pour une bombe nucléaire (4 mai 1939)
  - Plutôt pour prendre date
  - Perrin jugeait irréaliste une bombe de 100 tonnes (40 tonnes d'uranium plus contrôles et habillage)
  - Et surtout le démarrage de la réaction en chaîne explosive **détruirait la bombe bien avant qu'une fraction notable de l'uranium soit fissionné**

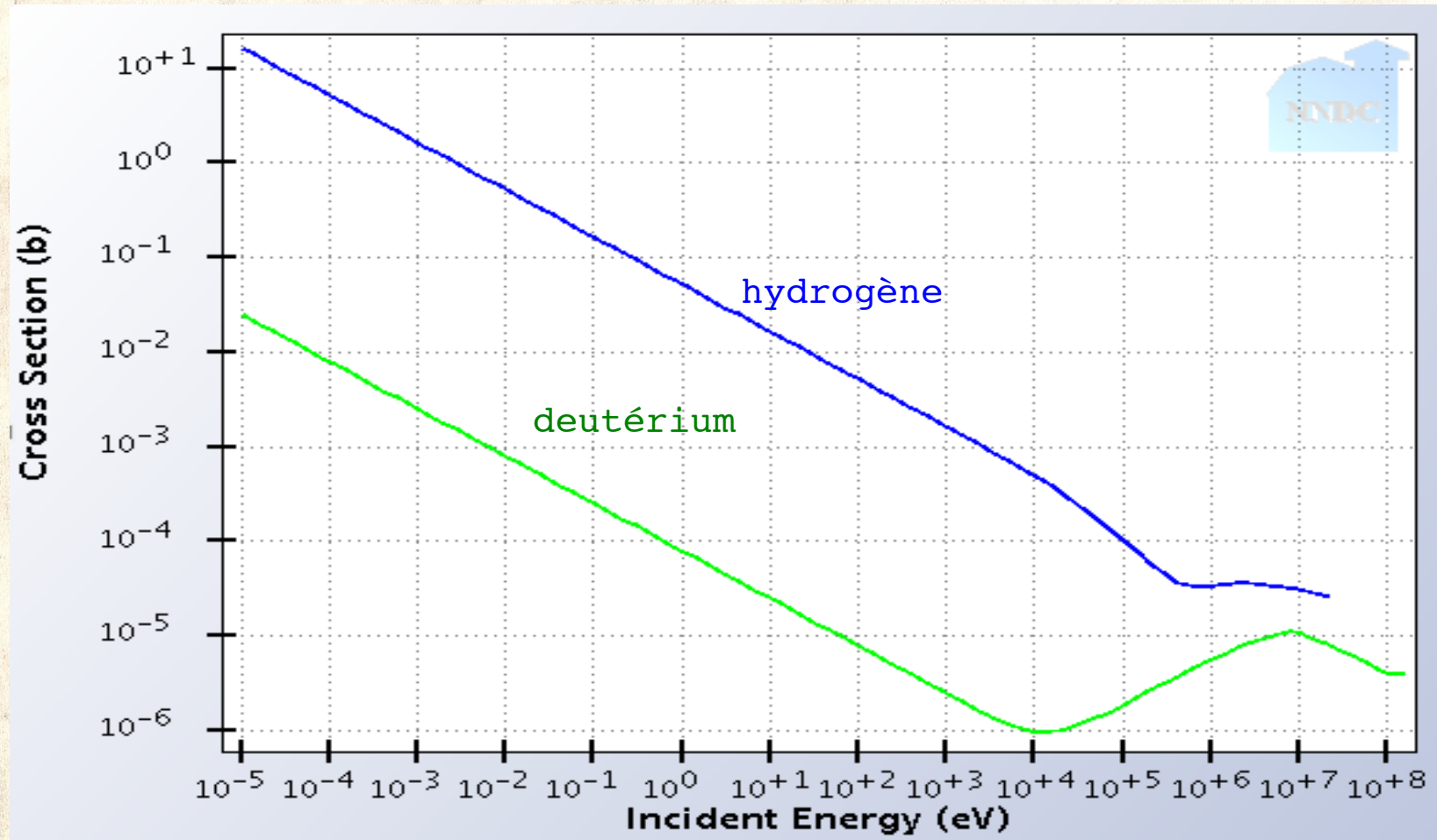


# RÉALISER UNE RÉACTION EN CHAÎNE ?

- Pas de fission spontanée observée [*en fait si, Flerov le montra en 1940, mais elles sont rares*]
- ☞ ralentir les neutrons pour augmenter leur efficacité
- ☞ l'hydrogène ( $\Rightarrow$  eau) est le modérateur le plus efficace
- ☞ oxyde d'uranium mouillé dans des sphères de cuivre de différents diamètres
- ☞ résultats décevants (article de synthèse le 19 septembre 1939)
- Explications
  - trop de neutrons absorbés par l'eau  $\rightarrow$  eau lourde
  - trop de neutrons absorbés par  $^{238}\text{U}$  (pics de résonance)  $\rightarrow$  arrangement hétérogène de l'uranium et du modérateur

Or on s'est rendu compte, conformément à la présente invention, que la dimension d'une telle masse d'élément de ralentissement devait être au moins égale au (ou voisine de) chemin moyen qu'un neutron d'énergie dite du domaine de résonance parcourt entre deux chocs ralentissants et au plus égale à (ou voisine de) l'épaisseur nécessaire pour réduire dans la proportion 1 à 2,7 l'intensité d'un flux de neutrons thermiques traversant la substance ralentissante.

# SECTION EFFICACE DE CAPTURE DE NEUTRONS



# LE LONG CHEMIN VERS UNE RÉACTION EN CHAÎNE

- Complications nombreuses
  - diffusions multiples
  - plusieurs noyaux ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , modérateur, absorbants, produits de fission, produits de capture, impuretés)
  - répartitions très inhomogènes
  
- ⇒ travail de longue haleine en perspective
  - récupérer toute l'eau lourde disponible dans le monde
  - explorer tous les arrangements de l'uranium et du modérateur améliorant le comptage de neutrons
  - établir une réaction en chaîne contrôlée
  - passer à l'échelle industrielle
  
- Pli scellé le 30 octobre 1939
  - réduire les pertes de neutrons en agrandissant le système
  - enrichir la proportion d'uranium 235 par rapport à l'uranium 238
  - remplacer l'hydrogène de l'eau par du deutérium (eau « lourde »)



