# CENBG 8107 n° d'ordre 690

1

Ì.

: 1

### тнеѕе

### présentée

#### A L'UNIVERSITE DE BORDEAUX I

#### pour obtenir le grade de

#### DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

par

#### Jean-Pierre DUFCUR

- - -

Réalisation d'un système de collection électrostatique de noyaux. Application à la production d'isotopes et aux réactions nucléaires induites par des faisceaux de <sup>12</sup>C à 86 MeV/nucléon

---

Soutenue le 23 Mars 1981, devant la commission d'examen

Président

M. G.N. SIMONOFF, Professeur

M. P. ARMBRUSTER, Professeur G.S.I. Darmstadt (RFA)

M. R. BIMBOT, Maitre de Recherches Institut de Physique Nucléaire d'Orsav

Examinateurs

M. A. FLEURY, Professeur

M. J.P. LONGEQUEUE, Professeur Oirecteur de l'I.S.N. de Grenoble

M. B. TREMILLON, Professeur Directeur du laboratoire de Chimie Analytique et Appliquée, E.N.S.C.P. Abstract

And the second

THESE DE J.P. DUFOUR

The working conditions of a new on-line electrostatic collection system are presented. The main characteristics are high efficiency (reaching 20 %) and short delay time (down to the millisecond). A systematic study of this method, comparing experiment and theory, is done. The device has been successfully used on the one hand for the exotic isotopes research (discovery of <sup>184</sup>Pb) and on the other hand for the study of reactions induced by a <sup>12</sup>C beam at NSEV  $\% \in M \times V / m = 46 \times 10^{12}$ 

Les conditions de fonctionnement d'un nouveau système de collection en ligne de type électrostatique sont présentées. Les caractéristiques principales sont une grande efficacité (atteignent 20 %) et un faible temps de transport (jusqu'à quelques millisecondes). Une étude systématique de la méthode, comprenant une comparaison théorie-expérisnce, a été faite. L'ensemble expérimental a été utilisé avec succès d'une part pour la recherche de noyaux exotiques (décauverte de <sup>184</sup>Pb) et d'autre part pour l'étude des réactions induites par un faisceau de <sup>12</sup>C à **Sel**.  $S \in M^{3} \in V / M^{2} \in V$ 

#### REMERCIEMENTS

Le travail présenté ici a été effectué au Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux-Gradignan, dans le cadre de l'Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules, et de l'Equipe de Recherche Associée au CNRS du service de Chimie Nucléaire.

ļ ļ

Monsieur le Professeur G.N. SIMONOFF, Directeur du C.E.N.B.G. a bien voulu m'accueillir dans son laboratoire et m'a donné la possibilité d'effectuer ce travail de recherche dans des conditions extrêmement favorables. Qu'il trouve, ici, l'expression de ma profinde gratitude.

Je suis très sensible à l'honneur que m'a fait Monsieur le Professeur P. ARMBRUSTER, du G.S.I. de Darmstadt, en acceptant de juger cette thèse. Je voudrais lui exprimer mes respectueux remerciements,

Monsieur le Professeur J.P. LDNGEQUEUE a bien voulu faire partie de la Commission d'Examen. Ses responsabilités scientifiques à l'Institut des Sciences Nucléaires de Grenoble le désignaient tout spécialement pour juger ce travail. Je lui adresse mes plus sincères remerciements.

Monsieur le Professeur B. TREMILLON, Directeur du Laboratoire de Chimie Analytique et Appliquée à l'E.N.S.C.P., m'a fait l'honneur de participer au Jury d'Examen, qu'il en soit vivement remercié.

Monsieur le Professeur A. FLEURY a constamment dirigé et suivi cette étude. Ses conseils et ses suggestions ont été déterminants autant pour l'élaboration du travail expérimental et théorique figurant dans ce mémoire que pour ma formation de chercheur. Je tiens à lui exprimer, ici, toute ma reconnaissance. Mes remerciements s'adressent également au groupe de recherche qu'il dirige, c'est à dire H. DELAGRANGE, F. HUBERT, M.B. MAUHDURAT ainsi qu'à Y. LLABADOR et R. DEL MORAL. Le climat de sympathie qui a toujours été présent dans l'équipe m'a grandement aidé pour mener à bien ce travail.

La collaboration avec R. BIMBOT, D. GARDES, M.F. RIVET de l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay a été essentielle pour la plus grande partie du travail expérimental présenté dans cette thèse. J'ai, de plus, beaucoup appris au cours des nombreuses discussions que nous avons eues, et ma reconnaissance leur est acquise.

La participation de N. CARJAN a permis le calcul microscopique des densités de niveaux. Je tiens à la remercier vivement ainsi que L.C. MORETTO qui a mis à notre disposition le programme MOLOCH.

Madame M. GARDRAT a grandement contribué,avec efficacité et diligence, à la préparation des expériencés, notamment en assurant la fabrication d'un grand nombre de cibles.Je l'en remercie très sincèrement.

Je tiens aussi à remercier les équipes de conduite de tous les accélérateurs auprès desquels nous avons toujours été très bien accueillis : C.E.V. d'Orsay, Tandems de Strasbourg et d'Orsay, S.C. du C.E.R.N.

La mise au point de la méthode de collection électrostatique a grandement mis à contribution le bureau d'étude, l'atelier et le service d'électronique du C.E.N.B.G., je n'oublie pas , ici, de les remercier.

Je suis très redevable à Mesdemoiselles N. CACHAU et J. GARRABOS, à Madame MALLEMOUCHE et à Monsieur G. BRUT qui ont assuré avec efficacité et rapidité la présentation de cette thèse.

Enfin, j'adresse mes remerciements à tous ceux, chercheurs et techniciens, quí m'ont apporté leur aide amicale.

. {

# TABLE DES MATIERES

in the second

INTRODUCTION	1
CHAPITRE I - LES TECHNIQUES DE COLLECTION DE NOYAUX	
ET L'ETUDE DES NOUVEAUX ISOTOPES	4
A - LES METHODES DE COLLECTION	5
1 - Transports mécaniques	5
2 - Le jet d'H <b>élium</b>	7
3 - Séparation de masse en ligne	9
4 - Méthodes utilisant la vitesse de recul	
acquise dans la réaction nucléaire	11
5 - Autres méthodes	15
B - LES CONDITIONS DE RECHERCHE ET D'ETUDE DES	
NOUVEAUX ISOTOPES	16
1 - Les spectroscopies possibles et les	
limites de production	16
2 - Les mécanismes de production	17
3 - Les nouvelles frontières du tableau	
périodique	19
4 - Perspectives d'évolution des méthodes	
da collection de noyaux	22
C - LES METHODES ELECTROSTATIQUES DE COLLECTION	25
CHAPITRE II - ETUDE DES PARAMETRES ET REALISATION D'UN	
SYSTEME DE COLLECTION ELECTROSTATIQUE DE	
NOYAUX	33
A - ETUDE DE LA COLLECTION ELECTROSTATIQUE SANS	
FAISCEAU	34
1 – Les sources radioactives	34
2 - Tests sur les vitesses de transport et	
les rendements de collection	37

3 ~ Etude des possibilités de transport	
électrostatique	43
4 - Utilisation d'isolants dans la collection	
électrostatique	45
5 - Superposition d'un entrainement fluide	
à l'entrainement électrostatique	52
B - COLLECTION ELECTROSTATIQUE AVEC FAISCEAU	54
1 - L'appareillage et ses objectifs technique	s 55
2 - Les problèmes spécifiques aux expériences	
sur faisceau	58
3 - Phénomènes liés à l'ionisation du gaz	
ralentisseur	64
4 - Etude détaillée de la collection en	
fonction de chaque paramètre	80
5 - Phénomènes liés à l'ionisation du noyau	
de recul	97
6 - Les méthodes développées pour l'étude des	
mécanismes de réaction	103
CHAPITRE III - PRODUCTION OF NOYAUX ET DESEXCITATION (OT	N
DE LA LICHE DE STABILITE	400
A - LES PEARTIONS DE ENSION DANS LA PECTON DES	108
PLOMBS DEFICIENTS EN NEUTRON	100
1 - Pécultate expérimentaux : Sepetions	103
	110
2 - Détection et corrélation «.«	446
	110
5 - Les masses nucleaires P - Les esecté de coucur et la procycitation Loin	110
DE LA STARTITE	4.74
DE LA SIADILITE	121
1 - Le calcul des densites d'état	122
2 - Les densites d'états numeriques et les	475
tormules usuelles	125
J - Interpretation des resultats humériques	
a l'alce des parametres de la formule	
d'ignyatuk	129

---

- 1

いわいた ね

•

÷

C - INFLUENCE DES DENSITES DE NIVEAU SUR LES CALCULS	
D'EVAPORATION	137
1 - Les données nucléaires entrant dans le	
calcul	138
2 - Les résultats du calcul et leur comparaison	
à l'expérience	142
D - LA PRODUCTION DE NOYAUX EXOTIQUES DANS LES	
REACTIONS SECONDAIRES	147
1 - Production in-situ d'une cible radioactive	148
2 - Production et utilisation; immédiate d'un	
faisceau secondaire	152
CHAPITRE IV - APPLICATION DE LA COLLECTION ELECTROSTATIQUE	
A L'ETUDE DES REACTIONS INOUITES PAR LE FAIS-	
CEAU DE <sup>12</sup> C A 86 MeV/u.m.a.	160
A - MESURE DES SECTIONS EFFICACES	16Z
1 - Les mesures de sections efficaces par la	
méthode radiochimique	164
2 - Les mesures de sections efficaces en ligne	167
B - MESURES DIFFERENTIELLES DE RECUL ET DISTRIBUTIONS	6
ANGULAIRES POUR LA CÍBLE DE Ta	177
1 - Mesures de parcours de recul	177
2 - Distribution angulaire	183
C - INTERPRETATION PAR UN MDDELE DE CASCADES INTRA-	
NUCLEAIRES	185
1 - Les états intermédiaires produits après la	
cascade	186
2 - Les sections efficaces de production et le	
rôle de l'évaporation	188
3 - Les divergences entre le calcul et l'expé-	
rience	190
4 - Conclusion	191
ANNEXES	193
CONCLUSION	211
BIBCIDGRAPHIE	214

#### INTRODUCTION

٩.

ł

Il arrive parfois qu'un physicien nucléaire ait à répondre à la question : qu'est-ce qu'un noyau ? En général l'interlocuteur attend une explication microscopique, c'est à dire qu'il réduit implicitement le problème à la recherche des constituants fondamentaux que sont les neutrons et les protons. Il y a déjà longtemps qu'on connait l'existence et les propriétés de ces particules élémentaires ; on poursuit même la démarche en cherchant toujours le constituant élémentaire final qui "expliquerait" toute la matière. En fait décrire un objet ne se réduit pas à savoir ce qu'il y a dedans. L'information microscopique est nécessaire pour avoir de bonnes chances de comprendre les phénomènes macroscopiques, mais elle est très loin d'être suffisante. Pour illustrer cette propriété générale on peut prendre un exemple extrème emprunté à la biochimie : si on considère la formule développée d'une molécule d'ADN, il n'est absolument pas apparent que la propriété fondamentale de cet assemblage d'atomes est la capacité de stockage et de transmission d'une information biologique. Dans le domaine nucléaire, il suffit de se placer devant une carte des nucléides pour s'apercevoir que la description d'un noyau par ses nombres de neutrons et de protons cache par sa simplicité une très grande variété de propriétés ; et encore ne s'agit-il alors que des aspects statiques. Derrière chaque manifestation phénoménologique apparamment étrange, comme par exemple la plus grande stabilité de tous les noyaux possédant certains nombres de neutrons ou de protons particuliers, il y a un aspect fondamental qu'en réussit finalement assez bien à relier aux propriétés microscopiques. Les calculs, très souvent, ne pouvaient pas précéder

la découverte, à cause de la complexité presque insurmontable à priori des phénomènes mettant en jeu plus de trois ou quatre nucléons. C'est la mesure expérimentale qui permet de préciser quelles sont les simplifications à apporter au calcul, les termes à négliger ou à privilégier. C'est ainsi que les mesures arientent les théories, même quand celles-ci existent déjà, parce que si la théorie donne des équations qu'on ne sait pas résoudre, la réalité, elle, seit comment faire !

C'est en observant soigneusement tous les aspects, même les plus petits en apparence, de l'ensemble des novaux connus qu'on peut découvrir les grands axes qui permettent de suivre les comportements individuels des nucléons jusque dans les modes complexes d'assemblages présents dans la structure nucléaire. Malheureusement les aspects les plus courants de la matière sont aussi très souvent les moins révélateurs. En minéralogie. la seule pierre naturelle qui présente la propriété d'être aimantée est la magnétite, traditionnellement amenée autrefois des Monts Oural jusqu'à notre pays et qui passait alors pour une simple curiosité naturelle : toujours dans ce domaine. la pechblende intrigua un jour le professeur Becquerel ! ... Ces tout petits cas particuliers ont engendré par la suite une énorme quantité de découvertes fondamentales. Le numbre des isotopes connus actuellement n'est pas aussi grand que celui des minéraux, mais il parait déjà assez important et il n'est pas toujours évident pour tout le monde que de grands efforts doivent être déployés pour ajouter encore quelques cases supplémentaires. Aussi faut-il rappeler que si on n'attend pas des bouleversements de la physique de la m€mè importance que ceux qui ont suivi l'étude du magnétisme ou des radioéléments, il reste vrai que la découverte de nouveaux isotopes a déjà permis de révéler des propriétés nouvelles de radioactivité (fission spontanée, émission de protons, de deux ou trois neutrons), et surtout d'étendre "l'espace de travail" nucléaire . Les nouveaux isotopes découverts il y a plus de dix ans sont maintenant passés dans le domaine d'usage courant. Peu à peu des propriétés

- 2 -

disparates, incomplètes, surprenantes, rentrent dans le moule des théories en obligeant à changer quelques aspects partiels, et de temps en temps quand il y a trop de données, une refonte complète devient nécessaire.

Le travail présenté ici concerne à la fois dans ses parties expérimentales et théoriques, l'étude des novaux relativement éloignés de la vallée de stabilité dans des régions appelées "exotiques". Les méthodes de production et de détection d'isotopes exotiques se placent un peu à l'écart des autres types de mesures nucléaires par la grande spécificité des technologies qui y sont développées, et celle qui va être détaillée dans ce travail n'échappe pas à la règle. Cependant cette recherche entretient, sur le fond, des relations étroites avec de nombreuses branches de la physique nucléaire actuelle. Pour obtenir les productions maximums dans des régions difficiles à atteindre il faut avoir une connaissance précise des mécanismes de réaction, et réciproquement, un mécanisme donné produit toujours un certain nombre de noyaux, une technique de collection peut permettre alors de savoir lesquels, en quelles quantités, etc...

Les principaux thèmes qui vont être abordés dans cette thèse sont donc d'abord l'étude des caractéristiques des collections de noyaux en général et plus particulièrement celles obtenues avec une méthode nouvelle de type électrostatique. Nous verrons ensuite que la connaissance du mécanisme de fusion nucléaire, très avancée dans le laboratoire, est toujours d'actualité et comment ce mécanisme permet la production de nouveaux isotapes. Enfin seront présentés les tous premiers résultats obtenus sur les réactions nucléaires aux énergies de faisceau nouvellement disponibles au CERN (20 MeV < E/A < 100 MeV) pour le <sup>12</sup>C,avec notre dispositif.

- 3 -

# CHAPITRE I

4

-----

ŝ

# LES TECHNIQUES DE COLLECTION DE NOYAUX ET L'ETUDE DES NOUVEAUX ISOTOPES

Le transport des isotopes fabriqués dans les réactions nucléaires est impératif dès que des propriétés de radioactivités veulent être déterminées. Seules l'existence et la masse de nouveaux isotopes peuvent être acquises à l'endroit même de leur production (GUE 80, DET 77, BUT 77). Des renseignements sur les autres propriétés des centaines de noyaux déjà mis en évidence, mais étudiés incomplètement, ou des milliers d'autres inconnus actuellement et prédits stables par les théories, ne peuvent être obtenus que si on peut collecter efficacement les produits d'une réaction nucléaire et les transporter loin des faisceaux dans une zone de faible bruit de fond.

La complexité du problème est plus grande qu'il peut sembler au premier abord et sucune méthode ne réussit le véritable tour de force que serait le transport intégral, en quelques nanosecondes, de la cible au laboratoire d'analyse,d'un isotope donné.

Nous allons rappeler en premier lieu dans ce chapitre les méthodes utilisées actuellement ou en cours de développement ayant pour but de collecter les noyaux. Dans un second paragraphe seront exposées les conditions de productions et d'études des nouveaux isotopes ainsi qu'un rapide survol des nouvelles frontières du tableau périodique et de leurs moyens spécifiques d'investigation. Un chaoître particulier résumera les expériences de collections électrostatiques antérieures à ce travail afin de montrer l'intérêt de reprendre une étude plus systématique de cette méthode qui peut permettre à la fois la recherche de nouveaux isotopes \_\* l'analyse de mécanismes variés de réaction. A - LES METHODES DE COLLECTIONS

En ne considérant que les méthodes permettant la collection d'isotopes dont la période est courte (T<sup>1/2</sup> < 10s) on peut regrouper les techniques utilisées en quatre catégories :

 arrêt dans un solide et transport mécanique : rabbit, courroies, etc...

ii) arrêt dans un gaz et transport : par jet gazeux (jet d'hélium) ou par champ électrostatique

iii) arrêt dans un solide porté à haute température suivi de processus de migration thermique, d'ionisation et de séparation électro-magnétique des masses(spectromètres de masse et séparateurs d'isotopes)

iv) utilisation de l'impulsion initiale pour le transport, élimination du faisceau par des critères cinématiques, arrêt dans un solide (solénoïde, filtre de vitesse, spectromètre empli de gaz)

Un examen détaillé de ces techniques va être présenté ci-dessous pour qu'apparaissent les avantages et les inconvénients de chacune d'elles.

#### 1 - TRANSPORTS MECANIQUES

Une grande quantité de systèmes de ce genre a été installée auprès des accélérateurs y compris jusqu'à ces dernières années (DET 72, ALB 74). L'arrêt se fait en général dans un solide et provoque une implantation qui empêche de faire une bonne spectroscopie  $\alpha$  ou  $\beta$  après transport. Dans la plupart des cas, le faisceau traverse le collecteur, ou s'y arrête, ce qui provoque l'apparition d'activités  $\beta$  et  $\gamma$  importantes dont le spectre s'ajoute de manière très génante, aux activités à étudier. Une solution couramment adoptée pour éliminer ces problèmes est de procéder à une séparation chimique et de déposer l'élément isolé sur une surface solide. Les spectroscopies  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  sont alors très bonnes et exemptes de bruit de fond. Cependant la limite de cette technique est le temps minimum nécessaire à la chimie et l'ordre de grandeur de la minute n'est que très difficilement abaissé à quelques secondes (SKA 80). Les méthodes de défilement de bandes sont souvent employées après une première collection (séparation de masse, HOR 74) mais aussi directement. Il s'agit le plus souvent de bandes métalliques (ou plastiques métallisés) défilent devent une cible, juste au dessus (ou au dessous) du faisceau (fig. 1) (FRI 62). Dans cette méthode l'implantation ne permet que la spectroscopie y.

Le rendement dépend fortement du mécanisme de réaction car seuls les noyaux produits dans un intervalle d'angles déterminé par la largeur de la bande et celle du faisceau cont collectés.



Fig. 1 : Représentation schématique d'un système de collection et de transport des noyaux de recul par un système à bande

Le défilement de la bande peut se faire continuement ou de façon périodique  $(T_0)$ . Dans les deux cas la vitesse du défilement privilégie la détection d'une gamme assez précise de périodes, le rendement en fonction de la période  $T_{1/2}$  de l'isotope collecté étant du type représenté sur la fig. 2

- 6 -

Il faut donc faire plusieurs mesures si on s'intéresse à plusieurs isotopes assez faiblement produits ayant des périodes variables sur deux ou trois ordres de grandeur. Les plus courtes périodes accessibles sont de l'ordre de 10 ms, ce qui est certainement la performance le plus intéressante de cette méthode.



Fig. 2 : Evolution du rendement de collection dans un système de défilement de bande en fonction de la période de l'isotope étudié T<sup>1/2</sup> et du temps caractéristique T<sub>0</sub> de l'appareillage (période de répétition, temps de déplacement)

2 - LE JET D'HELIUM

Le ralentissement des isotopes produits au cours d'une réaction nucléaire dans un gaz était utilisé jusqu'en 1963 uniquement associé à une collection électrostatique (vair paragraphe C).

Mac Farlane (MAC 63) utilisa le premier une méthode uti lisant le jet gazeux produit entre une première enceinte emplie de  $^1$  gaz (He) et dans laquelle se trouve la cible et une deuxième enceinte où un pompage assez fort assure un vide compatible avec la détection de particules  $\alpha$  (fig. 3).



Fig. 3 : Les différents éléments d'un jet d'hélium

2

Le transfert des noyaux à détecter d'une enceinte à l'autre, très simple au départ et peu performant, a fait l'objet de nombreuses études et améliorations qui ont permis l'élaboration d'un outil performant, relativement simple.

Les versions modernes de jet d'hélium utilisent un capillaire de téflon pour relier une enceinte haute pression (1 à 2 bar) de petites dimensions à la partie sous vide. Des additifs sont parfois ajoutés à l'hélium pour entrainer avec plus d'efficacité les noyaux produits (DEP 76).Les rendements absolus sont typiquement de l'ordre de 8 % pour des temps de transport de 1 ms à 1 s., se décomposant en 60 % pour le transport et 15 % pour la détection. La méthode n'opère aucune sélection sur la nature des isotopes collectés et est bien adaptée aux réactions par ions lourds où le nombre d'isotopes différents produits peut être assez faible.

D'autres mesures physiques (en dehors de la détection α) peuvent être réalisées après le transport, et notamment une certaine identification en Z peut être obtenue par l'adjonction de détecteurs X-γ.

Les réalisations les plus récantes vont dans le sens d'une sélectivité plus grande (WOL 76) obtenue de deux manières possibles soit par mesure de temps de vol, soit par spectrométrie de masse. La première métnode (DEL 78) permet d'enregistrer les données sur différentes masses dans la même expérience. Un métal peut ainsi donner trois pics correspondants à M, MO,  $MO_2$ , et des indications sur les natures chimiques peuvent être extraites (accès à Z). La résolution limite l'analyse aux masses légères ou moyennes. Une autre possibilité est de raccorder la sortie d'un jet d'hélium à la source d'ion d'un spectromètre de masse (MOL 80). Les problèmes liés à cette technique sont l'élimination du gaz accompagnateur et l'utilisation d'une source la plus universelle possible. Les masses sont enregistrées successivement ; la résolution est parfaite et les spectroscopies  $\beta$  ou  $\gamma$  sont donc très pures.

Dans les deux cas, les rendements sont très faibles  $(10^{-4} - 10^{-5})$  ce qui limite les applications possibles.

### 3 - LA SEPARATION DE MASSE EN LIGNE

On peut regrouper dans cette catégorie un grand nombre de réalisations expérimentales (HAN 79, RAV 79) utilisant le schéma de principe représenté sur la fig. 4.

- 9 -



Fig. 4 : Schéma de principe d'un spectromètre de masse

Les deux dernières étapes demandent des installations qui peuvent être assez lourdes mais dont la réalisation ne pose pas de problèmes particuliers. Ce qui différencie chaque ensemble expérimental se situe dans le choix combiné d'un type de cible et d'un système propre à ioniser le corps volatile radioactif à étudier. Seuls certains éléments susceptibles de satisfaire les deux conditions de volatilité et d'ionisation peuvent être étudiés par cette méthode.

On peut citer les plus courants : les alcalins (associés à des ioniseurs de surface), les alcalino-terreux, les halogènes, les gaz rares, certains métaux (Hg, Cd, Zn, Ga, In, Tl, Pb). Au total 40 éléments sont actuellement étudiés par spectrométrie de masse. Dans la plupart des cas (sauf les gaz rares) les sources sont chauffées de manière à permettre à un corps et un seul de se volatiliser.

Les sources d'ions sont principalement de deux types :

i) les ioniseurs de surface (KLA 69, AMA 67) il) les plasmas créés par différentes méthodes (arcs,

oscillateurs, lasers, etc...) (KIR 76).

- 10 -

Les caractéristiques de temps de transports sont très variables, allant de 1 ms pour les alcalins issus d'un carbure d'uranium à 30 s pour le mercure sortant d'une cible de plomb fondu.Les rendements d'extraction sont en général élevés (entre 5 et 80%) et conduisent à des taux de production atteignant jusqu'à 3  $10^{10}$  part/s (Cs. Hg) permettant l'utilisation de faisceaux secondaires (RAV 79) ou la préparation de cibles radioactives (AND 76).

Les qualités associées de sélectivité en charge et en masse, de rendement et de temps de transport assez court, font de cette méthode on outil privilégié pour l'étude systématique des propriétés de la matière nucléaire dans son état fondamental ou dans ses premiers états excités.

De nombreuses implantations auprès des accélérateurs ou des réacteurs en témoignent (RUD 76, EPH 79, PAR 76, RUD 76).

# 4 - <u>METHODES UTILISANT LA VITESSE DE RECUL ACQUISE</u> DANS LA REACTION NUCLEAIRE

Une voie nouvelle a été ouverte depuis quelques années avec la mise en œuvre de techniques s'intéressant aux très courtes périodes et opérant un tri électromagnétique avant tout processus de thermalisation par ralentissement dans un solide, un liquide ou un gaz. Les réalisations les plus anciennes sont les spectromètres contenant du gaz (CDH 58) dont une version plus performante a été réalisée à Julich en 1973 (JOSEF).

Presque simultanément ont été mis en service un spectromètre à deux champs (E et B) à l'Institut Laue-Langevin (LCHE,IGRIN) et un filtre de vitesse au GSI de Darmstadt (EWA 76). Un solénoIde supraconducteur est actuellement en étude à l'IPN d'Orsay (SCH 79).

 a) JOSEF : le principe très original de cet appareil repose sur les propriétés d'équilibre des charges d'un ion dans un gaz. En effet la valeur moyenne du rapport de la vitesse de l'ion à sa charge <v/q> na dépend,au cours du ralentissement que de Z selon une loi du type <v/q> =  $Z^{-\alpha}$  0 <  $\alpha$  < 1. La déflection dans un champ magnétique est alors donnée par Bp = kA<v/q> =  $k.A/Z^{\alpha}$ . Ceci implique que dans un gaz, au meins en première approximation, les trajectoires ne dépendent que de A et Z et pas de l'énergie incidente (SIS 76, LAW 76).



Fig. 5 : Schéma du spectromètre de recul à gaz JOSEF de Julich

Les gaz utilisés sont N $_2$  et He à des pressions variables entre 10 $^{-1}$  et 10 torr.

.

1

La résolution en B<sub>p</sub> se traduit par une résolution en masse et en Z soit actuellement A/ $\Delta$ A  $\sim$  60 et Z/ $\Delta$ Z  $\sim$  38, des superpositions entre les isotopes (Z, A) (Z-1, A-1) ou (Z,A), (Z-2,A-2) sont possibles dans le plan focal, mais par une variacion de pression ou de nature du gaz ce problème peut être résolu.

Ces caractéristiques sont utilisées dans le spectromètre JDSEF pour séparer les produits de fission obtenus auprès d'un réacteur. La nécessité d'une bonne sélectivité est évidente compte tenu de l'abondance des isotopes formés.

b) LOHENGRIN : les buts sont à peu près les mêmes que pour JOSEF mais un compromis différent a été cherché entre l'efficacité et la sélectivité. Pour LOHENGRIN (fig. 6) le choix a été du côté de la sélectivité en utilisant un champ électrique radial et es champ magnétique croisé qui ne permettent le passage qu'aux provites de fission ayant l'énergie moyenne (acceptance ± 5% en énergie).



#### Fig. 5 : Schéma du spectromètre de masse LOHENGRIN

- 13 -

3

La sélection porte sur le  $\Lambda$  et sur la charge effective des produits de fission. Cela signifie que des isotopes de Z voisins ne sont séparés que de manière approximative, des mesures en E -  $\Delta$ E et en temps de vol sont nécessaires pour des assignements en Z rigoureux. Des mesures de coincidences  $\beta$ - $\gamma$ , (fournissant le  $Q_{\beta}$ )et  $\gamma$ - $\gamma$  sont ainsi possibles. La focalisation de sortie occupe uns grande surface (650 cm<sup>2</sup>) et une partie de l'avantage résultant du court temps de transport est perdue par la nécessité de concentrer l'activité à l'aide d'un jet d'hélium (à 17 capillaires) avec un temps de transport de l'ordre de la seconde.

21

#### c) Le filtre de vitesse

Dans le cas d'une réaction par noyau composé les vitesses des noyaux après l'évaporation de particules sont assez peu dispersées. Cela permet de séparer les résidus d'évaporation du flux intense des ions du faisceau par le seul critère de la vitesse. Le principe de base étant donné par l'équation v =  $\frac{E}{B}$  dans un système où B et E sont orthogonaux et appliqués dans un volume commun. La réalité est plus complexe et nécessite une succession de champs électriques et magnétiques (fig. 7) (EWA 76).



Fig. 7 : Schéma du filtre de vitesse du G.S.I. de Darmstadt

- 14 -

L'efficacité du système est constante pour toutes les périodes supérieures à 1 µs mais dépend du nombre et de la nature (n, p,  $\alpha$ ) des particules évaporées. En effet l'acceptance angulaire de ± 1,5° favorise la transmission des noyaux correspondants aux voies 2n, 3n par rapport aux voies ( $\alpha$ , 2n), ( $\alpha$ ,3n).

Il n'y a aucune sélectivité du système par lui-même concernant le Z ou le A ; mais pour la spectroscopie  $\alpha$  (et elle seule)la grande efficacité de détection due à l'implantation des ions dans le détecteur lui-même permet de reconstituer les chaines de désintégrations  $\alpha$  issues d'un isotope donné et donc de remonter à son numéro atomique et à sa masse.

Cette méthode est très adaptée à la détection des produits lourds(ou super-lourds !) très déficients en neutrons et de courts période.

#### 5 - AUTRES METHODES

Dans certains cas particuliers des dispositifs spécifiques ont été utilisés, avec des objectifs limités. On peut citer par exemple l'observation directe en ligne des isotopes de période inférieure à 1µs ( $^{217}$ Ac,  $^{218}$ Th ... (NOM 73) par collection sur une feuille placée derrière la cible et comptage entre les pulsations du faisceau. Les défauts de cette méthode sont liés au bruit de particule important et à la résolution énergétique très mauvaise, défauts compensés par les fortes productions obtenues par exemple dans les réactions du type  $^{12}$ C +  $^{208}$ Ph.

Pour des noyaux légers où peu d'états de charges différents sont formés, des spectromètres analyseurs classiques. malgré leur faible efficacité ont permis de collecter des isotopes déficients en neutrons formés par fusion, en utilisant l'énergie de recul. Là encore la mauvaise sensibilité limite fortement l'utilisation.

Pour les noyaux très lourds les isotopes qui fissionnent spontanément ont été détectés avec des rendements très hons, mais avec un manque total de possibilité d'identification (OGA 76).

### B - LES CONDITIONS DE RECHERCHE ET D'ETUDE DES NOUVEAUX ISOTOPES

Pour observer un isotope donné exotique, c'est à dire inconnu ou mal connu loin de la vallée de stabilité, il peut sembler que le choix est large dans l'ensemble des méthodes existantes. En fait les contraintes sont grandes et bien souvent aucune technique n'est parfaitement adaptée et même, dans un grand nombre de cas, il n'en existe pas de véritablement performante . Le choix d'un système de détection dépend essentiellement des trois contingences suivantes : le type de radioactivité à détecter. le mécanisme de production, le domaine de masse et de charge étudié. Dans ce paragraphe nous allons brièvement rappeler les conditions d'étude des diverses radioactivités et les limites de production nécessaires aux différents types d'études possibles sur les nouveaux isotopes. Seront ensuite analysés les différents modes de formation de nouveaux isotopes suivis d'un bref survol des directions actuelles de recherche dans les différentes parties du tableau périodique.

# 1 - LES SPECTROSCOPIES POSSIBLES ET LES LIMITES DE PRODUCTION

# a) <u>Radioactivité α</u> :

L'émission a offre les plus grandes facilités de détection, avec trois avantages décisifs : i) grande efficacité, ii) spectres de raies, iii) protection au bruit de fond relativement facile.

On peut ainsi caractériser un nouvel isotope avec moins de 50 noyaux (HOF 79). Dans les éléments légers les émissions retardées  $\beta^+, \alpha$  ;  $\beta^+, \gamma$  ou  $\beta^-, \alpha$  peuvent donner des spectres de raies pour les alphas ou les protons et caractériser certains isotopes (AYS 79). Pour le cas des spectres continus une sélectivité en Z et A est nécessaire pour obtenir des informations sur chaque isotope formé.

b) Désintégration  $\beta$  et  $\beta, \gamma$ 

L'émission β n'est que très rarement caractéristique d'un isotope donné. La spectroscopie correspondante peut être

faite sur des novaux très bien isplés en Z et en A (y compris de leur filiation) ou en coincidence avec les rayonnements X qui accompagnent toujours la désintégration β.Dans ce dernier cas le taux de production doit au moins atteindre 10<sup>2</sup> atomes/s. Pour la plupart des noyaux la radioactivité  $\beta$  est en coincidence avec l'émission de gammas discrets dont le spectre permet l'identification dans les cas favorables. Les fluctuations stacistiques du continuum limitent les possibilités de détection d'une faible activité en présence de contributions importantes de novaux voisins (RAV 79). Une sélection assez forte en Z et A est donc en général nécessaire. Pour les noyaux lourds les spectres y sont souvent très complexes, le tri est indispensable. Les officacités de détection sont faibles et dépendent de l'énergie ; les taux de comptage doivent atteindre 10<sup>2</sup>-10<sup>3</sup>noyaux/s pour mettre en évidence quelques niveaux. et 10<sup>4</sup>-10<sup>5</sup> pour que des coincidences  $\beta, \gamma - \gamma$  puissent être faites.

#### 2 - LES MECANISMES DE PRODUCTION

### a) La fusion

1

En raison de la courbure de la vallée de la stabilité une réaction de fusion par ions lourds produit en général des isotopes très déficients en neutrons. Du point de vue de la production d'isotopes qui nous intéresse ici, la fusion se caractérise par : i) des sections efficaces décroissantes avec le Z du projectile pour Z > 6, ii) des épaisseurs de cible limitées par la perte d'énergie dans la cible, iii) une focalisation des reculs vers l'avant (0 à 30°), iv) des intensités de faisceaux décroissantes avec Z (Z > 10), v) un petit nombre d'isotopes formés, minimum  $\sim$  2-3.

# b) <u>La fission</u> :

Le phénomène de courbure de la stabilité est aussi à l'origine de la richesse en neutron des éléments de masse moyenne produits dans la fission des éléments lourds. Les caractéristiques importantes sont : i) l'isotropie où la symétrie par rapport à  $90^{\circ}$  dans le centre de masse du phénomène, ii) la formation d'éléments de Z = 30 à Z = 62 et par tripartition d'éléments de Z inférieurs à 6 , iii) des reculs de l'ordre de 100 MeV, iv) un très grand nembre d'isotopes formés simultanément (> 100), v) des épaisseurs de cible pouvant être très grandes (limitées par la dose de rayonnement).

c) Transferts dans les réactions par ions lourds : l'équilibrage rapide du rapport N/Z dans les réactions très inélastiques et les fluctuations autour de la valeur d'équilibre de ce rapport permettent la production de nombreux novaux riches en neutrons. Les caractéristiques quant au choix du système de collection de ce type de réaction sont les suivantes : i) augmentation des sactions efficaces du processus global et décroissance de l'exoticité et de l'intensité des faisceaux disponibles quand le Z du projectile augmente, ii) production d'isotopes riches en neutrons ou 4 < Z < 100, iii) énergie de recul très variable mais le plus souvent élevée (3 à 12 MeV/u.m.a,). iv) angle de déflection assez grand en général (entre 10 et 90°) avec possibilité de focalisation vers l'avant plus grande dans le cas d'utilisation de réactions inverses, v) production simultanée d'un assez grand nombre d'isotopes (N > 10) et enfin vi) possibilité d'utiliser des cibles relativement épaisses  $(10 \text{ mg/cm}^2)$ .

d) Fragmentation à haute énergie : Avec des protons, des alphas, ou des hélium 3, d'énergie supérieure à 100 MeV/u.m.a. une très grande variété d'isotopes est formée avec les caractéristiques suivantes : i) sections efficaces peu dépendantes de l'énergie, ii) faisceaux disponibles de forte intensité, iii) grandes épaisseurs de cibles possibles, iv) production d'isotopes déficients en neutrons et d'éléments légers riches en neutron (+ isotopes riches en neutron de Z = 86-88), v) reculs faibles, vi) angles d'émission importants.

Des faisceaux intenses d'ions lourds de grande énergie vont être prochainement disponibles, mais on ne sait rien ou presque des possiblités de production qu'ils ouvriront.

- 18 -

3 - LES NOUVELLES FRONTIERES DU TABLEAU PERIODIQUE

a) Les éléments légers (Z < 29) : Ce domaine très intéressant n'est pas pour l'instant accessible par des méthodes de collection performantes,à l'unique exception des alcalins (Na,K) qui sont étudiés dans d'excellentes conditions par spectrométrie de masse (THI 75).Pour les autres éléments des méthodes de type "rabbit" ou (et) séparation chimique sont encore employées ( $^{20}$ P, DET 72). Dans le cas des émetteurs de protons ou d'a retardés des méthodes de jet d'hélium ont été appliquées (AYS 79), éventuellement complétées par une analyse en masse. Les rendements sont alors très faibles et pourtant une sélection en Z et A serait très souhaitable.

Un effort technique dans cette région serait certainement suivi de succès. Ce ne sont pas les mécanismes de production qui font défaut mais les méthodes de collection. C'est ainsi que <sup>20</sup>Mg et <sup>24</sup>Si ont été mis en évidence avec des rendements de l'ordre de 10<sup>-4</sup> ! (AYS 79, MUL 79). On sait expérimentalement de même grâce aux détecteurs solides que les isotopes  $^{21,22,23,24}$ O sont liés mais l'isotope de l'oxygène le plus lourd dont la radioactivité a été étudiée est <sup>20</sup>D.

b) Les éléments de charge moyenne : 30 < Z < 62

Pour les isotopes riches en neutron, les problèmes liés aux caractéristiques de la fission (grand nombre de noyaux produits, spectres  $\gamma$  complexes, courts temps de vie ...) ont amené les physiciens à concevoir, d'une part des méthodes très performantes comme les spectromètres utilisant le recul (JOSEF, LOHENGRIN) et d'autre part à accroître les qualités des spectromètres de masse par exemple en augmentant la rapidité de collection : mise en évidence par exemple de <sup>100</sup>Rb (T<sup>1/2</sup> = 50 ms) (KOG 78).

Dans le cas des isotopes déficients en neutrons obtenus par fusion pu fragmentation les méthodes de spectrométrie de masse couvrent un nombre d'éléments non négligeable, et sont pratiquement les seules disponibles. La sélectivité en Z n'est pas très bonne pour un certain nombre de métaux de caractéristiques physico-chimiques voisines mais des corrélations  $\beta$ -X,  $\gamma$  peuvent compléter la mesure de masse. Dans le cas des isotopes de Z > 52 où un nouveau domaine de radioactivité  $\alpha$ a été découvert, l'association d'une source d'ion peu sélective et de mesures de coincidences  $(\alpha, p, \beta) - (X - \gamma)$  s'est révélée très fructueuse (KIR 77). Seul le problème du temps de transport, (voisin de 1s) limite cette méthode dans l'étude de noyaux de plus en plus exotigues.

L'association jet d'hélium-temps de vol présente une solution intéressante au problème (DEL 79) mais le rendement est faible  $(10^{-4}-10^{-5})$ .La résolution ne permet pas de dépasser A = 100.

Dans l'ensemble cette zone est donc une des plus ouverte, tant par la variété des mécanismes de réaction utilisés que par l'ensemble des méthodes de collection.

### c) Les éléments lourds : 63 < Z < 92

Pour les éléments riches en neutron la situation n'est pas très bonne : les spectres  $\gamma$  sont très complexes, les mécanismes de production sont rares [transferts et fragmentation) et produisent en plus des noyaux exotiques un assez grand nombre d'isotopes inintéressants qu'il faut éliminer. La spectrométrie de messe n'est bien sélective que pour le mercure, alors que pour T1, Pb et les terres rares les contaminations entre A ou 2 voisins sont plus grandes. Le spectromètre ISOLOE (CERN) a permis la mise en évidence de <sup>207</sup>Hg mais les contaminations des autres masses produites en quantités considérables ( $\tau > 10^{10}$  part/s) ne laissent pas espérer une grande progression dans ce domaine.

Au contraire pour les éléments déficients en neutrons, la situation est très favorable. La fusion et la fragmentation permettent d'atteindre toutes deux des régions très éloignées de la stabilité. Dans le domaine de 2 = 72 à 92 les isotopes déficients en neutron sont pratiquement tous émetteurs  $\alpha$ ; cela permet à une méthode comme le filtre de vitesse qui ne sélectionne ni en A ni en Z, mais collecte en un cemps très court, d'être extrèmement performante. Compte tenu de l'identification obtenue en étudiant les corrélations spatiales et temporelles des désintégrations  $\alpha$  d'une chaine radioactive, les

- 20 -

inconvénients d'une méthode non sélective sont considérablement réduits (VER 80). Seuls les isomères découverts au voisinage de Z = 7D et N = 85 ont posé avec cette méthode, des problèmes d'identification ; il faut noter que dans cette zone, accessible par spectrométrie de masse les mêmes isomères ( $T_{1/2} \approx 10^{-3}$ s) n'ont pas été détectés en raison de leur faible durée de vie.

Cependant pour un assez grand nombre d'isotopes dont l'embranchement  $\alpha$  est faible les spectromàtres de masse restent seuls compétitifs, à la fois pour l'identification et la détection (KOR 80). L'étude détaillée des radioactivités est leur domaine exclusif en raison des très forts taux de production pour des noyaux moyennement exotiques.Les études sur les mercures (HAN 70) en sont un bon exemple. L'absence de sources d'ions pour un assez grand nombre d'éléments fait que dans le domaine Z = 72 - 75 il existe une "poche" d'isotopes inconnus qui résiste aux investigations (par ex : de A = 156 à 161 et A > 166 les isotopes d'hafnium sont identifiés, mais de A = 162 à A = 165 les radioactivités n'ont pas été observées).

### d) Les transuraniens

Au delà de Z = 92 les efforts répétés ont permis l'observation d'isotopes produits avec de très faibles sections efficaces. Le rôle de la chimie est encore très grand dans cette zone parce que les périodes des isotopes recherchés peuvent être longues (par ex :  $^{256}$ Es découvert en 1976 : T<sup>1/2</sup> = 7,6h, LOU 76) et que des rendements élevés sont indispensables.

Les émetteurs  $\alpha$  ont été mis en évidence essentiellement avec la méthode du jet d'hélium, jusqu'à l'élément 106, en utilisant des réactions de fusion par ions lourds (GHI 74).

La recherche des superlourds illustre assez bien la diversité des techniques utilisées dans les régions où la production est très faible : filtre de vitesse (BOC 78),jet d'hélium (ILL 78), analyse de traces d'alphas de haute énergie dans les minéraux, spectromètre de masse sur des météorites (ZWA 77, FLE 77, FLE 79). Cela met surtout en évidence l'influence de la période radioactive (inconnue à 10 ordres de grandeurs près pour les superlourds !) sur la méthode à utiliser.

- 21 -

Une radioactivité très particulière, la fission spontanée, est étudiée avec des résultats très bons en ce qui concerne l'efficacité et le temps de transport, mais aucune mesure de A et de Z ne permet d'identifier l'isotope formé (DGA 76).

Cette région pose des problèmes,essentiellement liés à la production, elle a servi de stimulant pour concevoir des méthodes à très haut rendement, mais mis à part les corrélations à père-fils, les méthodes d'identification non ambigues sont rares et celles-ci restent difficiles.

# 4 - <u>PERSPECTIVES D'EVOLUTION DES METHODES DE</u> COLLECTION DE NOYAUX

La spectrométrie de masse, dans ses développements les plus brillants (KLA 69, RDE 60) montre que la voie à suivre passe par une sélectivité aussi bonne que possible, impérativement en A, un peu moins en Z (qui peut être effectuée à la détection (RDE 60)) en plus d'un bon rendement pour des périodes très courtes de l'ordre de 10<sup>-3</sup>s.

Cependant il ne semble pas que la technique de séparation de masse en ligne puisse progresser largement dans cette direction, car même si de nouvelles sources d'ions sont mises au point, il ne semble pes possible de transposer à un grand nombre d'éléments les performances obtenues avec les alcalins (et le sodium en particulier).

