

Etude de la réaction de fusion-fission $^{18}\text{O} + ^{208}\text{Pb}$

Study of the $^{18}\text{O} + ^{208}\text{Pb}$ fusion-fission reaction

Porquet Marie-Geneviève, Astier Alain, Deloncle Isabelle, Prévost Aurélien

Collaborations :

- (1) IReS, 67037 Strasbourg
- (2) IPNL, 69622 Villeurbanne Cedex
- (3) CEA/Saclay, DSM/DAPNIA/SPhN, 91191 Gif sur Yvette
- (4) INRNE, BAS, 1784 Sofia, Bulgarie
- (5) JINR, Joliot Curie 6, 14980, Dubna, Moscow region, Russia

***Abstract:** New insights in the mechanism of heavy-ion induced fission are provided from studies of emitted photons. Thanks to the high efficiency of the new germanium arrays all the fission fragments are identified from their γ -ray cascades. From coincidences between transitions in complementary fragments, relations between their masses and charges can be established. In the fusion-fission reaction $^{208}\text{Pb} + ^{18}\text{O}$ at 85 MeV bombarding energy, the total numbers of emitted neutrons have been deduced and analyzed as a function of the N/Z ratios of the fragments. For the most neutron-rich nuclei, the emission of only 2 neutrons has been observed. A lot of γ -ray cascades emitted by many neutron-deficient isotopes, from $A \sim 50$ to $A \sim 120$, have been found in our high-statistics data set. The analysis of their properties indicate that all these isotopes are not produced by fission but are evaporation residues from fusion of the ^{18}O beam and many different nuclei of the materials surrounding the target.*

Introduction

A la fin de novembre 2002, pour notre dernière expérience auprès du multidétecteur Euroball IV avant l'arrêt définitif de l'installation, nous avons choisi la réaction de fusion-fission $^{208}\text{Pb} + ^{18}\text{O}$ à une énergie de bombardement de 85 MeV. Dans cet article, nous mettons surtout l'accent sur les résultats qui diffèrent de ceux obtenus dans nos expériences précédentes (voir l'article du précédent rapport "Fission induite par ions lourds et ses photons" [1]).

I - Choix de la réaction

Le noyau composé de la réaction de fusion $^{208}\text{Pb} + ^{18}\text{O}$ est ^{226}Th , noyau dont le paramètre de fissilité est suffisamment grande pour qu'il ne soit pas nécessaire de le produire à haute énergie d'excitation dans la réaction de fusion afin d'obtenir un taux de fission exploitable (contrairement aux cas que nous avons sélectionnés pour nos expériences précédentes). Ainsi nous avons pu abaisser

l'énergie de bombardement, pour que l'énergie d'excitation du noyau composé ne soit que de 32 MeV. En conséquence le nombre de neutrons émis avant la fission est abaissé (d'après les systématiques, on peut estimer que leur nombre est ≤ 2).

L'objectif de cette expérience était, entre autres, de rechercher d'éventuels effets de couches dans la production des fragments. En effet un résultat obtenu au moyen d'un détecteur de fragments montre, dans la courbe de production des fragments lourds en fonction de leur masse [2], l'existence d'épaulements au voisinage de $A = 132$ et 140 . Il faut néanmoins remarquer que la résolution en masse de l'appareillage utilisé n'est que $\Delta A \sim 4$. Ainsi, notre technique d'identification individuelle des fragments grâce à leurs photons caractéristiques est tout à fait adaptée à cette recherche.

La cible de ^{208}Pb était suffisamment épaisse (100 mg/cm^2) pour arrêter les fragments de fission afin de détecter leurs photons sans effet

Doppler, mais également pour arrêter complètement le faisceau : ainsi toute la section efficace de fusion-fission depuis 85 MeV jusqu'à l'énergie la plus basse (sous-coulombienne) où se produit encore la réaction a été implicitement intégrée dans nos donnés. Pendant les 10 jours de mesure, nous avons obtenu un nombre total d'événements de $4 \cdot 10^9$, qui contiennent chacun au moins trois photons en coïncidences. Une telle statistique nous a permis de faire une étude très détaillée des noyaux produits dans cette expérience, d'une part en les identifiant grâce à leurs cascades caractéristiques, et d'autre part en analysant les corrélations en masse des fragments complémentaires.