# LA BATAILLE DE L'EAU LOURDE

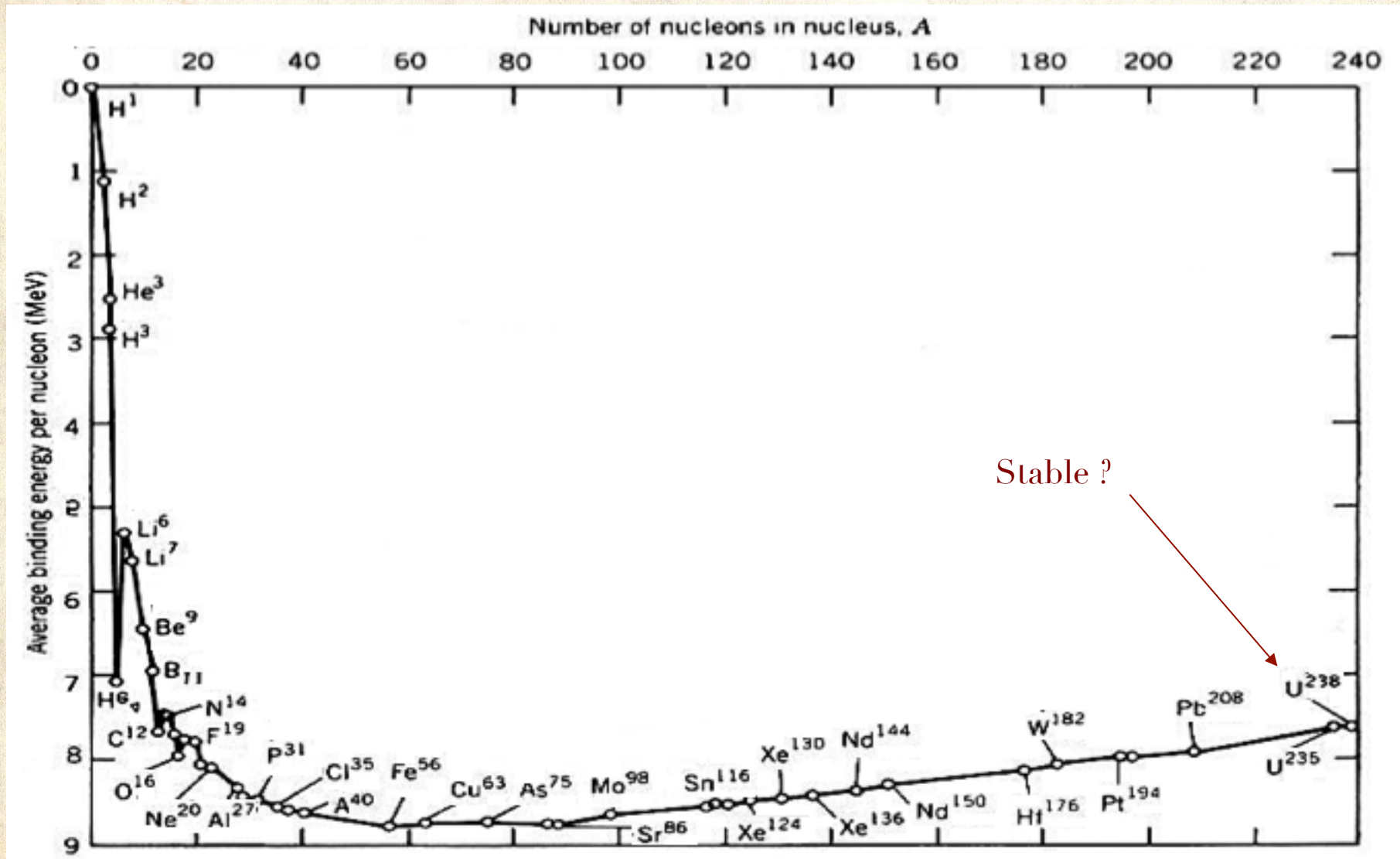
- Joliot passa un contrat avec la Belgique (UMHK) pour la fourniture immédiate de tout l'uranium disponible
- Mais la défaite en juin 1940 arrêta net les travaux de l'équipe
- L'équipe de Joliot réalisa que les pertes de neutrons étaient trop importantes en utilisant de l'eau comme modérateur