Il faut donc regarder ailleurs et les méthodes les plus prometteuses sont certainement celles utilisant le recul dû au méçanisme de production.

Leurs avantages généraux sont les suivants : i) temps de transport de l'ordre de grandeur des plus courts temps de vie attendus dans les radioactivités des niveaux fondamentaux (1 µs), ii) présence d'une charge permettant un tri : séparation du faisceau, et (ou) du A, et (ou) du Z pour n'importe quelle espèce chimique.

Les inconvénients principaux qui verient d'une méthode à l'autre et qui recoivent une plus ou moins bonne solution sont les suivants : i) les installations expérimentales

- 22 -

sont lourdes et coûteuses. La réussite de le mise au point et du fonctionnement est alors impérative, ii) la conception dépend du mécanisme de réaction. La liberté sur la charge des éléments formés est contrebalancée par la contrainte d'utilisation d'un type précis de mécanisme (ex : filtre de vitesse et fusion), iii) les largeurs en énergie, en charge et en angle des produits de réaction peuvent amener des pertes importantes de rendement (ou de résolution) et/ou une dispersion spatials en sortie nécessitant un regroupement supplémentaire (cas du jet d'hélium à LOHENGRIN), iv) les bruits de fond, résiduels de faisceau ou masses voisines mal séparées, peuvent être importants et imposer une étape supplémentaire de transport.

Ces techniques ont été tout d'abord utilisées pour l'étude des produits de fission (COH 58) ; les développements récents (JOSEF,LOHENGRIN) montrent l'obtention de caractéristiques très intéressantes et les limites de détection pour l'identification de nouveaux isotopes correspondent de plus en plus aux limites de production.

Rien n'empéchant l'utilisation de ces méthodes ou de méthodes voisines dans les réactions par ions lourds, des réalisations plus ou moins satisfaisantes ont vu le jour. A Dubna (PET 71) un spectromètre rempli de gaz fonctionne avec un pouvoir séparateur assez faible, mais cela tient à la dimension donnée à l'ensemble. A Darmstadt le filtre de vitesse sépare les résidus de fusion avec un taux de réjection du faisceau extrèmement élevé autorisant la détection directe. Ces résultats incitent à l'élaboration de projets du même type mais complétés par une discrimination en A ou A/q. A quelques détails près ou retrouve les mêmes caractéristiques dans trois propositions venant de Berkeley (NIT 7S), Michigan (NAR 7S) et Daresbury (JAM 7S).

On devrait ainsi dans les prochaines années disposer de techniques se rapprochant d'assez près, dans le cas de la fusion, du "dispositif idéal". Cependant les réalisations ou les projets en cours utilisant l'énergie de recul des noyaux formés, s'ils couvrent très bien la production de noyaux déficients en neutrons est inapplicable aux réactions de transfert dans lesquelles l'ouverture angulaire est grande. C'est pourquoi un projet développé à Orsay (SCH 78) (également étudié par H. ENGE au M.S.U.) peut être considéré comme très prometteur. Il s'agit d'utiliser le champ magnétique d'un solénoïde, à symétrie de révolution dans l'axe du faisceau. Le champ magnétique suffit s'il est assez intense (B > 3 teslas) pour focaliser à quelques mètres de la cible des ions lourds ayant un B<sub>ρ</sub> de 1.30 T x m émis dans un cône de 1/2 angle au sommet égal à 11°.

L'élimination du faisceau posera certainement quelques problèmes, et la succession de deux solénoïdes est prévue pour un filtrage meilleur. Le système permet à la fois une séparation du faisceau et une séparation en masse (résolution assez faible pour les grandes ouvertures), c'est donc une technique de recul très intéressante, mais nécessitant l'utilisation de supraconducteur.

۰.

1

3

### C - LES METHODES ELECTROSTATIQUES DE COLLECTION

Oes charges ioníques apparaissent dans plusieurs étapes des divers processus utilisés pour collecter les noyaux issus de réactions nucléaires. Si l'on excepte les transports par entrainement dans des solides ou des gaz elles constituent souvent une donnée physique essentielle au fonctionnement de l'expérience. On peut décrire le cycle des charges de la façon suivante. Après la réaction nucléaire les atomes formés sont fortement ionisés et pour les plus lourds possèdent un spectre de charges autour de la charge moyenne (charges utilisées dans le spectromètre à recul). Ces atomes sont alors généralement neutralisés après thermalisation ce qui est nécessaire à la diffusion thermique ou l'entrainement mécanique. Ceci constitue le cycle minimum de la charge. Dans le spectromètre de masse les atomes sont à nouveau ionisés de façon plus ou moins sélective, réanalysés <sup>4</sup> a neutralisés dans le détecteur.

 $\sim 10$ 

La char n'est donc disponible tout d'abord qu'accompagnée d'une éner, importante ou à faible énergie qu'après une réionisation qui et s souvent lente et difficile sinon impossible. Il semble donc intéressant de suivre une voie intermédiaire consistant à conserver l'atome ionisé à la fin de la thermalisation rapide. Ceci peut être réalisé dans un milieu diélectrique gazeux en présence d'un champ électrique. Le processus de neutralisation progressive qui accompagne la perte d'énergie se termine en effet en donnant les trois états de charge possibles + 1, 0, -1. Les proportions de charge +1 atteignent fréquemment 90 % si le potentiel d'ionisation du gaz est assez élevé (cas des gaz rares, de H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>).

Les charges ainsi obtenues peuvent alors permettre de transporter les noyaux formés grâce à un champ électrique jusqu'aux détecteurs. C'est le principe des méthodes électrostatiques de collection. Nous dirons donc qu'une méthode de collection est de type électrostatique si elle utilise un champ électrique remplissant les deux fonctions suivantes : i) assurer la présence d'une charge à la fin du ralentissement des noyaux dans un gaz, ii) transporter les ions ainsi thermalisés.

- 25 -

Utilisée soule la méthode de collection électrostatique comme le jet d'hélium est non sélective en A et Z. Avec le développement des spectromàtres à recul on voit actuallement apparaître des méthodes du type dérouleur de bandes, jet d'hélium comme moyen final pour ralentir et s'éloigner du bruit résiduel. On va voir que les méthodes électrostatiques peuvent jouer ce rôle avec des temps caractéristiques atteignant la milliseconde et qu'il s'agit là d'un aspect très intéressant de ces techniques. Elles peuvent, d'autre part, assurer une sélection sur le mécanisme de réaction et donc dans une certaine mesure sur la charge et la masse en adaptant la géométrie du champ électrique au domaine d'énergie donc de parcours le plus favorable des noyaux à collecter.

Avant que bizarrement le jet d'hélium prenne la tâte des méthodes de collection non sélective un certain nombre d'expériences de type électrostatiques avaient été réalisées. Nous rappelerons un peu plus en détail ici leur principaux résultats, tout d'abord dans les expériences sans faisceau, puis sous faisceau. Nous insisterons spécialement sur les différents problèmes techniques que pose ce type de collection ainsi que sur les possibilités d'étude de mécanismes de réaction qui apparaissent dans ces divers travaux.

# 1 - LES EXPERIENCES DE COLLECTION ELECTROSTATIQUE EN L'ABSENCE DE FAISCEAU

Avec des sources issues des descendante du thorium, de l'uranium ou du plutonium on peut générer des ions de recul ayant une énergie de 0,1 MeV.

La collection du polonium issu de la désintégration de radon est ainsi employée pour préparer des sources non polluantes de plomb.

Dans une revue de Harvey (HAR 60) sont décrites des expériences non publiées de Ghiorso aur des fragments de fission, et de Valyocsik sur des sources de Ra, Th, Po et At. Le dispositif employé, typique de la plupart de ces expériences est représenté sur la fig. 8.

Ś



Fig. 8 : Représentation schématique d'un système de collection de noyaux de recul formés dans des sources radioactives alpha ou fission spontanée

Par la suite des expériences semblables ont été réalisées et étudiées très soigneusement par deux groupes : Alexander, Pickering (PIC 72) et Lassen et al (LAS 64). Il ressort de ces expériences que les produits de fission sont collectés avec des grandes efficacités (90-100 %) en présence de champs assez faibles (50 V/cm) à l'exception des éléments Te,I, Xe. Cependant il s'agit principalement dans ce type d'axpérience d'isotopes obtenus après une ou plusieurs désintégrations  $\beta$  à partir d'un précurseur formé directement. La charge obtenue à la fin du ralentissement n'est donc pas observée directement puisque après émission  $\beta$  elle est à nouveau modifiés. Les meilleurs gaz pour la formation d'ions positifs sont dans l'ordre He, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>. Les ions négatifs sont observés en très petites quantités.

Les résultats de Valyocsik (HAR 6D) montraient également des écarts importants sur les rendements d'éléments proches d'un gaz rare. Les Ra, Th sont bien collectés tandis que Po, At, Rn ne le sont que peu ou pas du tout.

Les expériences de Lassen et al portaient sur la collection d'isotopes ayant 50 keV d'énergie, ionisés positivement et sortant d'un spectromètre de masse.

Les quantités d'ions négatifs ont été mesurées pour plusieurs gaz sur différents isotopes comme le montre le

- 27 -

tableau ci-dessous.

Isotope formé	<sup>66</sup> Ga				198 <sub>Au</sub>				24 Ne			
Gature du gez	H2	۲e	\%e	Ar	H2	D,2	Ne	15	H <sub>2</sub>	0 <sub>2</sub>	lie.	
Fendemont 1 Lichs négatifs)	<3	<2	4	10	25	20	15-20	38	<1	<1	20	16

Tableau 1 : Pourcentage d'ions négatifs des isotopes <sup>66</sup>Ga <sup>198</sup>Au, <sup>24</sup>Na formés après thermalisation dans différents gaz

Les neutres, qui pouvaient s'ajouter de manière égale sur les deux électrodes n'étaient pas systématiquement mesurés.

Les résultats ne s'interprétent pas uniquement  $\varepsilon$ considérant les potentiels d'ionisation, notamment pour le sodium qui a un potentiel d'ionisation assez faible (5,1 eV) et donne des ions négatifs en proportion non négligeable, davantage que le gallium, par exemple qui a un potentiel d'ionisation plus grand.

# 2 - EXPERIENCES DE COLLECTION ELECTROSTATIQUE AVEC FAISCEAU

Les expériences de collection électrostatique sous faisceau sont très nombreuses. Une seule cependant à notre connaissance a permis une spectroscopie alpha en ligne (GHI 61). Deux directions d'études distinctes, la découverte de nouveaux isotopes et l'analyse de mécanismes de réactions, seront analysées.

a) Mise en évidence de nouveaux isotopes

Les premières utilisations d'une méthode électrostatique ayant pour but la découverte de nouveaux isotopes datent de 1958 (GHI 58, élément 102) et de 1961 (GHI 61, élément 103). Ces expériences recherchaient une très grande efficacité en raison des félbles activités formées, pour des périodes de l'ordre de la seconde. D'après les ordres de grandeur fournis par les auteurs les rendements absolus devaient atteindre quelques  $10^{-2}$  au plus.

Les renseignemente sur la technique utilisée ne sont pas très nombreux.Leurs principales caractéristiques sont les
suivantes : i) collection électrostatique entre la cible et une courroie métallique, ii) arrêt dans He (1 bar), iii) champ électrique inhomogène (de 50 V/cm à 500 V/cm), iv) collection des ions positifs (1958) abandonnée pour la collection des ions négatifs, v) assez fortes intensités de faisceaux d'ions lourds ( $^{10}B$ ,  $^{12}C$ ).

Le plus surprenent dans le dispositif utilisé est le changement du signe des ions collectés entre la première et la deuxième expérience. L'intérêt est alors : soit un renforcement du rendement, soit une diminution de la collection des francium, radium formés sur les impuretés de plomb dans la cible en curium. Le fonctionnement dans l'hélium des détecteurs à barrière de surface était qualifié d'aléatoire sans que la cause en soit bien déterminée. La deuxième expérience (1961) est la seule véritablement effectuée en ligne, mais les caractéristiques concernant le rendement pour des isotopes de Z et T<sub>1/2</sub> différents ne sont pas mentionnées.

Davantage de précisions sont données dans les travaux de Mac Farlane (MAC 61) sur l'état isomère du <sup>149</sup>Tb. La collection était faite sur une électrode en platine transportée ultérieurement devant un détecteur gazeux.

Le but recherché était d'obtenir un dépôt très fin de l'activité formée permettant d'une part le comptage  $\alpha$  avec une bonne résolution, d'autre part un deuxième transport électrostatique des produits de filiation, ce qui constitue un moyen efficace d'identification.

Les renseignents obtenus sur le fonctionnement expérimental sont les suivants : i) gaz ralentisseur (1bar),ii) champ électrique inhomogène ( $\sim$  100V/cm}, iii) collection des ions positifs (10 % : Tb), iv) collection des ions négatifs (30 % : Tb), v) rendement croissant avec la tension appliquée,saturation pour E  $\sim$  100V/cm, vi) rendement variable avec l'énergie du faisceau (de 60 à 140 MeV pour <sup>16</sup>0), vii) deuxième transport électrostatique effectué à 1,3 10<sup>-4</sup> bar sur les ions positifs.

Il faut noter que les proportions d'ions positifs et négatifs sont obtenues en changeant la polarité et non au cours d'une seule irradiation sur les deux électrodes. La grande proportion d'ions négatifs a été attribuée par Mac Farlane à la création de complexes organiques dûs à la présence d'impuretés dans le gaz. Cependant l'influence de l'intensité du faisceau

- 29 -

n'a pas été étudiée. Or il semble que ce paramètre ait une grande importance puisqu'il est invoqué par Friedman et Mohr (FRI 51) pour expliquer l'abandon des méthodes électrostatiques dans la recherche de nouveaux isotopes. Aux grandes intensités de faisceau la collection deviendrait aléatoire.

# b) <u>Mesures d'énergie de recul et études de mécanismes</u> de réaction

Après la mise au point du jet d'hélium les méthodes de collection électrostatique se sont orientées vers l'étude dans différents gaz des reculs de noyaux lourds formés par des réactions de fusion.

Le dispositif utilisé dans la première expérience de ce type (BRY 62) est analogue à celui de la figure 8. Les modàles construits par la suite ne différent que par les dimensions choisies du schéma défini par l'équipe danoise (ALE 64, GIL 64, POR 68).

Trois problèmes techniques posés par cee .éthodes de mesure des énergies de recul vont être évoques .-dessous : l'ionisation créée par le faisceau, la proportion des ions positifs et négatifs et la distribution spatiale des produits collectés.

#### i) L'ionisation cr<sup>4</sup>ée

Le passage du faisceau dans le gaz provoçue une ionisation dont la mesure a été faite dans chaque expérience mais sans étude systématique. Dans toutes les configurations expérimentales les tensions étaient réparties de manière tout à fait symétrique : Les deux électrodes étaient portées à des potentiels +V et -V, le reste des conducteurs présents, y compris la cible, étaient à la masse. Or les résultats montrent, une grande disparité entre les courants, avec des variations importantes donnant de 3 à 50 fois plus de courant sur l'électrode positive que sur l'autre (ALE 67). La disparité augmente avec les tensions appliquées, ce qui est difficilement explicable en supposant que les électrons éjectés de la cible sont seuls cause des différences de courant observées. Il semblerait plutôt que l'écoulement des charges, différant pour les ions positifs et les électrons, est responsable de cette dissymétrie ; ce serait alors essentiellement la géométrie et les dimensions générales du système qui interviendraient. Les valeurs mesurées pour ces courants vont de 3 µA à 10 mA et sont plus importantes dans les chambres à réaction de grandes dimensions. La veriation

de ces courants avec l'inten ité de faisceau est linéaire, mais l'influence de la pression ou de la nature du gaz n'est pas reportée.

#### Les proportions d'ions positifs et négatifs formés

Pour le gallium la situation est assez claire puisque deux groupes (POR 66, BRY 62) s'accordent pour dire que dans l'hydrogène on observe 70 à 90 % d'ions positifs, 5 à 20 % d'ions négatifs, 5 à 10 % de neutres. Mais Porile signale des différences significatives de collection selon les espèces chimiques (sans doute Cu et Zn voisins de Ga).

Pour les terres rares, et plus précisément le dysprosium, les travaux d'Alexander montrent que les proportions d'ions positifs et négatifs sont extrèmement variables. Deux caractéristiques se dégagent pourtant dans le cas de l'hydrogène.

Dans la chambre la plus petite les ions positifs étaient collectés 10 fois plus que les ions négatifs. Dans la chambre la plus grande le maximum d'ions positifs était de 50 % et décroissait apparamment avec la pureté du gaz. La présence d'impuretés favorisait donc la formation des ions positifs dans l'hydrogène. Pour les gaz rares et l'azote des proportions égales de Dy<sup>\*</sup> et Dy<sup>-</sup> ont été obtenues.

iii) La distribution spatiale des produits collectés

En règle générale, les auteurs s'accordent pnur estimer que la collection se fait de manière homogène et les résultats dépendent peu des paramètres suivants : i) tension appliquée, ii) distarce entre plateaux, iii) intensité de faisceau, iv) pression du gaz.

La variation maximum de collection en fonction de ces paramètres est de l'ordre de 5 à 10 %. Cependant un certain nombre de remarques montrent que les choses sont certainement assez complexes. Tout d'abord les distributions de recul pour les ions négatifs différent parfois assez fortement (jusqu'à 20 % dans les parcours) des distributions des iuns positifs. La présence d'une traine vers les faibles reculs (pour les ions positifs) est observée assez généralement , un collimateur placé entre la cible et le système collecteur

- 31 -

élimine ce phénomène sans qu'une explication en terme d'angles d'émission en rende compte. Enfin, l'intensité de faisceau est le plus souvent limitée à 50 nA pour minimiser l'apparition "d'effets de convection" se traduisent par un élargissement des distributions perpendiculaires au faisceau. Le groupe danois a mis en évidence un effet de charge d'espace très net en arrêtant le faisceau avant la zone du champ électrostatique.

#### 4 - CONCLUSION

Les méthodes de collection électrostatique offrent plusieurs types d'utilisations, à la fois différents par les mesures physiques obtenues et par le dispositif expérimental utilisé. La seule expérience de collection de noyaux en ligne (GHI 61) a permis la mise en évidence de l'élément 103, sans que des études systématiques du phénomène de collection sur faisceau aient été entreprises.

L'étude du mécanisme de fusion n'a fait que révéler un certain nombre de traits de fonctionnement des méthodes électrostatiques sans donner d'interprétation. Des comportements mineurs sous l'aspect étude des mécanismes de réaction ayant une importance majeure pour un système de collection de noyaux comme par exemple : le temps de transport, les rapports  $N^+, N^-$  des noyaux à collecter, les élargissements perpendiculaires au faisceau ont été mis en évidence

Il nous a donc semblé que tant sous l'aspect collection de noyaux (abandonné dès 1961) que sous l'aspect étude de mécanisme de réaction, jusque là limité à la fusion nucléaire, une étude détaillée des méthodes électrostatiques restait à faire et pouvait aboutir à la réalisation de dispositifs à la fois simples et performants.

- 32 -

#### CHAPITRE II

·

•

.

# ETUDE DES PARAMETRES ET REALISATION D'UN SYSTEME DE COLLECTION ELECTROSTATIQUE DE NDYAUX

La revue des procédés actuels de collection de noyaux rapportée dans le premier chapitre de ce travail a montré que la collection électrostatique possédait des caractéristiques intéressantes aussi bien pour la recherche de nouveaux isotopes que pour l'étude de mécanismes de réaction. Dans ce chapitre seront décrits l'ensemble des tests que nous avons menés depuis près de trois ans afin de définir les caractéristiques essentielles d'un tel appareillage et d'essayer de comprendre plus fondamentalement les processus physiques et chimiques qui influent sur les paramètres de la collection (rendement, vitesse, distribution spatiale, etc...).

Les divers travaux sur la collection électrostatique, rapportés dans les chapitres précédents montrent très clairement que la présence d'un faisceau modifie, par l'ionisation créée dans le gaz ralentisseur, considérablement les résultats. D'autre part lors d'expériences de collection de noyaux on peut imaginer l'utilisation d'une collection de type électrostatique dans diverses conditions d'exposition aux faisceaux : absence totale de faisceau si l'on utilise ce type de collection à la sortie d'un séparateur, avec une source (fission) ou comme un détecteur de noyaux lourds dans une chambre à réaction normale, présence résiduelle de faisceau après un séparateur au pouvoir de résolution faible, ou si la géométrie du champ ne permet de collecter que des angles d'émission au delà de quelques degrés, présence de l'intensité totale pour la collection à 0°. Nous avons donc entrepris d'étudier les caractéristiques et les possibilités des différents systèmes successivement sans faisceau, avec un faisceau de simulation (protons de 2 MeV), avec plusieurs types de faisceau d'ions lourds.

# A - <u>ETUDE OF LA COLLECTION ELECTROSTATIQUE SANS</u> FAISCEAU

17

#### 1 - Les sources radioactives

20

L'émission alpha donne aux noyaux fils une énergie de recul suffisante pour générer des ions libres dans un gaz. Dans le cas de filiations successives un ion transporté pourra de plus être caractérisé au point d'arrivée par son émission alpha.

Nous avons utilisé des sources produites dans les trois familles radioactives suivantes :

<sup>228</sup> Th(T≈1,9a)	→ <sup>224</sup> Ra(3,6j)	*	<sup>220</sup> Rn(56s)	+	<sup>216</sup> Po(150ms)
<sup>229</sup> Th(T=7340a)	→ <sup>225</sup> Ra(15j)	*	<sup>225</sup> Ac(10j)	÷	<sup>221</sup> Fr(4,8m)+ <sup>217</sup> At(32ms)
<sup>231</sup> Pa(T=3 10 <sup>4</sup> a)	)→ <sup>227</sup> Ac(22a)	+	<sup>227</sup> Th(19j)	+	223 <sub>Ra(11j)</sub> , 215 Po(1,8ms)

Les quatre isotopes dont nous avons étudié le transport sont regroupés dans le tableau ci-dessous :

Isotope	<sup>221</sup> Fr	216 <sub>Po</sub>	217 <sub>At</sub>	215 <sub>Po</sub>
Période	4,8 m	150ms	32 ms	1,8ms

Tableau 2 : Isotopes collectés lors des expériences sans faisceau

Les sources mères de longues durées de vie ne sont pas utilisables directement pour fournir ces isotopes. Les contaminations radioactives sont évidemment à éviter le plus possible, et le transport simultané de plusieurs isotopes gêne considérablement les mesures our les isotopes de plus courte période. Des sources intermédiaires dont le durée de vie est de quelques jours ont donc été préparées :

Source 223 Ra : La source mère de 231 Pa se présente sous la forme d'un dépôt de 2 mg/cm<sup>2</sup> sur une feuille de nickel. Nous sommes redevables à B. Leroux de la possibilité de l'utilisation non destructive de cette cible très rare, utilisée par ailleurs à des études fondamentales sur la fission. Il était impossible d'employer une méthode chimique pour extraire le radium sans détruire la couche mince, aussi avons-nous utilisé dès ce stade un transport électrostatique très simple (fig. 9). Les deux premiers isotopes de la filiation radioactive du <sup>231</sup>Pa sont émetteurs  $\beta^{-}$ . Ce n'est donc qu'à partir du <sup>227</sup>Th, émetteur α, présent en faible quantité dans la cible que l'énergie de recul lors de la désintégration est suffisante pour que le noyau de recul <sup>223</sup>Ra ait une chance raisonnable de sortir de la cible de protactinium. La contamination en <sup>227</sup>Ac est toujours très faible. La durée de vie du 223Re (T = 11j) permet ensuite une utilisation facile sur deux semaines sans risque de pollution de l'appareillage. L'isotope collecté sur le détecteur est alors le <sup>215</sup>Po.



Fig. 9 : Représentation schématique du système électrostatique de production d'une source de <sup>223</sup>Ra

- 35 -

<u>Source</u> <sup>224</sup>Ra : La source de <sup>224</sup>Ra est produite à partir d'une solution acqueuse de <sup>228</sup>Th. On effectue tout d'abord une séparation chimique très sélective du Re qui est finalement dissout dans une solution de nitrate d'ammonium. Un dépôt électrolytique est alors obtenu. La source de <sup>224</sup>Ra ainsi produite est infiniment mince et dépourvue de toute pollution. Après une semaine, une nouvelle source de Re peut être réalisée par le même procédé à partir de la solution de <sup>228</sup>Th déjà utilisée. L'isotope collecté est ici le <sup>216</sup>Po, le <sup>220</sup>Rn ne restant pas ionisé après recul hors de la source.



~

Fig. 10 : Représentation schématique de la cuve d'électrodéposition pour la production de sources de <sup>224</sup>Ra

 $\frac{229}{\text{Th}}, \frac{225}{\text{Ra}} : \text{Nous avons extrait cet isotope}$ d'une solution de <sup>233</sup>U par extraction, par dissolution préférentielle du chélate de l'ion Th<sup>4+</sup> au TTA (thénoyl trifluoro acétone) dans le benzène. Un dépôt électrolytique est alors effectué pour obtenir une source de <sup>229</sup>Th. Des sources dérivées de <sup>225</sup>Ra et d'<sup>225</sup>Ac peuvent être obtenues de même par séparations sélectives de ces éléments à partir de la solution de <sup>229</sup>Th après une attente de l'ordre de 1 mois. La source ainsi obtenue est un mélange de  $^{225}$ Ra (14,8d) et de  $^{225}$ Ac(10,0d) mais la désintégration ß du  $^{225}$ Ra ne donne pas lieu à une collection dans les systèmes utilisés si bien que la source se comporte comme une source pure d'Actinium dont la durée de vie est un peu prolongée. L'isotope collecté est alors le  $^{221}$ Fr.

# 2 - Tests Sur les vitesses de transport et les rendements de collection

Avant de considérer le transport des ions le long de lignes de champ plus ou moins inhomogènes, nous avons tout d'abord établi une référence dans un cas très simple. Pour cela nous avons utilisé deux plateaux de grandes dimensions par rapport à la source, séparés par une distance variable de 5 à 80 mm. Au centre d'un des plateaux se trouve la source, au centre de l'autre se trouve un détecteur  $\alpha$  de surface utile S = 400 mm<sup>2</sup> (Fig. 11). Les ions libérés au voisinage de la source avec une charge résiduelle positive (après émission  $\alpha$ )sont transportés sur une distance bien définie.



Fig. 11 (voir texte)

L'homogénéité du champ garantit l'absence de pertes dues aux fuites de lignes de champ, chaque ion formé se trouve à l'extrémité d'une ligne de champ aboutissant sur la jonction. On a par ailleurs obtenu un rendement de collection identique avec un champ focalisant, l'électrode de la jonction ayant alors un diamètre réduit. Cette vérification a été faite dans le cas où les plateaux étaient séparés de 8 cm et l'homogénéité du champ la moins bonne. Les pertes d'activité dans le transport sont donc dues uniquement au temps de parcours et à la décroissance radioactive correspondante.

Il est alors possible de mesurer l'activité transportée en fonction des quatre paramètres suivants : potentiel entre les électrodes, pression du gaz utilisé, distance entre les plateaux, nature du gaz.

Les activités détectées sur la jonction lorsque la pression, le champ électrique entre les plateaux E • V/d et la nature du gaz demeurent constants permettent d'étudier le rendement de collection R avec la distance de transport d. Le rendement de collection est défini comme le rapport de l'activité mesurée à la distance d à l'activité mesurée près de la source. On montre que :

$$R (2d) = [R (d)]^2$$

et donc que R peut se mettre sous la forme :

$$R = e \frac{-d \log 2}{v_{1fm} T 1/2}$$

relation dans laquelle apparait la période spatiale v  $T_{lim}$  1/2 où v $_{lim}$  est la vitesse limite de l'ion dans les conditions de l'expérience c'est à dire pour un champ électrique et un gaz (nature, pression) déterminés.

En utilisant l'isotope <sup>215</sup>Po de 1,8 ms de période on voit sur la fig. 12 le résultat d'une série de mesures de ce genre :



Fig. 12 : Rendement de collection en fonction de la distance entre la source et le collecteur

- 38 -

La pente de la droite obtenue en représentation logarithmique permet de calculer la vitesse de l'ion.

Cette série de mesures étant faite pour différentes valeurs de P et E, on obtient les variations de la vitesse de l'ion en fonction de ces deux paramètres.

Les figures 13 et 14 montrent les variations du rendement en fonction de la pression et de l'inverse du champ pour des valeurs différentes de la distance entre les plateaux.



à

 $\hat{\boldsymbol{\boldsymbol{\gamma}}}$ 

Fig. 13 : Rendement de collection pour diverses valeurs de l'inverse du champ électrique





On voit que les dépendances de v en fonction de E et P sont proches d'une relation du type v =  $\mu(E/P)$ . Les valeurs figurant sur la fig. 13 (v =  $\alpha$ E avec  $\alpha$  = f(P)) ont été établies avec les sources donnant  $2^{15}Po(T^{1/2} = 1.8 \text{ ms})$  et  $2^{16}Po(T^{1/2} = .15s)$ 

Une bonne concordance des résultats est donc obtenue pour deux périodes très différentes qui impliquent des valeurs du champ électrique distinctes de deux ordres de grandeur. Nous aboutissons donc à la relation suivante établie pour des pressions variant de 100 à 600 mbar et des champs électriques de 10 à 1000V/cm.

7

 $v_{lim} = (2, 2 \pm 0, 2), - (dans N_2)$ 

 $v_{1im}$  est exprimé dans cette relation en cm/s, E en volt/cm et P en atmosphère. La constante  $\mu$  = 2,2 ne dépend alors plus que de la nature du gaz qui dans ce cas est l'N<sub>2</sub>. On peut montrer théoriquement que si m est la masse moléculaire du gaz, le produit  $\mu\sqrt{m}$  doit être constant. Oes expériences identiques ont été effectuées en utilisant l'He. La vitesse limite dans l'He est alors donnée par :

E
vlim = (4,1 ± 0,4) . - (dans l'He)

Le produit µ√m est alors de 8,23 dans l'N<sub>2</sub> et de 8,2 dans l'He. On vérifie donc bien la constante de ce produit pour ces deux gaz.

Il faut mentionner le comportement particul'or des sources de <sup>217</sup>At(T<sup>1/2</sup> = 30 ms). En effet, la quantité d'ions da recul collectés dépend presque linéairement du champ électrique appliqué sur la source. Simultanément des variations de l'activité extraite en fonction du temps ont été observées. De tels comportements ont parfois été observés avec les autres sources. Ce n'est donc qu'avec un ensemble de mesures répétées sur une série de sources qu'on peut déduire des résultats sur les rendements de transport.

La formule v =  $\mu \frac{E}{p}$  rend compte de l'aspect moyen du déplacement des ions dans le gaz. La forme de la distribution des temps de collection et donc des vitesses a été obtenue par l'expérience représentée schématiquement sur la figure 16. L'expérience consiste à créer grâce à une haute tension en créneaux, un arc transitoire au niveau de l'électrode portée à la haute tension. On enregistre l'impulsion des ions collectés sur l'électrode portée à la masse à travers une résistance







Fig. 16 : Schéma du montage de la mesure de la distribution des vitesses de déplacement des ions dens un gaz sous l'action d'un chemp



Fig. 17 : Distribution des vitesses de collection (voir texte)

élevée R. La figure 17 donne un résultat typique de ce genre d'expérience. Les voies X et Z permettent de suivre l'évolution des tensions sur les deux électrodes. L'arc apparait au niveau de l'électrode inférieure pendant la montée de la tension sur la voie Z et génère par influence électrostatique un pic sur la voie Y qui définit le temps O. L'impulsion due à la collection des ions commence à un instant  $t_{min}$  ultérieur et se poursuit pendant un temps qui peut atteindre 5 à 10 fois  $t_{min}$ . En raison des difficultés liées à l'amorçage de l'arc avec une tension pulsée de 1 KV, les variations de pression n'ont pu être faites qu'entre 20 et 75 mbar. L'exemple donné sur la figure 17 correspond à une haute tension de 1 KV, une pression de 75 mbar d'N<sub>2</sub> et une distance de 10 cm entre les électrodes. Le temps  $t_{min}$  est en général inférieur d'un facteur 2 ou 3 au temps moyen de transport.

÷,

L'utilisation d'un isotope de période T pour mesurer le temps de transport moyen n'est donc en toute rigueur valable que si T >> t, c'est à dire si le nombre de désintégrations dans le transport reste faible (10 %). Pour des pourcentages de désintégrations supérieurs à S0 % on mesure un temps plus proche de t<sub>min</sub> que de t<sub>mov</sub>.

La valeur de  $\mu$  (v =  $\mu \frac{E}{P}$ ) obtenue dans nos mesures peut donc être entachée d'une incertitude de l'ordre de 50%. Cela n'est en fait pas très important au regard des valeurs de E et P qui peuvent varier de plusieurs ordres de grandeurs et l'approximation Pv/E =  $\mu$  permet d'estimer v assez correctement pour la plupart des dispositifs utilisés.

Dans un gaz où une particule chargée est soumise au frottement fluide, la vitesse limite est atteinte en un temps extrèmement court  $\sim 10^{-9}$  s, ce qui impose la colinéarité de cette vitesse et du champ électrique à tout moment. Il en résulte qu'un ion isolé suit rigoureusement la ligne de champ sur laquelle il se trouve placé à t = 0 avec v  $\simeq v_{thermique}$ . D'autre part une conséquence immédiate des valeurs des vitesses

- 42 -

limites obtenues est que l'action d'un champ magnétique est tout à fait négligeable devant l'action d'un champ électrique. On a, en effet, dans le cas favorable où v  $\approx$  10<sup>4</sup> cm/s atteint dans l'N<sub>2</sub> à une pression de 20 mbar et pour E = 100 V/cm et un champ magnétique de 1 Tesla la relation :

$$\frac{F_{B}}{-} = \frac{q \vee B}{-} \simeq 10^{-2}$$

$$F_{F} = qE$$

On voit que  $F_B$  devient du même ordre de grandeur que  $F_E$  dans le cas où la pression utilisée est très faible (P = 0,2mbar de N<sub>2</sub>), incompatible avec le ralentissement préalable des ione de recul formés dans les réactions nucléaires et l'utilisation de champs électriques importants.

Cette propriété caractéristique qui fait que les trajectoires des ions thermalisés se superposent aux lignes de champ électrostatique permet de construire des systèmes assurant un transport selon un chemin quelconque avec une section variable du tube de champ.

En l'absence de densités volumiques de charges importantes on aura donc à utiliser les deux relations fundamentales de l'électrostatique suivantes :

 $\int_{S} E dS = 0 \qquad \int_{A}^{B} E d1 = V_{A} - V_{B}$ 

#### 3 - <u>Etude des possibilités d'un transport électro-</u> statique

Dans ce paragraphe nous allons étudier les diverses possibilités de transport dans un gaz sous l'action d'un champ électrique qui est donc seul capable d'agir sur les ions aux vitesses limites atteintes. Nous étudierons successivement les conditions de focalisation, de transport après focalisation, l'utilisation d'isolants et enfin la superposition d'un entrainement gazeux.

#### a) Possibilités de focalisation

Comme on l'a vu dans le premier chapitre il est intéressant d'utiliser un système de collection électrostatique si l'on peut focaliser les noyaux de recul thermalisés dans le gaz dans un volume important.

On peut alors engendrer un tube de champ focalisant essentiellement de deux manières différentes : soit en jouant sur la géométrie de deux conducteurs, soit en jouant sur les potentiels relatifs de 3 conducteurs ou plus (Fig. 18).





 $V_{1} = 0.8 \times V_{2}$ 

Fig. 18 : Systèmes permettant de créer des champs focalisants

Dans toutes les configurations la conservation du flux de E a pour conséquence de diminuer la valeur du champ électrique à l'endroit où la section du tube de champ est la plus forte. Les conséquences de cet affaiblissement de E sur les grandes surfaces sont surtout importantes pour le temps de transport. En effet pour une pression donnée, il existe un champ électrique local maximum possible au delà duquel s'amorce une décharge. Cela signifie que dans la zone où le champ est fort on a

$$E dS < E_{lim}$$
 (P) × S<sub>2</sub>

si S<sub>2</sub> représente la surface du tube de champ utilisé. Corrélativement dans la zone de champ faible, celui-ci est nettement inférieur à la valeur maximum possible.

Considérons l'exemple théorique représenté sur la figure 19 dans lequel sur la moitié du parcours d de transport la section du tube de champ utile est diminuée d'un facteur 10. Dans cet exemple, on aura :

$$E_{1_{max}} = E_{11m} \times 10^{-1}$$



Fig. 19 : Focalisation d'un tube de champ

Le temps de transport total t est donc égal à :

$$t = t_{AB} + t_{BC} = \frac{d}{2} \left( \frac{P}{\mu E_{lim}} + \frac{S_1}{S_2} \times \frac{P}{\mu E_{lim}} \right)$$
$$t = \frac{11}{2} \cdot \frac{d \times P}{\mu E_{lim}}$$

En l'absence de focalisation donc pour un champ homogène entre A et C le temps de transport minimal serait :

$$t_0 = \frac{d \times P}{\mu E_{lim}}$$

Le temps de transport du système focalisant est donc nettement plus long.

Dans l'exemple utilisé ici le "rétrécissement" du tube de champ est supposé infiniment mince et placé à miparcours. Si on place ce rétrécissement plus près du début du transport le temps total diminue et tend vers le temps  $t_0$  du transport sans focalisation. Quand on veut donc focaliser des ions d'une surface  $S_1$  sur une surface  $S_2 < S_1$ , la configuration conduisant à la collection la plus rapide est celle pour laquelle la diminution de section se fait au début du parcours. Le temps de transport correspondant peut âtre très proche du temps minimum accessible sans focalisation.

Si la focalisation concerne des ions répartis dans un certain volume V et que l'on souhaite les collecter sur une surface S on a alors pour valeur limite de  $t_{min}$ :

$$t_{min} = 1 \frac{s_1}{s_2} \frac{P}{\mu E_{lim}} = \frac{P}{\mu E_{lim}} \frac{V}{s_2}$$

Un peut, ainsi directement, dans le cas concret où on veut déposer l'ensemble des ions formés dans un volume donné à la surface d'un détecteur, estimer le temps minimum nécessaire, indépendamment de la forme exacte du volume considéré.

Dans le cas du ralentissement d'ions énergétiques, le parcours étant inversement proportionnel à la pression, le produit de la pression utilisée par le volume où les ions sont thermalisés est constant, on a :

$$t_{min} = \frac{C}{E_{lim}(P) \times S}$$

Comme E<sub>lim</sub>(P) croit avec P le temps minimum de transport diminue quand on augmente la pression. Avec les paramètres suivants : V = 100 cm<sup>3</sup>, S = 4 cm<sup>2</sup>, p = 0,1 atmosphère, E<sub>lim</sub> = 100 V/cm, qui sont ceux que l'an peut espérer dans une expérience de fusion et avec un détecteur de large surface on obtient t<sub>min</sub> = 10 ms.

#### b) Possibilités de transport après focalisation

La focalisation étant assurée on peut être amené à transporter les ions de recul à une distance donnée. Dans un système conservant la section d'un tube de champ mais pouvant suivre un chemin en arc de cercle le champ électrique est constant sur une ligne de champ et donné par :

$$\int_{1}^{2} E d\ell = V_{1} - V_{2}$$

Dans le cas réallement utilisé schématisé sur la figure 20, les lignes de champ sont centrées au point 0. Les ions de recul s'arrêtent dans le volume hachuré. Les tensions entre les deux plateaux permettent d'assurer la focalisation. A la sortie du plateau supérieur le tube de champ utile est de section constante jusqu'au détecteur. Les lignes de champ sont des arce de cercle centrés en D. Dn peut alors calculer les temps de transport pour les deux rayons r<sub>4</sub> et r<sub>2</sub>. On a en effet :

$$E = \frac{V}{\ell} \quad \text{et } t = \frac{\ell}{v} = \frac{\ell}{\frac{V}{\mu v}} = \frac{\ell^2 p}{\mu v} \quad \text{avec } \ell = \alpha.r$$

si α est exprimé en radians, finalement :

$$t = \frac{\alpha^2 r^2 p}{\mu V}$$

Avec les conditions suivantes :  $r_1 = 4$  cm,  $r_2 = 8$  cm, p = 100 mbar, V = 2000 volts, et  $\alpha = 2\pi/3$  on obtient  $t_1 \approx 1,5$  ms et  $t_2 \approx 6$  ms. Le simple fait d'utiliser des lignes de champ courbes amène donc des variations proportionnelles aux carrés des rayons de courbure sur le temps de transport.



Fig. 2D : Schéma d'un système de focalisation et de transport. La zone hachurée correspond au volume dans lequel sont dispersés des ions à collecter

Comme on le voit les causes de dispersion dans le temps de transport sont nombreuses, nous pouvons les estimer dans le cas concret schématisé sur la figure 20. On paut distinguer trois causes principales de dispersion : i) différences d'une ligne de champ à une autre, ii) points de départ différents sur une même ligne de champ, iii) élargissement propre dû au gaz, sur un même parcours.

Nos mesures faites avec des sources fournissant des ions de 150 ms. 30 ms et de 1,8 ms montrent des rendements proches de 100 %, 100 % et 20 % respectivement. On peut donc affirmer que sans faisceau un dispositif électrostatique combinant focalisation et transport courbe a un rendement sensiblement constant (voisin de 100 %) pour des isotopes de

- 48 -

périodes supérieures à 10 ms. Pour les périodes comprises entre 1 et 10 ms la décroissance du rendement est grossièrement linéeire ; en dessous de 1ms elle est exponentielle (Fig. 21).



Fig. 21 : Rendement du système de collection de la figure 2D en fonction de la période de l'ion transporté

4 - <u>L'utilisation d'isolants dans la collection</u> électrostatique

Dans ce qui précède nous avons vu les propriétés des champs électrostatiques en les supposant implicitement définis uniquement par des conducteurs. Or dans tout montage réel la nécessité de supports isolants est évidente of nous avons constaté que des perturbations importantes pouvaient en résulter. Expérimentalement, il est apparu que sur certains systèmes le rendement de transport variait au cours du temps, toutes choses constantes par ailleurs, dans des proportions atteignant 100% à 200% en quelques minutes. Dans ces essais faits avec des sources provoquant de faibles ionisations du gaz, il est vraisemblable que les isolants se chargent lentement et modifient le champ défini par les seuls conducteurs. Dans la plupart des cas nous avons donc essayé d'éloigner au maximum les supports isolants du tube de champ collecteur. Mais nous avons également essayé de faire le contraire, c'est à dire de définir le champ de collection uniquement par des isolants.

Le principe de fonctionnement repose alors sur le fait que le gaz ionisé assure une charge régulée de l'isolant et définit à l'équilibre un tube de champ correspondant à la forme de l'isolant. En effet dès qu'une accumulation de charge importante se produit à la surface de l'isolant, une composante du champ électrique normale à la surface apparait au point considéré ; alors, contrairement à ce qui se passe sous vide, les charges libres dans le gaz, électrons ou ions selon le signe du champ, migrent vers ce point, régulant la densité de charge locale jusqu'à annuler la composante normale. Ceci n'est vrai qu'à la condition que les charges libres soient en assez grand nombre pour assurer en permanence le phénomène de stabilisation des charges locales.

Un système de ce genre a été réalisé et testé avec succès (Fig. 22). Des essais effectués avec des sources montrent que le temps d'équilibre est long du fait de la faiblesse de l'ionisation créée par celles-ci.



Fig. 22 : Schéma du système de focalisation et transport en téflon

- 50 -

Le rendement croit lentement pendant 30 minutes jusqu'à atteindre pratiquement 100% ; après ce laps de temps les caractéristiques de la collection restent stables (fig. 23).



Fig. 23 : Evolution du rendement de collection en fonction du temps pour le système en téflon schématisé sur la figure 22

Ce résultat est sensiblement identique pour toutes les tensions utilisées. Des essais visant à combiner des isclants et des conducteurs ont donné des résultats très variables allant du non fonctionnement total au fonctionnement identique aux cas des conducteurs seuls.

Nous avons fréquemment utilisé des cones en plastique (PVC, téflon) pour focaliser les ions à la fin du transport électrostatique sur des détecteurs de surfaces différentes. L'avantage est ainsi d'utiliser le même système de collection pour plusieurs types de détecteurs (Fig. 24). Les résultats ont été assez inégaux dans les essais avec des sources, la valeur du potentiel de la dernière électrode est alors assez critique. Comme nous le verrons plus loin c'est surtout sur faisceau que l'efficacité de ces cônes est la meilleure.



# Fig. 24 : Focalisation par un cône diélectrique sur le détecteur à la fin du transport

5 - <u>Superposition d'un entrainement fluide à l'entrai</u>nement électrostatique

On peut assez facilement établir dans une enceinte une circulation du gaz, analogue à celle utilisée dans les souffleries, ayant une vitesse de l'ordre de 10 à 100 m/s sur une section de l'ordre de 10 cm<sup>2</sup> ou plus.

