

UNIVERSITATEA POLITEHNICA DIN BUCUREȘTI

### Școala doctorală de Ingineria și Aplicațiile Laserilor și Acceleratorilor

Decizie nr. ..... din .....

# REZUMAT TEZĂ DE DOCTORAT

### Anamaria SPĂTARU

### MĂSURĂTORI DE MASĂ CU ACURATEȚE RIDICATĂ PENTRU NUCLEELE BOGATE ÎN NEUTRONI ȘI STUDIUL TRANZIȚIEI DE FAZĂ PENTRU N = 90

### HIGH-ACCURACY MASS MEASUREMENTS OF NEUTRON RICH NUCLEI AND STUDY OF N = 90 SHAPE PHASE TRANSITION

### **COMISIA DE DOCTORAT**

**Prof. Dr. Ing. Calin A. UR** Univ. Politehnica din București

**Prof. Dr. Dimiter L. BALABANSKI** Univ. Politehnica din Bucureşti

**Prof. Dr. Gheorghe CĂTA-DANIL** Univ. Politehnica din București

**Prof. Dr. Israel MARDOR** Universitatea Tel Aviv

**Prof. Dr. Mihaela SIN** Univ. din București Președinte

Conducător de doctorat

Referent

Referent

Referent

### **BUCHAREST 2022**

### Mulţumiri

Aș dori să îmi ofer mulțumirile și aprecierea tuturor oamenilor care m-au ajutat în ultimii cinci ani și au făcut posibilă această lucrare.

Le sunt extrem de recunoscător conducătorilor mei, Prof. Dr. Dimiter L. Balabanski și Dr. Paul Constantin pentru răbdarea de a-mi răspunde la toate întrebările și feedback-ul constant pe parcursul muncii mele. De asemenea, sunt recunoscător membrilor comisiei de îndrumare Prof. Dr. Ing. Calin A. Ur, Prof. Dr. Octavian Sima si Dr. Catalin Matei care mi-au oferit sfaturi importante.

Mulțumesc mult colegilor mei de la ELI-NP: Andreea Gherghe, Teodora Madgearu, Dragos Nichita, Dr. Adrian Rotaru și Alexandru State cu care am lucrat împreuna și am petrecut pauzele de masă cu discuții fructuoase. Mulțumiri și pentru toți membrii din trecut și din prezent ai Departamentului GDED.

Această călătorie nu ar fi fost posibilă fără grupul Fragment Separator - Ion Catcher de la GSI, care m-a introdus în domeniul fizicii nucleare experimentale, în special Prof. Dr. Christoph Scheidenberger, Dr. Timo Dickel și Dr. Wolfgang R. Plaß. Aș dori să le mulțumesc sincer colegilor mei de la GSI: Daler Amanbayev, Dr. Samuel Ayet San Andrés, Dr. Sönke Beck, Julian Bergmann, Lizzy Gröf, Dr. Christine Hornung, Gabriella Kripko- Koncz și Dr. Ivan Miskun.

De asemenea, le multumesc secretarelor noastre, Simona Niculae și Ewa Tracz, care au fost întotdeauna amabile și m-au ajutat cu toate actele complicate pentru călătoriile și munca mea.

De asemenea, vreau să le mulțumesc părinților și surorii mele, care m-au susținut de la început și mi-au oferit un mediu calm după o zi lungă de muncă. Aș fi neglijentă să nu o menționez pe pisica mea, Atomiță, de care mi-a fost foarte dor în timpul călătoriilor mele la GSI. Mulțumiri speciale lui Florian, care mi-a ascultat toate plângerile și mi-a oferit sprijinul moral de care aveam nevoie.

Nu în ultimul rând, aș dori să mulțumesc tuturor celor care au fost implicați în lucrarea prezentată, dar care nu au fost menționați în mod specific.