  - → deutérium (eau lourde)
  - ou sinon carbone (graphite)
- La Norvège était alors le *seul* producteur d'eau lourde
- Joliot récupéra en mars 1940 le stock mondial (185 kg)



# NIELS BOHR



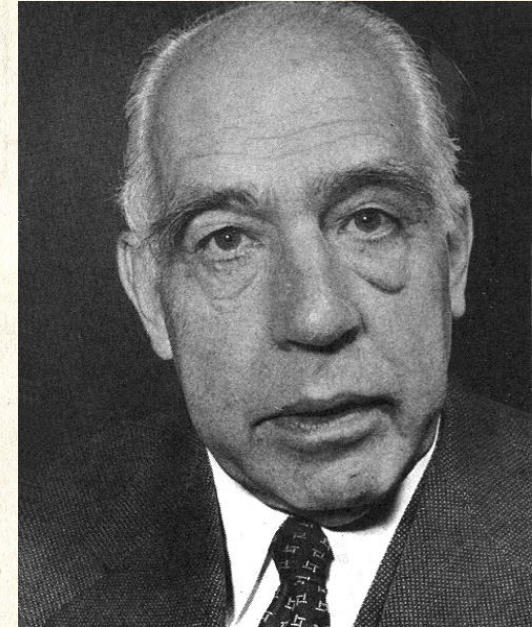
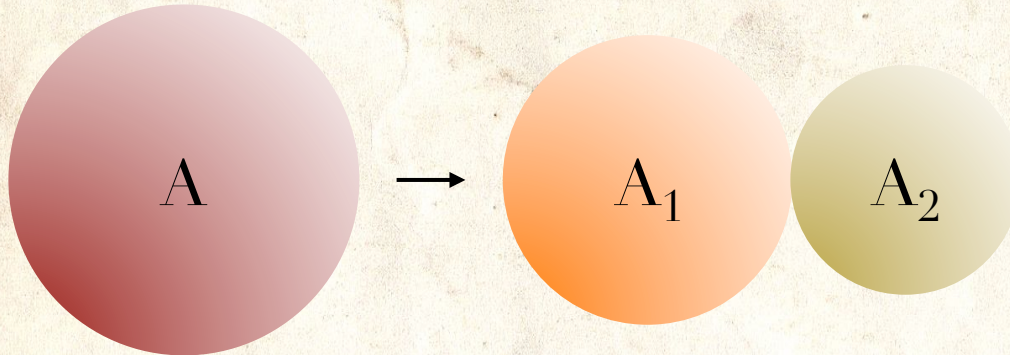
# ÉNERGIE DE LIAISON ET STABILITÉ