Les débits possibles avec des ventilateurs courants atteignent assez facilement 100 l à 300 l par seconde à la pression atmosphérique.

Il faut remarquer que ce qui est discuté ici diffère notablement de ce qui est fait dans un jet d'hélium essentiellement par l'utilisation d'une seule enceinte à une pression donnée. Une pompe assurant le même débit sous  $10^{-2}$  torr qu'un ventilateur à la pression atmosphérique devrait avoir une capacité de quelques  $10^4 m^3.s^{-1}$ . L'association de cet entrainement fluide avec une collection électrostatique est nécessaire pour que les ions transportés puissent être déposés sur le détecteur. La vitesse d'entrainement est reliée de manière évidente au débit par la relation v = D/S. Pour un débit de 100 l/s et une section S de 10 cm<sup>2</sup>, on obtient une vitesse de la veine fluide de 100 m/s. Cela signifie qu'un volume de l'ordre de 100 cm<sup>3</sup> est renouvelé en 1 ms et transporté sur une distance de 1 mètre en 10 ms. On voit ainsi l'avantage sur une méthode type jet d'hélium où l'évacuation de volumes supérieurs à quelques centimètres cubes demande des temps beaucoup plus longs de l'ordre de 10<sup>-1</sup> à 1 s.

Avec une réduction de la section de 10 cm<sup>3</sup> à 2 cm<sup>3</sup> ( $\phi$  = 1,6 cm) après le volume de captage des ions le transport devient plus rapide : environ 2 ms/mètre. Sur la figure 25 est schématisé le montage que nous avons réalisé pour tester la méthode ; le ventilateur utilisé ( $\phi$  = 80 mm) était peu puissant (20 W). Quelques centimètres avant le détecteur la section de la veine gazeuse est augmentée pour réduire sa vitesse. Dans cette zone un champ électrique radial défini par un cône en laiton porté à une haute tension positive et la masse du détecteur entraine les ions vers la surface de celui-ci. On peut voir que dans les conditions de la figure la vitesse limite due au champ électrique est au moins d'un ordre de grandeur plus élevée que la vitesse de la veine gazeuse.



Fig. 25 : Schéma de couplage d'un entrainement gazeux et d'une collection de type électrostatique

- 53 - -

Avec ce montage les réglages des tensions ne sont pas critiques, la pression utilisée non plus. Les rendements obtenus avec une source donnant  $^{221}$ Fr (T = 4,8 mn) sont supérieurs à 80 %. Pour les sources de radium fournissant des ions de Po de plus courte durée de vie le stade intermédiaire du radon (gaz rare) gêne considérablement et les rendements n'ont pu être obtenus. Ce sont les essais sur faisceau qui ont permis d'estimer le temps de transport réel.

Les tensions appliquées sont très loin des tensions de claquages. Il serait donc tout à fait possible d'accroitre les performances du ventilateur et d'augmenter également les tensions pour pouvoir encore extraire les ions de l'entrainement gazeux au niveau du détecteur.

#### B - ETUDE DE LA COLLECTION ELECTROSTATIQUE AVEC FAISCEAU

Les expériences réalisées sur faisceau ont été étalées sur plus de trois ans et en régle générale les résultats portant sur les caractéristiques techniques ont été établis progressivement, vérifiés d'une fois sur l'autre avec de fréquents retours en arrière. Dans quelques cas des phénomènes non reproductibles sont apparus, mais sur l'ensemble, des points essentiels se sont dégagés des fluctuations inexplicables et surtout de l'enchevêtrement des différents paramètres. Parallèlement aux données expérimentales, nous avons toujours essavé d'expliquer les phénomènes observés dans le cadre d'une description microscopique. Un regroupement des divers aspects de la collection a finalement été possible par le modèle qualitatif (et semi-quantitatif) initialisé par l'étude du "faisceau plat" que nous décrirons plus loin. Bien que ces développements théoriques n'aient été construits qu'après avoir obtenu l'ensemble des résultats expérimentaux ils seront présentés ici avant l'examen détaillé de l'influence de chaque paramètre. Cela nous permettra d'articuler toutes les variations des différents paramètres autour d'un phénomène principal au lieu d'avoir une succession de recettes expérimentales non reliées entre elles.

- 54 -

La mise au point de la chambre à recul dans les gaz a été effectuée auprès des accélérateurs suivants : CEV-ALICE de l'I.P.N. d'Orsay, tandem d'Orsay et de Strasbourg, pour la production d'isotopes et le Van de Graaff de Bordeaux pour la simulation de la charge d'espace avec un faisceau de protons de 2 MeV. Nous décrirons tout d'abord l'appareillage.

#### 1 - L'appareillage et ses objectifs techniques

a) <u>Le principe</u> : L'utilisation d'un champ électrique ayant montré la possibilité de collecter l'activité produite dans une réaction nucléaire, il restait à étudier les possibilités de réaliser une spectroscopie alpha en ligne sur les noyaux transportés à quelques dizaines de centimètres du faisceau. Dans l'expérience de Ghiorso (GHI 61) une bande magnétique servait d'intermédiaire entre la collection électrostatique et les détecteurs.

Nous avions donc pour objectif de supprimer cette étape assez contraignante (notamment sur le choix des périodes étudiées) et de collecter la radioactivité directement sur le détecteur, ou juste devant. Pour ne pas être gêné par le bruit dû aux : actions nucléaires faisceau-cible et faisceau-gaz, la partie transport électrostatique a été prévue interchangeable de manière à modifier facilement la configuration géométrique des écrans et des électrodes.

Des trois phases de la collection, ralentissement dans le gaz jusqu'à l'énergie thermique, extraction du faisceau des ions + ou - formés dans le plasma, transport le long des lignes de champ électrostatique et dépôt sur le détecteur, c'est la partie ralentissement qui détermine le plus la conception de l'appareillage expérimental.

L'effet du gaz ralentisseur est de transformer la répartition des noyaux dans l'espace de phase [E<sub>recul</sub>, θ et Ψ angles d'émission) en une répartition dans l'espace ordinaire qui dépend du gaz et de sa pression.

Différents mécanismes de réaction se distribuent spatialement et peuvent être ainsi séparés. On voit sur la figure 26 un cas typique correspondant à une réaction du type 40<sub>Ar +</sub> <sup>150</sup>Sm.



Fig. 26 : Représentation des zones où sont thermalisés dans les gaz les noyaux produits par différents mécanismes de réactions nucléaires

La séparation des produits issus de différents mécanismes de formation est intéressante à deux points de vue : elle permet d'opérer une sélection de novaux produits dans un mécanisme à l'exclusion des autres (ex : noyau composé, réjection de la fission et des transferts), elle permet l'étude de mécanismes de réaction par les produits lourds formés (GAR 78).

La gamme d'énergie de recul de 1 à 100 MeV couvre pratiquement tous les modes de production de noyaux lourds quelque soit l'énergie de l'ion incident et sa nature et dans tous les cas le faisceau a un parcours total dans les gaz nettement supérieur. En pratique on couvre largement ce domaine d'énergie avec une gamme de pression variant entre 1 et 1000 mbar et des distances de recul comprises entre D et 300 mm.

Pour disposer de plusieurs possibilités de combinaison pression-distance, l'ensemble de la collection électrostatique (électrodes + détecteur) a été placé sur un chariot mobile dont la position est repérée à mieux que 1 mm près.

Les caractéristiques de temps de transport attendues au moment de la construction étaient celles que nous avons mesurées avec des sources, c'est à dire de 1 à 10 ms sur des distances relativement faibles ( $\sim$  20 cm).



10cm échelle 1/5

ı

57

1

Fig. 27 : Schéma de la chambre à recul dans les gaz

1. F

1

b) <u>La réalisation</u>: L'ensemble, tel qu'il se présente en 1981 est schématisé sur la figure 27. Les différents points de construction particulièrement délicats sont exposés dans ce qui suit.

La fenêtre d'entrée du faisceau : nous avons utilisé trois épaisseurs de feuilles de Ni pour ces fenêtres et le avons testées pour trois pressions limites différentes. Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau ci-dessous :

Epaisseur mg/cm <sup>2</sup>	Diamètre mm	Pression limite mbar
2,4	15	1000
1,1	10	600
0,6	10	200

Tableau 3 : Epaisseur, diamètre et pression des fenêtres de Ni

Le montage se fait sur des joints plats et des chanfreins arrondis pour permettre les déformations.

Les passages de tension : une isolation électrique particulière des conducteurs amenant les hautes tensions est nécessaire en raison des pressions utilisées (jusqu'à 10 mbar) pour lesquelles les tensions de claquages sont très basses. Pour les traversées de l'intérieur à l'extérieur de la chambre aucune prise standard ne convenant nous avons simplement percé et collé. Dans les portions non isolées un grand soin a dû être apporté dans l'élimination des pointes et angles vifs, spécialement à proximité des parois de la chambre au patentiel 0, ou du passage du faisceau.

Automatisation de deux déplacements : l'ensemble électrostatique monté sur chariot a été motorisé de l'extérieur de la chambre. Un déplacement perpendiculaire à l'axe du faisceau a été automatisé également à l'intérieur de la chambre, il permet au système de collection électrostatique d'explorar les régions pour lesquelles θ<sub>émission</sub> > 10°. Il est utilisé uniquement pour l'étude de mécanisme de réaction.

Le pompage : les effets mis en évidence par Alexander (ALE 67) concernant la pureté du gaz et notamment la bonne qualité du vide avant remplissage nous ont incité à utiliser une pompe turbomoléculaire pour éliminer les dégazages d'eau ou de molécules organiques. Après plusieurs essais il s'avère que ceci n'est pas indispensable et que plusieurs opérations de rinçages suivies de vides primeires sont suffisantes.

# 2 - Les problèmes spécifiques aux expériences sur faisceau

a) <u>Mesure du courant</u> : les faisceaux de haute énergie du C.E.R.N. (86 MeV/u.m.a.) ne posent pas de problème de ce point de vue. L'énergie des ions est suffisante pour que l'on puisse fermer la chambre par une seconde fenêtre de sortie et utiliser une cage de Faraday sous vide. Pour le cas plus courant dans cette étude où des faisceaux d'énergie inférieure à 10 MeV/u.m.a. sont utilisés, la présence du gaz dans la chambre fait diverger le faisceau considérablement et empêche l'utilisation d'un cylindre de Faraday pendant l'expérience.

Dans la plupart des expériences mentionnées la mesure de courant était inexistante ou très approximative. Or pour les mesures de rendements, de sections efficaces, et la comparaison de divers essais il est indispensable de connaitre l'intensité de faisceau. Pour ce faire, nous avons utilisé une grille placée sous vide avant la fenêtre d'entrée qui permet d'intercepter une petite partie du faisceau (de 1 à 15 %), proportionnellement à sa transparence, et donc de monitorer les variations d'intensités.

Pour que la mesure soit correcte il faut que les électrons secondaires arrachés soient ramenés sur la grille. On place donc deux anneaux portés à -300V en aval et en amont (Fig. 28). Lors de premiers essais, les anneaux et la grille

- 58 - -

étaient tenus mécaniquement les uns aux autres par des isolants. Les résultats assez mauvais obtenus au début (comptage permanent sans faisceau, mesure non fidèle au cours du temps ...) ont été attribués à la présence d'électrons libres venant charger et rendre plus ou moins conducteurs les supports isolants.



Fig. 28 : Grille de mesure de courant

Les tests ont montré qu'il était important d'assurer une tension identique sur les deux anneaux. Sous cetto condition la dépendance de la mesure de la grille par rapport à celle du cylindre de Faraday à bien été linéaire dans la gamme 1 - 100 µA (faisceau <sup>40</sup>Ar).

Même avec un bon étalonnage initial un certain nombre de causes peuvent fausser la mesure de courant. Si le faisceau change légèrement de focalisation, des traines de faisceau peuvent toucher les anneaux portés à -300V ou l'anneau de la grille rendant la mesure fausse en elle-même. Il se peut aussi que l'angle d'incidence du faisceau se modifie en cours d'expérience et que le faisceau mesuré au niveau de la grille ne parvienne plus en totalité sur la cible (la fenêtre d'entrée

ð

jouant le rôle de diaphragme). Bien que des vérifications assez fréquentes de l'étalonnage grille-Faraday aient été faites il reste néanmoins vrai que les fluctuations sur la mesure de courant n'ont pas été entièrement supprimées et obligent à des contrôles et à des mesures redondantes.

b) Fonctionnement du détecteur

Le fait de placer le détecteur à proximité immédiate de la cible et du plasma dù au passage du faisceau dans l'enceinte contenant le gaz ralectisseur était au départ à la fois une des originalités de la méthode mais aussi un des points dont la réalisation était la moins sûre, surtout pour l'obtention d'un bas bruit de fond.

Nous avons donc dès le début de nos expériences testé les caractéristiques de la détection pour diverses positions du détecteur et des écrans métalliques. On voit sur la figure 29 quatre configurations éloignant de plus en plus le détecteur de la zone "chaude" constituée par le passage du faisceau dans le gaz.

La détection d'une activité  $\alpha$  n'a été possible que pour les configurations 2, 3 et 4, mais le seul fonctionnement correct obtenu est celui du n° 4 dans lequel après collection entre deux plateaux parallèles on entraine les noyaux sur une trajectoire courbe assurant une rotation de 120° vers une zone où le bruit de fond de particules est très faible. La protection de la jonction par une feuille métallique s'est avérée inutile dans cette position. La surface collectrice est alors la couche d'or (40 µg) qui forme la face extérieure, mise à la terre, du détecteur. La résolution obtenue est alors bien meilleure et de très peu seulement supérieure aux valeurs mesurées avec une source placée à 3 cm (typiquement 30 keV au lieu de 20 keV de résolution théorique pour un détecteur de 450 mm<sup>2</sup>).

Le choix du gaz s'est révélé être plutôt restreint. Les résultats mentionnés ci-dessus ont été obtenus avec l'azote pour des pressions de 50 à 300 mbar. D'autres gaz



Fig. 29 : Evolution de la résolution et du bruit de fond du système en fonction de la position du détecteur par rapport au faisceau dans une réaction produisant les émetteurs α des terres rares

۰.

ont été essayés et n'ont pas donné de bons résultats. L'hydrogène par ses propriétés réductrices met le détecteur hors de fonctionnement ; l'hélium provoque sous faisceau l'apparition de bruits électroniques importants même avec des tensions appliquées fortement réduites (il pourrait s'agir de microclaquages au voisinage de la fenâtre d'entrée portée à la haute tension). Avec l'argon et  $CO_2$  le comptage est possible mais les rendements sont plus faibles. L'utilisation d'air à la place de N<sub>2</sub> provoque une baisse de rendement de 10 à 20% et de l'ozone est fabriquée abondamment.

# c) <u>Effets majeurs du faisceau dans la collection</u> électrostatique

Le passage du faisceau dans le gaz amène une modification complète des phénomènes observés avec des sources radioactives.

Un certain nombre de traits caractéristiques apparaissent dès les premières expériences quel que soit le système étudié, le réglage fin des paramètres, la nature du faisceau et son énergie. Nous décrirons par la suite le détail des conditions précises des mesures, mais la nécessité d'une description microscopique permet de mieux cerner les phénomènes à partir des constatations suivantes :

 L'ionisation créée par le faisceau diminue linéairement quand la pression du gaz augmente, les autres paramètres étant maintenus constants.

ii) Le rendement de collection décroit fortement pour des intensités de faisceau variant de  $10^{-12}$ A à  $10^{-10}$ A puis décroit très lentement au delà de  $10^{-9}$ A (limite de l'ordre de quelques  $10^{-2}$  au moins selon le système et les réglages utilisés).

iii) Pour les isotopes de période longue le rendement croit avec la pression

iv) Les isotopes de période courte ne sont pas collectés dans des situations pourtant testées sans faisceau avec des sources donnant  $^{215}$ Po (T = 1,8 ms)

 v) Entre les plateaux parallèles un élargissement perpendiculaire au faisceau de la zone des noyaux collectés est observé dans la collection (fig. 30)


Fig. 30 : Elargissement de la zone des noyaux collectés perpendiculairement au faisceau

Seul le point v) avait été observé dans des expériences précédentes (ALE 67, LAS 64).

Le point ii) montre clairement l'influence du faisceau même pour des intensités très faibles, avec une certaine saturation quand l'intensité augmente.

·...

Pour expliquer ces deux aspects on peut examiner l'hypothèse d'une charge d'espace importante créée par le faisceau. En effet l'ionisation due au faisceau est grande et de nombreuses charges libres sont entrainées par le champ électrique appliqué comme le montrent les courants que l'on collecte sur les différentes électrodes. Les densités de charges locales peuvent être grandes et amener l'apparition de composantes du champ électrique tendant à éloigner les charges individuelles les unes des autres.

On peut ainsi qualitativement comprendre le point v) et le point ii) puisque les ions ne sont plus guidés par les lignes de champ définies sans faisceau.

Cependant les points i) iii) et iv) ne sont pas aussi facilement explicables sans une description microscopique précise des relations de la charge d'espace à la pression, aux tensions appliquées, etc...

# 3 - Phénomènes liés à l'ionisation du gaz ralentisseur, aspects microscopiques

### a) Ionisation et recombinaison

Le nombre de paires électrons-ions créées dans un gaz par une particule d'énergie E est une grandeur bien connue. Les mesures faites dans les détecteurs gazeux conduisent à définir l'énergie efficace w transférée en moyenne pour obtenir l'ionisation d'une molécule du gaz. Dans le cas de la molécule d'azote pour laquelle le potentiel d'ionisation vaut 15 eV on a w = 35 eV.

Pour un faisceau d'argon de 300 MeV, la perte d'énergie par centimètre parcouru dens l'azote à une pression de 1000 mbar est d'environ 14 MeV. Cela engendre donc 4 10<sup>5</sup> paires ions-électrons.

Pour un faisceau de 100 nA de <sup>16+</sup>Ar on a au total 1,6 10<sup>16</sup> paires d'ions plus et moins par centimàtre. Si de plus le faisceau a une section de 0,5 cm<sup>2</sup> il se crée alors une densité d'ionisation de 1,5 10<sup>16</sup> ions.cm<sup>-3</sup>.s<sup>-1</sup> à comparer aux 3 10<sup>19</sup> molécules d'azote qui occupent 1 cm<sup>3</sup> à 1000 mbar.

Si toute l'ionisation créée ainsi était séparée et collectée sur les électrodes définissant le champ électrique, en considérant que l'interaction entre le faisceau et le gaz a lieu sur 20 cm, on aurait un courant total de 50 mA, ce qui est nettement supérieur aux mesures faites dans des conditions semblables ( $I_{mesuré} \approx 10 - 100 \mu A$ ). De plus si toute l'ionisation était collectée le courant croitrait proportionnellement à la pression alors que c'est l'inverse qui est observé,

Il est donc certain que le phénomène da recombinaison prend une large place dans l'évacuation des den. ités élevées d'ionisation. En l'absence de champ électrique la recombinaison des ions dans un milieu chargé de dimensions infinies suit

une loi du type :  $\frac{dN}{dt} = -\beta N^* N^- = -\beta N^2$  cù  $\beta$  vaut environ

 $10^{-6}$  à  $10^{-8}$  (BAY 55) dans le cas où l'on suppose que les recombinaisons résultent de réactions à 2 corps. En l'absence de champ électrique l'évolution du nombre de paires d'ions par cm<sup>3</sup> est donc régi par l'équation différentielle :

$$\frac{dN}{dt} = -\beta N^2 + \Phi_0$$

2

dont la solution si on suppose qu'au temps t = 0 on introduit le faisceau se met sous la forme

$$N(t) = \sqrt{\frac{\Phi_0}{\beta}} \quad th \ (\sqrt{\Phi_0\beta}, t)$$

A l'équilibre le nombre d'ions par cm<sup>3</sup> est donc compris entre  $10^{12}$  et  $10^{13}$ . Le temps de mise à l'équilibre (obtenu en faisant  $\sqrt{\Phi_0\beta}$ .t = 100) est de  $10^{-3}$  à  $10^{-4}$  s. La collection de l'ensemble de ces charges conduirait donc à des courants de l'ordre de 0,1 à 1 µA, donc nettement inférieurs aux courants effectivement mesurés lorsque l'on applique un champ électrique.

Le phénomène microscopique de recombinaison traduit par le paramètre  $\beta$  est en général complexe : il met en jeu des réactions à deux et à trois corps, dépend fortement des vitesses de déplacement des électrons et des affinités électroniques. Aussi n'est-il pas possible de décrire de manière microscopique la recombinaison partielle qui intervient quand le champ électrique appliqué dans la zone ionisée est faible. L'équation différentielle précédente n'est alors que grossièrement approchée.

Les descriptions phénoménologiques sont heureusement abondantes et correspondent au fonctionnement des détecteurs gazeux insuffisamment polarisés. Dans un comptour à gaz, en effet, la saturation du signal (qui correspond à la collection de toutes les paires ion-électron) n'intervient qu'au-dessus d'une certaine valeur de la tension V<sub>MIN</sub>. En dessous de V<sub>MIN</sub> le nombre d'ions collectés varie de manière presque linéaire evec le champ appliqué : I =  $\alpha \stackrel{V}{=}$ .



Fig. 31 : Variation dans un compteur à gaz du courant collecté en fonction de la tension entre les électrodes

Dans le cas du compteur à gaz l'expérience (MOT 50,80H 48) montre que  $\alpha$  est fonction du nombre de particules N<sub>D</sub> entrant dans le compteur, du nombre de paires d'ions créés lors du ralentissement de ces particules et de la pression et se met sous la forme :

$$\alpha = 4 \ 10^{-4} \ N_0 \ \cdot \frac{E_{déposée}}{\omega} \ \frac{1}{p^2}$$

relation dans laquelle la pression est exprimée en atmosphère et  $\alpha$  en A.m/V. On peut alors appliquer ce type de relation à la traversée d'un faisceau, à des pressions souvent inférieures à celles utilisées pour l'établir et pour une énergie déposée égale à la perte d'énergie par unité de longueur. Dens ce cas le saturation de l'intensité est obtenue pour un champ électrique E<sub>max</sub> donné par la relation :

$$E_{max} = \frac{I_{max}}{\alpha} \times 2,5 \ 10^3 \ P^2$$

Si E > E max cela signifie que toute l'ionisation est collèctée. A la pression atmosphérique et dans l'azote le champ nécessaire à la collection complète vaut E = 2,5  $10^3$  V/m soit 25 V/cm.

Avec des tensions de quelques kilovolts appliquées sur les plateaux parallèles distants de moins de 10 cm on aurait, si le champ électrique était uniforme, des valeurs du champ supérieures à 200 V/cm au niveau du fai^ceau et on devrait collecter toute l'ionisation.

Comme on constate que seule une partie de l'ionisation créés est rollectée, cela implique que le champ  $E_o$  au niveau du faisceau est très différent (beaucoup plus faible) du champ E = V/d qui serait présent sans ionisation.

Ce sont les densités de charges présentes entre les deux plateaux qui peuvent seules modifier le champ électrique au niveau du faisceau. On voit ainsi que la charge d'espace est également l'élément décisif contrôlant l'ionisation collectée par les hautes tensions.

### b) Le modèle du faisceau plat

Le problème à résoudre à ce stade est donc de déterminer simultanément le champ électrique et la densité de charge en chaque point en appliquent l'ensemble des équations classiques de l'électrocinétique et les équations de mobilité des charges sous la forme définies précédemment :

$$v^+ = \mu^+ \frac{E}{m}$$
  $v^- = \mu^- \frac{E}{m}$ 

- 67 -

L'analogie avec l'émission thermoionique est grande, en effet le gaz ionisé est comme un métal un très grand réservoir de charges. A priori un champ électrique devrait pouvoir extraire du gaz (ou du métal) une quantité de charges extrêmement importante, mais cette extraction fait apparaître elle-même un champ électrique modérateur dû à la charge d'espace; cela limite en retour l'extraction et il s'établit un équilibre. Le courant extrait suit la loi J =  $C(V^{3/2}/d^2)$  (loi de Child-Langmuir).

Nous aurions exactement les équations de l'émission thermoionique si la relation  $\vec{v}$  = k  $\vec{E}$  était remplacée par

$$\frac{d\vec{v}}{dt} = k'\vec{E}$$

Dans la cas qui nous intéresse, le calcul peut être fait complètement dans le cas assez artificiel à une dimension où l'ionisation est supposée uniformément répartie sur un plan, c'est à dire comme si le faisceau au lieu d'avoir une section approximativement circulaire avait une section très large dans le plan horizontal.

Nous essaierons de revenir par la suite au cas réel. Les calculs correspondants à cette approximation sont exposés dans l'annexe I.



-----

#### Fig. 32 : Le faisceau plat

- 68 -

Le résultat le plus essentiel montre qu'il s'établit entre les plateaux un champ électrique  $\vec{E}(x)$  très éloigné du champ E = V/2d constant qui est appliqué avant l'introduction du faisceau.

Le densité de courant J entre les deux plateaux est indépendante de  $\alpha$  (J =  $\alpha$  E<sub>0</sub>) et vaut :



Le champ E, au niveau du faisceau "s'ajuste" obligatoirement pour que le courant extrait soit J(V,P,d) qui représente le maximum de courant que l'écoulement des charges (assez lent dans le gaz) permet pour les conditions V.P,d données.

Ce résultat implique une absence de variation de J en fonction de  $\alpha$  et donc en fonction de l'intensité et de la nature du faisceau, mais uniquement dans la mesure où cette intensité dépasse une valeur minimale (voir annexe).

La dépendance en 1/P apparait naturellement et provient simplement du fait que la mobilité des ions diminue avec la pression.

Les valeurs de E<sub>o</sub> correspondant à E<sub>o</sub> = J/ $\alpha$  sont très faibles et cela implique que les ions situés à l'intérieur de la zone ionisée peuvent mettre un temps assez important pour en sortir :

 $\overline{t} = \frac{e}{\frac{2v_0}{2v_0}}$  avec  $v_0 = \mu^2 \frac{E_0}{P}$ 

relation dans laquelle e représente l'épaisseur du faisceau. Le temps de sortie calculée en annexe est alors de l'ordre du une seconde.

Dans le cas d'un gaz ne présentant pas d'attachement électronique, c'est à dire ne pouvant pas former d'ions négatifs, les espèces chargées en présence sont les ions positifs et les électrons présentant des mobilités très différentes. Le champ électrique E(x) entre les deux plateaux suit alors les variations représentées sur la figure 33.



Fig. 33 : Evolution du champ électrique entre les plateaux du système de collection électrostatique dans l'approximation théorique du faisceau plat

La dissymétrie entre les deux régions de collection x > 0 et x < 0 due à la mobilité 1000 fois supérieure des électrons montre que des dispositions géométriques de potentiel symétriques comme celles de la figure 34, avec une enceinte



Fig. 34 : Géométrie apparamment symétrique d'un système de collection

à la masse et deux conducteurs à des potentiels -V et +V, donnent l'illusion d'une réelle symétrie dans la collection. En fait, même si le modèle du faisceau plat n'est qu'indicatif à ce niveau, il est certain que la chute de potentiel réelle entre la plaque positive et le point A est très faible ( $V_A \simeq +V$ ) parce que ce sont des électrons qui se déplacent dans cette zone, alcrs que la chute de potentiel entre le point B et la plaque négative est,elle,tout à fait appréciable ( $V_B >> -\frac{V}{2}$ ). Comme on l'a vu précédemment lors de l'étude sur les possibilités de focalisation (§ II.A.3) quand trois conducteurs ou plus sont en présence des disparités de potentiel amènent des zones de focalisation (même avec des géométries symétriques).

Le cas réel est analogue, pour la dissymétrie, à la configuration géométrique de la figure 18 envisagée cans faisceau. La dissymétrie très visible dans ce cas est de même nature que celle qui apparait nécessairement avec le faisceau dans la géométrie précédente.



Fig. 35 : Effets défocalisants produits par les dissymétries de potentiel créées par le faisceau

- 71 -

L'importance de catte dissymétrie est s'ande quand on s'intéresse aux mécanismes de réaction ou aux parcours d'ions énergétiques. Or toutes les expériences de mesures de parcours et de straggling effectuées par Alexander, Porile, Lassen, ont été faites avec des chambres construites sur ce modèle.

La présence d'écarts importants entre les courants mesurés sur les plaques positives et négatives est la signature manifeste de lignes de champ dissymétriques du type de la figure 35. On voit qu'un lien entre ces dissymétries et l'apparition de traines aux faibles reculs ou de positions différentes entre les ions positifs ou négatifs d'un même isotope est donné par la forme des lignes de champ. On a ainsi une zone centrale grossièrement homogène qui touche du côté de la cible une zone très fortement défocalisante.

La présence d'écrans et l'éloignement de la cible, qui est le conducteur mis à la terre le plus proche de la collection, ont donc un effet positif non pas en supprimant les reculs émis à plus de 20° (il n'y en a pratiquement pas) mais en empêchant les lignes de champ de rejoindre la terre. Cependant, cette correction peut très bien être trop importante surtout si l'écran se charge, et il serait certainement plus appioprié de baisser le potentiel positif jusqu'à équilibrer les courants positifs et négatifs.

Malgré cela, les précautions prises par les auteurs mentionnés sont grandes(faibles intensités de faisceau, variation des potentiels, distances, etc...) et les valeurs de parcours obtenues sont certainement assez fiables. Mais pour : stragglings correspondants, il faudrait une étude beaucoup plus complète avant de conclure que les mesures faites correspondent aux élargissements dus au ralentissement. En effet, quand on change de gaz, les pressions et les tensions sont modifiées, les mobilités ioniques sont modifiées également et la zone de chaup centrale, qui respecte à peu près la valeur moyenne du recul, joue un rôle d'amplificateur (difficile à contrôler) sur le straggling. Le modèle du faisceau plat permet donc de relier les points i) et iv) mentionnés précédemment au phénomène de charge d'espace et on a vu que celà impliquait aussi des modifications, moins évidentes à priori, sur l'homogénéité du champ électrique.

c) <u>Le faisceau réel</u> : ayant une connaissance des distributions de potentiels dans le modèle du faisceau plat,il est possible, en première approximation d'isoler une "tranche" correspondant à un faisceau réel et de calculer, en supposent non modifié le potentiel V(x), la divergence perpendiculaire au faisceau. On libère ainsi un degré de liberté supplémentaire en considérant le possibilité d'une composante du champ perpendiculaire au champ principal (Fig. 36).



Fig. 36 : Passage du faisceau plat au faisceau réel

Le calcul est conduit par approximations successives. La valeur du champ en x,E<sub>1</sub>(x) du faisceau plat permet de calculer E<sub>1</sub>(x),cele modifie l'écoulement des charges et on en déduit un champ E<sub>2</sub>(x) qui permet de calculer à nouveau E<sub>21</sub>(x)

- 73 -

On continue ainsi l'itération.

Compte tenu d'autres approximations le calcul au premier ordre (voir annexe 2) est une estimation assez vraisemblable. Si on appelle  $\ell_0$  la longueur du faisceau réel, la largeur de la zone où se propage les ions à la cote x est donnée par (annexe 3) :

 $\ell (x) = \ell_0 \left( 1 + \frac{1}{4} \log \frac{2\alpha p x}{\mu \epsilon_0 E_0} \right)$ 

Dans les expressions de l (x) et de J la valeur  $\alpha$ intervient explicitement et donc ces grandeurs dépendent de l'intensité et de la nature du faisceau, mais dans les deux cas des variations d'un facteur 10 sur l'intensité se traduisent par des variations plus faibles, un facteur 2, pour l et J (annexe 3). L'ordre de grandeur de la largeur l (d) est de 5 cm pour un faisceau de 5 mm de diamètre.

Le point v) évoqué précédemment se trouve ainsi décrit au moins semi-quantitativement.

#### d) Divergence d'une colonne d'ions

Nous avons jusque là considéré le phénomène d'extraction des charges entre deux plateaux parallèles, or nous avons vu que la détection n'était possible que dans une zone abritée et cela impose de faire parcourir aux ions extraits un chemin supplémentaire.

Au niveau du trou fait dans le plateau (voir fig. 20)

les ions ont acquis une grande vitesse donnée par v =  $\frac{3}{2} \frac{v}{d^2}$ 

(de l'ordre de 10<sup>4</sup> cm/s). En considérant une portion droite

sur laquelle est défini un champ E =  $\frac{v^2}{d^2}$ , on peut dire avec

une bonne approximation que les densités de charge restent faibles, compte tenu de la vitesse importante, pour que le champ électrique déterminent la valeur absolue de cette vitesse soit E  $\approx$  E<sub>µ</sub> (ce qui est vrai à E<sub>1</sub> << E<sub>µ</sub>).



Fig. 37 : Système de transport

Avec une colonne possédant une symétrie cylindrique (trous circulaires) on obtient une relation entre les composantes E t et E<sub>H</sub> (annexe 2).

Relation dans laquelle D est le diamètre du cylindre,  $\mu$  la mobilité, P la pression et I le courant total entrant dans le cylindre.

La divergence de la colonne d'ions, d'autant plus grande que E, est grande, est caractérisée par un angle 0 tel

que tg  $\theta = \frac{E_{\perp}}{E_{tt}}$  soit :

, 's

 $tg \ \theta = \frac{P}{\pi \Omega \varepsilon_{0}!!} \times \frac{I}{\varepsilon_{ll}^{2}}$ 

- 75 -

On trouve alors  $\theta$  = 6,4° en utilisant les valeurs numériques tout à fait réalistes suivantes : intensité de 0,1 µA, un champ de 200 V/cm, un diamètre de 4 cm, une pression de 100 mbar et une valeur de µ de 2,2 10<sup>-4</sup>.

L'intensité du champ  $E_{jj}$  est donc très importante puisqu'elle intervient au carré 1 on voit également sur l'exemple numérique que des intensités très faibles conduisent à des angles de divergence tout à fait appréciables, une intensité de 1 µA correspondrait à un angle de 50°, ce qui est très grand et sort du cadre des approximations de départ.

Chaque électrode joue donc dans le transport le rôle de diaphragme sur lequel les ions ayant divergé sont arrêtés. Si la perte sur chacune des électrodes est faible on peut dire globalement que sur la distance d' la perte est donnée par la différence des surfaces délimitées par le cylindre et le côme de la figure 38, soit pour le rendement :

$$R = \frac{1}{\left(1 + \frac{d'}{2} tg \theta\right)^2 - 1}$$

Avec  $\theta = 6, 4^{\circ}$ , r = 2 cm, d' = 10 cm, on obtient R = 70 %.



Fig. 38 : Divergence due aux charges d'espace dans un tube de transport cylindríque

Donc même pour un angle de divergence assez faible comme 6,4° la perte dans le transport représente 30 %. En

- 76 -

réalité le transport n'est pas rectiligne mais courbe, et cela complique considérablement les calculs. Le cas est envisagé dans l'annexe 2, et diffère du cas cylindrique par une divergence des ions essentiellement du côté des grands rayons sans modification qualitative des rôles joués par I et E<sup>\*</sup>.

# e) Somme des effets liés à la charge d'espace sur le rendement

Dans une expérience où des noyaux de durée de vie assez faible (quelques secondes) sont collectés seul le rendement global est mesuré. A l'aide des considérations précédentes on peut essayer de reconstituer le comportement total d'un système électrostatique constitué d'électrodes métalliques ayant une géométrie du type de celle définie au paragraphe "fonctionnement du détecteur".

Le paramètre qui conditionne en premier lieu les rendements de divergence (divergence entre les plateaux parallèles, et divergence dans le transport) est la densité de courant J existant entre les plateaux. Quand J croit, on sait que les pertes deviennent rapidement très importantes.

Le premier facteur qui fait croitre J est l'intensité de faisceau. En effet pour de très faibles intensités de faisceau J est proportionnel à I<sub>FAISCEAU</sub> (et très faible aussi) mais au delà d'une certaine intensité I<sub>MIN</sub> du faisceau une saturation de J intervient (complète dans le modèle du faisceau plat, et relative seulement dans l'approche du faisceau réel) due à la limitation liée à l'écoulement des charges.

Le point ii) mentionné précédemment (décroissance très rapide du rendement avec stabilisation vers quelques % quand I<sub>faisc</sub>. > qqnA) s'explique donc très bien par les transitions successives entre une collection sans faisceau purement électrostatique (sans effets cinétiques) ayant 100 % de rendement, une collection où la charge d'espace affecte uniquement le transport (10 % < R < 100 % ,  $10^{-12}A < I_{faisc}$ . <  $10^{-10}A$ ), et une collection dominée entièrement par la charge d'espace dans la gamme des intensités de faisceau usuelles ( $10^{-9}A$ ) et ch rendement est fortement abaissé (1 à 10 %). La grandeur qui dépend de la nature et de l'énergie du faisceau est la valeur de I<sub>min</sub> où se fait la transition entre le régime où J croit avec I<sub>faisc</sub>, et le régime où J est saturé, ces valeurs sont en règle générale très faibles (10<sup>-11</sup> à 10<sup>-9</sup> A).

Un autre paramètre mentionné comme un des plus importants est la pression. Si on explicite l'angle  $\theta$  de divergence en fonction de l'intensité J trouvée dans le modèle du faisceau réel on obtient :

$$tg \theta \approx \frac{UD}{32} \cdot \frac{V^2}{E_y^2} \cdot \frac{1}{d^3}$$

formule dans laquelle D est le diamètre / cercle d'entrée du transport.

La pression n'apparait donc plus dans l'angle de divergence qui détermine le rendement de transport. Mais il faut à ce stade revenir au phénomène de ralentissement des noyaux qu'on veut collecter, et qui ne sont pas les ions d'azote ! Le volume dans lequel ces noyaux sont arrêtés dépend des conditions de la réaction nucléaire (épaisseur de cible, évaporation nucléaire, stagglings de ralentissement solide et gazeux, etc...) mais aussi de la pression. Si le volume utile du système de collection est inférieur au volume total occupé par l'activité après ralentissement le rendement d'extraction est :

$$R_{ext} = \frac{V_{utile}}{V_{total}}$$
soit R = K × V<sub>utile</sub> × P

Ju fait de la divergence des ions en cours de transport le volume utile de la collection est donné par le cylindre vertical s'appuyant non pas sur S  $\approx \pi r^2$  mais sur une surface plus potite de rayon égal à r' :

$$r' = \frac{d'}{r} ; (1 + \frac{d'}{r} tg \theta) \text{étant le coeffi-}$$

$$1 + \frac{d'}{r} tg \theta$$

cient de l'homothétie correspondant à une divergence d'angle  $\theta$ pour les ions situés sur les bords. Donc si l'angle de divergence



Fig. 39 :

vaut 15° on obtient un rendement de transport voisin de 20 % ce qui est typique. Le rayon r' vaut 8 mm pour le genre de détecteur utilisé. En replaçant cette valeur dans le contexte du ralentissement il apparait que des dispersions de 16 mm sur les distances de recul sont atteintes pour des pressions inférieures à  $P_{lim}$  de l'ordre de 500 mbar (pour des réactions de fusion par ions lourds sur des cibles de 500 µg/cm<sup>2</sup> à 1 mg/cm<sup>2</sup>). En dessous de  $P_{lim}$  le rendement est donc du type :

$$R_{\text{ext}} = \frac{K}{p} \times \frac{1}{(1 + \frac{d'}{2} \text{ tg } \theta)^2 - 1}$$

c'est à dire croissant avec la pression si P <  $P_{lim}$  et ne dépendant pas de P pour P >  $P_{lim}$ .

Cela est donc conforme aux constatations du point v) (phénomènes majeurs) assorti de la restriction concernant la période de l'isotope collecté qui ne peut pas être trop courte car pour les grandes valeurs de P on a vu que le modèle du faisceau plat prédisait des temps de sortie du faisceau assez longs (~ 1s).

Les modèles qui viennent d'être discutés permettent donc de rendre compte de manière semi-quantitative der phénomènes majeurs déjà mentionnés, c'est à dire en démêlant plutôt les ordres de grandeurs et les sens de variation qu'en donnant des valeurs précises.

Il est maintenant possible d'aborder le détail des mesures que nous avons faites non pas comme une succession d'effets mystérieux mais simplement comme la recherche d'un fonctionnement tendant à minimiser les effets d'un seul phénomène centrel : la charge d'espace.

En fait un deuxième phénomène beaucoup moins apparent, celui qui détermine la charge positive ou négative des noyaux de recul, se cache derrière les autres aspects et ne peut apparaître que dans le cas où l'influence de la charge d'espace est fortement réduits.

# 4 - Etude détaillée de la collection en fonction de chaque paramètre

#### a) Les mesures hors ligne

Entre la création au niveau de la cible des isotopes et leur détection à la fin du trajet électrostatique les occasions de pertes sont multiples et les moyens de savoir exactement comment sont perdus les ions sont rares.

Une possibilité consiste à déplacer dans le volume de collection une source calibrée, en plus des noyaux issus de la réaction nucléaire, et de faire une cartographie du rendement. Nous avons fait quelques essais de ce type, mais la présence de la source perturbe sensiblement la collection.

Il est donc préférable de fabriquer dans la réaction nucléaire des isotopes de période longue (T > 7 mn) dont les dépôts sur différents éléments (électrodes. supports, etc...) du système de collection peuvent être mesurés après l'irradiation dans un compteur à gaz de grande efficacité.

14

Les réactions nucléaires que nous avons utilisées formant de tels isotopes sont :

 $^{40}$ Ar +  $^{116}$ Cd  $\Rightarrow$  NC - 5,6n  $^{150}$ Dy T = 7mn E<sub>a</sub> = 4,23 MeV  $^{151}$ Dy T =17mn E<sub>a</sub> = 4,07 MeV

 $^{12}$ C +  $^{209}$ Bi + NC - 5n  $^{216}$ Ac+ $^{212}$ Fr T = 19 mn E<sub>R</sub> = 6,26 MeV

Les sections efficaces de production sont connues et permettent une mesure absolue de rendement (GAU 74).

Le premier type d'expériences que nous avons réalisé était la simple répétition des travaux d'Alexander et Simonoff (ALE 67). Nous avons ainsi vérifié que la fraction ionisée des isotopes de Dy était comprise entre 50% et 100% avec des proportions grossièrement égales (mais fluctuantes) d'ions positifs et négatifs.

Ces résultats ont été obtenus dans l'azote avec des pression de 100 à 300 mbar et des tensions inférieures de 30% environ aux tensions de claquaga, les intensités de faisceau étaient de quelques dizaines de nancampères d'argon.

Pour la collection du francium les reculs étant très faibles nous avons utilisé une pression de 20 mbar rarement utilisée par la suite.Les résultats nous ont relativement surpris puisque seulement 20% de l'activité a été trouvée sur la plaque à la terre et 2% sur la plaque positive.

Dans les deux cas, faisceaux d'argon et de carbone, les pourcentages de neutres, d'ions positifs, d'ions négatifs ont été mesurés ponctuellement et sans variation systématique des paramètres : pression, tensions, intensité de faisceau, pureté des gaz, comme il aurait sans doute été souhaitable, essentiellement à cause du temps de faisceau important que représentent de tels essais.

Intéressés par la manière dont la collection transportait les ions de recul du faisceau jusqu'aux plateaux, nous avons fait un comptage sur des carrés de 2 centimètres formant

Trisceou	1						
		0.5	2.1	2.1	0.5	0.2	
	0.1	1,2	5.6	5.4	1.2	0.5	
cible	0.5	7	20/	8.6	3	1.2	
I		ļ		<b></b>	· · ·		x
	0.5	5.1	1.6	7.2	2.8	0.9	
	0.1	1.4	4.2	1.9	0.7	0.2	

Fig. 4D : Activité mesurée sur le plateau supérieur en <sup>15D</sup>Dy produit dans la réaction <sup>40</sup>Ar + <sup>116</sup>Cd → <sup>15D</sup>Dy + 6n. Les valeurs dans chaque carré représentent les activités relatives collectées. Le carré hachuré représente la zone d'activité maximum 82

un pavage au niveau du plateau au potentiel D. Les résultats sont présentés sur la figure 4u.

La répartition, grossièrement gaussienne dans les deux directions, est assez large et montre les proportions intégrées suivantes :

20% dans un carré central de 4  ${\rm cm}^2$  40% dans un carré central de 16  ${\rm cm}^2$  70% dans un carré central de 36  ${\rm cm}^2$ 

La nécessité d'une focalisation est évidente quand on compare les surfaces en question aux surfaces caractéristiques des détecteurs (1 à 7 cm<sup>2</sup>)

Une autra mesure du même type effectuée grâce à la réaction  ${}^{12}\text{C}$  +  ${}^{209}\text{Bi}$  +  ${}^{221}\text{Ac}$  mais mesurant seulement la distribution des noyaux dans la direction perpendiculaire au faisceau (sommation sur x) montre un élargissement nettement supérieur :



Fig. 41 : Elargissement perpendiculaire au faisceau des ions collectés sur le plateau au potentiel O

Ce dermier cas est la démonstration, dans des conditions extrèmes, que l'élargissement perpendiculaire au faisceau peut être très important, spécialement quand le courant d'ionisation est très grand comme c'est le cas aux basses pressions.