# Cuprins

1	Intr	oducere	1		
2	Rea	cții pentru producerea nucleelor bogate în neutroni	2		
	2.1	Reacția de fragmentare	2		
	2.2	Fisiune nucleară	3		
		2.2.1 Fisiune spontană	3		
		2.2.2 Fisiune indusă	3		
	2.3	Transfer Multinucleonic	4		
	2.4	Rezumat	4		
3	Principii ale separării și măsurării maselor				
	3.1	Separare masică	5		
		3.1.1 Elemente magnetice	5		
		3.1.2 Cuadrupoli cu radio frecvență	6		
	3.2	Metode de măsurare indirectă	7		
		3.2.1 Dezintegrări nucleare	7		
		3.2.2 Reacții nucleare	8		
	3.3	Metode de măsurare directă	8		
		3.3.1 Penning Trap	8		
		3.3.2 Inele de stocare	9		
	3.4	Spectrometre de masă cu timp de zbor	9		
		3.4.1 FRS și FRS-IC	9		
	3.5	Rezumat	10		
4	Trai	nziții de fază	11		
	4.1	Forme nucleare si modele nucleare de structură	11		
	4.2	Tranziții de fază	12		
		4.2.1 Observabilele stărilor excitate	12		
		4.2.2 Observabilele stărilor fundamentale	13		
	4.3	Summary	13		
5	Siste	eme de achiziții de date	15		
	5.1	Cuplarea FRS și FRS-IC DAQ	15		
	5.2	Calibrarea si precizia măsurătorilor	15		
	53	Îmbunătătirea raportului semnal-fundal pe baza structurii pulsurilor de fascicul	17		

### Cuprins

	5.4	Monitorizare on-line	17
	5.5	Îmbunătățirea raportului semnal-fundal pe baza corelării evenimentelor	18
	5.6	Rezumat	18
6	Măs	urători ale fragmentelor de fisiune și evaluarea maselor la FRS-IC	19
	6.1	Ansamblul experimental și măsurători	19
	6.2	Procedura de evaluare a datelor	20
		6.2.1 Conversia către spectrul de masă și calibrare	20
		6.2.2 Determinarea formei distribuțiilor	20
		6.2.3 Determinarea masei și a incertitudinii	21
		6.2.4 Metodă de mediere pentru mai multe măsurători independente	23
		6.2.5 Rezultatele calibrării măsurătorilor fragmentelor de fisiune	24
	6.3	Rezumat	24
7	Măs	urători de masă și tranziții de fază la N = 90	25
	7.1	Rezultate experimentale	25
	7.2	Discuție	25
	7.3	Rezumat	26
8	Proc	lucerea de izotopi bogați în neutroni prin reacții de transfer multinucleonic	27
	8.1	Programe experimentale la FRS-IC și IGISOL	27
	8.2	Implementarea procesului și a ansamblului în GEANT4	28
	8.3	Simulări ale ansamblului FRS-IC	29
		8.3.1 Rezultate folosind modelul GRAZING	29
		8.3.2 Rezultate folosind modelul Langevin	31
	8.4	Măsurători și simulări folosind ansamblul IGISOL	31
	8.5	Rezumat	32
9	Rez	umat si perspective viitoare	33
-	-1020	F F	~~
Ar	iexa l	Listă de figuri	34
Bi	Bibliografie		

# Introducere

Masa nucleară este una dintre cantitățile de bază măsurabile ale nucleelor, care oferă informații despre structura lor internă și interacțiunea dintre constituenți (adică protoni și neutroni). Studiul maselor nucleelor bogate în neutroni ne îmbogățește cunoștințele în domenii precum: astrofizică nucleară (prin înțelegerea originii cât și a metodelor de producere a nucleelor și a stelelor în timpul nucleosintezei primordiale), structură nucleară (studiul energiilor nucleare de legătură oferă informații despre limitele stabilității nucleare cât și despre posibilitățile de dezintegrare) și teorie (descrierea proprietăților nucleului și prezicerea energiilor de legătură acolo unde nu sunt disponibile măsurători).