# PREMIERS CALCULS

- Formule de Bethe-Weizsäcker

- $E = aA + bA^{2/3} + c(N-Z)^2/A + 3/5 e^2 Z(Z-1)/(r_0 A^{1/3})$



- Limite de stabilité

- Avant :  $E = aZ(Z-1)/A^{1/3} + bA^{2/3} + c(N-Z)^2/A$

→ relation  $E(Z,A)$  non-linéaire

- Après :  $A \rightarrow A = A_1 + A_2$

- $Z \rightarrow Z = Z_1 + Z_2$

- $E \rightarrow E_1(Z_1, A_1) + E_2(Z_2, A_2)$

- Instabilité si  $E > E_1 + E_2$

- $\Rightarrow Z^2/A > 40$  et  $A \sim 2.5 Z \Rightarrow Z > 100$  ,  $A > 250$

# UNE QUESTION SIMPLE DE PLACZEK À BOHR

## ○ George Placzek (1905-1955)

- Travaux sur l'interaction de la lumière avec les gaz et liquides
- Physique des neutrons avec Bethe puis Bohr et Frisch (1935-1939)
- Directeur du groupe de théorie du laboratoire de Montréal, puis adjoint de Bethe à Los Alamos
- Membre de l'IAS de Princeton après la guerre



○ 😊 Certes, plus de soucis avec les «transuraniens» et les mésoméries ternaires

○ 😡 Mais comment le modèle de noyau composé expliquait-il que

- Thorium (90-232) et uranium (92-238) sont très semblables
- Les neutrons sont absorbés par des résonances aussi bien dans le thorium que dans l'uranium
- Le thorium n'est brisé que par les noyaux rapides
- Alors que l'uranium est brisé par les neutrons rapides ET lents
- Et la section efficace de fission ne suit pas la loi en  $1/v$

?

# URANIUM 235

- Bohr suggéra que
  - Thorium 232 et uranium 238 se comportaient en réalité de la même façon : fission exclusivement par neutrons rapides
  - Et que le comportement de l'uranium vis à vis des neutrons lents était dû à un contaminant
- **Il pensa à l'uranium 235**
- Le thorium naturel est à 100% du thorium 232
- Mais en 1935, Dempsey avait découvert un isotope inconnu de l'uranium,  $^{235}\text{U}$
- En 1938, Nier avait montré que cet isotope ne représentait qu'un noyau sur 140 dans l'uranium naturel (0,7%)
- Et en 1940, Nier montra que c'était bien  $^{235}\text{U}$  qui était fissile



# BOHR ET WHEELER

SEPTEMBER 1, 1939

PHYSICAL REVIEW

VOLUME 56

## The Mechanism of Nuclear Fission

NIELS BOHR

*University of Copenhagen, Copenhagen, Denmark, and The Institute for Advanced Study, Princeton, New Jersey*

AND

JOHN ARCHIBALD WHEELER

*Princeton University, Princeton, New Jersey*

(Received June 28, 1939)

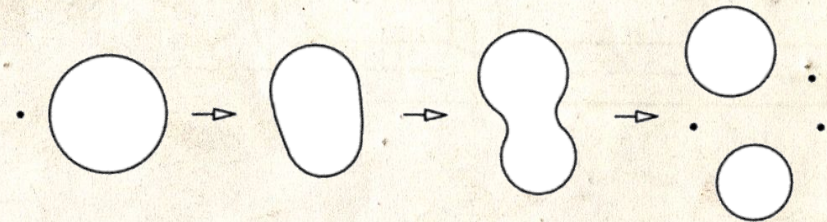
On the basis of the liquid drop model of atomic nuclei, an account is given of the mechanism of nuclear fission. In particular, conclusions are drawn regarding the variation from nucleus to nucleus of the critical energy required for fission, and regarding the dependence of fission cross section for a given nucleus on energy of the exciting agency. A detailed discussion of the observations is presented on the basis of the theoretical considerations. Theory and experiment fit together in a reasonable way to give a satisfactory picture of nuclear fission.