L'étape suivente dans le chemin que suivent les ions est la partie courbe qui relie une ouverture dans un des plateaux au détecteur. Dans une configuration portant seulement

- 83 -

5 électrodes, nous avons mesuré les pertes sur les bords des ouvertures circulaires :



Fig. 42 : Système de transport à 6 électrodes avec lignes de champ focalisantes

Les proportions relatives obtenues sont alors données par le tableau suivant :

Electrode	n° 0	4 %
	n° 1	27 %
	n° 2	17 %
	n° 3	14 %
	n° 4	8 %
	n° 5	non mesuré
Jonction	Centre	25%
	Pourtour	5%

La partie située avant le transport circulaire était réglée de manière à focaliser le maximum d'ions à l'entrée ce qui explique le faible dépôt sur l'électrode n° 0, mais on constate une perte importante au cours du transport. Les pertes décroissantes de l'électrode n° 1 à l'électrode n° 4 sont sans doute liées à une diminution progressive du courant transporté et donc de la divergence, diaphragme après diaphragme.

Le rendement réel correspondant à l'activité amenée sur la jonction est de 14 % (noyaux transportés/noyaux formés). Cela correspond avec une efficacité du détecteur de 40 % et un comptage entre les pulses de faisceau pendant les 2/3 du temps total, à une efficacité en ligne de 4 %.

Pour plus de précision nous avons cherché à savoir sur quelles parties des électrodes se déposait l'activité. Les résultats sur les électrodes portent le plus d'activité montrent une dispersion essentiellement le long de l'axe de symétrie du système.



Electrode Nº1



Electrode N°2

Fig. 45 : Pourcentage de l'activité déposée sur différentes parties des électrodes réprésentées à la fig. 42

Les mesures avec des sources nous indiquaient que les lignes de champ étaient correctement établies en l'absence de faisceau et que les pertes n'étaient pas dues à une mauvaise géométrie des électrodes. Cependant pour le vérifier nous avons décentré les électrodes de manière à tenter de diminuer les pertes sur les grands rayons. Comme nous le supposions cela n'a rien amélioré, car si le transport est moins courbé. la répartition des pertes change, mais le total des pertes reste constant.

Ainsi, par les mesures hors ligne, si nous n'avons pu étudier les variations des phénomènes de divergence, l'existence même des manifestations de l'effet de charge d'espace a été démontrée. Cele est très important parce que dans les mesures en ligne, au contraire, les variations des pertes sont assez faciles à mesurer, mais leur nature exacte est seulement présumée.

# b) <u>Optimisation de la collection des périodes de</u> <u>l'ordre de la seconde</u>

Lurs des premiers essais en ligne avec un faisceau d'argon permettant de former les isotopes  $^{152}$ Er (T = i0s) et  $^{153}$ Er (T = 36s) nous utilisions des pressions inférieures à 90 mbar et des distances de recul supérieures à 15cm et les rendements correspondants aux meilleurs réglages de tension ne dépassaient pas  $10^{-3}$ . Les pressions ne c'avérèrent pas toutes équivalentes et montraient des rendements supérieurs pour les pressions les plus grandes.

Nous avons átudiá la distribution des reculs et irouvé une bonne concordance entre nos mesures de parcours et les valeurs des tables de Northcliffe et Schilling ; le but recherché n'était pas de tester mais de savoir si en première approximation (10 à 20%) en pouvait utiliser leurs tables pour estimer la position du chariot mobile en début d'expérience. Un résultat typique d'une mesure hors ligne est représenté dans la figure ci-après où l'on a porté les parcours projetés avec un système focalisant en fonction de la distance de la zone de collection à la cible.



Fig. 44 : Distribution des parcours de <sup>152</sup>Er et comparaison avec la valeur de la table de Northcliffe et Schilling

Après modification de la chambre nous avons adopté une gamme de distance, plus petites (0-15 cm) permettant l'utilisation de pressions jusqu'à 1 bar. Le rapprochement de la cible de la zone de collection nous a conduit à porter l'ensemble cible-fenêtre de nickel à la haute tension.

No 's avons alors essayé parallèlement deux types de systèmes de collection : l'un essentiellement constitué d'électrodes métalliques, l'autre comportant une seule électode à la haute tension à l'intérieur d'un volume creusé dans la masse d'un isolant (voir fig. 22 p. 50).

Le réglage du système métallique a montré que les meilleurs rendements (à toutes les pressions) étaient obtenus pour des différences de potentiel V - V<sub>1</sub> entre les plateaux assez faibles (∿ 500V) et des répartitions linéaires des potentiels dans la partie courbe. Les meilleurs rendements ont été obtenus vers 350 mbar pression pour laquelle on obtient un

. 87 -

rendement absolu de l'ordre de 2% (rendament absolu • noyaux détectés/noyaux formés) ce qui en supposant 50 % d'ions positifs, 40% d'efficacité et un comptage pendant les 2/3 du temps correspond à un rendement de transport de 15%.

Le système isolant comporte peu de réglages uns seule tension peut être modifiée et il apparait que les valeurs les plus fortes possibles de ce potentiel sont celles donnant le meilleur rendement, mais sans que ce soit extrèmement critique. L'équilibre des charges (30 mn avec des sources) est atteint sur faisceau dans un temps trèc court non mesuré (< 1s) et un comportement stable a été observé aux pressions supérieures à 200mbar.En dessous de 200 mbar le système possède un mauvais rendement et n'est pas toujours stable au cours du temps.

Les évolutions comparées des meilleurs rendements obtenus en fonction de la pression sont portées sur la fig. 45.



Fig. 45 : Evolution du rendement absolu de collection en fonction de la pression des gaz utilisés

- 88 -

La saturation des rendements en montant la pression n'intervient pas pour les mêmes valeurs dans les deux systèmes cela signifie peut être que les "volumes utiles" de collection sont différents.

Le système isolant atteint aux fortes pressions des rendements intéressants, mais simultanément les deux isotopes  $^{152}$ Er(T = 10s) et  $^{153}$ Er(36s) ne sont pas collectés avec la même efficacité.De 350 mbar à 600 mbar les intensités relatives des pics se modifient et il semble bien que cela ne puisse être expliqué que par un temps de transport atteignant l'ordre de grandeur de 10s. Ce résultat très surprenant nous a fait penser à des phénomènes de migrations lentes sur les parois et nous avons un peu leissé cette méthode de côté parce que nous ne pensions pas que le faisceau pouvait augmenter à un tel point le temps de transport.

L'intensité de faisceau, dans les deux systèmes, ne s'est pas avárée avoir une influence très grande sur le rendement. En fait dans le cas du système métallique des rendements voisins ont été obtenus avec des intensités de faisceau différentes d'un facteur 10, mais avec des réglages V-V<sub>1</sub> assez différents. Pour les plus fortes intensités, il semble que des différences de tension très faibles (jusqu'à 100V) soient préférables pour maximiser le rendement.

Les variations ne dépassent pas un facteur 2 sur le rendement si l'intensité du faisceau ost multipliée par 10 et sans changer les réglages de tension. Néanmoins cet aspect est génant en pratique parce que si le faisceau n'est pas très stable en intensité on peut se tromper sur l'influence favorable ou défavorable d'un paramètre. Il est arrivé ainsi qu'un réglage considéré comme "bon" un jour soit vérifié et trouvé "mauvais" le lendemain {

Avec les réactions nucléaires formant les Erbium nous avons essayé de collecter les ions négatifs pour savoir si les rendements n'étaient pas meilleurs.

- 89 -

Une première tentative laissant le détecteur relié à la terre mais portant les šlectrodes à des hautss tensions négatives a entrainé une augmentation brutale du courant d'ionisation avec un bruit électronique important.

Nous avons donc repris la collection des ions négatifs en portant le détecteur à la haute tension positive à l'aide du montage électronique représenté sur la fig. 46.



Fig. 46 : Schéma du montage du détecteur à la haute tension

Le but était aussi d'établir simultanément le rapport entre les productions d'ions positifs et négatifs pouvant caractériser le 7 de l'activité collectée. La détection dans ces conditions était bonne mais le rendement de collection était du même ordre qu'en collectant les ions positifs.

Nous n'avons pas poursuivi ce genre de collection par manque de temps de faisceau essentiellement et à cause des risques de détérioration par claquage du détecteur.

Au moment de ces essais nous sepérions que le problème de charge d'espace disparaitrait en collectant les ions négatifs radioactifs transportés au sein d'un courant d'électrons. L'expérience montre donc que ce n'est pas le cas et s'accorde avec le modèle du faisceau plat qui prédit des champs électriques

 très faibles entre le faisceau et la plaque positive, et donc des vitesses de déplacement et des densités de charges comparables pour les électrons à ce qu'elles sont pour les ions.

### c) La collection des périodes courtes

Avec le système métallique utilisé pour collecter les périodes longues il n'a pas été possible de mettre en évidence les isotopes de période courte formés dans la réaction :

 $12_{C} + 209_{B1} \xrightarrow{\text{noyau compose}} 218_{At} \xrightarrow{T = 0.27\mu s} 214_{Fr} T \approx 5ms$ 

Pour que ces isotopes soient détectés il faut modifier la géométrie utilisée en rapprochant les deux plateaux et en ne cherchant pas à focaliser les ions à l'untrée du transport courbé, mais en utilisant un champ homogène.

Mise en évidence de l'effet d'extraction

La réaction utilisée prochit deux isotopes de francium de périodes très différentes :  $^{213}$ Fr (T = 35s) et  $^{214}$ Fr (T = 5 ms). Il est expérimentalement très net que les optimisations des réglages de tension ne sont pas les mêmes pour collecter l'un ou l'autre de ces isotopes. Le paramètre de loin le plus important, à pression constante est la valeur de la différence de potentiel  $V_2 - V_1$  entre les plateaux que nous appelons tension d'extraction (Ve). On voit sur la figure 47 que pour des valeurs proissantes de Ve les rendements des deux isotopes varient de manière opposée.



Fig. 47 : Rendement de la collection de périodes courtes en fonction du potentiel La formation par transfert de <sup>212</sup>At permet également de voir l'évolution du rendement pour une période intermédiaire (0,30s) mais la normalisation en rendement absolu n'est pas possible parce que la section efficace du transfert (α,n) n'est pas connue.

Les mesures effectuées hors ligne montrent que dans la géométrie utilisée le temps de transport se situe entre 5 et 10 ms pour des valeurs typiques ( $V_2 = 4KV$ ,  $V_1 = 2KV$ ) ce qui donnerait des rapports de rendement voisins de 4 entre le  $^{213}$ Fr et le  $^{214}$ Fr. L'expérience montre pour ces valeurs de tension un rapport 30 entre les rendements. Il semble donc qua le passage du faisceau augmente d'un facteur 2 ou 3 le temps de transport.

Les études sur la pression montrent qu'il est absolument nécessaire, pour collecter les courtes périodes d'utiliser des pressions basses (inférieures à 200 mbar).

Les comportements des rendements sur les deux isotopes de référence sont donc là aussi assez différents (Fig. 48).



Fig. 48 : Rendements absolus de collection pour deux périodes très différentes en fonction de la pression : les barrièrss sont optimisées pour chaque pression

### Le transport dans la partie circulaire

En maintenant Ve constant et en faisant varier le potentiel  $V_1$  à l'entrée du système de transport on peut en première approximation admettre que le champ dans le faisceau n'est pas modifié et qu'on teste correctement l'effet du champ dans le partie supérieure de la collection.

Les résultats sont portés sur la figure 49 :



Fig. 49 : Evolution du rendement absolu de la collection en fonction de la tension appliquée à l'entrée du système de transport

On constate que les rendements sont croissants pour les deux isotopes en opposition très nette avec le comportement dans la partie extraction.

Seuls les claquages empêchent de monter encore la valeur de V, donnant le chump dans le transport.

Pour collecter des périodes courtes il faut monter simultanément la tension d'extraction et la tension de transport aux plus grandes valeurs possibles ce qui implique une limitation essentiellement par les claquages. Au contraire pour les périodes longues il est préférable de diminuer la tension d'extraction (donc la charge d'espace) jusqu'au dixiàme environ de la tension de transport.

# Système combinant l'électrostatique et l'entrai-

# nement fluide

1.3

Ż

4

÷

En utilisant le montage déjà décrit dans le paragraphe "Collection sans faisceau" il est possible "d'obliger" les ions à sortir racidement de la zone fortement ionisée en modifiant la relation :

 $v = \mu \frac{E}{p}$  qui devient alors  $v = \mu \frac{E}{p} + v_0$ 

Les résultats avec ce montage sont assez différents de ceux exposés jusqu'ici. Par exemple la tension d'extraction au niveau du faisceau n'a pas une grande influence, moins de 20 % de variation pour une tension d'extraction passant de 2 à 5 KV.

D'autre part une croissance du rendament vers les basses pressions est observée simultanément pour les isotopes de courte et de langue période.

On arrive ainsi à un fonctionnement, entre 50 et 160 mbar, où les rendements sur les isotopes  $^{213}$ Fr et  $^{214}$ Fr ne différent que d'un facteur 2 :

R (T = 35s) = 1 % R (T = 5 ms) = 0,5 %

Les valeurs absolues de ces rendements sont cependant assez faibles, même si pour la collection du <sup>214</sup>Fr il s'agit de la meilleure méthode que nous ayons testée.

On peut également développer dans ce cas le modèle de charge d'espace (avec d'assez grosses approximations). Les conclusions montrent une disparition presque complète de l'influence de la charge d'espace (voir annexe 4). Cela n'explique donc pas pourquoi des rendements aussi faibles sont obtenus.

La difficulté n'est pas seulement théorique mais aussi expérimentale. En effet des simulations de la collection ont été faites auprès de l'accélérateur Van de Graaff de Bordeaux avec des protons de 2 MeV. L'ionisation créée peut être ajustée grâce à l'intensité de faisceau qui peut atteindre quelques micro-ampères. Les ions générés par une source du type de celles déjà décrites sont collectés successivement avec faisceau et sans faisceau. Les sources sont plecées dans les positions indiquées sur la figure 50.



Fig. 50 : Dispositic∩s des sources utilisées dans les études de collection avec et sans entrainement gazeux

Dans le cas de la figure 50-b la chute de rendement est très nette dès qu'on met le faisceau. la pransport courbe des ions de <sup>216</sup>Po est perturbé par les charges extraites du faisceau.

Au contraire avec le vantilateur le rendement continue à être 100%, et reste insensible à l'intensité de faisceau.

Il faut donc admettre que dans le cas où les noyaux sont formés par une réaction nucléaire le faible rendement est étranger au problème de la charge d'espace mais est dû au mécanisme qui décide de l'existence des charges positives, négatives ou de la neutralité des atomes à la fin du ralentissement. Ce problème sera discuté au paragraphe 5 de ce second chapitre.

э

# d) <u>Mesures de période</u>

Les essais que nous avons effectués pour pulser le faisceau et mesurer la décroissance de l'activité collectée nous ont montré qu'un régime intermédiaire de 0,5 à 1s (pour 350 mbar de  $N_2$ ) intervenait après coupure du faisceau. Pendant ce laps de temps i 'activité sur la jonction continue à croître (si on observe des isotopes dont la période est de quelques secondes) puis un régime de décroissance naturelle apparait (Fig. 51).



Fig. 51 : Evolution du nombre d'atomes se désintégrant sur le détecteur entre les impulsions du faisceau pour une période de 1,65 s(<sup>155</sup>Yb)

L'analyse de ce temps de décalage entre l'arrêt de la production et la décroissance sur le détecteur ne peut être faite en s'aidant du rodèle de charge d'espace développé précédemment. En effet il n'a été question jusque là que de décrire un régime permanent d'écoulement des charges, or dans la mesure de période on a affaire à un régime transitoire.

Le lien entre le tamps de transport et le tamps de décalage de la décroissance n'est à priori absolument pas direct, pas plus que ne le serait le rapport entre la période d'un pendule entretenu et le temps d'amortissement des oscillations libres.

S1, par exemple, un certain nombre de noyaux sont perdus dans le transport par fixation sur des isolants, la "désorbtion" de ceux-ci avec la disparition de la charge d'espace peut se faire avec un temps caractéristique tout à fait quelconque.

Des essais ont été effectués au Van de Graaff de Bordeaux montrant dans les périodes transitoires à la coupure du faisceau des temps de retour à la collection normale pouvant atteindre une dizaine de secondes pour les pressions les plus fortes (800 mbar) et décroissantes evec des pressions plus basses (0,2s à 100 mbar).

La meilleure solution pour mesurer les périodes serait donc de disposer une grille devaní la jonction, sur la dernière électrode, et de commuter son potentiel de manière synchrone aux coupures de faisceau en lui faisant jouer alors le rôle de "déversoir".

### 5 - Phénomènes liés à l'ionisation du noyau de recul

Pour un certain nombre d'auteurs déjà mentionnés au chapitre I, la présence d'une charge positive sur les produits d'une réaction nucléaire à la fin du ralentissement dans un gaz est une réalité majeure qui admet seulement quelques exceptions (les gaz rares). Or des mesures récentes (KRA 78) indiquent des probabilités importantes de neutralisation en fin de parcours pour des éléments comme le césium.

Par ailleurs il semble que le faisceau ait une certaine influence sur la formation des ions collectés, puisque le seul élément étudié avec et sans faisceau, le gallium, apparait en plus grande proportion sous forme d'ions négatifs en présence de -aisceau (POR 68. BRY 62).

La question qui nous intéresse alors est de savoir si les ions qui sont collectés dans nos expériences le sont par l'ionisation acquise au cours du ralentissement ou après une histoire plus complexe comprenant une ou plusieurs neutralisations suivies de réionisation par le faisceau. La réponse à cette question peut avoir des conséquences sous plusieurs aspects :

- le temps de transport est plus grand si le stade neutre est imporearé (temps mort avant la collection)  les proportions de neutres peuvent intervenir sur le rendement

 dans les cas où on voudrait éliminer la charge d'espace, ou le faisceau, on n'est pas certain que les reculs seront ionisés,

a) Le ralentissement

Au cours du phénomène de ralentissement des échanges de charges interviennent en permanence jusqu'aux basses énergies de l'ordre de quelques dizaines d'électron-volts. La compétition entre.l'état de charge  $1^+$  et l'état de charge D intervient pour les énergies inférieures à 50-100 keV par u.m.a. On peut donc comprendre que les bilans d'énergie dans les chocs à de telles énergies soient assez peu sensibles aux différences de quelques électrons-volts qui représentent l'écart entre les potentiels d'ionisation des noyaux ralentis et celui du gez.

Si l'aspect énergétique n'est pas primordial, les sections efficaces d'ionisation et de neutralisation dépendent néanmoins des niveaux électroniques concernés, mais des phénomènes de résonance sont alors particulièrement importants. Des résultats sur l'hydrogène montrent qu'un faisceau de protons est complètement neutralisé quand il est arrêté dans de l'hydrogène (échange de charge résonant) et ionisé à 9D% quand il est arrêté dans l'hélium (transfert da charge asymétrique).

D'après les résultats expérimentaux de Allison (ALL 50) et les calculs théoriques de Rapp et Francis (RAP 62) l'utilisation d'un gaz comme l'hélium (P.I. = 24,5 eV) permettrait de ralentir la plupart des éléments dans des conditions telles d'asymétrie et d'absence de résonance que l'ionisation positive à la fin du ralentissement serait dominante (> 90 %).

Pour l'azote il n'est pas certain qu'il en soit de même et pour les autres gaz (Ne, Ar, CH<sub>4</sub>, etc...) il est très probable que les situations les plus variées peuvent se présenter.

L'axpérience de Kramer et al (KRA 78 ) sur le césium produit dans la fission utilisait comme gaz ralentisseur un mélange Ar-CH<sub>a</sub> (90% argon, 10% CH<sub>a</sub>).

- 98 -
Cela tendrait à montrer que la charge à la fin du ralentissement d'un atome dépend très fortement du gaz utilisé. Rien ne permet de dire, à priori, que cette charge est positive.

Comme nous l'avons déjà mentionné, les collisions à trois corps sont prépondérantes dans le phénomène de désionisation (BAY 55) aux pressions supérieures à quelques dizaines de mbar, il pourrait en être ce même au cours du ralentissement.

Les expériences montrant de grandes probabilités de neutralisation ont été effectuées à des pressions de l'ordre de 100 Torr (KRA 78) alors que celles qui ont mis en évidence les possibilités de création de charges positives ont été réalisées dans la gamme 10<sup>-3</sup>-10<sup>-1</sup> Torr.

Nos propres mesures effectuées sur des reculs de terres rares (Dy, Er, Ho, Tm, Yb) indiquent des probabilités d'ionisation positives en fin de parcours supérieures à 40% pour des pressions de 1 bar He et 150 mbar  $N_2$ . Le système de détection utilisé pour obtenir ces valeurs sera présenté au paragraphe suivant.

Des études précises et systématiques actuellement développées permettront de connaitre un peu mieux ce point où l'information est encore parcellaire pour la formation d'ions positifs et très faible pour la formation des ions négatifs.

#### b) La Chimie sous faisceau

Le problème de savoir si les ions sont ou non ionisés en fin de parcours disparait presque totalement en présence du faisceau. En effet si la fraction de l'ionisation formée dans le gaz qui n'est pas recombinée(et qui donne le courant mesuré entre plaques) est de l'ordre de  $10^{-2}$  à  $10^{-3}$ , cela signifie que la plus grande partie des ions de reculs formés dans la réaction nucléaire étudiée subit également la recombinaison dans une proportion semblable. L'importance de l'ionisation directe dans le recul est donc faible puisque la plus grande part de l'activité produite est de toute façon neutralisée après thermalisation. Le rendement proche de 100% observé dans les collections électrostatiques entre plaques parallèles du <sup>150</sup>Dy produit avec faisceau n'est donc explicable que si des phénomènes de re-ionisation très efficaces interviennent. Si A est l'espèce chimique qu'on veut collecter et N<sub>2</sub> le gaz, les réactions à deux corps possibles sont :

 $\begin{bmatrix} A & + & e^{-} + & A^{-} \\ A & + & N_{2}^{+} + & A^{+} + & N_{2} \end{bmatrix}$  auxquelles s'ajoutent les  $\begin{bmatrix} A & ^{+} + & e^{-} + & A \\ A^{-} & + & N_{2}^{+} + & A & + & N_{2} \end{bmatrix}$  recombinaisons  $\begin{bmatrix} A & ^{+} + & e^{-} + & A \\ N_{2}^{+} + & e^{-} + & N_{2} \end{bmatrix}$ 

L'intervention d'un troisième corps comme participant neutre est certainement très probable, mais il peut s'agir de molécules  $N_{\gamma}$  et pas nécessairement d'impuretés à l'état de traces comme l'ont suggéré certains auteurs (Alexander, Mac Farlane). Il faut noter que toutes ces réactions sont rendues hautement probables par les densités d'ionisation i…portantes qui sont atteintes dans le volume traversé par le faisceau  $(10^{15}/cm^3)$ . Les réactions de type A + N<sub>2</sub><sup>+</sup> + A<sup>+</sup> + N<sub>2</sub> sont favorisées par le fait que N, est une molécule présentant des états excités vibrationnels et rotationnels renforçant les transferts d'énergie collisionnels.Le nombre de chocs A + N<sub>2</sub> peut atteindre dans les conditions usuelles d'utilisation d'un faisceau d'ions lourds une valeur de 10<sup>5</sup> chocs/s pour chaque atome A. Il suffit qu'une fraction même faible de ca nombre produise un échange de charges pour que l'atome neutralisé soit reionisé rapidement. Il faut signaler que la re-ionisation directe d'un atome A par le faisceau est très peu probable (~ 10<sup>-3</sup> s<sup>-1</sup>) et que l'intermédiaire  $N_2^+$  est donc indispensable.

Les réactions de type A + e → A sont mal connues ; elles n'interviennent que pour des corps présentant une affinité électronique et sont très sensibles à l'énergie des électrons incidents. Dans le domaine thermique, des variations de sections efficaces très importantes ont été, observées en fonction de la

- 100 -

vitesse des électrons. Il serait alors possible que les impuretés jouent un rôle indirect en agissant sur le spectre de vitesse des électrons puisqu'on sait expérimentalement que des concentrations très faibles suffisent pour modifier sensiblement les valeurs de la mobilité électronique. La diminution du taux d'impuretés n'a donc pas de raison d'agir dans le sens de la diminution de la production des ions négatifs, comme ce serait le cas si ces impuretés jouaient un rôle "porteur" ; reppelons à ce sujet les observations d'Alexander et al sur l'augmentation de la production des ions négatifs avec la pureté du gaz.

Dans cette représentation la re-ionisation doit intervenir au moins  $10^2 a 10^3$  fois pour que la collection de l'ion A<sup>+</sup> soit assurée, puisqu'à chaque étape où l'atome A est ionisé la probabilité de collection n'est que de  $10^{-2}$  ou  $10^{-3}$ . Plus l'intensité de faisceau est grande plus les recombinaisons sont fortes et donc plus il faudra de temps pour que la re-ionisation soit suivie d'une collection (cela tient au fait que quand l'intensité de faisceau augmente, la densité de N<sup>+</sup><sub>2</sub> et e<sup>-</sup> et la re-ionisation ne sont pas croissantes).

Si le temps moyen pour qu'une re-ionisation soit suivie d'une collection augmente, la compétition par diffusion ou même par transport dans des mouvements lents de convection thermique (comme il peut s'én produire pour les fortes intensités) avec tous les aspects fluctuants de tels phénomènes peuvant intervenir. Ajoutons, qu'un processus en N étapes où la population des neutres alimente très faiblement à chaque étars plusieurs voies (ions + collectés, ions-collectés, neutres diffusés) a un rôle amplificateur, exactement comme en chromatographie, sur des différences très faibles de comportement microscopique. Bien que ces considérations restent très gualitatives, il ressort assez clairement que si le nombre d'étapes nécessaires N augmente le facteur d'amplification se trouve accru et c'est très probablement pour cette raison que les rapports ions<sup>+</sup>/ions-collectés ainsi que les rendements globaux, peuvent dans des conditions d'expériences macroscopiques voisines varier sensiblement autour

- 101 ~

du comportement moyen. Ce côté "équilibre instable" est alors privilégié dans toutes les situations suivantes : intensité du faisceau importante, fortes pertes d'énergie du faisceau dans le gaz, pressions importantes, tensions d'extraction faibles, puisque dans tous ces cas la fraction d'ionisation collectée par rapport au nombre total de paires d'ions formés diminue, c'est à dire que N augmente. Corrélativemen le fonctionnement le plus satisfaisant et le plus stable a été obtenu sur le faisceau de <sup>12</sup>C du CERN à faible intensité (5  $10^9$  part.s<sup>-1</sup>), à grande énergie de faisceau (1 GeV) et donc pour des partes d'énergie  $\Delta E$  vrès faibles, à basse pression et à forte tension.

Ce phénomène de balance entre une re-ionisation très fréquente et une extraction (suivis de collection) assez rare peut expliquer le phénomène de croissance de l'activité constatée après coupure du faisceau. En effet quand l'ionisation créée par le faisceau cesse, le système se trouve dans une situation tout à fait inverse de celle présente en régime permanent. La collection devient bien meilleure (diminution progressive de la charge d'espace) mais la re-ionisation devient de moins en moins fréquente, er plus lente en moyenne, à mesure que la concentration d'ions positifs du gaz diminue.

La présence d'une collection encore nette près d'une seconde après coupure du faisceau montre que la concentration des ions  $N_2^+$  est devenue suffisamment basse  $(10^{6}-10^{10} \text{ ions cm}^{-3}$  à comparer aux  $10^{15}$  ion cm<sup>-3</sup> du régime permanent) pour que le temps moyen d'attente pour une seule collision de re-ionisation A +  $N_2^+ \rightarrow A^+$  +  $N_2$  atteigne cet ordre de grandeur.

La concentration des ions  $N_2^+$  évolue au cours du temps et décroit très fortement à la coupure du faisceau, mais la superposition de la diffusion thermique à l'entrainement électrique assure une permanence résiduelle d'ions  $N_2^+$  au niveau du faisceau tout à fait compatible avec un ordre de grandeur de 1 à 10 collisions de re-ionisation par seconde pendant la première seconde suivant la coupure du faisceau.

- 102 -

Le principal support expérimental des phénomènes

liés à la re-ionisation est donné par le système d'entrainement gazeux (ventilateur ). En effet avec un tel dispositif, sont supprimées en grande partie les possibilités de re-ionisation (temps de transit dans le faisceau faible) et les pertes dues à la divergence dans le transport. On observe alors effectivement un rendement dépendant ecsentiellement de la fraction collectée de l'ionisation totale, c'est à dire décroissant presque linéairement avec l'intensité de faisceau et beaucoup plus fort pour les faisceaux perdant peu d'énergie dans le gaz (15% de rendement absolu obtenu sur  ${}^{12}$ C à 86 MeV/n de 5 10<sup>9</sup> part s<sup>-1</sup>).

## 6 - Les méthodes développées pour l'étude des mécanismes de réaction

Comme il apparait dans les études précédentes, le passage du faisceau dans le gaz perturbe suffisamment les lignes de champ électrique pour que la collection des noyaux de recul arretés en un point donné quelconque ne soit pas rigoureusement représentative de l'activité qui s'est réellement thermalisée en ce point. Pour l'étude des mécanismes de réaction c'est

l'information de d $\sigma(E)/dE$  et d $\sigma(C')/d\Theta'$  (voire même  $\frac{d^2\sigma}{d\theta' dE}$  (E, $\theta'$ ))

sur un noyau de N et Z donnés qui peut être obtenue par notre méthode de collection. Nous avons donc développé deux techniques différentes pour chacune de ces deux mesures différentielles ; pour les mesures de E<sub>recul</sub> nous avons adapté les méthodes anciennes de collection hors ligne entre deux plateaux parallèles à la collection en ligne en essayant de faire disparaître au maximum toutes les contributions de champ électrique parallèles au faisceau ; pour les mesures de distributions angulaires, en raison des perturbations importantes de collection dans le sens perpendiculaire au faisceau, nous avons utilisé une technique tout à fait nouvelle consistant à laisser la cible et le faisceau

- 103 -

sous vide et à n'effectuer le collaction électrostatique qu'à l'intérieur d'une cellule remplie de gaz.

a) Mesure des distributions de recul

La principale modification par rapport aux systèmes précédemment utilisés (BRY 62, ALE 64) a porté sur l'élimination la plus complète possible de l'influence de la masse métallique que constitue la chambre à réaction. Pour cela la fenêtre d'entrée en nickel, et la cible, placée à proximité du volume où la symétrie longitudinale doit être assurée, sont portées à une haute tension intermédiaire entre celles des deux plateeux parallèles. De plus des fils régulièrement espacés sont placés à la périphérie pour assurer des conditions aux limites pour le potentiel qui permettent d'écranter la présonce de la masse. La représentation de l'ensemble apparait sur la fig, 51b.



## Fig. 51b: Dispositif expérimental de collection en ligne pour la mesure de distributions de recul

Une fente de 1 cm permet aux ions collectés de traverser le plateau supérieur, l'entrainement jusqu'au détecteur est alors effectué sur un parcours circulaire.

Les tests effectués sur la réaction  $^{12}$ C +  $^{209}$ Bi à 75 MeV d'énergie ont montré qu'une perte de rendement était observée à proximité immédiate de la cible (de 0 à 1,5 cm de recul). Ce résultat peut être expliqué en remarquant que le support et/ou la cible sont métalliques et perturbent localement (sur des distances équivalentes aux dimensions de la cible) le champ E en le diminuent fortement. En effet, à ce niveau, dans la direction où on voudrait établir le champ, la différence de potentiel entre les deux extrémités de la cible est nulle, et donc le champ également.

En dehors de cette difficulté, nous avons correctement observé un maximum d'activité pour des distances de recul correspondant à la formation du noyau composé.

b) <u>Mesure de distributions angulaires et en énergie</u>

Le développement de ces mesures est en cours et donnera certainement lieu à d'autres réalisations dans l'avenir, le modèle d'un"détecteur à collection électrostatique" présenté ici a été construit à titre d'essai et n'est donc pas optimisé, mais les résultats obtenus se sont révélés très positifs. Nous avons utilisé les propriétés des guides isolants dans un montage dont le schéma est représenté sur la fig. 51c.



#### Fig.51c: Le "détecteur à collection électrostatique"

La fenêtre d'entrée de 1 cm<sup>2</sup> ne permet pas le détection de l'ensemble des noyaux émis à un angle donné. Le rendement de détection pour l'ensemble des noyaux émis dans l'intervalle  $\mathfrak{P}, \mathfrak{C} + \Delta$  est donc assez faible (de 3 à 30%) dans la configuration présentée ici. Il est capendant très possible de modifier la géométrie de la fenêtre d'entrée de manière à couvrir beaucoup mieux la symétrie de révolution. Le caractéristique importante du système est que l'efficacité absolue de comptage des noyaux qui ont traversé la fenêtre est de l'ordre de 20%. Compte tenu de l'efficacité de S0% obtenue à la détection, cela représente un rendement de collection de 40% et donc une probabilité d'ionisation positive au moins supérisure à cette valeur. Ces résultats ont été obtenus dans l'He à une atmosphère.

Server Such

i.

Les limitations d'utilisation portent d'une part sur l'énergie minimale de recul nécessaire pour que les noyaux formés traversent là fenêtre mince, soit ici 3 MeV et d'autre part sur l'impossibilité d'aller aux très petits angles. Cependant comme l'ont montré nos études sur faisceau, les limitations sont plutôt liées à la géométrie (taille et dispersion angulaire du faisceau) qu'au nombre d'ions provenant de la diffusion élastique. En effet, les difficultés de collection provoquées par le faisceau ne sont pas présentes pour des intensités inférieures à 10<sup>7</sup> ou 10<sup>8</sup> particules/s, il ne semble donc pas à priori exclu de pouvoir placer un tel système à des angles aussi faibles que 1° à 2°.

Dans le cas d'énergies de recul très faibles comme on peut en rencontrer dans les interactions entre ions lourds très énergétiques ce détecteur ne peut pas convenir du fait de l'épaisseur minimum de la fenêtre d'entrée nécessaire pour tenir une pression voisine de une atmosphère. La seule solution pour pouvoir utiliser des fenêtres très minces (10 µg) ne produisant qu'une perte d'énergie de l'ordre de 100 keV pour des noyaux de recul d'énergie très faible (quelques MeV) est d'utiliser des pressions de gaz faibles et identiques de chaque côté de la fenêtre. L'enceinte à réaction est donc à nouveau placée dans

- 106 -

un gaz. Les fenêtres quoique très minces ont une épaisseur très largement suffisante pour arrêter les ions créés dans le faisceau qui diffusent du fait de le charge d'espace perpendiculairement à celui-ci. Le volume de détection est donc exempt des ions  $N_2^{+}$  créés par le faisceau. Le volume utile du détecteur est alors limité en profondeur afin de pouvoir obtenir l'information doublement différentielle d<sup>2</sup> $\sigma/d\Omega dE$ . C'est donc un détecteur de fin de parcours. Un premier essai d'un tel détecteur sur le faisceau du <sup>12</sup>C du CERN a été récemment couronné de succès. L'efficacité absolue est au moins aussi honne que dans le cas précédent. La pression d'He utilisée était de 50 mbar. Le détecteur était placé sous l'ouverture d'entrée du dispositif de transport représenté sur la figure 51b.

#### CHAPITRE III

## PRODUCTION DE NOYAUX ET DESEXCITATION LDIN DE LA STABILITE

L'étude de nouveaux isotopes est très dépendants des moyens de production de noyaux de plus en plus loin de la stabilité. L'apparition de nouveaux faisceaux permettant de créer des fusions nucléaires de plus en plus exotiques et de nouveaux mécanismes de réaction a fait faire des bonds successifs dans cette voie de recherche. Corrélativement des systèmes de collection de plus en plus élaborés ont vu le jour. Parallélement à cette évolution technique, il est nécessaire de comprendre théoriquement les mécanismes de réaction conduisant à la production des noyaux exotiques, afin d'une part de pouvoir prévoir les étapes expérimentales ultérieures et d'autre part comme une contribution à la physique nucléaire fondamentale.

Dans ce chapitre, nous allons exposer quelques résultats expérimentaux et théoriques liés à l'étude de la production d'isotopes très loin de la ligne de stabilité. Seront décrites tout d'abord les expériences que nous avons menées à Orsay et qui ont conduit à la découverte du <sup>184</sup>Pb à l'aide de la chambre à recul dans les gez. L'étude des fonctions d'excitation et des corrélations dans le temps  $\alpha$ - $\alpha$  du père et du fils ont été utilisées.Dans un second chapitre sera développée l'étude théorique du mécanisme de fusion-désexcitation pour les noyaux très exotiques. L'évolution avec l'énergie des densités d'état et des barrières de fusion sera plus particulièrement analysée. Cet élément du calcul est des plus importants si on veut traiter correctement toutes les étapes de la désexcitation qui conduisent au noyau résiduel. Dans une troisième partie enfin seront développées quelques idées sur les possibilités de s'éloigner plus encore de la ligne de stabilité en utilisant les réactions secondaires dont les taux de production devraient devenir suffisants grâce aux faisceaux très intenses d'ions lourds ou légers que les nouvelles machines (GANIL, SIN, TRIUMPF ...) doivent prochainement fournir.

## A - LES REACTIONS DE FUSION-DESEXCITATION DANS LA REGION DES PLOMBS DEFICIENTS EN NEUTRONS

La fusion par ions lourds permet de former des nayaux composés situés très loin de la stabilité. Les faisceaux dont le rapport N/Z est proche de 1 et dont la masse est comprise entre 40 et 60 conviennent particulièrement bien pour atteindre la zone des isotopes très déficients en neutrons de Z voisin de 82.

Le faisceau de <sup>40</sup>Ca, disponible au CEV Orsay, est un des plus intéressants en particulier par le fait que les faisceaux plus lourds (<sup>58</sup>Ni, <sup>64</sup>Zn ...) ont des sections officaces de fusion plus faibles et amèrent davantage de moment angulaire et de désexcitation par fission.

> Nous avons donc étudié les réactions : <sup>40</sup>Ca + <sup>150</sup>Sm. <sup>148</sup>Sm. <sup>147</sup>Sm at <sup>151</sup>Fu

Les cibles isotopiquement séparées ont été préparées par peinture (RIV 77). Le nitrate de l'élément est dissout par l'alcool puis placé en milieu organique (acétone et solution de nitrate de cellulose dans l'acétate d'isoamyle). Une goutte de la solution est alors étalée sur un support Al, séchée et calcinée et ce jusqu'à épuisement de la solution. Les épaisseurs d'oxydes déposées étaient de 0,6 mg à 2 mg/cm<sup>2</sup> obtenues avec des rendements globaux compris entre 30 et 70%.

L'énergie du faisceau a été soigneusement mesurée par une détermination du chemp magnétique de l'aimant principal de déviation à la sortie de la machine. La calibration préalable avait été obtenue par la méthode de mesure d'énergie mise au point par Bimbot et al (BIM 79). Pour l'obtention de fonctions d'excitation, l'énergie nominale était dégradée par des feuilles d'aluminium calibrées en épaisseur et la perte d'énergie a été calculée d'après les mesures et les tables de Hubert et al (HUB 80). La précision obtenue sur le positionnement en énergie à mi-cible est  $\Delta E = \pm 5$  MeV (après traversée du ralentisseur, de la fenêtre de nickel, de 1 cm de gaz N<sub>2</sub>, et du support de cible 1 mg Al).

#### 1 - RESULTATS EXPERIMENTAUX, FUNCTIONS D'EXCITATION

Pour obtenir le meilleur rendement correspondant à des périodes voisines de 1s, nous avons utilisé le montage focalisant au niveau du faisceau déjà mentionné au Chapitre II. La pression de 350 mbar  $N_2$  et l'intensité de faisceau (de 20 à 150 nA Ca) ainsi que les conditions de tensions correspondeient aux optimisations faites sur le  $^{152}$ Er (T = 10s) et donc à un rendement voisin de 2%. Cependant on ne peut pas à priori savoir quels rendements ont été obtenus réellement sur les isotopes de la région Hg, Tl, Pb ... essentiellement parce que les natures chimiques, les potentiels d'ionisation et les affinités électroniques varient d'un corps à l'autre assez fortement et différent sensiblement des caractéristiques des terres rares (Table 1).

Elément	P,t	Αų	Hg	71	РЬ	Bi	Er
Potentiel d'ionise- tion (eV)	9,0	9,2	10,4	6,1	7,4	7,3	6,1

Table 1 : Potentiel d'ionisation des éléments de la région du Hg

Il ressort des expériences que nous avons faites que ces éléments sont accessibles par le méthode électrostatique ; le détail des résultats est cependant nécessaire pour

- 110 -

séparer les collections réélles des détections après filiations issues de noyaux collectés sur le détecteur.

Des fonctions d'axcitation ont été faites sur deux cibles principalement : <sup>148</sup>Sm et <sup>150</sup>Sm. Les résultate sont portés sur les figures 52 et 53 pour les voies d'évaporation xn aboutissant à la formation d'isotopes de plomb :

					+	2n	188 <sub>Pb</sub>	(T	=	24,	5s)	Eα	=	5,98	MeV
40 Ca	+	150 Sm	+	190 <sub>Pb</sub> #	+	3n	187 <sub>Pb</sub>	(т	=	17	s)	Εa	=	6,08	МøV
					*	4п	186 <sub>Pb</sub>	ſΤ	=	6	s)	Eα	=	6,32	MøV
					+	۶n	185 Pb	( 7	=	?	3	٤a	=	6,40	MeV

<sup>40</sup> са	÷	<sup>148</sup> sm	+	<sup>188</sup> РЬ <sup>*</sup>	+	2n	186 <sub>Pb</sub>				
					+	Зn	185 <sub>Pb</sub>				
					+	4 n	<sup>184</sup> РЪ	۳	Ŧ	6,62	Me
								~			



Fig. 52 : Fonctions d'excitation expérimentales pour les réactions <sup>148</sup>Sm(Ca.xn)<sup>188-x</sup>Pb



Fig. 53 : Fonctions d'excitation expérimentales pour les réactions <sup>150</sup>Sm(<sup>40</sup>Ca,xn)<sup>190-x</sup>Pb

La nouvelle activité alpha détectée à 6,62 MeV apparait clairement sur les fonctions d'excitation du <sup>148</sup>Sm à l'emplacement attendu pour une voie d'évaporation 4n, c'est à dire avec un maximum situé vers 60 à 65 MeV d'énergie d'excitation. La comparaison avec la position de la même voie 4n sur le <sup>150</sup>Sm est très démonstrative.

Comme le calcul de l'énergie d'excitation d'un isotope à l'autre dépend des valeurs de masse fournies par les extrapolations théoriques (MAR 76) et que d'autre part la désexcitation statistique peut être différente pour deux noyaux composés proches des limites de stabilité nucléaire, il est intéressant de comparer pour un même noyau composé des voies d'évaporation conduisant à un même nombre de particules évaporées comme par exemple des voies (4n), (p3n), (α3n), (α,p,2n] etc...

Dans la désexcitation du <sup>190</sup>pb, nous avons pu ainsi obtenir les fonctions d'excitation de plusieurs chaines à 4 particules et à 5 particules. Sur la figure 54 sont portées



Fig. 57 : Fonctions d'excitation pour l'évaporation de 3 particules dans la réaction <sup>40</sup>Ca + 148<sub>Sm</sub> les fonctions d'excitation des noyaux résiduels formés après évaporation de 4 particules :  $^{186}\text{Pb}$  (4n) ;  $^{183}\text{Hg}$  (a3n) ;  $^{183}\text{Au}$  (ap2n). Sur la figure 55 sont portées celles correspondant à l'évaporation de 5 particules :  $^{165}\text{Pb}$  (5n) ;  $^{182}\text{Hg}$  (a4n) ;  $^{185}\text{Hg}$  (2p3n).

D'autres voies du même type n'ont pas été reportées à cause du très faible embranchement alpha de l'isotope formé donnant des activités très faibles ou non détectées. Les voies formées par( $\alpha$ , xn)ont une remontée à haute énergie correspondant à l'autre formation possible [2p, {x + 2}n].

Les positionnements en énergie des différentes voies à 5 particules sont remarquablement proches avec un léger décalage vers les plus hautes énergies pour les voies comprenant l'émission d'une ou deux particules chargées. Il en est de même avec un décalage un peu plus fort pour les voies à 4 particules.

Pour la désexcitation du <sup>188</sup>Pb les voies les plus fortement produites sont celles à 3 et 4 particules, et les mêmes comparaisons entre les différentes voies possibles sont reportées sur les figures 56 et 57.