II - Zone de production

Les fragments $^{109,110,111}\text{Rh}$ sont situés au maximum de la zone de production qui s'étend depuis ^{30}Zn jusqu'à ^{60}Nd : cela correspond à une variation de 15 protons de part et d'autre du maximum, un intervalle d'une dizaine de masses étant observé pour les séries isotopiques centrales et d'environ 5 à 3 masses pour les séries extrêmes. Comme dans les expériences précédentes, le maximum de production de chaque série isotopique est obtenu pour un rapport A/Z voisin de celui du noyau fissionnant, soit 2.45. Cela signifie que la majorité du processus de fission observé est une fission symétrique, non gouvernée par des effets de couches. S'ils existent, ils doivent donc être recherchés dans les queues de distributions.

Tout d'abord, nous avons recherché, sans aucun succès, la présence de ^{132}Sn et de ses noyaux voisins, en utilisant leurs schémas de niveaux établis par fission spontanée de ^{252}Cf et ^{248}Cm [3]. Prenant en compte la sensibilité de notre méthode expérimentale, nous pouvons donner, à la production de ^{132}Sn , une limite de $\sim 0.05\%$ de la production de ^{112}Pd (au maximum de la fission symétrique). Nous avons néanmoins identifié un certain nombre de fragments ayant $N = 82$, le plus léger étant ^{135}I (sa production est $\sim 1.5\%$ de celle de ^{112}Pd), mais ils font tous partie des zones de production attendues pour la fission symétrique. Seule l'analyse quantitative de

leur production, comparée à celles des isotopes voisins, permettra de savoir s'ils sont favorisés par des effets de couches. Une telle analyse est en cours, mais elle nécessite, au préalable, d'avoir identifié toutes les cascades de tous les schémas de niveaux afin d'être sûr que le décompte des transitions alimentant l'état fondamental de chacun de ces isotopes soit exact.

III - Nombre de neutrons émis

Les transitions γ désexcitant les états excités de deux fragments complémentaires sont détectées en coïncidence, pour autant que la durée d'émission des deux cascades de photons reste inférieure à la largeur de la fenêtre de coïncidence (nous avons fait le choix de $\sim 1 \mu\text{s}$ dans ces expériences). Dans un certain nombre de cas, les premiers états excités des noyaux produits par la fission sont déjà connus et l'étude des corrélations entre les rayonnements γ permet d'établir les relations en masse et charge existant entre les fragments complémentaires.

Comme dans nos expériences précédentes, le nombre total de protons des fragments complémentaires a toujours été trouvé égal au numéro atomique du noyau composé, ici $Z_{\text{tot}} = 90$, en effet l'énergie d'excitation du noyau composé est beaucoup trop faible pour qu'un proton soit émis avant la fission. En ce qui concerne le nombre total de neutrons, les résultats obtenus pour cette réaction diffèrent de ceux que nous avons obtenus pour les autres réactions : le nombre total de neutrons émis est beaucoup plus faible.

Le spectre conditionné par les deux premières transitions de ^{104}Mo contient les rayonnements γ émis par 5 isotopes de cadmium, $^{115-119}\text{Cd}$, leurs intensités relatives sont données dans la table suivante. On peut y remarquer que les probabilités d'émission de 4, 5 et 6 neutrons sont identiques. Lorsqu'on choisit ^{116}Pd , qui est plus riche en neutron que ^{104}Mo (les rapports N/Z valent respectivement 1.522 et 1.476), le résultat est différent : d'une part la probabilité d'émission de 4 neutrons est devenue majoritaire, d'autre part l'émission de 7 neutrons n'est plus observée, au profit de l'émission de seulement 2 neutrons.

F ₁	F ₂	I _{rel}	ΣA	Neutrons
¹⁰⁴ Mo	¹¹⁵ Cd	~25	219	7
	¹¹⁶ Cd	100	220	6
	¹¹⁷ Cd	100	221	5
	¹¹⁸ Cd	100	222	4
	¹¹⁹ Cd	~25	223	3
¹¹⁶ Pd	¹⁰⁴ Ru	~40	220	6
	¹⁰⁵ Ru	~40	221	5
	¹⁰⁶ Ru	100	222	4
	¹⁰⁷ Ru	~30	223	3
	¹⁰⁸ Ru	~30	224	2

Table 1: Corrélations entre les fragments complémentaires F₁ et F₂ : intensités relatives des isotopes de Cd corrélés au fragment ¹⁰⁴Mo et des isotopes de Ru corrélés au fragment ¹¹⁶Pd. La dernière colonne donne le nombre total de neutrons émis (pré- et post-fission) pour chacun des couples F₁ et F₂.