Lucrarea de față se concentrează pe îmbunătățirea cunoștiințelor din structura nucleară ce poate fi realizată cu ajutorul măsurătorilor de mase în jurul A  $\sim$  150 prin studiul tranziției dintre două forme nucleare. În acest scop, ansamblurile experimentale Fragment Separator (FRS) și FRS-Ion Catcher (FRS-IC) de la GSI, Darmstadt sunt utilizate pentru a efectua măsurători de masă cu ajutorul spectrometriei de masă cu timp de zbor. Pentru început, sa realizat o îmbunătățire a sistemului de achiziție de date al FRS pentru a permite o selecție și o determinare precisă a masei. Pentru prima dată într-o campanie experimentală, aproape 70 de nuclee au fost măsurate simultan folosind o sursă de fisiune spontană <sup>252</sup>Cf. Acest rezultat deschide posibilitatea unor măsurători ulterioare ale secțiunilor eficace relative folosind tehnica celulei cu gaz. Pe baza acestor măsurători, tranziția dintre formele nucleare la N = 90 este studiată și comparată cu calcule teoretice. Sunt considerate studii ulterioare cu nuclee mai grele, folosind reacția de transfer multinucleonic (MNT). Acest mecanism a demonstrat că poate produce nuclee bogate în neutroni cu secțiune eficace mai mare decât reacția de fragmentare [1]. Studiul prezentat în această teză se concentrează pe posibilitatea utilizării reacțiilor MNT în cadrul a două ansambluri experimentale, FRS-IC si Ion Guide Isotope Separator On-Line de la JYFL Accelerator Laboratory.

# Reacții pentru producerea nucleelor bogate în neutroni

Nucleele bogate în neutroni situate aproape de marginea hărții nucleare prezintă caracteristici de mare importanță pentru studiile structurii nucleare și nucleosintezei, așa cum este detaliat în Capitolul 1. Cu toate acestea, producerea și studiul lor reprezintă o provocare pentru experimentele din întreaga lume, din cauza secțiunilor eficace de producere și a timpilor de înjumătățire mici. În acest capitol sunt descrise trei mecanisme utilizate în producerea nucleelor bogate în neutroni.

### 2.1 Reacția de fragmentare

Fragmentarea este o reacție nucleară periferică care are loc la energii relativiste și produce nuclee bogate în neutroni în regiunea de sub proiectil. Este de obicei descrisă ca o reacție ce are loc în două etape în care mai mulți nucleoni sunt îndepărtați în timpul interacțiunii și apoi câțiva alți nucleoni sunt evaporați datorită energiei de excitare crescute. Unul dintre modelele utilizate pentru a descrie teoretic reacția este modelul de abraziune-ablație discutat în detalii în Ref. [2]. Procesul este prezentat schematic în Fig. 2.1.



Figura 2.1 Reprezentarea schematică a mecanismului reacției de fragmentare din punct de vedere al modelului de abraziune-ablație.

Impulsul fragmentelor finale joacă un rol important în înțelegerea mecanismului reacției. Calculul impulsului longitudinal  $\sigma_{P||}$ , Ec. 2.1, conectează numerele atomice ale proiectilului,  $A_P$ , fragmentului abrazat,  $A_F$  cât și impulsul mișcării Fermi,  $p_F$  [3].

$$\sigma_{P||}^2 = \frac{p_F^2}{5} \cdot \frac{A_F(A_P - A_F)}{A_P - 1}$$
(2.1)

### 2.2 Fisiune nucleară

Fisiunea nucleară este un proces în care nuclee bogate în neutroni sunt generate prin divizarea unui nucleu greu (mamă) în preferențial două fragmente cu eliberare de energie, neutroni și raze gamma. In cazul unor nuclee fisiunea apare fără ajutor extern, proces cunoscut sub numele de fisiune spontană. Fragmentele generate ca urmare a fisiunii nucleare au o distribuție a masei predominant asimetrică (se genereaza un fragment cu masă mică și unul complementar cu masă mare) cauzată de efectele de pătură.