Les correspondances entre les positions des sommets des fonctions d'excitation (avec toujours le léger décalage des voies  $\alpha$ ,xn et p,xn vers les hautes énergies) fournissent donc un argument très sûr pour attribuer l'activité  $E_{\alpha}$ =6,62 MeV au <sup>184</sup>Pb (voie 4n).

Une conclusion annexe concernant la collection des mercures peut être tirée des résultats sur les voies  $\alpha$ ,xn. On sait que les méthodes de jet d'hélium ont une mauvaise efficacité (en l'absence d'additifs spéciaux) pour cet élément dont le potentiel d'ionisation est aussi le plus élevé de la région et il est intéressant de savoir si l'ionisation du mercure se fait normalement dans notre méthode. L'ambiguité possible dans la collection des activités identifiées par la spectroscopie  $\alpha$  (par exemple <sup>161</sup>Hg) vient des possibilités de confusion due à la collection d'un isotope père (<sup>161</sup>Tl) suivie d'une désintégration  $\beta$  sur la jonction ( $\rightarrow$  <sup>161</sup>Hg). Dans le cas d'une vaie  $\alpha$ .3n (<sup>161</sup>Hg, NC = <sup>168</sup>Pb) le père éventuel serait produit par une voie p.6n,soit après l'évaporation de 7 particules,ce que la figure 54 infirme manifestement.La confusion est évidemment possible sans moyen de séparation pour des voies xn et p,(x-1)n.

La collection directe des mercures et plombs est donc certaine, celle des thallium est très probable compte tenu de productions supérieures aux possibilités de filiations.

Il faut mentionner de plus un résultat partiel portant sur la détection d'une activité  $\alpha$  à 6,30 MeV dans la réaction <sup>40</sup>Ca + <sup>151</sup>Eu. La spectroscopie alpha n'est pas tras facile dans cette gamme d'énergie à cause du pic à 6,32 MeV dû au <sup>186</sup>Pb. Les deux spectres de la figure 58 montrent clairement la superposition des deux pics et l'évolution du rapport de production avec l'énergie d'excitation. L'énergie  $\alpha$  n'est pas très élevée et ne semble pas issue d'un nouvel isotope, il s'agit probablement d'un isomère produit à gravde énergie d'excitation avec un moment angulaire important. L'évacuation par évaporation de ce moment angulaire pourrait correspondre à une voie  $\alpha$ ,xn et à un T1 (par exemple 184), mais il est possible qu'il s'agisse d'un autre élément. L'ángen-



Fig. 58 : Variations de la forme du pic à 6,30-6,32 MeV autour de E<sup> $\phi$ </sup> = 70 MeV produit dans la réaction <sup>40</sup>Ca + <sup>151</sup>Eu

- 115 -

tification est très difficile parce que dans le cas des isomères les fonctions d'excitation ne correspondent pas à celles du fondamental et dépendent fortement du J de l'état isomérique. Il ne semble pas que les spectromètres de masse aient vu cette activité.

La présence de cette raie à 6,30 MeV qui se sépare difficilement du pic à 6,32 MeV du <sup>186</sup>Pb, peut expliquer la largeur considérable de la voie 2n observée avec le <sup>148</sup>Sm dont le prolongement à E<sup>¥</sup> = 65 MeV correspondrait à une voie p3n ou p4n donnant les thallium 183 ou 184.

Un faisceau de  ${}^{39}$ K permettrait de former directement les Tl à partir des cibles de samarium et de préciser le mécanisme de production de cet isotope , des développements de sources d'ions de potassium sont précisèment en cours au C.E.V. d'Orsay.

#### 2 - DETECTION ET CORRELATIONS ALPHA

La chaine d'amplification linéaire était en permanence contrôlée avec un générateur d'impulsion de grande stabilité. L'étalonnage a été effectué à partir des énergies  $\alpha$  de <sup>216</sup>Po ( $E_{\alpha} = 6776, 5 \text{ keV}$ ), <sup>212</sup>Bi ( $E_{\alpha} = 6051 \text{ keV}$ ,  $E_{\alpha} = 6090 \text{ keV}$ ), <sup>212</sup>Po (8784 keV), et une non-linéarité de 1%, a été constatée entre 4 MeV et 9 MeV d'alpha qui nous a conduit à une correction de 6 keV au niveau de  $E_{\alpha} = 6,62 \text{ MeV}$ . La détection se faisant pour des noyaux déposés sur la surface d'or du détecteur (40 µg) la perte moyenne d'énergie d'une particule alpha est légèrement supérieure, à cause des grands angles d'émission, à la perte d'énergie présente quand la source est située à quelques centimètres de la surface d'Dr. Cette correction est faible : 2 keV (théorique) ; la mesure a donné une différence d'énergie de 1.5 ± 1.5 keV.

La correction totale effectuée par rapport au résultats brut d'un étalonnage linéaire a été de 8 keV pour le  $^{184}{\rm Pb}$  donnant une énergie E $_{\chi}$  = 6620 ± 10 keV.

116 -

L'enregistrement des désintégrations alpha a été fait, avec une prise de temps pour chaque signal, dans une séquence linéaire. Ceci a été effectué à l'aide d'un calculateur TN11 fonctionnant en mode "list ". L'ordre des évènements étant conservé il est alors possible de suivre au cours du temps les désintégrations successives des isotopes d'une chaine radioactive. Cette méthode a déjà été employée avec succès comme moyen d'identification au filtre de vitesse de Darmstadt (VER 80).

L'identification est possible si plusieurs conditions sont remplies : faible taux de comptage sur le noyau père et le noyau fils pour que le taux d'évènements successifs fortuits soit faible ; embranchement R du noyau fils élevé (de 20 % à 100%) ; période du noyau fils T relativement courte (quelques secondes, ordre de grandeur lié aux fortuites) et enfin efficacité c de détection assez forte. Pour une fenêtre en temps t, la probabilité de corrélation est alors donnée par la relation :  $P = R.\epsilon. (1 - e^{-Log 2 \cdot t/T})$ 

Dans le cas de <sup>164</sup>Pb le fils émetteur a est <sup>160</sup>Hg(T=3s). noyau parfaitement identifié par spectrométrie de masse (HAN 70) mais dont l'embranchement a est inconnu. Il est cependant estimé à 30 %. En utilisant cette valeur le nombre de désintégrations corrélées  $E_{\alpha_1} = 6,62$  MeV,  $E_{\alpha_2} = 6,12$  MeV dans une fenêtre de temps de 6 secondes, correspondant à la désintégration successive de <sup>184</sup>Pb et de <sup>180</sup>Hg est alors de 10 % en prenant une efficacité de détection de 45 %.

Le nombre total d'évènements  $E_{\alpha_1}$  formés dans la réaction <sup>40</sup>Ca + <sup>148</sup>Sm, enregistrés en list-mode était 32 entre 6,58 MeV et 6,56 MeV. Nous avons trouvé trois évènements correspondant au couple de désintégrations  $E_{\alpha_1}$ ,  $E_{\alpha_2}$  séparés de moins de 6 s, ce qui est en bon accord avec les estimations de 30 % pour l'embranchement  $\alpha$  de <sup>180</sup>Hg.

La probabilité qu'un évènement  $E_{\alpha_2}$  se produise de manière fortuite dans la fenêtre de 6 s après la détection de  $E_{\alpha_1}$  calculée à partir des taux de comptage sur toute la durée de l'expérience est de  $10^{-1}$ . En conséquence la probabilité que l'ensemble des trois corrélations en temps  $E\alpha_1$ .  $E\alpha_2$ soit dû à des coincidences fortuites est seulement de  $10^{-3}$ . On voit donc que même avec très peu d'évènements corrélés l'identification d'une nouvelle activité a peut-être faite avec une confiance particulièrement grande.

Au delà du cas particulier du <sup>184</sup>Pb où la méthode est proche de sa limite d'application (il semble difficile de descendre en dessous de trois évènements !) il faut souligner que les possibilités d'utilisation sont plus grandes pour des isotopes très éloignés de la stabilité. En effet l'embranchement  $\alpha$  croissant et la période décroissant avec l'exaticité impliquent que P tende vers  $\varepsilon$  (efficacité de la détection, ici  $\varepsilon = .45$ ) d'une part, et que les probabilités des fortuites décroissent ; on peut ainsi envisager une identification sûre à 10<sup>-5</sup> pour 10 noyaux formés au total et 4 en coincidences à moins de 1 seconde.

#### 3 - LES MASSES NUCLEAIRES

On s'interroge souvent sur le pouvoir de prédiction des modèles nucléaires, car la confrontation avec les données nouvelles est un test souvent plus sévère que la contrainte d'un "fit" sur des données existantes.

L'étude près des couches fermées est d'un intérêt particulier, puisque les "corrections de couche" sont extrêmement importantes quand on veut décrire les propriétés macroscopiques d'un noyau (barrières de fission, durée de vie, déformation) et que la connaissance de ces phénomènes est encore imprécise, notamment dans les régions loin de la stabilité.

Les prédictions des diverses tables de masse pour l'énergie  $\alpha$  du <sup>184</sup>Pb sont reportées dans le tableau 2. On constate que la valeur de LIRAN-ZELDES est la meilleure.

Auteurs	MYERS	GROOTE HILF TAKAHASHI	SEEGER HOWARD	LIRAN	BEINER LOMBARD MAS	JANECKE Garvey Kelson	LOMAY KELSON	JANECAE
<sup>' a</sup> Hev	5,35	6,27	6,96	6,90	4,48	7.75	8,48	5,68
н <sub>184</sub> уь	-13,63	-12.80	- 10,00	-10,06	-12,50	-5,75	-4,85	-13,21
<sup>m</sup> 100 <sub>Hg</sub>	-21,40	-21,49	-19,40	- 19, 38	- 19,50	-15,42	- 15,75	-21,30

Une extrapolation phénoménologique de l'énergie  $\alpha$  des isotopes pair-pair des plombs s'avère beaucoup plus précise pour prédire l'énergie de la radioactivité  $\alpha$  du <sup>184</sup>Pb. On peut alors porter en fonction de N, nombre de neutrons de l'isotope considéré la différence

 $\Delta_{\alpha,N} = E_{\alpha,N} - E_{\alpha,N-2}$ 

de l'énergie de désintégration  $\alpha$  de cet isotope et de l'isotope ayant deux neutrons de moins du même élément. On peut ainsi à partir des données connues extrapoler comme sur la figure 59 cette grandeur au Pb 186 et calculer ainsi l'énergie E<sub> $\alpha$ </sub> de désintégration du <sup>184</sup>Pb. On obtient : E<sub> $\alpha$ </sub>, <sup>184</sup>Pb=6,53±0,01MeV. En bon accord avec la valeur de 6,62 MeV trouvée expérimentalement. Cette méthode permet de même de prédire une énergie de 5,89 MeV pour la désintégration  $\alpha$  du <sup>182</sup>Pb.



Fig. 59 : Valeurs expérimentales de  $\Delta_{\alpha,N}$  en fonction de N pour Z = 82 (isotopes pairs) et prolongement à N = 100

- 119 -

Cette méthode d'extrapolation est possible quand la structure nucléaire évolue lentement quand N décroit ; tout écart expérimental à ces courbes "douces" est une indication importante pour affirmer l'existence d'un changement de l'état fondamental du noyau à cet endroit.

Pour le <sup>184</sup>Pb on n'a donc pas de cassure et l'état fondamental de ce noyau est probablement très semblable aux autres isotopes pairs de plomb ayant plus de 102 neutrons qui sont des noyaux sphériques. L'observation du <sup>182</sup>Pb serait très intéressante parce qu'une couche fermée pour 100 neutrons est attendue associée avec une déformation du fondamental, l'énergie a serait alors inférieure à la valeur de 5,90 MeV extrapolée ampiriquement.

Au niveau du fondamental, il semble donc que même avec 24 neutrons de moins que <sup>208</sup>Pb la fermeture de la couche Z = 82 continue à avoir une forte influence,

- 120 -

## B - LES EFFETS DE COUCHE ET LA DESEXCITATION STATISTIQUE LDIN DE LA STABILITE

La force des effets de couche est plus ou moins bien décrite pour l'état fondamental des noyaux ; par exemple pour N = 126 et différents Z.Schmidt et al (SCH 79) trouvent que l'effet de couche pour les neutrons décroit continuement avec Z en contradiction avec les tables de Myers (MAR 76). Cependant ces effets sont réels et il faut les prendre en compte également quand on veut obtenir une description quantitative du phénomène de désexcitation statistique. La question très importante qui se pose alors est de savoir comment les effets de couches doivent disparaitre à haute énergie d'excitation et à partir de quel seuil. La réponse à cette question est déterminante aussi bien dans la recherche d'isotopes exotiques sans compétition de fission (par exemple <sup>100</sup>Sn) que pour la recherche d'éléments lourds ou super-lourds. Elle permettrait de lever l'ambiguité résultant de l'insuccès de la production de ces isotopes qui peut provenir du fait que leur état fondamental est non lié ou que le mécanisme de réaction ne les produit pas.

Le domaine considéré correspondant aux expériences décrites dans le paragraphe précédent recouvre les plombs, sphériques et sur une couche fermée, les thallium et les mercures, juste en dessous de la couche fermée présentant des déformations importantes et des isomères de forme. La fission est une voie de désexcitation majeure compte tenu des barrières assez basses (10-20 MeV) et du moment angulaire apporté dans la fusion par ion lourd.

Les méthodes existantes pour calculer les densités d'états nucléaires sont nombreuses, mais beaucoup ont pour but une description moyenne dans une région de N et Z avec des variations lentes d'un noyau à l'autre (AYI 74) ou une descrip-

- 121 -

tion phénoménologique valable e sentiellement sur la ligne de stabilité (IGN 75). Nous avons donc utilisé une méthode de type statistique (faisant intervenir les grandes fonctions thermodynamiques T, S,  $\Omega$ ,  $\mu$ , etc...) qui permet la détermination des densités d'états du noyau à partir d'un ensemble de niveaux de particules individuelles ; nos caluls ont été faits avec le programme MDLOCH de L. Moretto (MDR 72).

1) Le calcul des densités d'état

a) Le formalisme

La référence donnée ci-dessus contient le détail des équations permettant d'obtenir la densité d'état ; nous rappelerons cependant les relations principales :

$$\omega(E,N,Z) = \left(\frac{1}{2\pi i}\right)^3 \int d\beta \int d\alpha_N \int d\alpha_7 e^S$$

où S est l'entropie et w(E,N,Z) la densité d'état.

S est obtenu par la détermination de la grande fonction de partition du système  $Z(\beta, \alpha)$ . Dans le cas où le pairing n'est pas considéré, les équations sont celles d'un ensemble grand canonique à deux types de fermions (protons et neutrons) avec pour les neutrons :

 $S_N = L_n Z(\beta, \alpha_n) - \alpha_N + \beta E_N$ 

еţ

$$L_{n} Z(\beta, \alpha_{n}) = \sum_{k} L_{n} \left( 1 + \exp \left( \alpha_{N} - \beta \epsilon_{k} \right) \right)$$

Deux relations identiques peuvent être écrites pour les protons. On a alors : S = S  $_{\rm N}$  + S  $_{\rm P}$  .

Les probabilités d'occupations des niveaux  $n_{k} = \frac{1}{\beta \epsilon_{k} - \alpha}$  servent à déterminer la température t = 1/β

du système et les potentiels chimiques  $(\alpha/\beta)$  par les relations de conservation du nombre total de neutrons (et de protons) du système  $\sum_{n} n_k = N$  et de l'énergie totale E =  $E_N + E_p$  avec  $E_N = \sum_{n=1}^{\infty} E_k n_k$ 

- 122 -

 $S(\beta, \alpha_N, \alpha_Z)$  est obtenue au moyen de l'approximation du point selle (méthode de Darwin-Fowler) qui repose sur le fait que S présente un maximum quand les conditions de conservation du nombre de particules et de l'énergie sont remplies. La connaissance des dérivées secondes de S pour  $\beta.\alpha_N, \alpha_Z$  est alors suffisante pour calculer  $\omega(E, N, Z)$  analytiquement (mais sans connaissance précise de l'approximation faite). On obtient :

$$\frac{\partial^2 s}{\partial x_i j_i} = \frac{\partial^2 s}{\partial x_i j_i}$$
avec  $(x_1, x_1, x_k) = (\beta, \alpha_N, \alpha_2)$ 

 $\omega(E) = \frac{e^{S}}{\frac{3}{2} \frac{1}{2}}$ 

Dans le cas où l'on introduit une force de pairing l'expression qui donne la grande fonction de partition est plus compliquée et fait intervenir le formalisme de BCS donnant

l'équation du gap 
$$\frac{2}{G} = \sum_{k}^{th} \frac{\left(\frac{1}{2} \beta E_{k}\right)}{E_{k}} \text{ avec } E_{k} = \left[\left(\varepsilon_{k}^{-\mu}\right)^{2} + \Delta^{2}\right]^{\frac{1}{2}}.$$

La théorie statistique complète est développée dans l'article de Sano et Yamasaki (SAN 63). Le calcul de S et de ses dérivées est alors différent mais la méthode du point selle s'utilise de manière identique.

> b) Le modèle microscopique fournissant les niveaux de particules individuelles

L'intérêt de la méthode statistique est de permettre la prise en compte par le calcul de niveaux discrets réalistes, voire expérimentaux, sans aucune supposition arbitraire comme un espacement régulier ou périodique des niveaux à une particule.

Pour obtenir un ensemble homogène de niveaux dans l'état fondamental et dans la configuration du point selle pour la fission, il est nécessair, de pouvoir paramétriser la forme du novau jusqu'à des états présentant un col.

En se limitant aux déformations sur un seul axe de révolution. Stavinsky et al (STA 68) ont montré que les ovales de Cassini, paramétrisés par la variable & caractérisant la déformation, permettaient de décrire simplement et de manière réaliste la forme de noyaux évoluant vers la fission symétrique.

En coordonnées polaires les surfaces nucléaires sont définies par l'équation avec :

 $\phi(\mathbf{r}, \mathbf{Z}) = (\mathbf{r}^2 + \mathbf{Z}^2)^2 + 2\varepsilon(\mathbf{r}^2 - \mathbf{Z}^2) + (\varepsilon^2 - 1)\mathbf{R}^4(\varepsilon) = 0$ 

 $R(\epsilon) \text{ est obtenu en normalisant pour chaque valeur de <math display="inline">\epsilon$  le volume total défini par  $\phi(r,Z)$  à la valeur  $(4\pi/3)r_0^3A$ , ce qui assure la constance de la densité nucléaire. La forme sphérique correspond à  $\epsilon$ =0 et  $R_0$  =  $r_0A^{1/3}$ ; la valeur  $\epsilon$  = 1 correspond à la contiguration de scission.

Il est alors possible d'utiliser une méthode proposée par Pashkevich (PAS 71) pour généraliser l'usage d'un potentiel de Woods-Saxon aux cas de noyaux non sphériques. Le potentiel V(r,Z) est alors donné par les équations :

Quand  $\epsilon=0$ ,  $\phi(r,Z) = (r^2+z^2)^2 - R_0^4$  et V(r,Z) est alors un potentiel de Woods-Saxon.

Les valeurs de <sup>V</sup><sub>O</sub>, a et R<sub>O</sub> ont été déterminées par Rost pour le <sup>208</sup>Pb à partir des résultats expérimentaux don ant la répartition des premiers niveaux (ROS 68, DUD 78). La résolution de l'équation de Shrödinger avec le potentiel V fournit un ensemble de niveaux de particules individuelles pour chaque noyau (N,Z) et chaque déformation (c).

### 2) Les densités d'état numériques et les formules usuelles

Pour des niveaux à une particule supposés équidistants, remplis avec deux types de fermions (gaz de Fermi) la densité d'états du novau dépend de E selon l'expression (LAN 65) :

 $\omega(E) \simeq \frac{\sqrt{\pi}}{12} \quad \frac{\exp 2\sqrt{aE}}{E^{5/4}a^{1/4}} \qquad \text{avec } S^2 = 4aE \text{ et } a = \pi^2 g/6$ 

où g est la densité des niveaux de particules.

Une manière équivalente d'énoncer l'hypothèse des niveaux équidistants est de dire qu'on ne considère pas les effets de couches. En effet, comme le montrent Brack et al (BRA 72), la moyenne sur la densité de niveaux individuels est contante ou lentement variable pour des noyaux voisins et les variations de cette densité sont liés à l'apparition des noyaux magiques (faibles densités) et des effets de couches. général.

Il est donc normal que près des couches fermées les expériences de résonance neutroniques montrent que la formule du gaz de Fermi n'est pas valable (GIL 65, BAB 70, DIL 73). Cependant les mesures de  $\omega(E)$  sont faites à basse énergie ( $\sim$  8 MeV) et des arguments théoriques généraux (WIL 72) incitent à penser qu'à plus haute énergie d'excitation une description du type gaz de Fermi redevient valide avec une seule correction : S<sup>2</sup> = 4a(E-\delta), où  $\delta$  est déterminé phénoménologiquement mais "apparenté" aux effets de couches.

Pour l'application aux calculs de désexcitation nucléaire le dilemne est alors le suivant : ou bien on utilise les résultats expérimentaux à basse énergie et en extrapolant aux hautes énergies on risque d'exagérer considérablement l'influence de l'effet de couche, ou bien on utilise un modèle dont la validité à haute énergie est purement théorique et qui n'est certainement pas valable à basse énergie.

Les programmes de désexcitation utilisent en général des formules du type gaz de Fermi et tempèrent ce choix en faisant de a un paramètre généralement égal à A/8 mais au besoin "ajustable" (GRO 67).

Face à ce problème, les calculs de densités d'état numériques comme ceux développés par Moretto ou Huizenga (HUI 72, MOR 72), tenant compte de niveaux de particules individuels réalistes, permettent une description correcte des densités de niveau aussi bien à basse énergie, en étant sensible aux effets de couche (HUI 74), qu'à haute énergie. Pour simplifier l'utilisation de tels résultats numériques, il est intéressant de les paramétriser à l'aide de fonctions analytiques semblables par la forme aux équations du gaz de Fermi.

A haute énergie (100 MeV<E<200 MeV) des évolutions de  $\omega(E)$  du type  $\omega(E) = k \exp 2\sqrt{a(E - \Delta E)}$  s'approchent d'assez près des résultats numériques du calcul statistique. Mais il ne faut pas identifier à priori les paramètres a et  $\Delta E$  avec les paramètres du gaz de Fermi (a) ou du "back-shifted model"  $(\Delta E = |\Delta W|_{couche})$ . Moretto a montré que  $\Delta E$  variait avec l'énergie (MOR 72 bis), dans le domeine de 200 à 500 MeV ; Williams et al (WIL 72) ont montré que les moyennes sur les densités de particules individuelles qui sont faites dans le calcul statistique sont analogues aux moyennes définies par Strutinsky (STR 67) et que les grandeurs  $\Delta E$  et  $\Delta W$  présentent des corrélations fortes, mais ne sont pas identiques. La valeur de  $\Delta E$  peut dans certains cas être très proche de  $|\Delta W|$  comme l'ont montré Kahn et Rosenzweig (KAH 69) pour des niveaux de particules individuelles périodiques et Ramamurthy et al (RAM 70), dans le cas de noyaux sphériques et sans pairing avec l'appui expérimental des résultats sur la fission des actinides.

- 126 -

A basse énergie les résultats du calcul statistique se rapprochent très correctement (pour des noyaux déformés ou sphériques) des résultats de résonance neutronique (HUI 74) et correspondent à des variations des densités d'état du type :

Le valeur Aa<sub>couche</sub> représente l'écart au paramètre a, résultant de l'effet de couche (figure 60, extraite des travaux de Ignatyuk et al, IGN 75).



Fig. 50 : Variation du paramètre de densité de niveau expérimental a sur A, et de la correction de couches sur les formules de masse &W établie par la méthode de Strutinsky, en fonction de A pour les noyaux stables

La similitude des variations de a/A et de  $\Delta W$  est remarquable et permet de mixer les deux évolutions à haute et à basse énergie en une seule sans augmenter le nombre de

- 127 -

paramètres. Ignatyuk et al (IGN 75) proposent une forme du type :

 $s^2 = 4 a_{1,1m} \left[ (E + \Delta W (1 - e^{-\gamma E}) \right]$ 

Les valeurs limites de catte expression lorsque E tend vers 0 ou l' $\infty$  s'écrivent alors :

$$E \rightarrow 0$$
  $S^{Z} \approx 4 a_{1im}(1 + \gamma \Delta W) E$   
 $E \rightarrow \infty$   $S^{Z} \approx 4 a_{1im}(E + \Delta W)$ 

On peut alors identifier  $\tilde{a}$  (1 +  $\gamma\Delta W$ ) à ( $\tilde{a}$  -  $\Delta a_{couche}$ ) ce qui conduit à :

alors :

$$\gamma = 8. \frac{\Delta a_{couche}/A}{|\Delta w|}$$

Dans le cas quí nous intéresse plus particulièrement ici de la région de Z ≃ 82, on a alors :

 $\frac{\Delta a}{\Delta uche} = 0,8 \quad \text{et } \Delta W = 12 \text{ MeV}$ 

On obtient alors :  $\gamma = 0,53 \text{ MeV}^{-1}$ 

Pour l'ensemble des noyaux de cette région au voisinage de la stabilité,  $\gamma$  varie peu et il est donc possible de décrire l'évolution de  $\omega(E)$  avec seulement trois paramètres :  $a_{1im}, \Delta W$  (effet de couche de Strutinsky,  $\gamma$  valeur phénoménologique représentant la disparition des effets de couche).

Sur la figure 61, on a représenté les variations de S<sup>2</sup> dans chacune des paramétrisations envisagées précédemment.





Les calculs numériques de densités d'état présentent des variations pour E  $\rightarrow$  0 et E  $\rightarrow \infty$  de type linéaire avec un raccordement entre ces deux régimes à priori inconnu ; il était intéressant de comparer les résultats du calcul avec une évolution du type Ignatyuk, en prenant a<sub>lim</sub>.  $\Delta W$  et  $\gamma$  comme des paramètres libres, pour des noyaux loin de la stabilité.

En règle général les calculs que nous avons faits pour des isotopes de plomb, thallium, mercure pour 180 < A < 190 à différentes déformations montrent qu'une paramétrisation du type Ignatyuk est possible à une bonne apporximation.

# Interprétation des résultats numériques de densités d'état à l'aide des paramètres ΔΨ,γ, a<sub>lim</sub>

Même pour les cas où la concordance entre la densité d'états numériques et une formule du type Ignatyuk ( $\omega_{fit}$ (E)) est la moins bonne ( $\Delta \omega / \omega \sim 20$ % pour E  $\sim$  15-25 MeV dans le cas le plus défavorable) l'évolution de  $\omega$  d'un noyau à un autre, pour des déformations variables, est très bien rendue par ce type de formule. Cela revient à dire que les variations de  $\omega(E)$  d'un noyau à l'autre sont beaucoup plus grandes que les erreurs introduites par le fit et les valeurs de  $\Delta W$  et  $\gamma$  qui paramétrisent la fonction  $\omega_{e+e}(E)$  définie par :

$$ω_{fit}(E) = \frac{\sqrt{\pi}}{12} = \frac{exp S}{E^{5/4}e^{1/4}}$$
 avec S<sup>2</sup> = 4 a<sub>lim</sub>(E + ΔW(1-exp(-γE)))

permettent de décrire simplement les évolutions des densités d'états numériques. Dans ce qui suit vont être étudiés les trois paramètres  $\Delta W, \gamma$ , a<sub>lim</sub>, et leur évolution lorsque l'on passe d'un noyau à l'autre et pour un même noyau lorsque varie le déformation.

i) Pour un même noyau la densité d'états varie fortement avec la déformation c. L'étude de AW = f(c) permet de déterminer pour quelle déformation l'effet de couche, calculé donc de manière thermodynamique, stabilise le noyau non seulement dans son état fondamental mais aussi pour les énergies intermédiaires de quelques MeV à 100 MeV.



Fig. 62 : Schématisation de la disparition à haute énergie de l'effet de couche.AW est défini comme la masse du fondamental moins la masse calculée par le modèle de la goutte liquide

La détermination de l'effet de couche dans le fondamental se fait donc ici en calculant l'énergie d'excitation disponible à haute et à basse énergie pour peupler les niveaux à une particule. Pour des déformations différentes, quand la densité d'états globale est plus basse (E<sup>\*</sup> diminué) à une énergie totale donnée, cela signifia que l'effet de couche dans le fondamental est plus stabilisateur.

On voit sur la figure 63 les résultats obtenus dans le cas de trois isotopes de Pb, Tl et Hg.



Fig. 63 : Variations des effets de couche dans le fondamental, déterminées par les valeurs des dansités d'état à haute énergie, en fonction de la déformation pour Pb, Tl, Hg. Les minimum de  $\Delta W$  indiquent les états stables :  $\varepsilon = 0$  pour le plomb (sphéricité),  $\varepsilon = 0$  et  $\varepsilon = .4$  pour Tl (isomères de forme),  $\varepsilon = .4$  pour le mercure (déformation oblate importante) Les résultats montrent que les plombs sont plus stables pour les déformations nulles, que les thallium présentent des isomères de forme, et que les mercures sont fortement déformés. Il est intéressant de noter que ces comportements sont globalement conformes aux résultats expérimentaux (BER 77, TOT 75, SCH 76). Compte tenu de la limitation aux déformations selon un axe et des différentes approximations faites dans le cours du calcul, on peut considérer qu'un tel résultat est tout à fait satisfaisant et qu'une certaine confiance peut âtre accordée aux capacités de prédiction de la méthode.

ii) La disparition de l'effet de couche avec l'énergie est caractérisée par la paremètre  $\gamma$ .En effet on peut dire que l'effet de couche a disparu quand pour une énergie totale E, l'énergie d'excitation E<sup>®</sup> vaut E +  $\Delta W$ , c'est à dire dans la paremétrisation adoptée quand (1 - exp (- $\gamma$ E)) est proche de 1 ou encore  $\gamma$ E >> 1. Les faibles valeurs de  $\gamma$  correspondent à une disparition des effets de couche lente, les fortes valeurs à une disparition rapide.

Les résultats pour les isotopes de plomb étudiés sont représentés sur la figure 64.



Fig. 64 : Variations de γ caractérisant la disparition des effets de couche avec l'énergie d'excitation en fonction du nombre de neutrons pour les plombs dans l'état fondamental sphérique (ε = D)

Comme on peut le constater, au delà des fluctuations locales le paramètre γ croit quand le nombre de neutrons décroit. Une évolution movenne linéaire est tout à fait competible avec la détermination "expérimentale" de y faite par Ignatvuk pour <sup>208</sup>Pb ( $\gamma = .05 \text{ MeV}^{-1}$ ). On constate donc, comme une tendance générale, que la disparition des effets de couche avec l'énergie d'excitation (indépendamment de leur valeur absolue) est d'autant plus rapide que l'isotope est loin de la ligne de stabilité. A 30 MeV d'énergie d'excitation l'effet de couche est encore présent à 20 % pour le <sup>208</sup>Pb quand il n'existe plus qu'à 2 %, pour le <sup>184</sup>Pb. Rappelons qu'une variation de 1 MeV sur l'énergie d'excitation au voisinage de 30 MeV induit une variation relative de 200% sur la densité d'état. En définissant ( $\Delta \omega / \omega_{couple}$ ) comme la variation relative de la densité d'état pour  $\gamma = 0$  (effet de couche supprimé) à la valeur de cette densité on peut quantitativement apprécier à une énergie donnée dans quelle mesure les effets de couche contribuent à  $\omega(E)$ ; après approximation ( $\Delta E/E < 1$ ) on obtient :

 $\begin{pmatrix} \Delta \omega \\ \omega \\ \omega \\ \text{couche} \end{pmatrix} \approx \left[ \sqrt{\frac{a}{E}} \mid \Delta W \mid \exp(-\gamma E) \right] - 1$ 

	E <sub>Me</sub> v	10	20	30	40	50	60	70	80	90
Δω	208 <sub>Pb</sub>	>10	>10	7.4	2.1	.84	.40	.21	.11	.06
ω	<sup>184</sup> РЬ	1.25	.07	10 <sup>-2</sup>	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%

Table 4 : Influence relative de l'effet de couche pour les deux isotopes de Pb : A = 184 et A = 208 sur la densité d'état du noyau en fonction de l'énergie d'excitation ( $\Delta W$  = -4.8 MeV et  $\gamma$  = 0.21 MeV<sup>-1</sup> pour <sup>184</sup>Pb)

- 133 -
Le calcul montre donc une atténuation de l'effet de couche comparable pour le  $^{184}$ Pb quand  $\epsilon^* = 20$  MeV à celle du  $^{208}$ Pb pour  $\epsilon^* = 90$  MeV.

Pour les plombs la déformation est nulle dans le fondamental, si on fait la même étude pour les mercures qui sont fortement déformés ( $\varepsilon = 0,4$ ) on constate le même phénomène sur l'évolution de  $\gamma$  en fonction de A, mais avec une pente beaucoup plus forte (fig. 65). Les valeurs absolues de  $\gamma$  sont du même ordre que pour une déformation nulle au niveau de A = 182. Il en résulte que pour les noyaux déformés la disparition des effets de couche avec l'énergie est extrêmement rapide pour les noyaux les plus déficients en neutrons connus. Pour les thallium où sont présents des isomères ( $\varepsilon = 0$  et  $\varepsilon = 0,4$ ) les mêmes variations apparaissent quoique avec des pentes ou des valeurs moyennes légèrement différentes (fig. 65).





Fig. 65 : Variations du paramètre Fig. 66 : Variations du paramètre γ pour les isotopes du Hg γ pour les isotopes du Tl

Pour les déformations plus grandes (E = 0,8) conduisant à la fission le paramètre y est calculé comme étant supérieur à 0.4 pour tous les isotopes de plomb de A < 190. Ces valeurs de y sont plus élevées que pour toutes les déformations plus petites et correspondent à une disparition complète des effets de couche dès que l'énergie d'excitation dépasse 10 MeV. iii) Le paramètre de densité de niveaux a<sub>lim</sub> : Dans l'expression de  $\omega(E)$  utilisée, les corrections de couche sont prises en compte essentiellement par  $\Delta W$  et  $\gamma$ , on s'attend donc à ce que les veleurs de a<sub>lim</sub> qui sont surtout déterminées par le comportement des densités d'état à haute énergie ne varient que très peu d'un isotope à l'autre.

Quand on calcule les valeurs de a/A pour la série Pb, Tl, Hg de A = 180 à A = 190, on trouve une valeur moyenne de 0,102 avec des écarts maximum de  $\pm$  1%, ce qui montre bien une convergence du comportement de l'ensemble des noyaux de cette région vers las hautes énergies.

Les valeurs ainsi trouvées ne peuvent pas être comparées directement aux valeurs expérimentales acquises à basse énergie, puisqu'alors les effets de couche sont présents et que lns valeurs de a trouvées dépendent de l'écriture de

 $\omega(E)$  (par exemple on peut écrire  $\omega(E) = k e^{2\sqrt{a(E-\delta)}}$  ou

 $\omega(E) = k e \frac{2 \sqrt{(a - \frac{\delta a}{E})E}}{E}$ 

Il est intéressant de noter que des descriptions très générales par des méthodes self-consistantes de type Hartree-Fock (BAR 81) sont en bon accord avec ces valeurs de a/A. Avec un potentiel effectif du type Skyrme III la paramétrisation de a/A obtenue par Barranco et al est :

$$\begin{pmatrix} a \\ -A \\ S \end{bmatrix}_{S_{III}} = 0,054 + 0,287 A^{-\frac{1}{3}} + 0,9 10^{-3} A^{-\frac{2}{3}}$$

Les termes en A  $\frac{1}{3}$  et A  $\frac{2}{3}$  sont les corrections de surface et de courbure à la formule démontrée par Landau pour un liquide de Fermi aux dimansions infinies :  $\frac{a}{A} = \frac{\pi}{4} - \frac{2m^{\frac{b}{2}}}{\pi^{2}k_{E}^{2}}$  où

 $k_{F} = 1,33 \text{ fm}^{-1}$  est le moment de Fermi et m la masse effective par nucléon.

Pour A = 185 on trouve  $\left(\frac{a}{A}\right)_{SIII}$  = 0,104 (à comparer

à la valeur - = 0,102, déterminée dans notre calcul).

On voit qu'une description ne tenant pas compte du détail de la structure nucléaire mais simplement du volume, de la surface et de la courbure du noyau devient pratiquement équivalente à la description détaillée que nous avons utilisée quand l'énergie d'excitation est assez grande.

C'est par son influence sur la surface principalement plutôt que sur la courbure du noyau que la déformation modifie la valeur de a. Le terme de surface 0,287 A<sup>-1/3</sup> dans (a/A)<sub>SIII</sub> est beaucoup plus important que le terme de courbure 0,9 10<sup>-3</sup>A<sup>-2/3</sup> (5 10<sup>-2</sup> par rapport à 2,8 10<sup>-5</sup> pour A = 185), or on sait que la surface d'un noyau ne dépend qu'au quatrième ordre de la déformation autour de la forme sphérique quand celle-ci conserve le volume. Cela doit donc donner une influence faible de la déformation sur a autour de  $\varepsilon$  = 0. Les calculs que nous avons effectués donnent les résultats suivants :

> $^{184}$ Pb : a<sub>lim</sub> (δ = 0.) = 18.822 <sup>a</sup>lim (δ = .4) = 18.910 a<sub>lim</sub> (δ = .8) = 1°.554 → forme du point sell

C'est ainsi que les états du point selle (déformation très grande) sont caractérisés par des paramètres de densité d'état nettement plus grands que ceux des déformations mayennes ou nulles. Ce résultat peut dépendre légèrement du type de paramétrisation choisi pour la déformation (ici des ovales de Cassini) mais provient essentiellement d'un comportement du type liquide de Fermi fini.

- 136 -

## C - INFLUENCE DES DENSITES DE NIVEAU SUR LES CALCULS D'EVAPORA-TION

Le problème principal dans la mise en peuvre d'un calcul d'évaporation n'est pas tellement de réussir à décrire grossièrement les faits expérimentaux dans un cas particulier en "ajustant" quelques peramètres, parce que tous les calculs, même les plus simples y parviannent assez bien. La difficulté réelle apparait quand on veut obtenir une "prédiction" aussi bonne que possible dans un cas précis de la carte des isotopes où les propriétés nucléaires ne sont pas standard (novaux exotiques, déformés, fissionnant, à proximité d'une couche fermée, etc...). Ces cas sont précisément ceux qu'on voudrait le plus savoir traiter (noyaux lourds ou super-lourds, noyaux exotiques, trappes Yrast, etc...). C'est pourquoi, avec un renversement de finalité implicite, on voit souvent le modèle statistique servir de mesure indirecte d'une grandeur peu ou mal connue. Par exemple les barrières de fission des novaux de masse A ≈ 200 sont fréquemment estimées de cette manière, en raison des difficultés des mesures directes. Cependant l'idée développée ici est que cela suppose une description par ailleurs sans faille des autres grandeurs intervenant dans le modèle et notamment des densités d'état. Certains auteurs (Schier et al ~ SCH 81 p, 270) en arrivent même à déduire du désaccord entre les calculs et l'expérience l'existence de phénomènes supplémentaires : "...le désaccord (sur la section efficace de la voie 2n) avec les calculs d'ALICE incite à se poser de sérieuses questions sur l'équilibre ou le non-équilibre du noyau composé avant l'émission de ces neutrons".Le moins qu'on puisse dire est que le programme ALICE n'est pas arrivé à un point de raffinement suffisant pour qu'une telle démarche soit justifiée.

Nous avons utilisé le programme GROGIF qui est une version, modifiée par H. Delagrange (DEL 77) pour inclure la fission au programme de Grover et Gilat (GRD 87). Nous discuterons tout d'abord des diverses données de base du calcul pour

- 137 -

les réactions  ${}^{40}$ Ca +  ${}^{148-150}$ Sm, puis nous comparerons les résultats théoriques aux mesures paur les voies xn en testant les paramètres AW et y qui caractérisent l'évolution des densités de niveau avec l'énergie.

#### 1 - LES DONNEES NUCLEAIRES ENTRANT DANS LE CALCUL

L'information première nécessaire pour un calcul de cusexcitation est l'évolution de la section efficace de fusion en fonction de l'énergie. En l'absence de mesures sur les systèmes précis que nous considérons, nous avons utilisé les résultats de Stockstad et al (STO 80) sur les systèmes  ${}^{40}_{\rm Ar}$  +  ${}^{148-154}_{\rm Sm}$ .

Dans le cas des cibles de samarium les expériences avec des faisceaux de <sup>40</sup>Ar et <sup>16</sup>0 (STD 81) ont montré que les déformations différentes pour A = 144 et A = 154 induisaient des variations importantes sur les seuils et les valeurs absolues des sections efficaces de fusion. Dans nos expériences la seule différence portait sur la charge du projectile (<sup>40</sup>Ca au lieu de <sup>40</sup>Ar) ; nous avons donc paramétrilé les résultats expérimentaux de Stokstad et al avec la méthode de Vaz et Alexander (VAZ 74, VAZ 78). Il s'agit essentiellement de substituer au potentiel unique habituellement utilisé pour décrire l'approche de deux novaux un spectre de potentiels différents correspondant à un degré de liberté supplémentaire, dans le cas où un des noyaux est déformé ; il s'agit de l'angle donnant l'orientation d'un des axes de déformation. La hauteur de la barrière de fusion est alors variable dans l'intervalle  $\{E_n - \Delta, E_n + \Delta\}$ . Considérant  $E_n$  et  $\Delta$  comme des paramètres il est possible de décrire très précisement les résultats expérimentaux. Reprenant les valeurs de  $\boldsymbol{E}_n$  et  $\boldsymbol{\Delta}$  obtenues pour les novaux de samarium, nous avons alors calculé des sections efficaces de fusion(Ca + Sm)avec les mêmes équations.

La deuxième catégorie de données utilisées par le calcul porte sur les masses nucléaires. Quand elles n'étaient pas connues expérimentalement nous avons utilisé les valeurs de Liran at Zeldes (MAR 76) qui semblent être les meilleures. Les énergies de liaison n,p, $\alpha$  sont le reflet direct des effets de couche dans le fondamental. Une manière parfois utilisée pour faire disparaitre les effets de couche à haute énergie est de prendre des énergies de liaison de particules (fictives) calculées par un modèle de goutte liquide (non corrigé des effets de couche) en utilisant simultanément des densités d'état (fictives) référencées en énergie sur le fondamental  $(m(F) \sim e^{2\sqrt{aE}})$ .

Pour la cohérence du calcul le choix des énergies de liaison et des densités d'état ne peut être fait indépendamment. Ici nous prenons des énergies de liaison expérimentales (ou réalistes) parce que les densités d'état que nous voulons utiliser sont réalistes.

Un troisième ensemble de données est lié au comportement dynamique des noyaux. Il s'agit essentiellement de la ligne Yrast ( $E^{*_{B}} \in R_{OT} = f(I)$ ) et des paramètres caractérisant l'évolution de la barrière de fission avec le moment angulaire. Nous avons pris comme base le modèle de la goutte liquide tournante élaboré par Cohen. Plasil et Swiatecki (COH 74).

On peut accorder un certain crédit à ces calculs puisque le traitement des grandes déformations dans la fission ne recoit de réponse énergétique correcte que dans le modèle de la goutte liquide. Le paramètre essentiel restant à déterminer est la barrière de fission pour J = 0. Comme nous avons inclu dans les densités d'état la possibilité de disparition des effets de couche (du point selle et du fondamental) avec l'énergie il est cohérent de prendre une barrière  $B_{\mu}(J = 0)$ incluant les corrections de couche. Nous avons donc adopté les valeurs du Droplet model de Myers et Swiatecki (MYE 77). Sur une variation moyenne de l'énergie issue d'une description de type goutte liquide, les effets de couches calculés par des modèles microscopiques sont considérés comme des perturbations. On voit sur la figure 67 (tirée du Oroplet Model) que la barrière de fission est, dans le cas général, constituée de trois composantes différentes : l'effet de couche dans le fondamental, l'écart de masse du point selle de type goutte

where we are a set of the set of





Fig. 67 : Variations de l'énergie de masse avec la déformation (ɛ) faisant apparaitre la contribution de la goutte liquide (trait pointillé) et les corrections de couche (trait plein) qui déterminent la déformation du fondamental et contribuent notablement à la barrière de fission

La valeur de B<sub>F</sub> (J = O) sera rediscutée au moment de la comparaison théorie-expérience,

Les dernières données, enfin, dont le programme de désexcitation a besoin sont les coefficients de transmission des particules n, p,  $\alpha$  et la constante de normalisation Y. Pour les particules, la détermination de ces coefficients T<sub>0</sub>(E) se fait en résolvant l'équation de Schrödinger pour des

140 -

valeurs du potentiel réel et imaginaire obtenues expérimentalement par les réactions inverses, n, p ou  $\alpha$  pénétrant dans un noyau. Nous avons utilisé des compilations récentes (Perey et Perey - PER 76) correspondant aux énergies d'émission habituelles dans l'évaporation.