On peut remarquer que les fragments primaires produits à haute énergie d'excitation se refroidissent d'abord par émission de neutrons avant d'émettre les photons. Inversement, pour que les photons émis par les fragments les plus riches en neutrons puissent être observés, il faut que les fragments primaires correspondants aient été produits à basse énergie, minimisant ainsi le nombre total de neutrons émis.

C'est la première fois que, dans une réaction de fusion-fission, sont observés des couples de fragments complémentaires correspondant à un nombre aussi faible de neutrons émis. Ce résultat prouve que les énergies d'excitation mises en jeu aux diverses étapes (pré- et post-fission) sont faibles et que des effets de couches devraient pouvoir se manifester.

IV - Pollutions

La très grande statistique accumulée au cours de cette mesure et la grande sélectivité du multidétecteur Euroball permet l'identification de voies de réactions extrêmement faibles, en particulier celles provenant de réactions parasites (par exemple, les réactions

engendrées par une infime partie du faisceau, le "halo", sur les noyaux entrant dans la composition de l'aluminium ou de l'inox présents autour de la cible).

C'est ainsi que nous avons observé très clairement les cascades de photons émis par divers noyaux, toujours déficitaires en neutrons, depuis des masses légères (par exemple, ³⁸Ar, ⁴²Ca, ⁵⁰Cr), jusqu'à des masses plus lourdes (^{116,118}Te, ¹¹⁸⁻¹²⁴Xe), en passant par des masses intermédiaires (comme ⁷⁰Ge, ^{74,76}Se et ^{78,80}Kr). S'il ne fait aucun doute que les noyaux les plus légers sont dus à des réactions parasites, on peut se poser la question du mode de production pour les noyaux des séries isotopiques de Ge, Se, Kr, Te ou Xe, dans la mesure où elles sont produites par la réaction de fusion-fission utilisée. Compte tenu du choix de l'épaisseur de la cible de ²⁰⁸Pb et de la cinématique de la réaction utilisée, nous sommes assurés de détecter les corrélations entre fragments complémentaires (à de rares exceptions près, par exemple la présence d'isomères de très longues durées de vie) : cela nous donne un critère de rejet pour la production par fission de certains noyaux observés dans cette expérience.

Nous avons analysé d'une manière très approfondie les spectres conditionnés par les deux transitions les plus intenses de chacun de ces noyaux déficitaires en neutrons : tous les rayonnements observés sont émis par le noyau en question, il ne reste dans les spectres aucune transition non identifiée qui soit susceptible d'être émise par les fragments complémentaires.

Par ailleurs, dans tous ces cas, les valeurs des moments angulaires atteints sont élevées et l'évolution des intensités des transitions en fonction du spin indique que la zone de production correspond à des valeurs de moment angulaire plus élevées que celles des fragments de fission.

Le dernier argument concerne la distribution angulaire des rayonnements gammas émis par ces noyaux déficitaires en neutrons. Tout d'abord, les transitions E2 de leur cascade yrast présentent les valeurs d'anisotropies attendues dans le cas d'émission par des noyaux dont le moment angulaire a été orienté

par une réaction de type fusion-évaporation, alors que les cascades de transitions émises par les fragments de fission ne présentent aucune anisotropie par rapport à l'axe du faisceau incident. De plus, les transitions dont les durées de vie sont de l'ordre d'une fraction de picoseconde présentent un décalage en énergie dû à l'effet Doppler, dont le signe et la valeur est en accord avec une vitesse de recul dirigée le long de l'axe du faisceau incident.