### 2.2.1 Fisiune spontană

<sup>252</sup>Cf este unul dintre nucleele care fisionează spontan și este utilizat frecvent ca sursă pentru producerea și studiul nucleelor bogate în neutroni. Are o perioadă de înjumătățire de 2,647 ani și un raport de ramificare pentru fisiunea spontană de 3,102 [4], ceea ce oferă cu ușurință o rată ridicată a evenimentelor de fisiune.

### 2.2.2 Fisiune indusă

Fisiunea nucleară poate fi indusă în reacții nucleare folosind atât cinematica directă, cât și cea inversă. Tehnica cinematicii directe, prezentată schematic în Fig. 2.2, permite măsurarea cu rezoluție înaltă a rezonanțelor de fisiune cât și o creștere a ratelor de fisiune. În cinematica inversă proiectilul poate fi generat dintr-o reacție anterioară, cum este cazul mecanismului abraziune-fisiune, când reacțiile de fragmentare și fisiune sunt combinate, vezi Fig. 2.3. Un alt mecanism unic este fisiunea-Coulomb, prezentată schematic în Fig. 2.4.



Figura 2.2 Reacția de fotofisiune folosește fotoni pentru a excita nucleele la energii precise deasupra barierei de fisiune.



Figura 2.3 Abraziune-fisiune este procesul în care, la parametrii de impact mici, un nucleu se abraează după interacțiunea cu o țintă cu număr atomic mic. Ca și consecință, nucleul este lăsat excitat și fisioneaza.



Figura 2.4 Fisiune-Coulomb este procesul prin care un nucleu se excită și fisionează în urma schimbului unui foton virtual (indicat ca hv în desen).

### 2.3 Transfer Multinucleonic

Procesul de transfer multinucleonic (MNT) presupune că pentru energii mici ale proiectilului (energie cinetică doar puțin deasupra barierei Coulomb) și un parametru de impact precum in cauzul ciocnirilor periferice (adică  $\leq$  suma razelor celor două nuclee), particula incidentă interacționează cu ținta formând un sistem deformat cu o structură de tip gât excitat. În evoluția unor astfel de sisteme, neutroni și protoni sunt schimbați între cele două particule inițiale. Pe măsură ce energia de excitare este consumată, fragmentele se separă fără formarea unui nucleu compus. Procesul este reprezentat schematic în Fig. 2.5. Experimente recente [1] au arătat că reacția MNT este o cale promițătoare pentru producerea de nuclee bogate în neutroni în jurul vârfului distribuției de abundență la N = 126.



Figura 2.5 În timpul reacțiilor de transfer multinucleonic proiectilul și ținta interacționează prin schimbul a mai mulți nucleoni, fără formarea unui nucleu compus, ducând astfel la formarea unui fragment asemănător proiectilului (PLF) și a unui fragment asemănător țintei (TLF).

### Comparatie intre caracteristicile modelelor GRAZING si Langevin

Studiile teoretice ale lui Winther [5] referitoare la reacția MNT în legatura cu ciocnirile profund neelastice au fost implementate în codul de simulare GRAZING. Acesta reprezintă principalul instrument de simulare utilizat pentru astfel de reacții folosind o abordare semi-clasică. Cu toate acestea, deformările nucleare și fisiunea produșilor de reacție rezultați nu sunt luate în considerare. Modelul Langevin [6, 7] simulează evoluția continuă a unui sistem de ciocnire nucleară, începând cu apropierea nucleelor, formarea sistemului mononuclear și separarea produșilor de reacție.

În cazul particular al reacției <sup>64</sup>Ni + <sup>238</sup>U la  $E_{lab}$  = 390 MeV, datele experimentale ale secțiunilor eficace distribuite izotopic pot fi găsite în Ref. [8]. Prin urmare, acestea facilitează compararea între modelul descris anterior, modelul GRAZING și masuratorile experimentale.