La description des  $T_{g}(E)$  est donc essez réaliste si on suppose que la forme d'un noyau excité n'est pas très différente de celle du fondamental. En effet, comme l'ont souligné Beckerman et Blann (BEC 79),l'émission de particules est certainement renforcée pour des noyaux déformés, puisque dans les réactions inverses de capture la déformation du noyau cible augmente la section efficace (RAS 71).

Nous n'avons pas considéré cet effet. On peut en effet supposer que pour les grands moments angulaires où la déformation est importante la voie de désexcitation p⊴r fission est de toute façon prépondérante et ne laisse pas apparaitre un éventuel renforcement de l'émission de particules.

Pour l'émission  $\gamma$ ,qui intervient principalement dans une bande d'énergie large de 6 à 10 MaV au dessus de la ligne Yrast, les déterminations expérimentales des largeurs de niveau par les résonances neutroniques (STE 65) sont en principe bien adaptées. Les valeurs que nous avons utilisées pour les émissions dipolaires et quadrupolaires sont  $\xi_4 = 0.8 \ 10^{-6}$ ,  $\xi_2 = 0.2 \ 10^{-10}$ . Dans le cas où l'émission d'un très petit nombre de nucléons (voies 1n, 2n) est observée (CAB 80, SCH 81, ARM 80) un renforcement de l'émission  $\gamma$  est probable, mais pour l'instant aucune explication microscopique ne permet de rendre compte de ce phénomène.

Comme on le voit les données intervenant dans le calcul de désexcitation statistique sont nombreuses et font largement appel à nos connaissances de la structure nucléaire. Seules des mesures homogènes et complètes (actuellement développées) permettront d'apporter suffisamment de contraintes pour que l'influence de chaque paramètre puisse être dégagé.

• 141 -

Le travail présenté ici porte sur l'introduction de densités d'état réalistes dans le calcul ; il a pour but notamment de montrer qu'une discussion sur les paramètres habituels  $B_F$ ,  $T_{g}(E)$ ,  $\Gamma_{\gamma}$ ... doit prendre en compte d'abord l'influence "souterraine" des densités d'état.

# 2 - LES RESULTATS OU CALCUL ET LEUR COMPARAISON A L'EXPERIENCE

Les seuls paramètres dont l'influence a été étudiée sont ceux entrant dans l'évolution de  $\omega(E)$  paramétrisée selon la formule de Ignatyuk ( $\Delta W, \gamma$  et  $a_{lim}$ ) et la barrière de fission  $B_{r}(J = 0)$ .

Un des points principaux que nous voulions tester était l'influence de l'utilisation de densités d'états réalistes par rapport aux formules habituelles. Etant donné la paramétrisation

employée :  $\omega(E) = \frac{\sqrt{\pi}}{12} \frac{\exp S}{E^{5/4}a^{1/4}}$  avec  $S^2 = 4a_{11m}(E + \Delta W(1 - \exp(-\gamma E)))$ 

il suffit de prendre  $\Delta W$  = O pour chaque noyau et S<sup>2</sup> prend alors la forme usuelle S<sup>2</sup> = 4 a E.

Les résultats des calculs faits sur le système <sup>4D</sup>Ca + <sup>15D</sup>Sm dans les deux cas ΔW = D et ΔW réalistes sont portés sur les figures 68a) et 68c)dans l'hypothèse de barrières de fission issues du Droplet Model.

On voit que l'utilisation de AW réalistes, qui correspond à la prise en compte de la disparition de l'effet de couche avec l'énergie d'excitation, a pour effet principal de diminuer globalement les sections efficaces des voies xn. Simultanément la fission est renforcée à chaque étape de la désexcitation.

Les résultats expérimentaux obtenus avec la chambre à recul dans les gaz indiquent plutôt des sections efficaces de l'ordre de 10 mb au sommet de la voie 4n et inciteraient à dire que la description de la fig 68c) est la plus réaliste. Les incertitudes sur les sections efficaces expérimentales ont deux origines : la méconnaissance des embranchements & des



Fig. 68 et 69 : Fonctions d'excitation, calculées avec GROGIF, des réactions <sup>40</sup>Ca sur <sup>148</sup>Sm et <sup>150</sup>Sm

- 143 -

isotopes de Plomb (probablements compris entre 1% et 4%), et la possibilité que le rendement de collection de la méthode électrostatique soit pour le Pb différent de la valeur de 1,5% mesuré sur l'erbium. Si on suppose que les embranchements  $\alpha$ varient de moins d'un ordre de grandeur du <sup>187</sup>Pb au <sup>185</sup>Pb on voit que les calculs prédisent une production principale des voies 3n, 4n, 5n effectivement observée dans l'expérience.

Les positions des maximums des fonctions d'excitation sont approximativement respectées, et l'emploi de cibles épaisses (2 mg/cm<sup>2</sup>) explique les largeurs expérimentales plus larges que ce que donne le calcul.

L'utilisation de barrières de fission issues de la goutte liquide tournante sans effet de couche(de valeurs nettement inférieures aux valeurs de Droplet Model), amène un abaissement des sections efficaces des voies xn (fig.68b)et 68d)).

Il est intéressant de remarquer que les ensembles de paramètres correspondant aux figures 68b) et 68c) donnent des résultats très voisins et proches de l'expérience. On peut donc dire qu'une description où les effets de couche sont incorporés dans la barrière de fission, mais dont la disparition avec l'énergie est prise en compte, est très voisine d'une autre description où les effets de couche sont absents, aussi bien dans la barrière de fission que dans les densités d'état.

Ceci s'accorde assez bien avec les études de Schmidt et al (SCH 79) près de la couche fermée à 126 neutrons montrant que la désexcitation et notamment la compétition de fission n'est pas ou peu sensible à l'effet de couche. Si on utilise alors les formules de densités d'état habituelles on "déduit" des valeurs  $B_F(J = 0)$  du type goutte liquide. Dans le cadre de densités d'état réalistes on peut définir une barrière de fission effective dépendante de E :

 $B_{F}(E) = B_{F} + \Delta W_{f}(1 - \exp(-\gamma_{f}E)) - \Delta W_{S}(1 - \exp(-\gamma_{S}E))$ 

où B<sub>F</sub> est la barrière de fission type goutte liquide. (GL)

 $\Delta W^{}_{\rm f}$  et  $\Delta W^{}_{\rm S}$  sont les effets de couche dans le fondamental et

au point selle,  $\gamma_{\rm f}$  et  $\gamma_{\rm S}$  sont les constantes qui caractérisent la disparition des effets de couche pour ces deux déformations.

Pour E = 0,8<sub>F</sub>(0) = <sup>B</sup>F Droplet Model

pour E > 30,MeV B<sub>F</sub>(E) = B<sub>F</sub> Goutte Liquide

Dans le cas de <sup>190</sup>Pb, on obtient le résultat représenté sur la figure 70.



Fig. 70 : Variations de la barrière de fission effective de <sup>190</sup>Pb en foncticn de l'énergie d'excitation

Il semble que l'effet pair-impair soit surestimé dans le calcul, notamment pour la séquence  $^{187}$ Pb( $\Delta W = -3.3$  MeV),  $^{186}$ Pb( $\Delta W = -4.7$  MeV),  $^{185}$ Pb( $\Delta W = -3.25$  MeV) en ayant pour conséquence de limiter la section efficace de production de  $^{186}$ Pb. Sur la figure 68c) sont donc portés deux courbes théoriques correspondant aux deux valeurs  $\Delta W = -4.7$  MeV et  $\Delta W = -3.7$  MeV. La deuxième valeur, qui diminue les variations de  $\Delta W$  pour deux isotopes de A consécutifs, donne des intensités relatives des voies 3n, 4n, 5n plus semblables à celles de l'expérience. Il faut néanmoins se souvenir que les embranchements a pourraient renforcer l'intensité du pic a du  $^{186}$ Pb par rapport aux deux autres.

Dans la réaction  ${}^{40}$ Ca +  ${}^{148}$ Sm  $\rightarrow$   ${}^{188}$ Pb les mêmes tendances générales discutées sur  ${}^{190}$ Pb sont présentes. Il vient cependant s'ajouter un comportement différent sur les intensités relatives des voies 3n, 4n dans les cas  $\Delta W$  = 0 et  $\Delta W \neq 0$ . Quend les densités d'états sont prises selon la formule usuelle ( $\Delta W = 0$ ) c'est la voie 4n qui reste dominante (fig. 69a)), comme pour le <sup>190</sup>Pb, alors que dans le cas des densités d'état réalistes ( $\Delta W \neq 0$ ) c'est la voie 3n qui domine (Fig. 69c)). Comme on peut le voir sur la figure 52 cette dernière conclusion est en accord avec les résultats expérimentaux.

La voie 2n qui aboutit alors au même isotope <sup>186</sup>Pb que la voie 4n sur <sup>190</sup>Pb, est rehaussée à un niveau s'accordant mieux avec celui indiqué par l'expérience si on applique une correction de 1 MeV sur ΔW (ΔW = -3.7 MeV au lieu de = -4.7 MeV)

On voit sur les figures 69b et 69c que le renforcement de la voie 2n s'accompagne également d'une augmentation de la section efficace de la voie 3n et plus faiblement de la voie 4n. Mais l'effet principal (un facteur 10) est cependant localisé sur la voie qui aboutit à l'isotope <sup>186</sup>Pb, montrant bien que l'effet de couche est surtout sensible aux faibles énergies.

Cet aspect est certainement très important quand on s'intéresse à l'émission d'un petit nombre de nucléons. L'émission de deux neutrons à une énergie d'excitation de 45 MeV est observée expérimentalement et décrite avec des hypothèses très raisonnables par notre calcul statistique incluent la disparition des effets de couche avec E . Les résultats expérimentaux de Schier et al. sur la réaction  ${}^{37}$ Cl +  ${}^{169}$ Tm donnent un maximum de sections efficaces de la voie 2n pour E = 43 MeV. Ce résultat est très proche du notre, et si le code ALICE n'a pas permis de rendre compte de cette émission de deux neutrons, c'est très probablement parce qu'il décrit mal l'évolution des densités d'état dans le domaine d'énergie où les effets de couche disparaissent :  $0 \le E^{\bullet} \le 30$  MeV.

- 146 -

# D - LA PRODUCTION DE NOYAUX EXOTIQUES PAR DES REACTIONS SECONDAIRES

Le nombre des noyaux que les calculs théoriques prédisent stables est très supérieur au nombre des noyaux susceptibles d'âtre produits dans des réactions ne comportant qu'une seule étape. Les facteurs qui limitent l'expforation loin de la stabilité sont liés d'une part aux caractéristiques de la désexcitation statistique et d'autre part à l'utilisation de faisceaux et de cibles dont les proportions de neutrons et de protons correspondent à celles de la vallée de stabilité  $(1 \le N/Z \le 1.58$ , en dehors de <sup>3</sup>He). Comme on l'a vu dans le paragraphe précédent la désexcitation de noyaux "chauds" cesse d'être favorable à la production de noyaux exotiques à l'intérieur même des limites actuelles de détection. Par exemple, pour le mécanisme de fusion-évaporation, Winn et al (WIN 72) ont calculé des limites de production très à l'intérieur du domaine théorique de stabilité.

Une possibilité intéressante pour la production des noyaux liés au delà des frontières actuelles est donnée par l'utilisation de cibles ou de faisceaux radioactifs qui correspondent à des rapports N/Z très différents de ceux des noyaux stables. Une première réaction nucléaire est nécessaire pour produire l'élément radioactif, et une deuxième réaction peut conduire alors à la formation de noyaux exotiques. Une procédure de ce genre a déjà été utilisée pour la production de nouveaux éléments transuraniens, une cible radioactive étant préparée le plus souvent par des réactions de capture neutronique et utilisée dans des réactions de fusion induites par ions lourds (FIE 70). De même des cibles radioactives ont été préparées à ISOLDE et utilisées ultérieurement auprès d'un réacteur pour étudier les réactions (n,p) ou  $(n,\alpha)$ .L'idée générale qui va être développée dans ce qui suit est de réaliser les deux étapes au cours d'une seule irradiation.

- 147 -

Il est évident que les taux de production associés aux réactions secondaires sont faibles et généralement très inférieurs à ceux des réactions primaires. Les processus en deux étapes ne seront donc compétitifs que dans les cas où la production par une réaction primaire d'un même isotope exotique est impossible ou correspond à une section efficace très faible. La limite inférieure du taux de production compatible avec la détection est de l'ordre de quelques atomes par heure, et nous verrons que dans un grand nombre de cas mettant en jeu i) des cibles épaisses, et /ou ii) des faisceaux très intenses, et /ou iii) des sections efficaces élevées pour la réaction primaire, les réactions secondaires permettent de dépasser ce seuil.

Les diverses possibilités qui seront discutées mettent en jeu soit la production in situ d'une cible radioactive, soit la production et l'utilisation immédiate d'un faisceau secondaire radioactif.

### 1 - PRODUCTION IN SITU D'UNE CIBLE RADIOACTIVE

Dans cette technique, les noyaux radioactifs sont produits avec une intensité de faisceau  $\phi_1$  dans une cible qui contient N<sub>1</sub> atomes/cm<sup>2</sup>. Ils sont arrêtés dans un ralentisseur solide (ou dans la cible elle-même). Le nombre d'atomes A présents au temps t après le début de l'irradiation est donné par l'équation suivante :

# $N_2(t) = \phi_1 N_1 \sigma_1 (1 - \exp(-\lambda t)) / \lambda$

 $v_2 = \phi_1^2 N_1 \sigma_1 \sigma_2 / \lambda$ 

 $\sigma_1$  étant la section efficace de la réaction primaire, et λ la constante de désintégration radioactive. Si le temps d'irradiation est long comparé à la période T = {Ln 2}/λ, le nombre d'atomes N<sub>2</sub>(t) atteint une valeu: à saturation N<sub>2</sub> qui vaut : N<sub>2</sub> = φ<sub>1</sub>N<sub>1</sub>σ<sub>1</sub>/λ.

Le taux de production d'un noyau secondaire exotique au cours d'une deuxième réaction de section efficace  $\sigma_2$  est :

- 148 -

La situation la plus favorable pour utiliser cette technique est le cas des faisceaux légers énergétiques, avec des sections efficaces importantes sur de grandes épaisseurs de cible, en considérant un isotope de durée de vie assez longue (1 heure au moins) et donc moyennement exotique pour former la cible radioactive in situ. Mais le paramètre le plus important est l'intensité de faisceau, puisque le taux de production dépend de  $\phi_1^2$ . C'est une des raisons de l'efficacité des réactions de captures neutroniques multiples auprès des réacteurs pour la production des éléments transuraniens (et aussi dans les processus r et s en nucléosynthèse).

Pour illustrer les possibilités de cette technique dans le cas d'un faisceau de particules chargées, nous avons choisi comme exemple les réactions suivantes :

 $\alpha + \frac{206}{Pb} \rightarrow \frac{210 - x_{Po}}{214 - x - y_{Rn}} + x_{Rn}$   $\alpha + \frac{210 - x_{Po}}{P} \rightarrow \frac{214 - x - y_{Rn}}{P} + y_{Rn}$ 

Des résultats expérimentaux sont disponibles pour la première réaction, à 150 MeV d'énergie incidente et il est possible de calculer le nombre d'atomes formant les cibles radioactives à l'équilibre. En considérant l'ensemble des réactions possibles telles que x + y = 15, on obtient environ six à sept voies différentes pour former le dernier isotope connu déficient en neutrons <sup>199</sup>Rn (DIR 80). Le taux de production des cibles secondaires <sup>210-x</sup>Po peut être calculé sur les bases suivantes : intensité de faisceau 20 µA (8 10<sup>13</sup> part/s) ; épaisseur de cible 1.5g/cm<sup>2</sup>. Cette épaisseur correspond à une perte d'énergie de 50 MeV pour les particules a incidentes.

Le domaine de 100 à 150 MeV d'énergie incidente correspond à des sections efficaces importantes pour des voies ( $\alpha$ , xn) quand 5  $\leq$  x  $\leq$  11. Les fonctions d'excitation de ces réactions sont très larges en raison principalement de la contribution du processus de prééquilibre, notamment pour x  $\geq$  8. En prenant des valeurs de sections efficaces expérimentales (BIM 69) moyennées de 100 à 150 MeV, le nombre d'atomes/cm<sup>2</sup> de la cible secondaire <sup>210-x</sup>Po est aisément calculable. Les résultats sont reportés sur le tableau 5.</sup>

Pour chacune de ces cibles intermédiaires, il y a une réaction secondaire qui conduit à la formation de l'isotope <sup>199</sup>Rn. mais pour cette étape les sections efficaces sont difficiles à estimer. On peut par exemple supposer de manière très grossière que les sections efficaces correspondant à la deuxième étape sont de deux ordres de grandeur inférieures à celles de la première. On s'aperçoit alors que le seuil de production de guelques atomes/heure est dépassé pour tous les isotopes de radon de A > 192 (t=41 atomes/s pour <sup>199</sup>Rn décroissant jusqu'à 50 atomes/heure pour <sup>192</sup>Rn). Ce calcul n'a de valeur que pour montrer la faisabilité de telles réactions secondaires et il est sans doute préférable , compte tenu de la méconnaissance du phénomène de fusion-évaporation appliqué à des noyaux déjà éloignés de la stabilité comme 203 Po, de regarder pour un taux de comptage minimum donné sur le noyau final la section efficace limite nécessaire dans la deuxième étape. Pour un taux de production choisi à titre d'exemple de 10 atomes/s les résultats ont été portés sur le tableau 5.

206 <sub>Pb</sub>	Réaction 2,×n	<0>	Cible secondaire (stomes/cm <sup>2</sup> .	Réaction secondoira formant 199Rn(q.yn)	Suition efficers minimum nécessoire (mb)			
	a, 5n	70	<sup>205</sup> Po 1.7 10 <sup>14</sup>	a. 10n	1.			
	a. 6n	90	<sup>204</sup> Pa 4.4 10 <sup>14</sup>	<b>a.</b> 90	.4			
	a, 7n	100	<sup>203</sup> Pa 6.6 10 <sup>13</sup>	a. ân	2.5			
	α, 8n	150	<sup>202</sup> Po 1,5 10 <sup>14</sup>	a, 2n	1.1			
	a, 9n	80	<sup>201</sup> Po 1.6 10 <sup>13</sup>	a. 5n	5.1			
	a, 10n	40	<sup>200</sup> Po 1.0 10 <sup>13</sup>	a, Sn	16.5			
	a, †1n	15	<sup>199</sup> Po 1.4 10 <sup>12</sup>	a, 4n	116.			

Tablsau 5 : Nombres d'atomes des cibles secondaires de Po formées et sections efficaces limites de la deuxième étape pour que les deux réactions successives <sup>206</sup>Pb(α,xn)<sup>206-x</sup>Po,<sup>210-x</sup>Po(a,yn)<sup>214-x-y</sup>Rn assurent la formation de l'isotope <sup>199</sup>Rn(x+y=15) avec un taux de production égal à 10 atomes/s

- 150 -

Il faut remarquer que les sections efficaces limites ainsi estimées ne concernent qu'une seule voie de formation, alors que la diversité des cibles secondaires formées en permet plusieurs. Dans le cas où les sections efficaces de la deuxième réaction sont supposées inférieures de deux ordres de grandeur à celles de la première réaction, on peut calculer que cinq voies principales concourent à la formation de <sup>199</sup>Rn ; les intensités relatives de chacune des voies sont portées sur la figure 71.



Figure 71: Taux de production (en atomes/s) de <sup>199</sup>Rn dans des réactions utilisant des cibles secondaires de <sup>201-205</sup>Po produites dans l'interaction d'alphas de 150 MeV sur <sup>206</sup>Pb

Ce type de réaction peut évidemment être utilisé de manière similaire pour de nombreuses cibles ; la région proche de la couche à 50 protons serait certainement très intéressante.

On peut également remarquer que ces mêmes mécanismes en deux étapes schi tout à fait accessibles avec des protons de haute énergie. La formation d'isotopes très déficients en neutrons pourrait êtr- ainsi fortement renforcée à la limite du domaine actuellement atteint. Si on suppose de manière assez vraisemblable que les sections efficaces des voies

- 151 -

- 152 -

(p, pxn) et (p, 2pxn) sont du même ordre que celles des voies (p.3pxn) dans les conditions d'irradiation existant auprès d'ISOLDE (RAV 79), les cibles secondaires des isotopes de Pb et Tl formés dans l'interaction de protons de 600 MeV avec une cible do Pb contiennent environ 10<sup>10</sup> fois moins d'atomes par cm<sup>2</sup> que la cible primaire de plomb. Si le processus d'interaction est essentiellement une cascade intranucléaire les sections efficaces doivent être assez similaires pour les réactions primaires et secondaires. On peut alors estimer le taux de production de l'isotope <sup>177</sup>Hg par réactions secondaires à 1 noyau/s. Ceci est environ de deux ordres de grandeur inférieur au taux de production obtenu à ISOLDE avec un faisceau de 1.5 µA. Mais il est intéressant de noter que l'utilisation de faisceaux de protons très intenses {actuel]ement produits ou proches de l'être à LAMPF, SIN et TRIUMF) pourrait inverser ce rapport puisque les taux de production dans les réactions secondaires sont sensibles au carré de l'intensité de faisceau.

Pour des projectiles plus lourds ce mode de production devient moins efficace, en raison à la fois des intensités de faisceau disponibles plus faibles et de l'épaisseur de cible utile qui décroit quand le Z du projectile croit. Cependant les faisceaux d'ions lourds très énergétiques (100 MeV/n) commencent seulement à être produits et les données sur les réactions primaires sont encore trop partielles pour permettre une évaluation des possibilités de production de cibles radioactives "in situ".

# 2 - <u>PRODUCTION ET UTILISATION IMMEDIATE D'UN</u> FAISCEAU SECONDAIRE

#### a) Réactions de double fusion inverse

Dans les tentatives récentes pour farmer des noyaux très déficients en neutrons, la méthode le plus efficace a été de former d'abord un noyau composé aussi loin que possible de la ligne de stabilité en faisant fusionner deux noyaux relativement lourds. Au cours du processus de désexcitation l'évaporation de neutrons, l'émission de particules chargées et la fission sont en compétition à chaque étape. C'est pourquoi la plus faible énergie d'excitation possible compatible avec une section efficace de fusion suffisante est le plus souvent choisie (surtout pour les noyaux de A > 170). Par exemple si on considère les isotopes de thallium, le noyau composé le plus léger qui peut être obtenu par fusion de deux noyaux stables est <sup>181</sup>Tl produit dans la réaction suivante :

$$59_{Ga} + 112_{Sn} \rightarrow 181_{T1}^*$$

Pour une énergie centre de masse de 187 MeV (proche de la barrière d'interaction) ce noyau a une énergie d'excitation de 45 MeV. Sa désexcitation par évaporation de particules doit conduire à la formation d'isotopes comme  $177-178_{TL}$ ,  $176-178_{Hg}$ ,  $175-178_{AU}$ , etc... avec des probabilités difficiles à estimer (voir discussion ultérieure).

En vue de produire des isotopes encore plus déficients en neutrons, on peut penser utiliser des réactions de double fusion inverse. Dans de type de réaction secondaire, un projectile lourd interagit avec une dible légère pour produire une réaction de fusion. Les résidus d'évaporation produite dans dette réaction sont alors assez énergétiques pour induire une deuxième réaction de fusion dans une autre dible légère. Dans le das des isotopes de thallium on peut par exemple considérer les deux réaction:

 ${}^{141}_{Pr} + {}^{20}_{Ne} \rightarrow {}^{153}_{Tm} + 8n \qquad (7)$   ${}^{153}_{Tm} + {}^{24}_{Mg} \rightarrow {}^{177}_{T1} * \qquad (8)$ 

L'énergie d'excitation minimum pour le noyau composé <sup>177</sup>Tl formé avec cette méthode est alors de 50 MeV de sorte que les produits de désexcitation pourraient être <sup>173-174</sup>Tl, <sup>173-174</sup>Hg. <sup>171-173</sup>Au. etc...

Les taux de production de tels isotopes sont difficiles à estimer, parce qu'il faut extrapoler les données issues de régions connues à un domaine qui ne l'est pas. Cependant le taux de production du noyau composé <sup>177</sup>Tl peut être estimá avec une certaine confiance sur la base de sections efficaces expérimentales (MAC 64) en supposant une intensité de 10<sup>11</sup> part/s pour le faisceau primaire de <sup>141</sup>Pr. Ce taux s'élève alors à 10<sup>4</sup> noyaux/heure. Pour une voie de désexcitation donnés, le taux de comptage correspondant est égal à 10<sup>4</sup> x P x R, où P est la probabilité de la voie considérée dans la désexcitation statistique, et où R est l'efficacité de désection. Si R = 10%, la détection est possible avec plus de quelques évènements/heure pour tous les produits corresponcant à P > 10<sup>-2</sup>.

La guestion est alors de savoir si les réactions primaires peuvent ou non donner le même taux de comptage. A partir du novau composé <sup>181</sup>Tl, l'évaporation de 5 à 8 particules est nécessaire pour produire les mêmes isotopes que par la réaction secondaire. Ces voies ne peuvent être ouvertes que si l'énergie d'excitation est suffisamment élevée. On peut remarquer aussi que le moment angulaire moven apporté dans la réaction primaire est supérieur à celui qui est amené dans la réaction secondaire, avec comme effet de renforcer la fission et l'émission de particules &. Le fait d'utiliser une réaction secondaire amène une perte relative de 10<sup>6</sup> sur l'intensité du faisceau entrant dans la réaction par rapport à celle utilisable dans la réaction primaire. L'évaporation d'un grand nombre de particules en présence d'une compétition de fission importants peut très bien pour une vois 7n (à partir de <sup>181</sup>T1) par exemple avoir une probabilité de productio 10<sup>6</sup> fois plus faible qu'une voie 3n à partir de <sup>177</sup>Tl et amener les deux approches à des taux de production du même ordre de grandeur. Des travaux récents (LEB 76) ont montré que dans cette région de la carte des nuclides, mais pour des isotopes moins déficients en neutrons, la valeur de  $\Gamma_{\rm p}/\Gamma_{\rm p}$ est proche ou inférieure à 10<sup>-1</sup>, donnant des probabilités totales de fission croissant plus fortement avec l'énergie d'excitation que ne le prévoient les calculs faits sur la base des données obtenues dans les régions proches de la stabilité. Nous avons vu précédemment que cela pouvait être dû

- 154 -

à une diminution des barrières de fission pour les noyaux exotiques, où à la disparition rapide des effets de couche avec l'énergie d'excitation pour les formes du point selle.

Si ce phénomène s'accentue pour des noyaux très déficients en neutrons. la méthode proposée de double fusion inverse a toutes les chances d'être plus efficace que la simple fusion directe. L'éventail des possibilités des réactions secondaires est de surcroît très grand, et seule une étude expérimentale détaillée permettre de déterminer les meilleurs choix. Le degré d'exoticité à atteindre peut d'ailleurs être très grand ; on peut citer par exemple :

 $115_{\text{Sn}} + 40_{\text{Ca}} + 155_{\text{Yb}}^{\bullet} \text{a}_{,}^{5n} 146_{\text{Er}}$  $146_{\text{Er}} + 27_{\text{A1}} + 173_{\text{T1}}^{\bullet}$ 

ou des réactions similaires induites avec <sup>112</sup>Sn.

Dans ces derniers cas l'éloignement de la stabilité est alors si grand que rien ne peut être prédit sur la désexcitation du novau  $^{173}\mathrm{T1}^{\bullet}$ .

Nous retiendrons simplement l'idée que l'apport à un noyau donné de A nucléons en deux fois n'est pas du tout équivalent à l'apport des mêmes nucléons en une seule fois, notamment par le fait que l'évaporation dans l'étape intermédiaire est beaucoup plus favorable à l'émission de neutrons.

# b) <u>Réactions de transfert-fragmentation suivies</u> de fusion

Dans la gamme d'énergie de 10 à 100 MeV/n qui sera prochainement couverte par les faisceaux d'ions lourds du GANIL, des cibles ayant jusqu'à quelques grammes par cm<sup>2</sup> d'épaisseur pourront être utilisées. En exploitant cette possibilité, des réactions nucléaires spécifiques comme la fragmentation du projectile ou des réactions de transfert pourraient avoir des sections efficaces suffisantes pour produire des faisceaux secondaires avec une intensité inférieure de seulement deux ou trois ordres de grandeur à celle du faisceau

incident. Un premier exemple très intéressant a été étudié récemment au CERN avec un faisceau de <sup>12</sup>C à 86 MeV/n ; il a été observé (TUY 60) que sur une cible de <sup>9</sup>8e un faisceau secondaire de <sup>11</sup>C était produit dans un rapport  ${}^{11}C/{}^{12}C = 6 \ 10^{-3}$ . Ceci correspond à une section efficace moyenne de 45 mb pour la perte globale d'un neutron. Cela permet de censer que pour de tels "ions lourds-légers" énergétiques des faisceaux secondaires de novaux radioactifs, possédant quelques neutrons de plus ou de moins que les noyaux stables utilisés comme faisceaux primaires, pourraient être produits avec des sections efficaces de l'ordre de 1 à 10 mb. Avec les intensités de faisceau attendues à GANIL pour des faisceaux de Z  $\leq$  30 (10<sup>13</sup> part/s de <sup>12</sup>C à <sup>20</sup>Ne) il serait possible d'obtenir des faisceaux secondaires de 10<sup>9</sup> à 10<sup>11</sup> part/s pour de tels faisceaux exotiques, ces intensités devant naturellement décroitre avac les exoticités croissantes. Des études préliminaires seront nécessaires pour décider quelles réactions seront les plus efficaces pour produire un isotupe donné. On peut par exemple envisager la production de l'isotope <sup>16</sup>C par la capture de quatre neutrons dans la réaction 12 + 238U, ou la perte de trois protons dans les réactions de <sup>19</sup>F avec <sup>12</sup>C ou <sup>9</sup>Be. Dans ce dernier cas, avec une section efficace supposée de 10 mb et une cible de <sup>9</sup>Be de 2 g/cm<sup>2</sup>, il serait possible d'obtenir un faisceau de  $^{16}$ C avec une intensité de 7 x 10<sup>9</sup> part/s. Une étude complémentaire portant sur les straggling en énergie et en angle du faisceau secondaire permettrait de savoir si une séparation du faisceau primaire et un transport à travers une optique magnétique sont envisageables.

En considérant les possibilités de production de feisceaux riches ou déficients en neutrons, deux sortes différentes de noyaux exotiques peuvent être synthétisés.

# α) Utilisation de faisceaux secondaires riches en neutrons pour produire de nouveaux isotopes transuraniens

Un grand nombre des isotopes transuraniens les plus lourds ont été obtenus par des réactions de fusion-désexcitation

utilisant les faisceaux d'ions lourds de 7 ∿ 6-8. Avec cette méthode les novaux résiduels obtenus ont toujours un rapport N/Z inférieur à celui de la cible. Cela signifie qu'il est impossible de produire ainsi les isotopes les plus stables pour les éléments de Z > 10D, puisque la courbure de la ligne de stabilité implique pour ces isotopes des rapports N/Z supérieurs à ceux des cibles utilisées. La conséquence est que pour Z > 100 les isotopes les plus riches en neutrons connus ont de 1 à 6 neutrons de moins que les isotopes théoriquement les plus stables. Les autres mécanismes utilisés fréquemment pour produire des novaux dans cette région ne sont pas plus efficaces. On peut par exemple mentionner les captures multiples de neutrons qui sont limitées par les courtes périodes des isotopes intermédiaires et les grandes probabilités de fission : les transferts de nucléons entre deux noyaux très lourds (par exemple 238 U + 238 U) sont limités par la fission séquentielle. L'emploi de faisceaux radioactifs riches en neutrons fournirait un nouveau moven pour accéder à cette région exotique très particulière qu'est la ligne de stabilité au delà de A = 260. On peut,par exemple, choisir la réaction 248 Cm( $^{16}$ C,xn) $^{264-x}$ No avec x = 2,3,4. Les sections efficaces pour des réactions identiques utilisant <sup>12</sup>C et <sup>13</sup>C ont été mesurées par Sikkeland et al (SIK 68) avec un maximum de 1 μb pour x = 4, 0.2 µb pour x = 3 avec  ${}^{12}$ C et légèrement supérieures avec <sup>13</sup>C. Si on suppose des valeurs identiques avec les projectiles de <sup>16</sup>C. les taux de productions obtenus sont de 180 atomes/h pour <sup>260</sup>No et 36 atomes/h pour <sup>261</sup>No en supposant l'interaction d'un faisceau de 10<sup>10</sup> part/s avec une cible avant Z mg/cm<sup>2</sup> d'épaisseur.

# β) <u>Utilisation de faisceaux secondaires riches</u> <u>en protons</u>

De nouveaux isotopes très déficients en neutrons pourraient être formés en utilisant divers types de faisceaux riches en protons. L'examen de deux cas particuliers suffit

- 157 ~

pour faire apparaitre les principaux intérêts de tels faisceaux secondaires.

Avec un faisceau de <sup>10</sup>C ayant une intensité de 2 x 10<sup>10</sup> part/s, il est possible, sur une cible de <sup>231</sup>Pa, de produire un noyau composé de <sup>241</sup>Bk. Avec une section efficace voisine de 1 µb pour des voies d'évaporation 2n, 3n ou 4n,le taux de production des isotopes <sup>237-238-239</sup>Bk serait de l'ordre de 400 à 100 atomes/heure. Avec une intensité de faisceau plus faible il serait possible d'utiliser <sup>9</sup>C comme projectile pour produire des isotopes encore plus déficients en neutrons. Il faut souligner que dans cette région le choix des cibles est limité et subit un saut de Z = 63 à Z = 90; le noyau composé <sup>239</sup>Bk peut par exemple être obtenu par la réaction <sup>30</sup>Si + <sup>209</sup>Bi,

mais <sup>241</sup>Bk n'est pas accessible, et le choix d'un projectile lourd comme <sup>30</sup>Si n'est pas favorable puisqu'il amène beaucoup de moment angulaire et donc favorise fortement la fission, les sections efficaces sont alors inférieures à 1 nb. Là encore, la perte consentie par le principe même d'une réaction secondaire (I<sub>faisceau</sub> faible) peut néanmoins être moins grande que la perte due à l'utilisation de faisceaux plus lourds.

Avec un faisceau de <sup>36</sup>Ca de 10<sup>6</sup> part/s il serait possible d'explorer la région de <sup>100</sup>Sn. Le noyau composé <sup>110</sup>Xe formé dans la réaction <sup>36</sup>Ca + <sup>74</sup>Se a deux neutrons de moins que le noyau composé le plus léger qui peut être produit dans la combinaison la plus favorable de deux isotopes stables. De plus le moment angulaire apporté est moindre et cela favorise l'émission de neutrons. Avec une épaisseur de cible de 2 mg/cm<sup>2</sup> et une section efficace de 1 mb pour une réaction (<sup>36</sup>Ca, an) conduisant à la formation de l'isotope inconnu <sup>105</sup>Te, le taux de production serait de 280 atomes/h. D'autres voies d'évaporation, par exemple 2pn, 2an, pourraient aussi être considérées pour la production d'isotopes de <sup>107</sup>Te et <sup>101</sup>Sn. Dans cette région des isotopes de masse 100-110 déficients en neutrons, les possibilités liées à l'utilisation de faisceaux

- 158 -

secondaires sont très grandes parce que les noyaux composés accessibles classiquement les plus éloignés de la stabilité ont quatre neutrons de plus que les noyaux miroirs (N = Z) et l'évaporation est beaucoup plus favorable aux émissions  $\alpha$ , p qu'à celle de neutrons.

#### c) Conclusion

Les réactions secondaires apparaissent comme un bon moyen pour produire des noyaux très exotiques qui ne pourraient pas être atteints par des réactions primaires.

Les taux de production estimés sont en général faibles ou très faibles, mais apparaissent suffisants pour rendre possibles la détection et l'identification de nouveaux noyaux. Les estimations faites restent grossières en raison principalement du manque d'informations concernant les mécanismes de réaction (sections efficaces de fusion et de désexcitation) mettant en jeu des isotopes exotiques.

La discussion a surtout été orientée vers les problèmes de production qui doivent être résolus en premier lieu dans la recherche de nouveaux noyaux, mais il ne faut pas sous-estimer pour autant les difficultés liées à la détection, notamment à cause de la présence de très nombreux contaminants produits au cours de la première réaction. Une manière de réduire considérablement ce bruit de fond serait de séparer les faisceaux secondaires radioactifs du faisceau primaire avant l'interaction sur la seconde cible. Dans le cas des réactions de transfert-fragmentation du projectile la séparation électramagnétique devrait être possible. De tels faisceaux secondaires exatiques pourraient aussi être très intéressants pour l'étude de mécanismes de réaction quand l'un des partenaires en collision est un noyau exotique.

#### CHAPITRE IV

•

# APPLICATIONS DE LA COLLECTION ELECTROSTATIQUE A L'ETUDE DES REACTIONS INDUITES PAR

L'étude des mécanismes de réactions nucléaires entre ions lourds a été activement menée dans les dernières années et a permis de mettre en évijence des propriétés originales et variées de la matière nuc,éaire là où certains théoriciens ne prévoyaient que confusion et banales superpositions des prénomènes induits par protons ou alphas. En fait, il se dégage de l'ensemble des propriétés observées que le noyau est une véritable matière, autant par ses aspects dynamiques (vibrations, oscillations, rotations, déformations) que thermodynamiques (statistique de N fermions, appariemment, friction. échauffement) ou statioues (détermination self-consistante du potentiel, interaction nucléon-nucléon effective, écrantée), Aussi la situation actuelle vis à vis des expériences en cours ou à venir avec des faisceaux ayant de 30 à 100 MeV/nucléon (domaine GANIL) est caractérisée par l'afflux de prédictions théoriques des plus diverses. Selon qu'on privilégie l'aspect macroscopique (hydrodynamique) ou microscopique (Hartree-Fock dépendant du temps) on peut imaginer l'apparition de raz de marée d'ondes de choc, d'éclatements, échauffements (points chauds), etc... voire la création de matière superdense. En pratique, on sait que les phénomènes à de telles énergies mettent en jeu un grand nombre de particules, et que seules des mesures directes et en coincidence très complètes permettront de décrire précisément les mécanismes de réaction. Les

informations qui peuvent être obtenues par l'étude des particules légères, des fragments légers (du projectile ou de la cible), de la fission, sont essentielles, mais pour toutes les réactions sur des cibles de A > 100 elles sont incomplètes. En effet, quand un novau lourd résiduel est présent après la réaction nucléaire, les informations sur les sections efficaces, la composition N, Z, l'énergie et l'angle du plus gros fragment sortant ne peuvent être obtenues que par des méthodes de collection de noyau (bien souvent radiochimiques). Il est important de remarquer que pour un évènement donné la bilan cinématique (conservation de l'impulsion) des particules légères émises n'est pas très facile à obtenir puisqu'il faut à la fois tenir compte des distributions angulaires et des multiplicités, avec une difficulté supplémentaire pour les neutrons. Or cette information est contenue dans la direction et la valeur absolue de l'impulsion donnée au novau résiduel lourd.

Pourquoi alors s'intéresser aux cibles lourdes puisque sur les cibles légères ou moyennes on peut presque tout mesurer ? En dehors des aspects spécifiques des réactions sur de telles cibles (fission, aspect hydrodynamique plus marqué...) la région 60 > Z > 90 permet de distinguer plus facilement qu'ailleurs pour un résidu donné la part d'évaporation et la part de fragmentation. En effet, même pour un novau fortement excité (E > 100 MeV) (LAG 78) l'émission de neutrons est majoritaire et conduit à des novaux déficients en neutrons alors que le simple découpage (type fireball) conserve approximativement le rapport N/Z de la cible et conduit à des novaux proches de la stabilité. Pour des A < 100 l'évaporation ramène fortement vers la stabilité, les novaux résiduels formés couvrent une gamme de N/Z assez étroite et ce paramètre ne peut guère servir d'indication sur l'énergie d'excitation atteinte dans un stade intermédiaire.

Nous nous sommes donc proposés d'étudier les phénomènes majeurs concernant les noyaux résiduels lourds émetteurs

- 161 -

alpha, accessibles par notre méthode, produits dans les réactions nucléaires du faisceau de  $^{12}$ C à 86 MeV/u.m.a. sur diverses cibles allant du samarium à l'uranium. Les différentes mesures possibles avec notre dispositif expérimental sont : sections efficaces absolues de résidus déficients en neutrons, cumulatives et/ou indépendantes, énergies moyennes de recul et/ou distributions des parcours projetés, distributions angulaires pour N,Z donnés, approche sur le moment angulaire par les rapport de production des isomères déficients en neutrons.

Les résultats expérimentaux seront comparés aux résultats d'un modèle de cascade intranucléaire où seules les collisions nucléon-nucléon sont prises en compte. Nous pouvons dire, compte tenu de la bonne correspondance avec l'expérience à plus haute énergie (1 GeV/u.m.a.) pour ce modèle, que seuls les phénomènes physiques insuffisamment ou pas du tout décrits par ces calculs peuvent être la signature des mécanismes de type collectifs (hydrodynamique, ondes, etc...), ou autres, qui feraient le "pont" entre les phénomènes déjà connus vers 10 MeV/u.m.a. et 1 GeV/u.m.a.

#### A - MESURES DE SECTIONS EFFICACES

Le nombre d'émetteurs  $\alpha$  observables dans de bonnes conditions (embranchement > 1%) est assez grand mais en général il s'agit d'isotopes particulièrement déficients en neutrons. Les deux groupes principaux situés relativement à proximité de la ligne de stabilité sont les émetteurs voisins des couches fermées à 82 neutrons et à 126 neutrons et 82 protons : les terres rares à partir du Tb et les éléments compris entre le Bi et le Th. Pour étudier diverses situations en  $\Delta N$ , MZ du no; au résiduel par rapport à la cible, il est donc nécessaire d'agir sur la nature de la cible puisque les N et Z ne sont accessibles que dans une zone relativement restreinte. Sur la fig. 72 sont portés dans le plan N,Z les cibles utilisées, les isotopes théoriquement observables (si la réaction nucléaire les produit) et ceux réellement observés dans nos expériences, soit en ligne, soit par comptage hors ligne.



nant les isotopes utilisés comme cible et les émetteurs alphas accessibles par notre méthode

Les cibles isotopiquement séparées ont été fabriquées par la méthode de peinture déjà mentionnée au chapitre III pour les samarium. Nous avons utilisé cette technique avec succès pour d'autres éléments que les terres rares comme par exemple le tungstène difficile à préparer par évaporation. Les rendements obtenus (de 30% à 80%? ont permis la préparation de cibles d'isotopes de faible abondance naturelle (par ex <sup>164</sup>Er). Enfin, les cibles de thorium et d'uranium ont été préparées par électrodépositio, par une méthode similaire à celle utilisée pour préparer les sources au chapitre II.

La procédure utilisée pour resurer les sections efficaces des émetteurs a produits comporte deux étapes. Une première série de mesures est effectuée sur des isotopes de

- 163 -

périodes assez longues pour permettre un comptage radiochimique de rendement connu, puis ces résultats permettent de normaliser l'ensemble des activités en ligne sur un isotope détecté par les deux méthodes. Les sections efficaces obtenues sont en général cumulatives puisque de nombreux isotopes d'une même chaine radioactive sont formés simultanément. Nous verrons quels problèmes et quels renseignements sont liés à l'obtention de sections efficaces indépendantes.

# 1 - LES MESURES DE SECTION EFFICACE PAR LA METHODE RADIOCHIMIQUE

La méthode utilisée est classique (RIV 7°) et consiste à irradier un empilement cible-collecteurs d'aluminium pendant un temps correspondant à quelques périodes de l'isotope à détecter. Dans la plupart des cas étudiés, il s'agissait des trois isotopes  ${}^{150}$ Oy(T ${}^{1/2}$  = 7 mn),  ${}^{151}$ Oy(T ${}^{1/2}$  = 17 mn),  ${}^{149}$ g<sub>Tb</sub>(T ${}^{1/2}$  = 4b).

Dans le but de normaliser les résultats de la collection en ligne nous étions plus particulièrement intéressés par l'isotope de période relativement courte <sup>150</sup>Dv. et nous avons donc irradié les empilements le plus souvent pendant 30 mn. L'évolution de l'intensité de faisceau au cours du temps est un paramètre important, surtout vers la fin do l'irradiation et une mesure systématique de l'évolution du flux était effectuée pendant les dix Jernières minutes de l'irradiation. Le contrôle du flux intégré total est obtenu à l'aide d'un moniteur d'aluminium placé derrière l'emmilement ; l'isotope produit servant de référence est <sup>22</sup>Na(T<sup>1</sup>, ,6a) dont la période longue permet une mesure quelques jours après la fin de l'expérience, La détermination de la section efficace du <sup>22</sup>Na en utilisart la mesure de courant de notre cage de Faraday est σ<sub>22Na</sub>=(35±5mb) en bon accord avec Ia mesure de Tuyn et al (TUY 80)( $\sigma_{22_{Na}}$ =34.5mb).