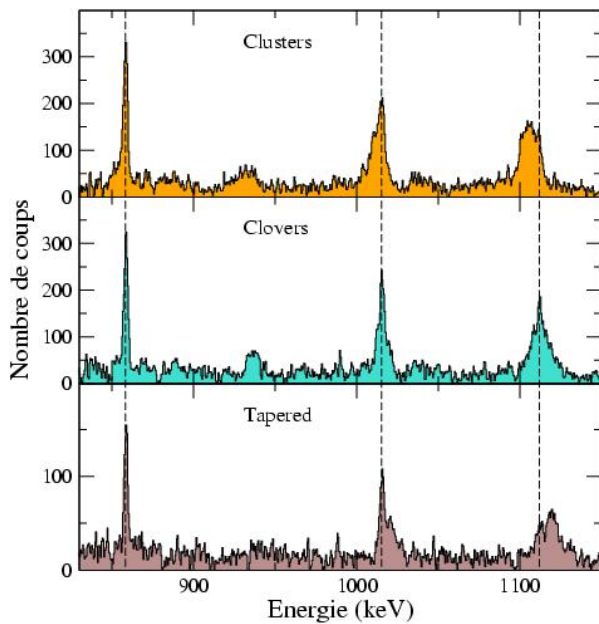


Figure 1: Spectres de rayonnements γ en coïncidences avec au moins 2 transitions parmi les trois premières de la cascade yrast de ^{78}Kr (455, 664 et 858 keV). Dans l'intervalle d'énergie dessiné, trois transitions émises par ^{78}Kr sont visibles, 858 keV ($6^+ \rightarrow 4^+$), 1015 keV ($8^+ \rightarrow 6^+$), 1112 keV (doublet : $10^+ \rightarrow 8^+$ et $12^+ \rightarrow 10^+$) Pour le commentaire sur la forme des raies et leurs décalages en énergie, voir le texte.

Ce fait est illustré sur la figure 1, pour le cas de ^{78}Kr . Les demi-vies de ses états yrast 8^+ , 10^+ et 12^+ sont respectivement 0.27 ps, 0.24 ps et 0.17 ps. Ainsi les transitions γ de 1015 et 1112 keV sont susceptibles d'être affectés par l'effet Doppler. On peut voir sur la figure que les énergies des photons détectés par les détecteurs Cluster, placés aux angles arrières, sont plus faibles, celles des deux couronnes de Clover (à 90° du faisceau) ont la valeur nominale et celles des détecteurs "Tapered", placés à l'avant, sont plus élevées.

Nous en concluons donc que tous les noyaux déficitaires en neutrons dont nous avons observé les cascades de décroissance ont été produits à haut moment angulaire par des réactions de type fusion-évaporation induites par le halo du faisceau de ^{18}O sur les matériaux entourant la cible : la collection d'isotopes présents dans les matériaux du commerce entrant dans la composition de l'aluminium, AU4G, ou de l'inox s'étend de ^{13}Al à ^{42}Mo , et les contacts électriques mettent en jeu ^{29}Cu , ^{46}Pd et ^{47}Ag [4].

Dans un article récent [5], d'autres auteurs ont proposé que les noyaux les plus déficitaires en neutrons qu'ils ont observé dans trois séries isotopiques ^{54}Xe , ^{56}Ba et ^{58}Ce soient produits par fission, leurs productions étant favorisées par le nombre de nucléons de leurs fragments complémentaires (autour de ^{70}Ni). La non-observation des rayonnements émis par les fragments complémentaires était alors expliquée par leurs conditions expérimentales, ne leur permettant pas de détecter les γ émis par les fragments les plus légers.

Compte tenu de l'analyse de notre expérience, on peut proposer une autre explication à leurs résultats : les isotopes déficitaires en neutrons de ^{54}Xe , ^{56}Ba et ^{58}Ce qu'ils ont observés dans des réactions induites par des faisceaux de ^{11}Na et ^{12}Mg sont à rapprocher de ceux de ^{52}Te et ^{54}Xe que nous avons mesurés en utilisant un faisceau de ^8O et seraient produits par réaction de fusion-évaporation sur des matériaux standards entourant les cibles.

[1] M.-G. Porquet et al., rapport 2000-2002

[2] M. Itkis et al., International Workshop on Nuclear Fission, Biarritz, Mai 1996

[3] P. Bhattacharyya et al., Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 062502

[4] Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press

[5] N. Fotiadès et al., Phys. Rev. C67 (2003) 034602