# BOHR ET WHEELER

- John A. Wheeler (1911-2008)
  - Théorie de la matrice S (1937)
  - Théorie de la fission avec Bohr (1939)
  - Programme Manhattan (résolut à Hanford le problème de l'empoisonnement dû au xénon 135)
  - Programme Matterhorn (bombe à hydrogène) dans les années 1950
  - Géométrodynamique (identification de l'espace et de la matière), trous noirs et trous de ver...
  - Gravitation quantique (équation de Wheeler-DeWitt)
  - Théorie de l'information

*Tout est particule → tout est champ → tout est information*

- Calcul des modes de déformation d'une goutte

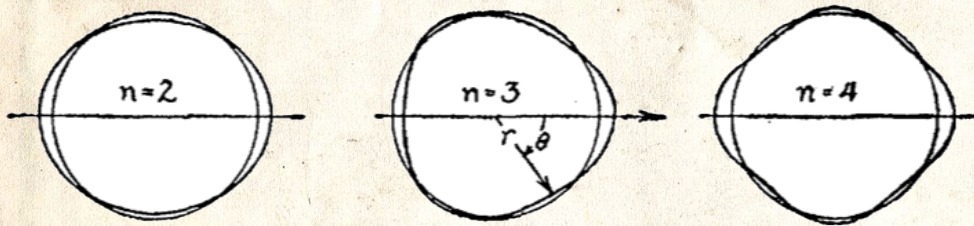


- ⇒ notion de « barrière de fission »

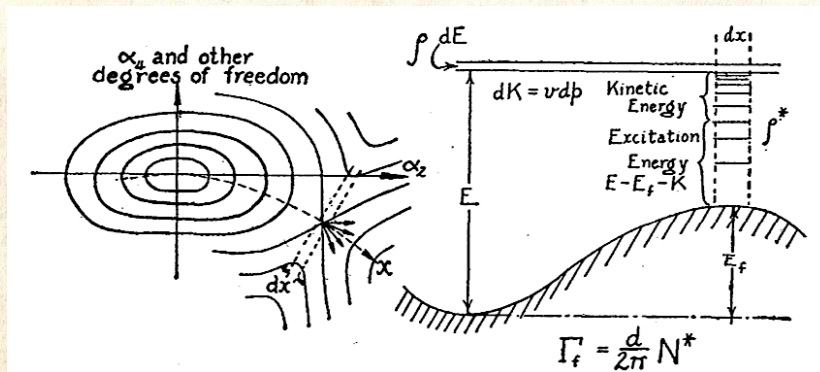


# VIBRATIONS ET RUPTURE

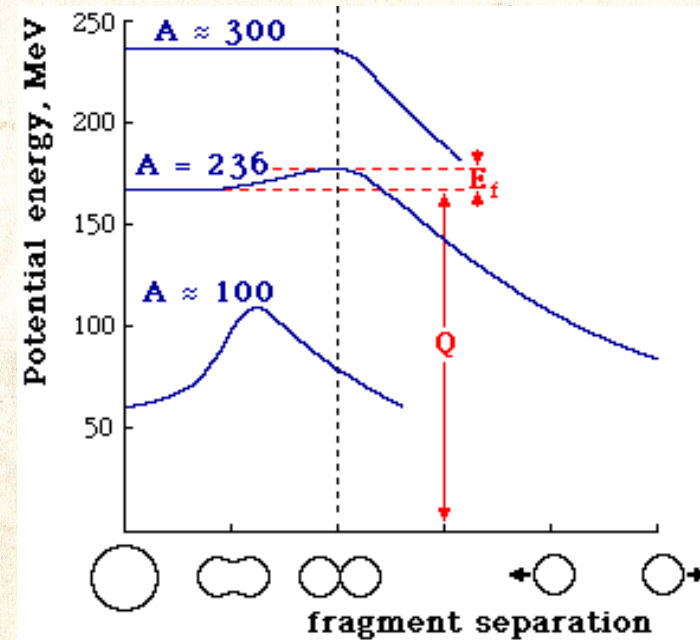
- Décomposition de la forme d'une goutte comme superposition de modes de déformation (~décomposition de Fourier)



- → calcul du potentiel nucléaire et électrostatique en fonction des paramètres de déformation



- existence d'une barrière de potentiel
  - disparaissant pour  $A > 250$
  - franchissable pour  $A > 230$  soit par effet tunnel soit par apport d'énergie (neutron)