A la fin de l'irradiation d'un empilement, les activités dans la cible et les collecteurs d'aluminium sont

- 164 -

mesurées séparément dans un compteur à gaz dont l'efficacité est très voisine de 50% (détection 2π). L'évolution des activités au cours du temps est obtenue par des comptages successifs et le nombre de ces mesures pendant des temps allant de 6 mn à 2 heures après la coupure du faisceau doit être assez grand pour permettre le décomposition de l'activité globale sur chacune des périodes.

Les sections efficaces obtenues pour différentes cibles sont portées sur le tableau 6 pour les trois isotopes <sup>150,151</sup>Dy et <sup>149</sup>Tb. Sur la fig. 73 sont portées les sections efficaces obtenues pour l'isotope <sup>149</sup>Tb pour les cibles situées sur la ligne de stabilité.

Cit1e	160 <sub>60</sub>	160 Dy	<sup>162</sup> 0y	154 <sub>Dy</sub>	164Er	165 <sub>Hp</sub>	166Er	170¢r	169 <sub>TM</sub>	170 40	174 <sub>Yb</sub>	178 <sub>H</sub> f	<sup>181</sup> 7e	162	108
σ <sub>m</sub> <sup>150</sup> <sub>Dy</sub>	3	27	17	19	28	26	22	48	53	47	44	28	42	27	12
vo <sup>f3t</sup> _0	3.5	3+	20	28	37	28	22	43	61	37	44	31	47	30	16
°- 148 To	د	17	10	11,5	24	15	15	27	32	40	27	21	27	14	"

Tableau 5 : Sections efficaces cumulatives des trois isotopes 150, 151 Dy, 149 Tb pour différentes cibles de Z < 74

Les incertitudes sur ces valeurs sont globalement assez importantes de 30% à 60% et proviennent en premier lieu de la mesure d'épaisseur des cibles d'oxydes de terres rares qui peuvent être hydratées ou carbonatées. L'incertitude statistique, la décomposition des périodes, les mesures de courant contribuent au total de manière non négligeatle. Une autre

-



Fig. 73 : Sections efficaces cumulatives de  $^{149}{\rm Tb}$  sur des cibles allant de  $^{160}{\rm Gd}$  à  $^{208}{\rm Pb}$ 

source d'erreur vient du phénomène d'auto-absorption oes alphas dans les cibles ou les reculs. Une correction théorique atteignant parfois 30% est appliquée pour tenir compte de ces pertes dues à l'épaisseur des échantilions.

Sur des cibles comme Pb ou Bi d'autres isotopes de période longue sont produits,principalement des polonium et astate, mais l'obtention de sections efficaces n'est pratiquement pas possible en raison du grand nombre de périodes intervenant dans la décroissance au cours du temps. Il faut rappeler que l'implantation des isotopes dans l'aluminium ou la cible interdit de séparer les diverses contributions par leurs énergies. On peut tout au plus dire que des isotopes de l'ordre de quelques minutes de période avec 5,5 MeV < E<sub>a</sub> < 6 MeV sont produits ( $^{205}$ At,  $^{201}$ Po ...) ainsi qu'un autre groupe de périodes plus longues (1 h à 6h) et d'énergie alpha voisines de 5 MeV à 5,5 MeV ne pouvant être que  $^{207}$ Po,  $^{207}$ At ou  $^{204,205}$ Po. (fig. 61). Le domaine des sections efficaces est de l'ordre de 1 mb, mais il ne s'agit que d'un ordre de grandeur très approximatif. L'information est donc grossière, mais elle montre sans ambiguité que des isotopes de Z plus élevé que celui de la cible et de A très voisin sont produits de manière appréciable.

#### 2 - LES MESURES DE SECTION EFFICACE EN LIGNE

Nous avons principalement centré notre étude sur les mesures des sections efficaces de production des isotopes situés sur les colonnes N = 84 et N = 85, de Z = 66 à Z = 72, en raison des possibilités de normalisation sur le  $^{150}$ Dy at des propriétés de collection probablement très voisines pour toutes les terres rares. Les autres éléments mesurés en ligne Hf, Pt, Au, Hg, Po, Ac, Ra semblent collectés de manière très similaire aux terres rares, mais nous n'en avons pas fait de contrôle expérimental précis.

Pour assurer une efficacité de détection constante pour des isotopes produits avec des énergies de recul différentes nous avons utilisé une procédure particulière. Pour une cible très épaisse les distributions des activités dans la cible et dé. s le gaz ralentisseur utilisé sont représentées sur la fig. 74. Si l'épaisseur de la cible est plus grande que les plus grands parcours de recul des noyaux résiduels, alors un plateau apparait dans la distribution des activités en fonction de la distance de recul. La valeur de l'activité au niveau du plateau ne dépend plus ni de la valeur moyenne de recul (courbes 2 et 3) ni de la largeur de la distrib tion (courbes 1 et 2) mais reste propor-

- 167 -



- 168 -

Fig. 74 : a) Représentation schématique de différentes

 b) Activités produites en cible épaisse par les trois distributions de recul envisagées au a). Effet de la pression du gaz.

tionnelle à la section efficace totale  $\sigma_{tot} = \int (\frac{d\sigma}{dx}) dx$  de production. En baissant la pression de gaz la longueur du plateau augmente.

Le système de collection que nous avons utilisé est le dispositif comprenant un entrainement gazeux (ventilateur) superposé à la collection électrostatique tel qu'il a été décrit au chapitre 2. Le rendement de collection ayant été testé sur <sup>214</sup>Fr(T<sup>1/2</sup> = Sms), R = 0.5% à comparer avec R = 1%
pour  $2^{13}$ Fr( $T^{1/2} = 35$ s) nous pouvons être certains que la collection se fait à rendement constant de T<sup>1/2</sup> = 20ms à T<sup>1/2</sup> > 1 mm. La distance de recul sur laquelle se fait la collection est volontairement assez réduite et ne prend que la gamme de recul de O à 2,5 cm ; c'est à dira que dans le fonctionnement à 60 mbar adopté la collection se fait dans la partie saturée de l'activité (plateau) si les énergies de recul sont supérieures à 2 MeV. Nous verrons dans le paragraphe mesures de recul que tel est bien le cas pour les cibles de Z > 68 utilisées dans cette étude. Ce fonctionnement n'est évidemment pas celui assurant le meilleur rendement global puisque seule une fraction de l'activité globale est prélevée, mais cependant la production des isotopes de terres rares est suffisamment importante (fig, 75) pour permettre une bonne détection jusqu'à l'isotope déjà très éloigné de la stabilité  $^{156}Lu$  (E  $_{\alpha}$  = 5,665 MeV ± 10 keV)en très bon accord avec Hofmann et al (HOF 79).Les activités correspondant aux isotopes <sup>155</sup>Lu et <sup>157</sup>Hf sont à la limite de la détection (22 évènements et 11 évènements), mais elles sont vues sans ambiguité, avec des énergies E<sub> $\alpha$ </sub> = 5,650 MeV et E<sub> $\alpha$ </sub> = 5,735 MeV correspondant très bien aux mesures de Hofman et al mais assez différentes de celles reportées dans la table des isotopes de Lederer et al(LED \_)  $(valeurs mentionnées : {}^{156}Lu : 5540 keV : {}^{155}Lu : 5630 keV :$ <sup>157</sup>Hf : 5680 keV]. Pour tous les autres isotopes nos mesures sont en accord avec les valeurs citées par Lederer et al.

A partir des données enregistrées, l'information concernant l'activité produite pour chaque isotope (et surtout pour les isomères) est obtenue en décomposant le spectre selon une somme de pics individuels. Dans le dispositif expérimental utilisé où les résidus sont déposés à le surface du détecteur la forme d'un pic isolé n'est pas exactement une gaussienne (fig. 76). La forme que nous avons utilisée comme base dans la décomposition a été obtenue expérimentalement sur le même détecteur avec une source déposée sur la jonction donnant un pic principal ( $^{216}$ Po, E<sub>a</sub> = 6,78 MeV) isolé.



 $\mathbf{1}$  :

Fig. 75 : Spectre alpha des résidus produits dans la réaction <sup>12</sup>C+<sup>181</sup>Ta à 86 MeV/u.m.a.

ś

- 170



Fig. 74 : Forme du spectre théorique, pour une émission alpha d'énergie E, après traversée aux angles allant de 0 à 90° de la couche d'or de 40 μg déposée sur la jonction. L'élargissement gaussien de largeur σ apportée par l'electronique conserve une allure globale dissymétrique

Pour l'obtention des sections efficaces de production la correction des facteurs d'embranchements est une étape qui peut être une source d'erreur importante. Fort heureusement la connaissance générale de la région considérée Z  $\sim$  65-72 a considérablement progressé à la suite des études récentes faites au GSI (HOF 79), à ISOLDE (HAG 77), et à Dubna (ALK 79, KOR 79) (aucun de ces travaux n'est mentionné dans la compilation de Lederer et al.). Le tableau n° 7 résume l'état actuel des connaissances dans cette région.

- 171 -

157 Ta 6219 100	1 58 605 93	Ta 1	15:	<sup>160</sup> Te 5413 < 50	
156 <sub>H</sub> f 5878 100	157 573 9	Hf 15 11	150 521	<sup>3</sup> Hf 66 16	<sup>1 59</sup> Hf 5095 - 12
155 Lu	151	Lu	15	7 <sub>Lu</sub>	158Lu
5 6 5 6	5450 5565		49	96	4665
79	≈ 80	100	5 6		< 1
154 <sub>Yb</sub> 5 332 93	<sup>155</sup> Yb 5 206 84		156 Yb 4 606 21		157 <sub>Yb</sub> 4505 < 1
153 Ţm	<sup>154</sup> Tm		155 Tm		
5109	4 959	5035	44	58	
95	59 2 90		< 1		
152 Er	153 Er		154Er		
4 800	4674		4 170		
e6	50		< 1		
<sup>151</sup> Ho	<sup>152</sup> Ha		153Ho		
4 607 4 520	4 3 9 5	4450	3510	4010	
13 18	12	. 210	<1	<1	
<sup>150</sup> Dy	151	Dy	15	2 <sub>0y</sub>	
4232	4066		3 630		
37		6	<1		
N=84	N = 8	35	N =	86	· · ·

Table 7 : Energies en keV et rapports d'embranchements alpha (en %) dans la région des terres rares ; les valeurs portées sont en général celles de Hofmann et al qui sont les plus précises. A égalité de précision avec d'autres mesures, la moyenne des mesures a été utilisée (<sup>152</sup>Er, <sup>153</sup>Er). Pour les isotopes présentant des isomères la plus grosse incertitude concerne <sup>152</sup>Ho (4450 keV) qui n'a pas fait l'objet de mesures directes, la valeur de 10% est simplement vraisemblable Les isotopes de la colonne N = 86 ont des énergies alpha qui se superposent à celles des émetteurs des colonnes N = 84 et 85, mais les contributions comme celle de  $^{156}$ Yb(5690 keV) dans le pic de  $^{153}$ Er(5670 keV) sont très faibles (< 1%) parce que d'une part on n'observe aucun élargissement de ce pic, et que d'autre part même pour une production de  $^{157}$ Lu supposée double de celle de  $^{156}$ Lu, la production de  $^{153}$ Er reste très supérieure (le même argument reste valable pour les isotopes de Lu, Hf et Ta de N > 86).

Les cibles sur lesquelles nous avons effectué des mesures sant  $^{182-186}$ W,  $^{181}$ Ta,  $^{176}$ Yb et  $^{169}$ Tm. Les résultats obtenus sont portés sur le tableau 6. Pour l'isotope  $^{151}$ Dy, la section efficace indépendante de production a été portée dans le coin droit, puisque la contribution due à la filiation de  $^{151}$ Ho peut être calculée rigoureusement. Pour les autres isotopps de la colanne N = 85 les contributions dues aux filiations sont négligeables, les sections effic les portées sont donc indépendantes.

Pour comparer l'évolution des sections efficaces de <sup>151</sup>Dy à <sup>157</sup>Hf sur la colonne N = 85, nous avons porté les résultats obtenus sur les différentes cibles de manière à faire apparaitre la similitude très nette existant entre les diverses courbes  $\sigma_{N=85}(Z)$  (fig. 77). Il faut noter par exemple que même sur la cible de thullium les rapparts de production  $\sigma_{N=85}(Z)/\sigma_{N=85}(Z+1)$  restent voisins de ceux observés avec la cible de tangale (Par exemple  $\sigma_{\rm Er}/\sigma_{\rm Tm}$  vaut 3 pour la et 4 pour Tm).

Nous avons aussi étudié lors d'une expérience préliminaire les variations des sections efficaces de production sur des cibles de Ho, Au, Pb, Bi, Th. Le système employé alors était semblable à celui qui a permis la collection d'isotopes dans la région Z = 82 (c'est à dire celui représenté à la page 48). L'inconvénient principal d'un tel système pour la détermination des sections efficaces tient à l'impossibilité de contrôler la constance du rendement en fonction de la période. Cependant





174 -

en normalisant les résultats d'un isotope précis (ici  $^{152}$ Ho qui est le plus abondamment formé) sur les mesures communes faites avec le tantale on obtient la courbe portée sur la fig. 78 qui montre que la production d'éléments très éloignés de la cible ( $\Delta A$  allant jusqu'à 60) intervient avec des sections efficaces supérieures à 1 mb.



Fig. 78 : Sections efficaces indépendantes de production de l'isotope  $^{152}$ Ho en fanction de  $\Delta A$  =  $A_{cible} \stackrel{1}{\sim} 152$ 

Le cas du thorium étudié avec ce système est très particulier. En effet les seuls isotopes détectés se répartissent en deux groupes très restreints, d'une part  ${}^{226-227}p_0$ ,  ${}^{225-226}Th$ et leurs filiations, et d'autre part les terres rares N = 84, N = 85. Les isotopes comme  ${}^{213}Fr(T^{1/2} = 35s)$ , dont on sait expérimentalement qu'ils sont collectés avec un bon rendement, ne sont pas du tout détectés (fig. 79).

- 175 -

	1854		182 <sub>W</sub>		1611.		176 <sub>Yb</sub>		169 78	
2	4 - 84	N + 85	N - 14	N + 85	n · •	N - 85	H + D4	N + do	N+84	N - 65
41						∿ 10 yb				
Lu	1			,	1.13 pb	410yb   140yb		3010 4700		<12µz; 40 µc
۲Þ		.2	.23		.34	1.5	Tous	.33	.2	.55
T =	.5	1.1	1.1	.36 2.5	2.5	.5 [5.4	.14	- 11.7	1.3	·  3.3
e.,	1.3	•	4.7	8.5	10	ч	3.7	•	7.4	14
10	3.27	3.5 12	5.3 13	3.3 34	12 38	7 29	4 15	2 17	5.2 27	2.3 27
ь, [	10.4	21.6	23.3	29.3	36.3	18 22	23	40	45	512 23

Tableau 8 : Sections efficaces des isotones de N = 84 et 85 des éléments du Dy au Hf produits par interactions des faisceaux de <sup>12</sup>C de 86 MeV/a.m.u. sur le <sup>182</sup>,<sup>186</sup>W, <sup>181</sup>Ta, <sup>176</sup>Yb, <sup>169</sup>Tm



Fig. 79 : Spectre alpha dans la réaction  ${}^{12}C$  +  ${}^{232}Th$ 

- 176 -

# B - <u>MESURES CYFFERENTIELLES DE RECUL ET DISTRIBUTIONS ANGULAIRES</u> POUR LA CIBLE DE Ta

1 - MESURES DE PARCOURS DE RECUL

A la base de toutes les mesures d'énergie par le parcours des ions dans les gaz ou les solides, la connaissance précise du ralentissement est nécessaire. Aux énergies qui caractérise...t les reculs dans les réactions du  $^{12}$ C à 86 MeV/a.m.u. sur diverses cibles, entre 0 et 30 MeV, le pouvoir d'arrêt nucléaire devient important, c'est pourquoi nous avons eu recours le plus possible aux valeurs expérimentales. Pour les parcours de  $^{149-151}$ Dy dans l'aluminium les travaux de Winsberg et al (WIN 81) et de Natowitz et al (NAT 69) couvrent le domaine très important de 4 MeV à 15 MeV d'énergie ; les mêmes parcours dans l'azote ont été tirés des travaux de Gilat et al (GIL 64). Pour les parcours dans les milieux solides autres que Al nous avons utilisé le code de calcul Steward (STE 68).

La première méthode que l'on peut utiliser pour mesurer des énergies de recul consiste à mesurer séparément l'activité Ac produite dans une cible épaisse et Ar dans des collecteurs d'aluminium placés de manière à arrêter l'ensemble des noyaux sortant de la cible. On a alors :

 $\overline{E_r} = e_x \frac{A_r}{A_r}$  où  $\overline{E_r}$  est obtenu en mg/cm<sup>2</sup> de par-

cours dans la cible d'épaisseur e exprimée en mg/cm<sup>2</sup>. Les relations parcours-énergie des noyaux de recul dans la cible sont donc nécessaires pour exprimer  $E_{\rm R}$  en MeV. Par exemple dans le cas d'une cible de tantale de 2,4 mg/cm<sup>2</sup> et pour les noyaux de recul <sup>150</sup>Dy on obtient :

r = .58 soit un parcours dans le tantale de  $A_c + A_r$ 

1.39 mg∕cm<sup>2</sup> qui correspond d'après les valeurs données par le programme Steward à une énergie de recul Ē<sub>r</sub> = 8,5 MeV.

- 177 -

Une autre méthode plus détaillée, tenant davantage compte de la largeur de distribution des produits de recul, peut être employée. Il s'agit d'une détermination reposant uniquement sur les activités recueillies dans différents collecteurs d'aluminium placés derrière une cible épaisse. La détermination de l'énergie de recul est alors faite à partir des parcours dans l'aluminium, pour lesquels on dispose de mesures expérimentales. La confiance dans cette méthode est donc bien plus grande que pour la détermination par le parcours dans la cible. Si on appelle N(E) et n(E) les distributions en énergies de recul des noyaux produits à la sortie d'une cible épaisse et d'une cible mince respectivement on a la relation :

$$N(E) = \int_{E}^{\infty} n(E') dE'$$

Le parcours moyen est donné par :

$$\overline{E_{\mathbf{r}}} = \int_{0}^{\infty} E n(E) dE / \int_{0}^{\infty} n(E) dE$$

en intégrant par parties on obtient :

$$\overline{E_{r}} = \{ |E.N(E)|_{0}^{\infty} - \int_{0}^{\infty} N(E) dE \} / \int_{0}^{\infty} n(E) dE$$

$$= \sqrt{\sum_{n=0}^{\infty} n(E) dE = -N(0) et |EN(E)|_{0}^{\infty} = 0$$

et donc : 
$$\overline{E_{r}} = \frac{1}{N(0)} \times \int_{0}^{N(E)} dE$$

Or N(O) peut être déterminé par un collecteur min∩e placé juste derrière la cible, il suffit alors d'un deuxième collecteur épais pour déterminer

$$\int_{0}^{\infty} N(E) dE = N_{1} + N_{2}$$

. . .

Si le premier collecteur couvre la gamme d'énergie  $0\text{-}\Delta E$  on a alors la relation très simple :

$$\overline{E_{r}} = \frac{N_{1} + N_{2}}{N_{1}} \Delta E$$

où N $_1$  et N $_2$  sont les activités dans le premier ralentisseur et dans la somme des suivants.

La distribution obtenue avec le tantale est reportée sur la figure 80a . La valeur mentionnée  $\overline{E_r}$  = 12.0 ± 1.5 MeV a été obtenue par la méthode indiquée, la principale incertitude étant liée à l'estimation de N(0) = N<sub>4</sub>/ΔE.

La comparaison avec la valeur 8,5 MeV obtenue à partir de la mesure de parcours dans la cible indique un désaccord qu'on peut très vraisemblablement imputer à la surestimetion (déjà constatée à plus haute énergie (BIM 78) du pouvoir ralentisseur des cibles lourdes (ici Ta) sur les ions de recul lourds (ici Dy). Une erreur de 30% sur les pouvoirs d'arrêt à basse énergie suffirait pour faire disparaitre l'écart constaté, et comme aucune mesure ne permet de tester le calcul dans ce domaine, une telle erreur est parfaitement possible. Par la suite, les énergies de reculs obtenues par les rapports d'activité cible/collecteur seront exprimées en mg/cm<sup>2</sup> de cible, ce qui correspond à la grandeur réellement mesurée.

On a reporté sur la figure 80b la mesure faite en ligne avec le système de collection assurant un champ électrique collecteur homogène (dans un domaine de distances de recul alle.t de d = 1,5 cm à 17 cm) déjà détaillé au chapitre 2. La correspondance entre la mesure de parcours dans l'aluminium et celle dans l'azote est très bonne.



- Fig. 80a) D'stributions des reculs <sup>149</sup>Tb dans cinq collecteurs d'aluminium derrière une cible épaisse de Ta (2,4 mg/cm<sup>2</sup>)
  - b) Même distribution mesurée par la méthode de collection électrostatique pour <sup>150</sup>Dy

Le principal renseignement apporté par la mesure an ligne des énergies de recul concerne des différences éventuelles de distribution pour des isotopes situés plus ou moins près de la ligne de stabilité. Le résultat obtenu est tout à fait simple :les rapports des pics restent constant à 15% près (les incertitudes statistiques étant de cet ordre) et en bonne concordance avec les rapports obtenus dans la détermination des sections efficaces absolues.

Les seuls cas où les reculs des isotopes produits sur une même cible se révèlent très différents sont les cibles lourdes Z > 82. On voit très nettement sur la figure 81 que l'activité correspondant aux polonium et astate est répartie de manière très différente dans la cible et l'empilement que l'activité du groupe Dy, Tb. Les valeurs moyennes de recul mesurées sont alors :

 $\overline{E}_{r_{Dy}} = 1 \text{ mg/cm}^2 \text{ de cible (Pb)}$   $\overline{E}_{r_{At,Po}} = 0.2 \text{ mg/cm}^2 \text{ de cible (Pb)}$ 

Il est important de remarquer que l'énergie de recul des terres rares sur le plomb est inférieure à celle mesurée sur le tantale. D'autres mesures sont en cours pour préciser ce point, mais il semble que les énergies de recul soient



Fig. 81 : Répartition des activités produites sur une cible de plomb en fonction de la distance de recul

- 181 -

régulièrement croissantes jusqu'aux noyaux résiduels eyent de 30 à 40 nucléons de moins que la cible et vraisemblablement constantes ou décroissantes au delà.

Les valeurs des parcours de recul moyens pour le résidu <sup>150</sup>Dy dans les cibles allant du gadolinium au plomb sont portées sur la table 4.

Cible	<sup>160</sup> 0y	<sup>162</sup> Dy	<sup>164</sup> 0y	<sup>165</sup> Ha	169 <sub>Tm</sub>	174 <sub>Yb</sub>	176 <sub>Yb</sub>	<sup>181</sup> Ta	200 <sub>Pb</sub>
R en mg/cm <sup>2</sup> ds cible	. 42	.46	.54	. 55	, 61	. 76	.71	1,3	1.0

Table 4 : Parcours de recul moyens mesurés pour <sup>150</sup>Uy en mg/cm<sup>2</sup> de cible pour des cibles d'oxydes de terres rares allant de <sup>160</sup>Gd à <sup>176</sup>Yb et pour les cibles métalliques <sup>181</sup>Ta et <sup>208</sup>Pb

Les cibles d'oxyde de terres rares ont un pouvoir ralentisseur supérieur aux cibles métalliques à cause des éléments légers présents. Rivet et al (RIV 77) ont montré que pour une énergie donnée les parcours dans les cibles métalliques étaient an moyenne de 60% supérieurs aux parcours dans les oxydes. En tenant compte de cette correction, on obtient une courbe de parcours où les points obtenus sur <sup>181</sup>Ta et <sup>200</sup>Pb peuvent être comparés aux autres (fig. 82).



Fig. 82 : Evolution de l'énergie de recul de  $^{150}$ Dy exprimée en mg/cm<sup>2</sup> de cible en fonction du nombre de nucléons  $\Delta A = A_{cible} \sim A_{résidu}$  perdus par la cible dans la réaction

### 2 - DISTRIBUTION ANGULAIRE

Comme pour les mesures précédentes, la prise de donnée a été faite dans un premier temps sur les isotopes de période longue puis sur les isotopes de période courte par une méthode en ligne. Les mesures hors ligne ont été obtenues en disposant des collecteurs d'aluminium circulaires centrés sur l'axe du faisceau. Les résultats sont portés sur la fig. 83 (en accord général avec le calcul théorique de cascade nucléaire qui sera exposé dans la suite).

La collection en ligne électrostatique des noyaux de recul formés à un angle donné a été développés très récemment avec succès. Il s'agit d'utiliser un "détecteur" placé sous vide collectant les noyaux reculant dans un angle solide d $\Omega$  fixé par l'ouverture de la fenêtre et la distance à la cible. Les détails techniques liés à l'utilisation d'un tel système ont été décrits au chapitre 2. Les premiers résultats obtenus sur la cible de tantale avec cette méthode donnent comme pour les reculs des rapports de production constants pour les divers isotopes de terres rares (à l'intérieur des barres d'erreurs) dans les mesures sur des angles allant de 5° à 20°. Les spectres obtenus à 7° et 20° sont portés sur la fig. 84.

- 183 -





Fig. 83 : Distributions angulaires du groupe (<sup>15D</sup>Dy,<sup>151</sup>Dy, <sup>149</sup>Tb} produit sur une cible de tantale. La courbe continue est donnée par le calcul de cascades intranucléaires



Fig. 84 : Comparaison des spectres obtenus en ligne à 7° et 20° avec une cible de tantale

### C - INTERPRETATION PAR UN MODELE DE CASCADES INTRANUCLEAIRES

Le programme de calcul que nous avons utilisé est celui de Bertini et al (BER 74). C'est un code de type Monte-Carlo conçu pour décrire les réactions nucléaires aux énergies supérieures à 50 MeV/u.m.a. et l'application aux énergies de 1 GeV/u.m.a. a montré un ban accord général avec l'expérience pour la plupart des grandeurs mesurées (spectres de particules, sections efficaces, distributions angulaires). Pour l'estimation des sections efficaces, les valeurs absolues ne sont reproduites qu'à un facteur 2 ou 3 près.

Dans ce modèle on suppose assentiellement que les réactions entre ions lourds peuvent être décrites par les interactions des nucléons individuels de la cible et du projectile. On peut imaginer une analogie macroscopique en considérant deux poignées de sable projetées l'une contre l'autre, se croisant et s'interpénétrant. Dans le cas que nous étudione il s'agit de "poignées" de particules de spin 1/2. On a donc une interaction entre deux gaz de Fermi, Dans les zones de recouvrement des deux noyaux, les collisions entre nucléons presque libres initient une cascade, dans le projectile comme dans la cible.

Les approximations qui sont certainement les moins justifiées du modèle sont liées à la suppression de la cohérence spatiale et temporelle des différentes cascades provoquées par les nucléons individuels. En effet, lorsque des zones de déplétion apparaissent en un point du royau, les cascades voisines ne peuvent pas se développer de manière indépendante. Il en est de même dans le cas de sur-densité locale. Tous les types de phénomènes cohérents ou collectifs ne peuvent donc pas être décrits par ce modèle.

Par ailleurs les phénomènes de cascade laissent le noyau dans un état intermédiaire où l'énergie globale thermique peut être très importante. Le code utilisé traite alors la désexcitation de manière classique en supposant que le temps d'établissement de l'équilibre thermique (même température en tous les

- 185 -

points du noyau) est court devant le temps caractéristique d'émission des particules. Pour des énergies d'excitation très élevées les densités d'états calculées sont si grandes que les temps d'émission correspondants deviennent très faibles (inférieurs à  $10^{-25}$ sl). Il est intéressant de rappeler que de simples limitations dues à la relativité interdisent une transmission d'informations d'un point à un autre du noyau en moins de 3 x  $10^{-24}$ s par fermi. L'apparition de points chauds est alors fortement probable. Il se pourrait cependant que la traversée réciproque des deux gaz de fermi de grande transparence conduise à un échauffement réparti en volume auquel cas l'approximation faite dans le modèle considéré ne serait pas trop aberrante.

## 1 - LFS ETATS INTERMEDIAIRES PRODUITS APRES LA CASCADE

Il est possible, en interrompant la séquence de calcul avant la partie traitant l'évaporation, de savoir quels sont les noyaux formés dans l'étaps intermédiaire et qu'elle sont leurs énergies d'excitation.La cartographie, dans le plan N,Z, des courbes d'iso-production a été portée sur la fig. 85 dans le cas d'une cible de plomb (les résultats sont similaires pour d'autres cibles lourdes comme Ta, Ho...). On s'aperçoit que le nombre moyen de particules enlevées à la cible est assez faible et que pour quelques noyaux la charge et même la masse peuvent être supérieures à ceux de la cible. En raison de la statistique assez limitée obtenue avec un calcul de Monte-Carlo, les très faibles productions ne sont pas accessibles, mais le confinement des noyaux formés après la phase des cascades intranucléaires autour du point  $\Delta N=-2$ ,  $\Delta Z \sim -1$  est très apparent.

- 186 -

- 187 -



Fig. 85 : Représentation des courbes théoriques d'isoproduction des noyaux après la cascade intranucléaire dans l'interaction  $^{12}$ C +  $^{208}$ Pb

Les énergies d'excitation sont comprises entre 0 et 700 MeV pour l'ensemble des noyaux formés (fig. 86). On peut dire en simplifiant un peu que les noyaux très proches de la cible ont une énergie d'excitation très faible et sont formés aux grands paramètres d'impact, les noyaux de Z < Z cible ont des énergies d'excitation allent de 50 à 150 MeV avec un paramètre d'impact moyen et que les noyaux de Z > Z cible sont formés avec de très grandes énergies d'excitation allant jusqu'à 700 MeV pour des collisions plutôt centrales.



Fig. 86 : Nombre des noyaux ayant une énergie d'excitation donnée avant évaporation

# 2 - LES SECTIONS EFFICACES DE PRODUCTION ET LE ROLE DE L'EVAPORATION

Les résultats ont été portés dans les deux cas du tantale et du plomb sur les figures 87a) et b). On voit que la contribution théorique due à l'évaporation est considérable et reflète l'existence d'énergies d'excitation importantes dans l'étape intermédiaire. Il est intéressant de noter que sur le tantale le maximum de production sur la colonne N=85 est donné pour les isotopes <sup>152</sup>Ho, <sup>153</sup>Er ce qui reproduit bien le maximum trouvé pour l'<sup>152</sup>Ho expérimentalement (fig. 77). Le résultat principal de ce calcul est la prédiction d'une production maximum le long d'une ligne assez écartée de la ligne de stabilité avec notamment une baisse des sections efficaces en allant (toujours sur la colonne N = 85) de  $^{152}$ Ho au  $^{147}$ Sm (stable). Les courbes présentées sur la fig. 77 sont en très bon accord avec ces prédictions ; de plus pour des cibles très riches en neutrons comme <sup>186</sup>W les distributions de sections efficaces restent maximum pour le groupe Dy, Ho et très semblables à celles observées sur les autres cibles. Il semble qu'une certaine perte d'information sur la composition précise du N et Z de la cible soit due à la part considérable de l'évaporation. Par exemple les isotopes <sup>182</sup>W et <sup>181</sup>Ta no diffèrent que par la présence d'un proton supplémentaire dans le tungstène.Or expérimentalement le maximum de production sur le tungstène dans la colonne N = 85 n'est pas décalé d'une unité de  $^{152}$ Ho à  $^{153}$ Er ; le rapport  $\sigma_{152}$ Ho  $^{153}$ Er

exactement constant et égal à 2 pour ces deux cibles.

Les valeurs expérimentales pour des isotopes plus proches de la stabilité que  $^{151}$ Dy ne sont pes obtenues par notre méthode. Cependant sur toutes les cibles de  $^{169}$ Tm à  $^{186}$ W, il est visible sur les courbes de la fig. 77 que nous ne détectons pas la queue d'une distribution centrée sur la stabilité, mais bien la partie maximum et la queue vers les isotopes déficients en neutrons d'une distribution centrée sur une ligne décalée d'environ 11 à 12 neutrons vers les isotopes légers par rapport



Fig. 87 : Courbes d'iso-production calculées des noraux résiduels produits dans les réactions sur les cibles <sup>161</sup>Ta et <sup>208</sup>Pb

à la ligne moyenne de stabilité. Il faut préciser que seule l'obtention de sections efficaces indépendantes pour des isotopes identifiés en N et Z permet d'accéder à cette information.

Cette caractéristique tend à montrer que la cescription : faible perte de nucléons par la cible dans l'interaction directe suivie d'une perte importante dans l'évaporation, telle que le modèle de cascade le prévoit est tout à fait compatible avec nos observations expérimentales sur la cible de tantale et les cibles voisines, c'est à dire pour les noyaux résiduels ayant de 15 à 30 nucléons de moins que la cible.

Sur des cibles plus lourdes, la détection expérimentale des isotopes de Dy, Ho, Er ne correspond pas tout à fait aux prédictions théoriques mais la statistique très faible qui nuit à la comparaison ne provient pour une fois pas de l'expérience mais du code de Monte-Carlo pour lequel des temps de calculs supérieurs à 1 heure ne permettent pas de calculer les sections efficaces de l'ordre du millibarn.

Les distributions angulaires expérimentales pour tous les isotopes de même N et de Z variant entre 66 et 70 sont assez bien décrites par le calcul de cascade (fig. 83) dans le cas du tantale. Il s'agit donc là d'un deuxième critère qualitativement satisfait.

### 3 - LES DIVERGENCES ENTRE LE CALCUL ET L'EXPERIENCE

Quand on s'intéresse aux distributions de recul, l'accord théorie-expérience devient moins bon. Pour les résidus proches de la cible (comme les Po-At sur la cible de plomb) le calcul donne des énergies très faibles, compatibles avec nos mesures ( $\sim$  .5 MeV), mais pour des résidus plus éloignés de la cible les valeurs de recul calculées sont plus grandes que celles mesurées et constamment croissantes avec  $\Delta A = A_{cible} - A_{résidu}$ . La description de la production de noyaux très éloignés de la cible ( $\Delta A = 60-80$  observé sur Pb et Th) avec des énergies de recul faibles (de l'ordre de 5 à 10 MeV) semble tout à fait en désaccord avec les résultats du calcul (moyenne donnée par le code : 20 MeV pour  $\Delta A$  = 40-50).

Ce serait donc du côté des noyaux résiduels ayant perdus plus de 30 nucléans qu'il faudrait chercher l'apparition d'une éjection collective de matière, vraisemblablement vers l'avant pour expliquer le faible recul.

Un autre espect expérimental des réactions sur les noyaux très lourds fissiles à faible moment angulaire comme Th est intéressant et ne peut être décrit par le calcul. Il s'agit de la production sur le thorium des isotopes Dy, Ho, Er...etc, des isotopes  $226 - 227_{\text{Fo}}$ ,  $225 - 226_{\text{Th}}$  proches de la cible et de l'absence remarquable de production des isotopes de Ra, Fr pour A < 220, L'explication tout à fait naturelle est donc que pour les approches très périphériques l'échange de quelques nucléons dans des collisions en très petit nombre se fait sans transfert de moment angulaire et donc sans ouverture massive de la voie de désexcitation par fission. L'absence des isotopes Ra, Fr est alors liée à la présence de moment angulaire dans le noyau intermédiaire formé après les cascades, et la fission est alors dominante. Le code que nous avons utilisé ne comportant pas la fission, cet aspect n'est de toute façon pas décrit. Mais il est intéressant de noter que les noyaux très éloignés de la cible continuent à apparaitre. On peut en conclure que leur mode de production n'est pas sensible à la fission. Les interprétations possibles sont multiples ; éjection rapide d'un "morceau" de cible produisant un novau intermédiaire non fissile : absence de mcment angulaire dans les collisions centrales ou encore bloquage dynamique de la fission au profit de l'émission de particules pour des novaux très excités (E > 250 MeV).

#### 4 - CONCLUSIONS

L'étude des énergies intermédiaires de 20 MeV/u.m.a. à 100 MeV/u.m.a. ne fait que commencer et va se développer dans les années à venir. Il semble que des modèles de type haute énergie, comme celui des cascadas nucléaires que nous avons utilisé, soient encore tout à fait útiles pour aider à la compréhension des phénomènes à 86 MeV/u.m.a. mais laissent entrevoir des failles qui devraient s'accentuer en allant vers les énergies de transition 30-50 MeV/u.m.a.Nous pensons que l'étude des propriétés intégrées et différentielles de la formation des noyaux lourds émetteurs alphe apporte des informations déjà concluantes par elles-mêmes, mais qu'une confrontation avec le° données recusillies sur les particules ou les fragments légers serait des plus fructueuse.

- 192 -

ANNEXFS

じょうい

ANNEXE 1

#### LE MODELE DU FAISCEAU PLAT

La détermination générale des mouvements de charges dans un champ électrique est du type self-consistant quand les densités de charges libres sont assez importantes pour contribuer notablement au champ électrique. En effet le champ détermine les déplacements et donc l'évolution des densités, or celles ci déterminent le champ. Une approche directe aboutit à l'écriture d'équations intégrales, non résolubles à priori.

C'est pourquoi il est fructueux, comme dans beaucoup de problèmes self-consistants, de commencer par traiter un cas de régime permanent possédant le plus de symétries possibles. Ultérieurement, il est possible de "rompre" ces symétries par des calculs de perturbation ou d'envisager une étude de l'évolution au cours du temps entre deux régimes permanents.

Dans ce cadre, le maximum de symétrie est présent en supposant l'existence d'un faisceau plan placé entre deux plaques, planes également, chacune à la distance d du faisceau (figure a). Les grandeurs physiques comme  $\vec{E}, p, \vec{v}, \vec{J}, V$  ne dépendent alors que d'un seul paramètre : l'abscisse x sur un axe perpendiculaire au plan du faisceau. Le temps n'intervient pas si on exclut la possibilité d'oscillations superposées à un régime permanent, par exemple dues à un faisceau pulsé ou à l'utilisation de tensions alternatives superposées à des tensions continues. Dans le cas de tensions continues on peut légitimement supposer que sous les pressions de gaz considérées les phénomères d'amortissement empêchent l'entretien d'oscillations (il faut rappeler que si des variations  $\vec{E}(t)$  sont présentes, l'électrocinétique est insuffisante, il faut consi-

dérer le champ( $\vec{E}$ ,  $\vec{B}$ )et on rentre dans le cadre des phénomènes de plasma).

a) <u>Calcul du courant transporté par le gaz</u>

Les équations de départ sont données par l'électrostatique et l'électrocinétique :

~ circulation du champ

٠Ŀ,

**^** 

$$\int_{-d}^{+d} E(x) dx = V \quad ou \\ \int_{-d}^{0} E(x) dx = V^{-}$$

 théorème de Gauss(le volume v est représenté sur la figure a).

$$\int_{v} \vec{E} d\vec{S} = \Sigma \frac{p}{\epsilon_{0}} \quad \text{soit } E(x) \cdot S = E_{0}S + \int_{0}^{x} \frac{Sp(x)dx}{\epsilon_{0}}$$
  
ou encore :  $E(x) = E_{0} + \int_{0}^{x} \frac{p(x)dx}{\epsilon_{0}}$ 

E<sub>o</sub> étant la valeur du champ électrique au voisinage du faisceau.



Figure a : Représentation du faisceau plat

- 194 -

- Les équations cinétiques sont :

Si on suppose que S est une surface unité parallèle aux plateaux à la distance x on peut alors définir l'intensité J(x) par unité de surface par :

$$J(x) = \frac{I(x)}{S} = \rho(x) \cdot v(x)$$

La conservation des charges impose que J soit en fait indépendant de x.

Il reste alors une équation à écrire, celle qui caractérise la création des paires e<sup>-</sup>, ions<sup>+</sup>. Nous avons vu dans le chapitre II, B,3 que compte tenu des recombinaisons l'intensité par unité de surface peut se mettre sous la forme :

 $J = \alpha E_0$  avec  $E_0$  champ électrique dans le faisceau (x = 0).

Les équations reliant E(x) et  $\rho(x)$  sont, en éliminant v(x) et pour x > 0

$$\begin{cases} J = p(x) v(x) = p(x) \mu^{*}, \frac{E(x)}{p} \\ E(x) = E_{0}^{*} + \int_{0}^{x} \frac{p(x)}{\varepsilon_{0}} dx \end{cases} \quad \text{soit} : \begin{cases} J = \frac{\mu}{-} E(x) p(x) \\ p \\ \frac{dE(x)}{dx} = \frac{p(x)}{\varepsilon_{0}} \end{cases}$$

en combinant ces deux dernières équations on obtient :

$$E(x) \frac{dE(x)}{dx} = \frac{JP}{\mu^{\dagger} \epsilon_{0}}$$

On détermine donc E(x) =  $\begin{pmatrix} 2 & J & p \\ \mu^* \epsilon_0 \end{pmatrix}$  x.+  $E_0^2$  pour x > D

avec 
$$V^+ = \int_0^0 E(x) dx = \frac{\mu + \epsilon_0}{3Jp} \left[ \left( \frac{2Jpd}{\mu + \epsilon_0} + E_0^2 \right)^{3/2} - E_0^3 \right]$$

Dant le cas d'une mobilité très grande (µ<sup>+</sup> + ∞ on trouve :

 $V^* = E_0 d$  qui correspond au champ homogène  $E_0 = \frac{V^*}{d}$  présent en l'absence de charges.

Quand  $\mu^+$  est faible, dans des conditions de validité que nous vérifierons à postériori, on peut négliger les termes en E<sub>n</sub><sup>2</sup> et E<sub>n</sub><sup>3</sup> dans l'expression de V<sup>+</sup>. Il vient alors :

$$V^{*} = \frac{1}{3} \frac{\mu^{*} \epsilon_{0}}{J_{*}p} \left( \frac{2Jpd}{\mu^{*} \epsilon_{0}} \right)^{3/2}$$

soit :

$$i^{+} = \frac{9}{8} \quad \mu^{+} \epsilon_{0} \quad \frac{v^{+2}}{p d^{3}}$$

La validité de cette expression peut être estimée en comparant la valeur du courant ainsi calculée à la valeur  $J_{max} = \frac{I_{faisc.}}{\bar{q}} \cdot \frac{\Delta W}{w}$  où  $\Delta W$  est la perte d'énergie en eV par mètre et w l'énergie moyenne de séparation ion<sup>+</sup>, e<sup>-</sup>. Numériquement  $\frac{\Delta W}{w}$  vaut 3 10<sup>6</sup> à 300 mbar d'N<sub>2</sub> avec un faisceau d'argon de 300 MeV. En prenant V<sup>+</sup> = 4000 V et d' = 4 cm.

 $J^{+} = \frac{9}{8} \times 2 \ 10^{-4} \ \frac{1}{36\pi \ 10^{9}} \ \frac{16 \ 10^{6}}{0.3(0.4)^{3}} \Rightarrow \text{soit} : J^{+} = 1.6 \ \text{mA/m}^{2}$ 

Pour une portion de faisceau de 1 cm de large correspondant à la dimension transversale d'un faisceau réel cela correspond donc à j<sup>4</sup> = 16 µA/cm.

On peut alors calculer quelle est l'intensité I d'un faisceau d'argon nécessaire pour créer une ionisation correspondant à cette valeur. En supposant des ions d'Ar de charge 16, on obtient :

$$\frac{1}{16 \cdot \frac{\Delta W}{W}} = J^* \text{ soit } I \approx 8,5 \ 10^{-11} \text{ A}$$

Cette intensité est de 2 à 3 ordres de grandeur inférieure à l'intensité couramment utilisée. Le gaz doit donc âtre considéré comme un très mauvais conducteur la mobilité des ions est faible et il ne peut donc évacuer toutes les charges crées au niveau du faisceau.

Ceci a été écrit pour x > 0 et donc pour le transport des ions, mais les équations sont les mômes pour les électrons pour x < 0. On obtient :

 $J^{-} = \frac{9}{8} \mu^{-} \epsilon_{0} \frac{(v^{-})^{2}}{p d^{3}} \quad \text{comme } J^{+} = J^{-} \text{ on a}$  $\mu^{+} (v^{+})^{2} = \mu^{-} (v^{-})^{2}$ et  $v^{+} + v^{-} = v$ 

Si comme dans le cas de N<sub>2</sub> les ions négatifs  $N_2$ n'existent pas la mobilité µ est entièrement électronique et environ 1000 fois plus grande que la mobilité ionique.