### 2.4 Rezumat

Comparația între modelele GRAZING și Langevin pentru reacțiile MNT cât și cu datele experimentale disponibile face parte din următoarea publicație: A. Spătaru et al., *Multi-Nucleon Transfer reactions in*<sup>238</sup>*U*+<sup>64</sup>*Ni using Grazing model*, U.P.B. Sci. Bull., Series A, Vol. 82, Iss. 1, 2020, A. Spătaru et al., *Multi-Nucleon Transfer studies of*<sup>238</sup>*U induced reactions on*<sup>64</sup>*Ni*,<sup>164</sup>*Dy and*<sup>209</sup>*Bi targets using a Langevin-type model*, in progress

# Principii ale separării și măsurării maselor

Masa atomică, sau energia de legătură, este o proprietate cheie a stării fundamentale a nucleelor, vezi Ec. 3.1, unde au fost folosite următoarele notații pentru masele protonilor -  $Zm_p$ , neutronilor -  $Nm_n$  și electronilor -  $Zm_e$ , energia de legătură nucleară, B(A,Z), și energia de legătură a electronilor,  $B_e(Z)$ .

$$M_{atomic}(A,Z) = Zm_p + Nm_n - B(A,Z)/c^2 + Zm_e - B_e(Z)/c^2$$
(3.1)

Acest capitol prezintă aspectele teoretice de bază referitoare la determinarea masei atomice folosind atât metode indirecte cât și directe.

### 3.1 Separare masică

Măsurătorile precise de masă ale nucleelor exotice necesită adesea separarea lor de alte specii ionice produse în aceeași reacție înainte ca măsurătoarea efectivă să poată avea loc. O soluție comună este utilizarea elementelor optice în interiorul liniei fasciculului ionic. În cazul fasciculelor cu energie mică, o sursă comună de impurități sunt moleculele. O soluție pentru reducerea contaminării prin ruperea legăturilor moleculare se bazează pe disociarea indusă de coliziune (CID). O procedură care utilizează CID [9] în combinație cu selectivitatea masică a cuadrupolilor cu radiofrecvență (RFQ) a fost implementată la ansamblul Fragment Separator - Ion Catcher (FRS-IC) de la GSI.

### **3.1.1** Elemente magnetice

În prezența unui câmp magnetic, B, un ion de masă, m și sarcină, q, având o viteză, v, perpendiculară pe direcția câmpului, va urma o direcție circulară de rază, r, caz în care forțele centrifuge și magnetice se egalează, Eq.3.2 [10].

$$qvB = \frac{mv^2}{r} \to \frac{m}{q} = \frac{r^2B^2}{2U}$$
(3.2)

Puterea de rezoluție a masei în cazul unui element magnetic pur este limitată. Pentru a-și crește capacitatea de separare a maselor, dispersia energetică trebuie compensată. Acest lucru se poate face prin adăugarea unui sector electrostatic. Acesta este alcătuit din două plăci curbate cărora le este furnizată aceeași tensiune de polaritate opusă, generând un câmp electric de intensitate E. Dispersia energetică a sectorului electrostatic poate fi văzută în Ec. 3.3.

$$qE = \frac{mv^2}{r} \to r = \frac{mv^2}{qE}$$
(3.3)

### 3.1.2 Cuadrupoli cu radio frecvență

Cuadrupolii sunt formați din patru electrozi de tip tijă de rază  $r_0$  plasați paralel unul față de celălalt într-o configurație pătratică. O combinație de câmpuri de frecvență radio (RF) și curent continuu (DC) sunt aplicate celor două perechi de electrozi opuși. Un ion pozitiv care călătorește de-a lungul spațiului dintre electrozi va simți câmpul total,  $\Phi_0$ , format de potențialul DC (U), potențialul RF (V) și frecvența unghiulară,  $\omega$ , Eq. 3.4 [10].

$$\Phi_0 = U + V \cos \omega t \tag{3.4}$$

Mișcarea ionilor este descrisă de ecuația de mișcare, Ec. 3.5 [11], pentru u = x sau u = y, pe baza potențialului prezentat în Ec. 3.4 și considerând  $\xi = \omega t/2$ .

$$\frac{d^2u}{d\xi^2} = -\left(\frac{8qU}{m\omega^2 r_0^2} + \frac{8qV\cos(2\xi)}{m\omega^2 r_0^2}\right) \cdot u$$
(3.5)

Aceasta este o ecuație de tip Mathieu pentru care soluția este cunoscută, vezi Ref. [12]. Parametrii Mathieu sunt definiți precum în Eq. 3.6.