## NOYAUX FISSI(B)LES

Noyau	Barrière de potentiel	Énergie de liaison libérée par un neutron additionnel	Différence à fournir (sous forme d'énergie cinétique du neutron)
Thorium 232	7.5 MeV	5.4 MeV	2.1 MeV
Uranium 238	7.0 MeV	5.5 MeV	1.5 MeV
Uranium 235	6.5 MeV	6.8 MeV	- 0.3 MeV
Plutonium 239	5.0 MeV	6.6 MeV	- 1.6 MeV

### ○ Vocabulaire

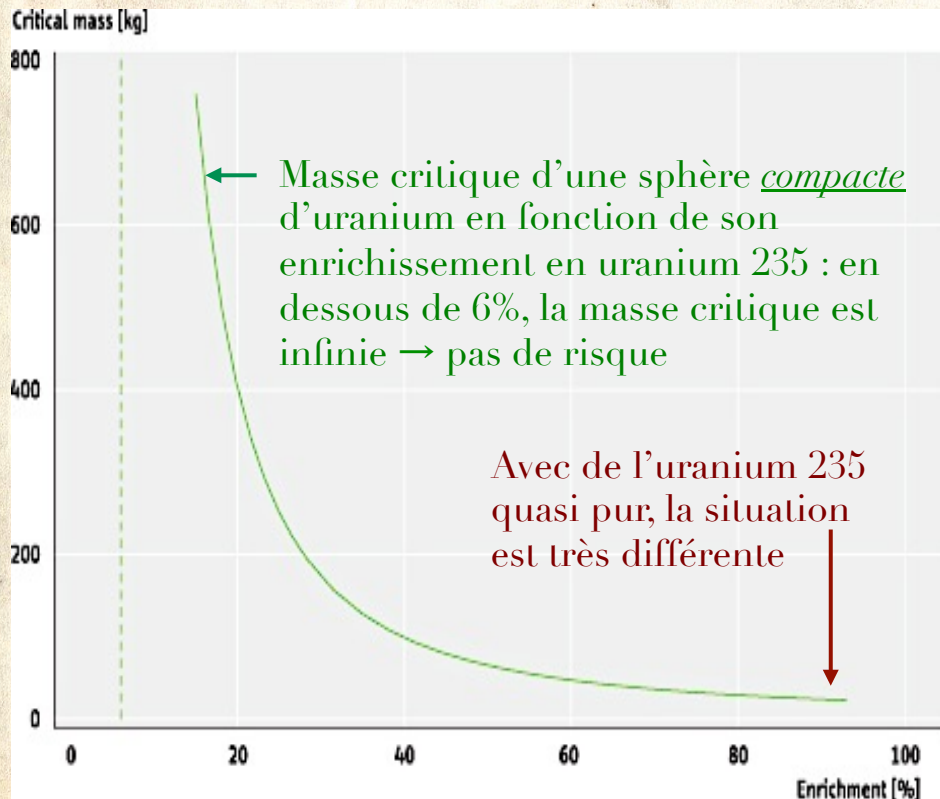
- **fissible** (ou fissionnable) : noyau brisé par des neutrons rapides mais pas de réaction en chaîne possible ( $^{238}\text{U}$ )
- **explosif** : noyau brisé par des neutrons rapides et réaction en chaîne possible ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ )
- **fissile** (sans «b») : noyau brisé par n'importe quel neutron (lent ou rapide)  $\Rightarrow$  réaction en chaîne possible ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ )



# SOULAGEMENT... PROVISOIRE

## ○ Uranium 235 ?

- Utilisable (peut-être) pour un réacteur, **pas pour une bombe**
- « Il y faudrait toutes les ressources d'un grand pays »



## ○ Version erronée de la suggestion de Bohr

- fission rapide due au seul  $^{238}\text{U}$  (**inexact**) et captures → réaction convergente
- fission lente due au seul  $^{235}\text{U}$  (**exact**) → réaction divergente mais sans explosion
- ⇒ réacteur plutôt que bombe
- ⇒ Bohr, Heisenberg, Fermi (<1942) n'imaginèrent pas une bombe autrement que comme un réacteur qui s'emballerait

### Élément 94-239

Note discrète en fin d'article d'où on pouvait déduire que 94-239 serait fissile lui aussi

À SUIVRE !



Mais c'est tout pour aujourd'hui!