Cela entraine :

$$v^{-} = \sqrt{\frac{\mu^{+}}{\mu^{-}}} \quad v^{+} \simeq \frac{v^{+}}{30} \quad \Rightarrow \qquad \frac{v^{+} \simeq \frac{29}{30}}{30} \quad v \simeq v$$

La différence de potentiel totale V de -d à +d se partage donc de manière très inégale de part et d'autre du faisceau. Pour celculer J on peut approximer V<sup>\*</sup> à V.

 b) <u>Orires de grandeur de α et de E<sub>0</sub>, vérification</u> des approximations

 α est calculé à partir de la relation empirique donnée à la page 66 :

$$\alpha = 4 \ 10^{-4} \ N_0 \ \frac{E_{déposé}}{w} \qquad \frac{1}{p^2}$$

Avec les caractéristiques du faisceau d'Ar utilisé précédemment, et en supposant une intensité de 10 nA/cm de large, on obtient  $\alpha \approx 10^{-5}$  si J est en A/m et E<sub>0</sub> en V/cm et donc :

$$J = 10^{5} E_{n}$$

En utilisant la valeur de  $J^* = 1,6 \text{ mA/m}^2$  définie précédemment on peut alors calculer une valeur de E<sub>0</sub> égale à : E = 160 V/m

- Les deux approximations effectuées précédemment :

$$\frac{2Jpd}{\mu^{+}\epsilon_{0}} > E_{0}^{2} \qquad \text{st} \left(\frac{2Jpd}{\mu^{+}\epsilon_{0}} + E_{0}^{2}\right)^{3/2} >> E_{0}^{3}$$

sont vérifiées dans ce cas. On a en effet :

$$\frac{2Jpd}{\mu \epsilon_0} \approx 2 \ 10^{11} \qquad E_0 = 1,61 \ 10^2$$

c) <u>Evaluation du temps de transport entre x = 0</u> st x = d

$$\Delta t = \int_0^d \frac{dx}{v(x)} \quad \text{avec } v(x) = \frac{\mu^*}{p} E(x) \quad \text{et} \left[ \frac{2Jp}{\mu^* e_0} x + E_0^2 \right]^{1/2} = E(x)$$

$$\Delta t = \frac{P}{\mu^+} \int_0^d \frac{2JP}{\mu^+ \varepsilon_0} x + E_0^2 = \frac{-1/2}{dx} = \frac{\varepsilon_0}{J} \left[ \left( \frac{2JP}{\mu^+ \varepsilon_0} x + E_0^2 \right)^{1/2} \right]_0^d$$

après approximation  $E_0^2 << \frac{2Jpd}{\mu^+ \epsilon_0}$  on obtient :

$$\Delta t = \left(\frac{2\rho\epsilon_0 d}{\mu^+ J}\right)^{1/2} \quad \text{avec } J = \frac{9}{8}\mu^+\epsilon_0 \quad \frac{\nu^2}{\rho d^3} \quad \text{soit } \Delta t = \frac{4}{3}\frac{\rho d^2}{\mu^+ \nu}$$

 Ce temps est très voisin du temps de transport en l'absence de charge d'espace :

$$\Delta t_0 = \frac{d}{v_0} \qquad v_0 = \frac{\mu^+}{p} = \frac{\mu^+ \vee}{p - d} \qquad \Rightarrow \Delta t_0 = \frac{p - d^2}{\mu^+ \vee}$$

On voit que  $\Delta t$  ne dépend pas de J et de  $\alpha$ . d) <u>Influence du volume occupé par le faisceau</u>

Jusque là, la section du faisceau a été supposée infiniment mince dans la direction Ox ; si on suppose que l'épaisseur réelle est 2e, on peut calculer un temps moyen de sortie du faisceau :

$$t_{S} = \frac{2e}{v} = \frac{2e}{\mu} \frac{2e}{F_{0}} \text{ soit } t_{s} = \frac{2ep\alpha}{\mu}$$

C'est la première valeur, dans ce modèle, qui dépende explicitement de  $E_n$  et donc de  $\alpha$  (puisque J =  $\alpha E_n$ ).

Pour le temps d'extraction du faisceau on obtient :

 $t_{s} = \frac{10^{-2} \ 3 \ 10^{-1}}{2 \ 10^{-4} \ x \ 150} \approx .1 \ s$ 

C'est donc cette contribution au temps total de transport qui est la plus importante. Le point essentiel est de connaitre le nombre de noyaux concernés par cette extraction de la zone ionisée ; la proportion dépend fortement du mécanisme de production et de la focalisation du faisceau. Ceci sera abordé dans l'annexe 3 sur le faisceau réel.

e) Le champ électrique

Au niveau de la zone ionisée le champ électrique vaut E<sub>O</sub> défini par E<sub>O</sub> = J/ $\alpha$  et on a une dépendance de È en fonction de x qui est très forte comme on le voit sur la figure 33 du texte.

Le fait que l'écoulement des charges soit décrit indépendamment de  $\alpha$ , c'est à dire de l'énergie, de l'intensité et de la nature du faisceau tient à la pente très forte de E(x) près de x = 0. En effet, ce qui est variable avec le faisceau est E<sub>0</sub>, mais dans la mesure où E<sub>0</sub> reste faible, la courbe E(x) se modifie très légèrement près de x = 0 pour "ajuster" l'extraction en fonction de J(V<sup>2</sup>/pd<sup>3</sup>) défini par l'écoulement "mécanique" des charges.

#### ANNEXE 2

### 1 - DIVERGENCE D'UNE COLONNE D'IONS

ŕ.

Dans le transport d'ions le long d'un tube de champ (voir figure a) la présence d'une densité de charge importante induit une composante perpendiculaire à la direction d'entrainement.

Si la perte par divergence n'est pas trop importante la décroissance de densité le long de Ox par divergence est faible et la composante longitudinale de champ crée par la charge d'espace peut être négligée pour estimer la vitesse d'entrainement selon Ox ( $v_{\mu}$ ).



Fig. a : Tube de champ pour le transport des ions extraits du faisceau

En écrivant v = 
$$\frac{\mu E_{\mu}}{\rho}$$
 on obtient :  $\rho = \frac{1}{\rho}$   
SuE.

connaissant la densité de charge on peut obtenir la composante E\_ par le théorème de Gauss :  $2 \pi r h E_{\perp} = \frac{S\rho h}{\varepsilon_{D}}$ Solt :  $E_{\perp} = \frac{S\rho}{2\pi r \varepsilon_{D}} = \frac{\rho r}{2\varepsilon_{D}}$  ou  $E_{\perp} = \frac{Ip}{2\pi r \varepsilon_{D} \mu E_{\mu}}$ 

On obtient donc les deux relations :

 $E_{\perp}$ ,  $E_{ij} = \frac{Ip}{2\pi r \epsilon_0 \mu}$  ou  $tg\theta = \frac{E_{\perp}}{E_{ij}} = \frac{Ip}{2\pi r \epsilon_0 \mu E_a^2}$ 

Le champ E a donc un effet important sur l'angle  $\theta$  de divergence puisque tg  $\theta$  est proportionnel à  $\alpha(1/E_{M}^{2})$ .

Pour θ > 30° la parte dans un système diaphragmé au rayon r (tube défini par des éléctrodes métalliques) est importante et sur une distance parcourue x du même ordre que r on a une diminution de ρ telle que :

$$o'(x + r) = p(x) \times \frac{1}{(1+tg\theta)^2} = \frac{p(x)}{2,5}$$

Ceci signifie que la composante longitudinale de  $E_{\mu}(2)$  due à la charge d'ospace n'est pas négligeable et est comparable  $\nu$  E on a alors  $E_{\mu+n+} \approx E + E_{\mu}(2) \approx E_{\mu} + E_{\perp}$ 

solt tg 
$$\theta \approx \frac{E_{\perp}}{E_{\text{stot}}} \approx -\frac{E_{\perp}}{E_{\text{stot}}}$$

Cela veut dire que pour une charge d'espace très importante les diffusions selon Ox ou Or sont équivalentes et que la diffusion à un angle  $\theta$  = 45° est un maximum.

Ιp

L'expression tg  $\theta = ----$  est donc essentielle- $2\pi r \varepsilon_n \mu E_n^2$ 

ment valable pour θ < 10-20°.

2 - CAS D'UN TUBE DE CHAMP COURBE

Si le tube de champ est un tronc de tore,comme c'est le cas dans nos expériences, il faut tenir compte de la courbure de la colonne d'ions. Pour estimer qualitativement les modifications par rapport au cas précédent on peut considérer le cas d'un transport sur une portion du volume compris entre deux cylindres comme représenté sur la figure b.

Si on considérait le volume entre les deux cyclindres  $[R_1 \text{ et } R_1 + r]$  entièrement occupé par une densité de charge uniforme p de  $\theta$  = 0 à 360° le champ E<sub>1 int</sub> serait nul et E<sub>2ext</sub> vaudrait :

Comme le volume n'est que partiellement rempli (de J à 120°) l'effet n'est pas suffisant pour ennuler E int et un a alors :

 $E_{\text{fint}} = f(\theta) \qquad \Rightarrow E_{\text{fint}} + E_{\text{fext}} = \frac{\rho r}{\varepsilon_0}$   $E_{\text{fext}} = \frac{\rho r}{\varepsilon_0} - f(\theta) \qquad \Rightarrow E_{\text{fint}} + E_{\text{fext}} = \frac{\rho r}{\varepsilon_0}$ 

C'est également ce qu'on trouve avec une colonne droite, car dans ce cas :

E int = E ext =  $\frac{\rho r}{2\epsilon_0}$ 



Fig. b : Représentation du tube de champ réel dans un transport courbe

Qualitativement on voit que la courhure de la colonne d'ions se traduit par une diminution de la divergence vers l'intérieur et une augmentation vers l'extérieur. L'effet est renforcé par le fait que le champ électrique E est plus fort pour les rayons les plus faibles et on a une configuration des champs dans le cas réel du type représenté sur la figure d.

Les relations :

$$\frac{E_{\mu \text{ ext}}}{E_{\mu \text{ int}}} < 1 \text{ et } \frac{E_{\mu \text{ ext}}}{E_{\mu \text{ int}}} > 1$$

impliquent :



Fig. d : Représentation des champs électriques dans un tube de champ de transport courbe
#### ANNEXE 3

 Approche d'un modèle de charge d'espace pour un faisceau réel.



Fig. a: Approximation par un domaine F<sub>O</sub> du faisceau réel

La suppression des portions F<sub>1</sub> et F<sub>2</sub> du faisceau plat porté sur la figure a amène la suppression de champs  $\vec{t}_2 = -\vec{t}_1$  qui contraignaient la colonne C<sub>0</sub> des ions issus de la portion F<sub>0</sub> du faisceau plat à suivre des lignes de champ parallèles à Ox.

En ne considérant donc que la portion  $F_0$  du faisceau, les ions de la colonne  $C_0$  vont pouvoir diverger selon une direction Dy , perpendiculaire à Dx et au faisceau, comme dans la colonne d'ion considérée dans l'annexe 2.

L'approximation au premier ordre est de considérer que l'écoulement selon Ox n'est pas modifié dans la suppression de F<sub>1</sub> et F<sub>2</sub>, et que les composantes  $\vec{E}_{\perp}$  (x) créées par la charge d'espace sont définies par les densités de charge trouvées dans le modèle du faisceau plat. - 205 -

On a alors :

$$E_{\mathbf{L}}(\mathbf{x}) \cdot E_{\mathbf{H}}(\mathbf{x}) = \frac{J \,\ell}{2\epsilon_0 \mu} \stackrel{\mathbf{p}}{=} \operatorname{at tg} \theta = \frac{E_{\mathbf{L}}}{E_{\mathbf{H}}} = \frac{J \,\ell_0 p}{2\epsilon_0 \mu} \stackrel{\mathbf{e}_{\mathbf{L}}^2}{=} \frac{J \,\ell_0 p}{\epsilon_{\mathbf{H}}^2}$$

La trajectoire d'une charge positive est alors telle que :

$$\frac{dy(x)}{dx} = tg \theta$$
faisceau  $\Rightarrow \frac{dy}{dx} = \frac{J \ell_0 p}{2\epsilon_0 \mu^+} \cdot \frac{1}{E(x)^2} = \frac{J \ell_0 p}{2\epsilon_0 \mu^+} \cdot \frac{1}{\frac{2 J p}{\mu^+ \epsilon_0} x + \epsilon_0^2}$ 



Fig. c ; Divergence des ions lors du transport.

$$y(x) = y_0 + \frac{k_0}{4} \log\left[\left(\frac{2J P x}{\mu^+ \epsilon_0 E_0^2}\right) + 1\right]$$

Reprenant les données de l'annexe 1, soit : J = 16  $\mu$ A ; P = 0,3 atm ;  $\mu^+$  = 2 10<sup>-4</sup> ; E<sub>D</sub> = 160 V/m ; d = 4 10<sup>-2</sup>m ; I faisceau = 10 nA, on obtient :

5 1

$$\ell(d) = 3,26 \ell_0$$

$$\ell(d) = \ell_0 + \frac{\ell_0}{4} \log \frac{2\alpha^2 p d}{\mu^* \epsilon_0 J}$$

Si on multiplie l'intensité de faisceau par 10, les valeurs de J, P et d demeurant inchangées on obtient :

 $\ell$  (d) = 4,4  $\ell_0$ 

Ce résultat n'est pas très différent de la valeur  $\ell(d) = 3,3 \ell_0$  calculée précédemment et montre une faible dépendance de l'élargissement transversal par rapport aux conditions de faisceau.

A la suite de cette estimation de la divergence il est possible de reprendre le calcul des vitesses d'écoulement des charges précédemment obtenu. Cependant, les équations commencent à poser des problèmes de résolution, surtout à cause de la présence du logarithme dans l'expression de L(x) :

> p(x).l(x).E(x) = - (i1 s'agit là de la nouvelle $<math>\mu^{\dagger}$  équation de conservation de la charge (j = J  $l_n$ )

$$\frac{d E(x)}{dx} = \frac{P(x)}{\varepsilon_0}$$

On obtient donc :

$$\frac{1}{4} \frac{\log \left(\frac{2\alpha^2 P de^4 x}{\mu^* \epsilon_0 J}\right)}{\varepsilon_0 J} \epsilon(x) \frac{d \epsilon(x)}{d x} = \frac{J p}{\mu^* \epsilon_0}$$

Il est possible de prendre une forme analytique approchant plus ou moins bien le logarithme dans le domaine considéré. Les formes les plus simples sont du type a + b  $x^{1/n}$ .

Le calcul peut être mené alors jusqu'à l'expression de J qui

est de la forme : J = C(n) -  $\frac{v^2}{r}$  . Le fait que cette  $p = \frac{3-\frac{1}{n}}{\frac{1}{\alpha^n}}$ 

expression soit assez dépendante de n montre que la description précise de l'élargissement de la colonne d'ion pour x faible, c'est à dire au niveau du faisceau, est importante. Si on prend

 $\mu$   $v^2$ n = 3 on trouve une expression du type J = C<sub>3</sub> -  $\frac{1}{B}$   $\frac{1}{3}$   $\frac{1}{\sqrt{3}}$ 

2

où la constante  $C_3 \stackrel{>}{\sim} 15 \varepsilon_0$ , ce qui donne un courant environ 5 fois supérieur à ce qui était calculé précédemment (dans des conditions identiques). On peut donc dire que dans l'approximation du second ordre les charges s'écoulent sensiblement de la même manière (formes analytiques voisines), mais avec de plus grandes intensités totales ; l'intensité qui "passe par les côtés" est donc assez importante.

#### ANNEXE 4

# Système comprenant un entrainement gazeux superposé au champ électrique

La différence principale avec le cas de l'ennexe 1 porte sur l'équation de mobilité des ions qui devient

 $\vec{v} = \mu \frac{\vec{E}}{c} + \vec{v}_0$  cù v<sub>0</sub> est la vitesse de l'entrainement gazeux.

Dans la mesure où les électrons ont une vitesse de déplacement très supérieure à  $v_0$ , ils peuvent toujours rejoindre la plaque positive et les équations de conservation de la charge écrites dans l'annexe 1 sont encore valides : Soit :

$$\begin{cases} \frac{d E(x)}{dx} = \frac{\rho(x)}{e_0} \\ \frac{dx}{dx} = \frac{\varepsilon_0}{e_0} \\ \frac{dx}{dx} = \frac{\rho(x)}{e_0} \\ \frac{dE(x)}{e_0} + \frac{\rho(x)}{e_0} + \frac{\rho(x)}{e_0} \end{cases}$$

soit :

$$E(x) = \left(\frac{2JP}{\varepsilon_{0}\mu} x + (\varepsilon_{0} + \frac{Pv_{0}}{\mu})^{2}\right)^{\frac{1}{2}} - \frac{v_{0}P}{\mu}$$

L'équation assurant que la circulation du champ E est égale au potentiel appliqué (en valeur absolue) s'écrit :

$$|V(x)| = \int_{0}^{x} E(x) dx$$

$$|V(x)| = \frac{\varepsilon_0 \mu}{3JP} \left[ \left( \frac{2JP}{\varepsilon_0 \mu} x + (E_0 + \frac{v_0 P}{\mu})^2 \right)^{\frac{3}{2}} - (E_0 + \frac{v_0 P}{\mu})^3 - \frac{v_0 P_x}{\mu} \right] - \frac{v_0 P_x}{\mu}$$

Des approximations du même type que celles des calculs précédents peuvent être faits :

$$E_{0} < \frac{v_{0}P}{\mu} \quad \text{entraine} :$$

$$|v(d)| = \frac{\varepsilon_{0}\mu}{3JP} \left[ \left( \frac{2JPd}{\varepsilon_{0}\mu} + \left( \frac{v_{0}P}{\mu} \right)^{2} \right)^{\frac{3}{2}} - \left( \frac{v_{0}P}{\mu} \right)^{3} \right] - \frac{v_{0}dP}{\mu}$$

Numériquement, dans les conditions standard déjà utilisées, les ordres de grandeurs sont :



L'intensité du courant extrait est dons sensible à la vitesse de l'entrainement gazeux et cette influence est identique à ceile qu'aurait un potentiel fictif V<sub>G</sub> = v<sub>0</sub>dP/µ dont la valeur correspond eu potentiel réel qui serait nécessaire pour que les ions acquièrent la vitesse v<sub>0</sub> par entrainement électrostatique.

- 209 -

Pour P = 300 mb,  $v_0 = 15 \text{ ms}^{-1}$ , d = 4 10<sup>-2</sup>,  $\mu$  = 2 10<sup>-4</sup> +  $V_0$  = 900 Volts

Les ordres de grandeur de courant sont donc tout à fait identique à ceux observés sans entrainement gazeux, et les phénomènes de recombinaison sont aussi importants, mais le temps de sortie du faisceau est grandement diminué ainsi que la divergence :

- Temps de sortie : 
$$t_0 = \frac{e}{v_0} = \frac{10^{-2}}{15} = 7 \ 10^{-4} s$$

$$E_{\perp} = - \frac{I}{2\pi_{2}\varepsilon_{0}v_{0}} \text{ avec } v_{\perp} = -\frac{\mu}{\rho} E_{\perp} \rightarrow t_{g}\theta' = \frac{v_{\perp}}{v_{0}} = \frac{kI}{2\pi_{r}\varepsilon_{0}v_{0}^{2}}$$

- Divergence tg $\theta' = 4 \ 10^{-2}$ 

5

Ce moyen de collection est donc rapide et présente peu de pertes dans le transport, mais il ne permet pas la re-ionisation dans le faisceau des ions à collecter,

- 210 -

#### CONCLUSION

La production et l'étude de noyaux très éloignés de la stabilité reste un des grands thèmes de recherche en physique nucléaire. Cela se traduit concrétement par l'implantation sur la plupart des grands accélérateurs modernes de systèmes de collection de noyaux de plus en plus performants, mais aussi, lourds et couteux. En général, les mesures faites avec ces techniques sont peu orientées vers l'étude des mécanismes de réaction, en partie parce qu'elles sont souvent spécialisées pour un type de faisceau, de cible ou de mécanisme et aussi parce que des mesures différentielles (angles et énergies d'émission) demanderaient souvent des installations spécifiques à la limite du réalisable.

l'originalité de notre technique de collection électrostatique est en grande partie liée au fait que le matériel utilisé est simple et léger. Il en résulte une large disponibilité pour l'étude d'une grande variété de mécanismes de réaction ou de production de nouveaux noyaux. Les performances obtenues se caractérisent d'une manière générale par des rendements absolus pouvant atteindre 20% et la possibilité de collecter des isotopes de très courtes durées de vie (jusqu'à une milliseconde) ; en revanche la méthode est peu ou pas sélective sur la nature chimique ou la masse des éléments formés. Il serait cependant possible de disposer un tri même partiel devant notre système qui est peu sensible aux présences résiduelles de faisceau.

- 211 -

Les études que nous avons menées sur les dispositifs électrostatiques où le faisceau passe à la fois dans le gaz et la zone de champ ont montré des comportements relativement complexes où sont mis en jeu de fortes charges d'espace et des phénomènes d'ionisation et de recombinaison dans le plasma ; un modèle décrivant semi-quantitativement l'expérience a pu être développé et il ressort de cette analyse que les performances moins bonnes observées aux fortes intensités de faisceau ont une origine fondamentale. Le seul moyen pour contourner cette difficulté est de limiter la détection aux angles d'émission supérieurs à 2° et de faire en sorte que le faisceau soit séparé du volume d'interaction des noyaux thermalisés. Les caractéristiques obtenues sont alors bien meilleures, atteignant 20% de rendement absolu, et ne dépendant ni de la nature ni de l'intensité du faisceau.

La mise en évidence du nouvel isotope <sup>184</sup>Pb a été obtenue alors même que la méthode n'avait pas attaint ses possibilités maximum. La production d'isotopes par réactions de fusion nucléaire est encore tout à fait actuelle et prometteuse, mais en touchant des régions de plus en plus exotiques des aspects différents de la désexcitation apparaissent. La disparition des effets de couche notamment s'y produit peut-être, comme nos calculs le suggèrent, extrèmement rapidement ; cet effet se traduit en particulier par un renforcement des probabilités de fission, et celà peut avoir de grandes incidences sur les possibilités de formation des noyaux exotiques lourds ou très lourds.

5

Nous avons abordé l'étude des mécanismes de réactions par l'interaction d'un faisceau de <sup>12</sup>C à 86 MeV/u.m.a. avec des cibles lourdes allant du gadolinium au thorium. Les phénomènes que nous avons observés sont encore nettement ressemblants à ceux qui caractérisent les plus hautes énergies. Néanmoins la production de noyaux résiduels possédant 60 nucléons de moins que la cible avec de faibles énergies de recul n'est pas décrite par un modèle de cascades intranucléaires individuelles. L'obtention d'énergies plus basses pour des faisceaux plus lourds, comme ceux qui seront accélérés à SARA ou à GANII, devrait permettre d'observer la transition entre les comportements à 10 MeV/u.m.a. et à 1 GeV/u.m.a. et peut-être quelques uns des nombreux effets spectaculaires prédits. Nous pensons que les possibilités de mesures différentielles en ligne, notamment les distributions angulaires pour des angles supérieurs à 2° permettant l'identification isotopique des émetteurs alphas de période supérieure à une milliseconde, n'ont pas d'équivalent expérimental. Ces données seront d'autant plus interessantes que les produits lourds de réaction à 30-50 MeV/u.m.a. ont de grandes probabilités d'être très déficients en neutrons.

La production de nouveaux isotopes dans de telles réactions est encore très spéculative, mais notre méthode peut être adaptée à de très larges gammes d'énergie de recul et d'angles d'émission. L'obtention de bons rendements de collection permet d'envisager l'étude expérimentale des nombreux types de réactions secondaires liés à l'utilisation d'un faisceau d'ions lourds énergétiques. Enfin, l'observation de réactions induites par des faisceaux secondaires très peu intenses, qui peut être faite dans des conditions de rendement absolu voisin de 40% dans un des mades de fonctionnement, ouvrirait tout un domaine nouveau sur les fusions nucléaires exotiques.

ŝ

## Bibliographie

ALE	64	J.M. Alexander, J. Gilat, D.H. Sisson - Phys. Rev. Vol. 136 nº 5B (1964) 1289
ALE	67	J.H. Alexander, G.N. Simonoff - Phys. Rev. Vol. 162 n° 4 (1967) 952
ALB	74	D.E. Alburger, D.R. Goosman - Phys. Rev. <u>C9</u> n° 2 (1974) 2236
ALL	60	S.K. Allison, J. Cuevas, O. Garcia-Munoz - Phys. Rev. 120 (1960) 1266
ALK	79	G.D. Alkhazov et al Z. Phys. <u>A291</u> (1979) 397
AMA	67	I. Amarel, R. Bernas, J. Chaumont, R. Foucher, J. Jastrezbski, A. Johnson, R. Klapisch, J. Teillac - Ark-Phys. <u>36</u> (1967) 77
AND	76	G. Andersson -Nucl. Instr.Meth. 139 (1976) 169
ARM	80	P. Armbruster, F.P. Hessberger, S. Hoffmann, G. Munzenberg, W. Reisdorf, K.H. Schmidt, H.J. Schött, B. Thuma, D. Vermeilen G.S.I. Nachrichten 5/1980
AYI	74	S. Ayik, J.N. Ginocchio - Nucl. Phys. <u>A221</u> (1974) 285 , <u>A234</u> (1974) 13
AYS	79	J. Aystő, D.M. Moltz, M.D. Cable, R.D. Von Dincklage,R.F. Parry, J.M. Wouters, J. Cerny - Phys. Lett. <u>82B</u> (1979) 43
BAB	70	H. Baba - Nucl. Phys. A159 (1970) 625
BAR	81	M. Barranco, J. Treiner - Nucl. Phys. A351 (1981) 269
BAY	55	M. Bayet, D. Quemada - J. Phys. et Rad. Tome 16 (1955) 334
BEC	79	M. Beckerman, M. Blann - Phys. Rev. Lett. <u>42</u> (1979) 156
BEN	72	W. Benenson, E. Kashy, I.D. Proctor, B.M. Preedom - Phys. Lett. <u>43B</u> (1972) 117
BER	74	H.W. Bertini, T.A. Gabriel, R.T. Santoro - Phys. Rev. <u>C9</u> n° 1 (1974) 522
BER	77	R. Beraud, M. Meyer, M.G. Desthuilliers, C. Bourgeois, P. Kilcher, J. Letessier - Nucl. Phys. <u>A284</u> (1977) 221
BIM	69	R. Bimbot, H. Jaffrezic, Y. Le Beyac, M. Lefort, A. Vigny-Simon - J. Phys. (Paris) <u>30</u> (1969) 513
BIM	78	R. Bimbot, S. Della Negra, D. Gardes, H. Gauvin, B. T <u>amain</u> - Rev. Phys. Appl. <u>13</u> (1978) 393
EOC	70	P. Bock - J. Phys. Soc. Jpn (Japan) vol. 44, suppl. (1978) 730
BOH	48	N. Bohr - Dan. Vid. Selskab. Mat. Fys. Medd. <u>18</u> n° 8
BRA	72	M. Brack, J. Damgaard, A.S. Jensen, H.C. Pauli, V.M. Strutinsky, C.Y. Wong - Rev. Mod. Phys. Vol. 44 (1972) 320

- L. Bryde, N.O. Lassen, N.O. Roypoulsen Mat. Fys. Med. 33 BRY 62 nº 8 (1962) BUT 77 G.W. Butler, P.G. Perry, L.P. Remsberg, A.M. Poskanzer. J.B. Natowitz, F. Plasil - Phys. Rev. Lett. 38 (1977) 1380 C. Cabot, S. Della Negra, H. Gauvin, H. Delagrange, J.P. Dufour, **CAB 80** A. Fleury - Phys. Lett. Vol. 96B (1980) 55 COH 58 B.L. Cohen, C.B. Fulmer - Nucl. Phys. 6 (1958) 547 CCH 74 S. Cohen, F. Plasil, W.J. Swiatecki - Ann. Phys. 82 (1974) 557 **DEL 77** H. Delagrange - 1977 Rapport IN2P3 - CENBG 7707 **DEL 78** S. Della Negra, C. Deprun, H. Jungclas, H. Gauvin, J.P. Husson, Y. Le Beyec - Nucl. Inst. & Meth. 156 (1978) 355 DET 72 C. Detraz - Nucl. Phys. A188 (1972) 513 C. Detraz, F. Naulin, M. Langevin, P. Roussel, M. Bernas, DET 77 F. Pougheon, J. Vernotte - Phys. Rev. C15 (1977) 1738 DEP 76 C. Deprun,H. Gauvin, Y. Le Beyec - Nulc. Inst. & Me. . 138 (1976) 111 **NIL 73** W. Dilg, W. Schantl, H. Vonach, M. Uhl - Nucl. Phys. A217 (1973) 269 **DIR 80** A.C. DiRienzo, H.A. Enge, S.B. Gazes, M.K. Salomaa, A. Sperduto, W. Schier, H.E. Wegner - Phys. Rev. C Vol. 21 nº 5 (1980) 2101 DUD 78 J. Dudek, T. Werner - J. Phys, G : Nucl. Phys. Vol. 4 nº 10 (1978) 1543 EPH 79 M. Epherre, G. Audi, C. Thibault, R. Klapisch, G. Huber, F. Touchard, H. Wollnick - Phys. Rev. C19 n° 4 (1979) 1504 EWA 76 H. Ewald, K. Guttner, G. Munzenberg, P. Armbruster, W. Faust. S. Hofmann, K.H. Schmidt, W. Schneider, K. Valli - Nucl. Inst. Meth. 139 (1976) 223 EWA 80 G.T. Ewan, E. Hagberg, J.C. Hardy, B. Jonson, S. Mattisson, P. Tidemand-Petersson, I.S. Towner - Nucl. Phys. A343 (1980) 109 **FIE 70** P.R. Fields, I. Ahmad, R.F. Barnes, R.K. Sjoblom, E.P. Horwitz -Nucl. Phys. A154 (1970) 407 **FLE 77** G. Flerov, A. Ter Akopian A. Popeko, B. Fefilov, V. Subbotin -Sov. J. Nucl. Phys. 26 (1977) 237
- FLE 79 G.N. Flerov, Yu Korotkin, G.M. Ter-Akopian, I. Zvara, Yu TS. Oganessian, A.G. Popeko, Yu T. Chuburkov, L. Chelnokov, O. Maslov, V. Smirnov, R. Gers'enberger - Z. Phys. A292 (1979) 43

FRI 62 A.M. Friedman, W.C. Mohr - Nucl. Inst. Meth. 7 (1962) 78 D. Gardes, R. Bimbot, J. Maison, L. de Reilhac, M.F. Rivet, GAR 78 A. Fleury, F. Hubert, Y. LLabador - Phys. Rev. C18 (1978) 1298 H. Gauvin, Y. Le Beyec, N.T. Porile - Nucl. Phys. A223 (1974) 103 GAU 74 J. Gilat, J.M. Alexander - Phys. Rev. Vol. 136 nº 5B (1964) 1298 GIL 64 GIL 65 A. Gilbert, A.G.W. Cameron - Can. J. Phys. 43 (1965) 1446 GHI 58 A. Ghiorso, T. Sikkeland, J.R. Walton, G.T. Seaborg - Phys. Rev. Lett. vol. nº 1 (1958) 18 GHI 61 A. Ghiorso, T. Sikkeland, A.E. Lasch, R.M. Latimer - Phys. Rev. Lett. Vol. 6 n° 9 (1961) 473 GHI 74 A. Ghiorso, J.M. Nitschke, J.R. Alonso, C.T. Alonso, M. Nurmia, G.T. Seaborg, E.K. Hulet, R.N. Lougheed - Phys. Rev. Lett. Vol. 33 n° 25 (1974) 1490 GIL 64 J. Gilat, J.M. Alexander - Phys. Rev. 136 (1964) B 1298 J.R. Grover, J. Gilat - Phys. Rev. 157 (1967) 802 GRO 67 GUE 80 D. Guerreau, J. Galin, B. Gatty, X. Tarrago, J. Girard, P. Lucas. C. Ngo - Z. Phys. A 295 (1980) 105 HAG 67 E. Hagberg, P.C. Hansen, J.C. Hardy, P. Hornshøj, B. Jonson, S. Mattisson, P. Tidemand-Petersson - Nucl. Phys. A 293 (1977) 1 HAN 70 P.G. Hansen, H.L. Nielsen, K. Wilsky, M. Alpsten, M. Finger, A. Lindahl, R.A. Naumann, O.B. Nielsen - Nucl. Phys. A148 (1970) 249 HAN 79 P.G. Hansen - Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. 29 (1979) 69 B.G. Harway - Ann. Rev. of Nucl. Sci. Vol. 10 (1960) 235 HAR 60 HAR 79 L. Harwood, J. Nolen, E. Kasay, H. Enge - M.S.U. Annual Report 78-79 HOF 79 S. Hofmann, W. Faust, G. Munzenberg, W. Reisdorf, P. Armbruster -Z. Phys. A Vol. 291 (1979) 53 HOR 74 P. Hornshoj, P.G. Hansen, B. Jonson , H.L. Ravn, L. Westgaard. O.B. Nielsen - Nucl. Phys. A230 (1974) 365 HUB 80 F. Hubert , A. Fleury, R. Bimbot, D. Gardès - Ann Phys. vol. 5 (1980) 1 HUI 72 J.R. Huizenga, L.G. Moretto - Ann. Rev. Nucl. Sci. Vol. 22 (1972) 427 HUI 74 J.R. Huizenga, A.N. Behkami, J.S. Sventek, R.N. Atcher - Nucl. Phys. A223 (1974) 577 HUI 74 J.R. Huizenga, A.N. Behkami , R.W. Atcher, J.S. Sventek, H.C. Britt. H.Freiesleben - Nucl. Phys. A223 (1974) 589

IGN 75 A.V. Ignatyuk, G.N. Smirenkin, A.S. Tishin - Sov. J. Nucl. Phys. vol. 21 n° 3 (1975) 255 Ł

٠. ١

7

, •

÷

-

-

ILL 78	J.P. Illige, E.K. Hulet, J.M. Nitschke, R.J. Dougan, R. <sup>M</sup> . Lougheed, A. Chiorso, J.H. Andrum - Phys. Lett. <u>78 B</u> (1978) 209
JAM 79	A.N. James - Proceedings Daresbury 22/9/79 - DL/NUC/R20
КАН 69	P.B. Kahn, N. Rosenzweig - Phys. Rev. Vol. 187 n° 4 (1969) 1193
KIR 75	R. Kirchner, R. Roeckl - Nucl. Inst. Meth. <u>127</u> (1975) 307 et 131 (1975) 371
KIR 76	R. Kirchner, E. Roeckl - Nucl. Inst. Meth. 133 (1976) 187
KIR 77	R. Kirchner, O. Klepper, G. Nyman, N. Reisdorf, E. Roeckl, D. Schardt, N. Kaffrell, P. Pevser, K. Schneeweiss - Phys. Lett. <u>70B</u> n° 2 (1977) 150
KLA 69	R. Klapisch - Ann. Rev. Nucl. Sci. 19 (1969) 33
KOG 78	E. Kogling, G. Jung, G. Siegert, R. Decker, K.D. Wunsch, H. Wollnik - Z. Physik <u>A288</u> (1978) 319
KOR 79	J. Kormicki ~ Communication privée
KRA 78	S.D. Kramer, C.E. Bemis, J.P. Young, G.S. Hurst - Opt. Lett. <u>3</u> (1978) 16
LAG 78	B. Lagarde, Y. Le Beyec - Z. Phys. A288 (1978) 415
LAN 65	D.W. Lang - Nucl. Phys. 77 (1965) 545
LAS 64	N.D. Lassen, N.O. Roy Poulsen, G. Sidenius, L. Vistisen - Mat. Fys. Med. <u>34</u> n° 5 (1964)
LAU 79	H. Laurent, J.P. Schapira - Nucl. Inst. Meth. <u>162</u> (1979) [8]
LAW 76	H. Lawin, J.W. Borgs, R. Fabbri, J.W. Grütter, T.A. Khan, W.D. Lauppe, G. Sadler, H.A. Selic, M. Shaanan, K. Sistemich, P. Armbruster - Nucl. Inst. Meth. <u>139</u> (1976) 227
LEB 76	Y. Le Beyec, R.L. Hahn, K.S. Toth, R. Eppley - Phys. Rev. <u>C14</u> (1976) 1038
LOU 76	R.W. Lougheed, J.H. Landrum, D.C. Hoffman, W.R. Daniels, J.B. Wilhelmy, M.E. Bunker, J.W. Starner, S.V. Jackson - Proc. Cargese - Conf. (1976) 563
MAC 61	R.D. Macfarlane - Phys. Rev. <u>126</u> n° 1 (1961) 274
MAC 63	R.D. Macfarlane, R.D. Griffioen - Nucl. Inst. Neth. 24 (1963) 461
MAC 64	R.D. Macfarlers - Phys. Rev. <u>136 B</u> (1964) 941
MAR 76	S. Maripuu - Atomic Data and Nucl. Data-Tables 17 (1976) 411
MOL 79	D.M. Moltz, J. Aystö, M.D. Cable, R.D. Von Dincklage,R.F. Parry, J.M. Wouters, J. Cerny - Phys. Rev. Let. <u>42</u> (1979) 43
MOL 80	D.M. Moltz, R.A. Gough, M.S. Zisman, D.J. Vieira,H.C. Evans, J. Cerny - Nucl. Inst. Meth. <u>172</u> (1980) 507 et D.M. Moltz, J.M. Wouters, J. Aystö, M.D. Cable, R.F. Parry, R.D. Von Dincklage J. Cerny - Nucl. Inst. Meth. <u>172</u> (1980) 519
MOR 72	L.G. Moretto - Nucl. Phys. A182 (1972) 641

MOR 72 L.G. Moretto - Phys. Lett. vol. 38B n° 6 (1972) 393

- MOT 50 N.F. Mott, H.S.W. Massey Theory of atomic collision Oxford , Clarendon Press 1950
- MUN 79 G. Munzenberg, W. Faust, S. Hofmann, P. Armbruster, K. Guttner, H. Ewald - Nucl. Inst. Meth. vol. 161 n° ł (1979) 65
- MUN 80 G. Munzenberg, S. Hofmann, F.P. Heseberger, W. Reisdorf, K.H. Schmidt, H.J. Schott, P. Armbruster, B. Thuma, D. Vermeulen -G.S.I. Jahresbercht 79-80
- MYE 77 W.D. Myers Dropet Model of Atomic nuclei IFI/PLENUM (N.Y. -Wash-Lond)
- NAT 69 J.B. Natowitz, J.M. Alexander Phys. Rev. 188 (1969) 1734
- NIT 79 J.M. Nitschke Lawrence Berkeley Laboratory Ann. Ref. 1978-79 L.B.L. 9711 VC 34
- NOM 73 T. Nomura, K. Hiruta, T.I. Namura, M. Odera Nucl. Phys. <u>A217</u> (1973) 253
- NOR 70 L.C. Northcliffe, R.F. Schilling Nucl. Data Tables A7 (1970) 233
- OGA 76 Y.T. Oganessian, A.G. Demin, N.A. Danilov, G.N. Flerov, M.P. Ivanov, A.S. Iljinov, N.N. Kolesnikov, B.N. Markov, V.M. Plotko, S.P. Tretyakova - Nucl. Phys. A273 (1976) 505
- PAR 76 P. Paris, V. Berg, A. Caruette, J. Obert, J.C. Putaux, J.L. Sarrouy -Nulc. Inst. Meth. 139 (1976) 251
- PER 76 C.M. Perey, F.G. Perey Atomic Data & Nuclear Data Tables 17 n° 1 (1976)
- PET 71 L.A. Petrov, V.A. Karnaukhov, D.D. Bogdanov Sov. Phys. Jetp 32 (1971) 1042
- PIC 72 M. Pickering, J.M. Alexander Phys. Rev. C vol. 6 nº 1 (1972) 332
- POR 68 N.T. Porile, I. Fujiwara Phys. Rev. Vol. 176 nº 4 (1968) 1166
- RAM 70 V.S. Ramamurthy, S.S. Kapoor, S.K. Kataria, D. Rapp, W.E. Francis -J. Chem. Phys. Vol. 37 n° 11 (1962) 2631
- RAS 71 J.O. Rasmussen, K. Sugawara-Tanabe Nucl. Phys. A 171 (1971) 497
- RAV 79 H.L. Ravn Phys. Rep. vol. 54 n° 3 (1979)
- RIV 77 M.F. Rivet Thèse, Orsay, 1977

5

- ROE 80 E. Roeckl, G.M. Gowdy, R. Kirchner, O. Klepper, A. Piotrowski, A. Plochdoki, W. Reisdorf, P. Tidemand-Petersson, J. Zylicz, D. Schardt, G. Nyman, W. Lindenzweig - Z. Phys. A294 (1980) 221
- ROS 68 E. Rost Phys. Lett. 26B (1968) 184
- RUD 76 G. Rudstam Nucl. Inst. Meth. 139 (1976) 239
- SAN 63 M. Sano, S. Yamasaki, Prog. Theor. Phys. 29 (1963) 397

- SCH 76 A.G. Schmidt, R.L. Mlekodaj, E.L. Robinson, F.T. Avignone, J. Lin, G.N. Gowdy, J.L. Wood, R.W. Fink - Phys. Lett. vol. 668 n<sup>o</sup> 2 (1976) 133
- SCH 79 J.P. Schapira, S. Gales, H. Laurent Rapport interne IPN 0 Ph 5 7921
- SCH 79 K.H. Schmidt, W. Faust, G. Munzenberg, H.G. Clerc, W. Lang, X. Pielenz, D. Vermeulen, H. Wohlfarth, E. Ewald, K. Güttner -Nucl. Phys. A318 (1979) 253
- SCH 81 W. Schier, J. Chervenak, A.C. DiRienzo, H. Enge, D. Grogan, J. Molitoris, M. Salomaa, A. Sperduto - Phys. Rev. C vol. 23 n° J (1981) 261
- SIK 68 T. Sikkeland, A. Ghiorso, M.J. Nurmia Phys. Rev. 172 (1968) 1232
- SIS 76 K. Sistemich Nucl. Inst. Meth. 139 (1976) 203
- SKA 80 G. Skarnemark, P.O. Aronsson, K. Broden, J. Rydberg, T. Bjornstad, N. Kaffrel, E. Stender, N. Trautman - Nucl. Inst. Meth. <u>171</u> (1980) 323
- STA 68 V.S. Stavinsky, N.S. Rabotnov, A.A. Seregin Yad. Fiz 7 (1968) 1051
- STE 65 J.R. Stehn, M.D. Goldberg, R. Wiegner-Chasman, S.F. MughalbGhab, B.A. Magurno, V.M. May - Brookhaven Nat. Lab. Rep. BNL 325, Supp. n° 2 (1965)
- STE 80 W. Stephens, J. Klein, R. Zurmuhle Phys. Rev. C21 (1980) 1664
- STR 67 V.M. Strutinsky Nucl. Phys. A95 (1967) 420
- STO 80 R.G. Stokstad, W. Reisdorf, K.D. Hildenbrand, J.V. Kratz, G. Wirth, R. Lucas, J. Poitou - Z. Phys. A295 (1980) 269
- THI 75 C. Thibault, R. Klapish, C. lipaud, A.M. Poskanzer, R. Pricels, L. Lessard, W. Reisdorf - Phys. Rev. Cl2 (1975) 644
- TOT 76 K.S. Toth, M.A. Ijaz, J. Lin, E.L. Robinson, B.O. Hannah, E.H. Spejewski, J.D. Cole, J.H. Hamilton, A.V. Ramayya - Phys. Lett. Vol. 63B nº 2 (1976) 150
- TUY 80 J.W.N. Tuyn, R. Deltenre, C. Lamberet, G. Roubaud,- CERN Technical Memorandum N. H.S. RP/TH/80-5

VAZ 74 L.C. Vaz, J.M. Alexander - Phys. Rev. C10 (1974) 464

VAZ 78 L.C. Vaz, J.M. Alexander - Phys. Rev. C18 (1978 2152

- VER 80 D. Vermeulen, H.G. Clerc, W. Lang, K.H. Schmidt, G. Munzenberg -Z. Physik A294 (1980) 149
- WIL 72 F.C. Williams, G. Chan, J.R. Huizenga Nucl. Phys. A 187 (1972) 225

WIN 61 L. Winsberg, J.M. Alexander - Phys. Rev. <u>121</u> (1961) 518

WIN 72 W.G. Winn, H.H. Gutbrod, M. Blann - Nucl. Phys. A188 (1972) 423

Wol 76 H. Wollnik - Nucl. Inst. Meth. 139 (1976) 311

ZVA 77 I. Zvara, G. Flerov, B. Zhuikov, T. Peetz, M. Shalaevski, N. Skobelev - Sov. J. Nucl. Phys. <u>26</u> (1977) 240

### Vu et approuvé

## Talence, le

Pour le Président de l'Université

Le vice-Président