Figura 3.1 Prima regiune a diagramei de stabilitate în funcție de parametrii Mathieu. Doar masa  $m_2$  se află în interiorul regiunii de stabilitate, colorată cu roz, și poate fi transmisă. Vârful regiunii este la a = 0,237 și q = 0,706 și reprezintă punctul în care filtrul de masă ar transporta o singură masă.

$$a_x = -a_y = \frac{8qU}{m\omega^2 r_0^2}$$

$$q_x = -q_y = \frac{4qV}{m\omega^2 r_0^2}$$
(3.6)

Pentru a transporta cu succes ionii prin sistem, aceștia trebuie să aibe o traiectorie stabilă în jurul centrului cuadrupolilor, astfel încât ionii să nu se piardă prin lovirea electrozilor. Această cerință este îndeplinită pentru un raport U/V specific pentru fiecare m/q. Pentru o valoare fixă a U/V, sistemul de cuadrupoli va acționa ca un filtru de masă, permițând unui tip de ioni de masă m/q să aibă o traiectorie stabilă.

Parametrii Mathieu,  $a_{x,y}$  și  $q_{x,y}$  Eq. 3.6, sunt folosiți pentru a conecta masele ionilor de valorile potențialelor DC și RF aplicate electrozilor RFQ.

### 3.2 Metode de măsurare indirectă

O modalitate de a determina masa atomică este prin măsurători ale energiei eliberate într-o reacție sau dezintegrare nucleară (Q). Masa se calculeaza ca diferența între masele ionilor inițiali ( $m_{initial}$ ) și cele ale produșilor finali ( $m_{final}$ ),  $Q=(m_{initial}-m_{final})c^2$ .

### 3.2.1 Dezintegrări nucleare

Într-o dezintegrare nucleară, nucleul inițial aflat în repaus, notat în Ec. 3.7 cu A, își micșorează în mod spontan masa către o configurație mai stabilă, denumită adesea nucleu fiică, B, prin emisia uneia sau mai multor particule, notate aici cu b și c. Energia eliberată în dezintegrare (Q), așa cum reiese din Ec. 3.8, leagă masele produșilor inițiali de cele ale produșilor finali ale unei dezintegrări.

$$A \to B + b + c \tag{3.7}$$

$$Q = (M_A(A,Z) - M_B(A,Z-2) - m_b - m_c)c^2$$
  
=  $E_{Kin,B} + E_{Kin,b} + E_{Kin,c}$  (3.8)

Energia eliberată poate fi scrisă în termeni de energia cinetică a nucleului de heliu,  $E_{Kin,\alpha}$ , masa acestuia,  $m_{\alpha}$  și masa nucleului fiică,  $m_{fiica}$ . Ec. 3.9 permite determinarea Q din măsurători de  $E_{Kin,\alpha}$ .

$$Q = E_{Kin,\alpha} \left( 1 + \frac{m_{\alpha}}{m_{daughter}} \right) \qquad (3.9) \qquad Q = E_{endpoint} \left( 1 + \frac{m_{\beta}}{m_{daughter}} \right) + E_{\gamma}$$
(3.10)

Ec. 3.10 reprezintă relația dintre energia eliberată în dezintegrarea  $\beta_-$ ,  $\beta_+$  sau captură electronică (EC) și masa ionului fiică generat ( $m_{fiica}$ ), unde cu  $E_{\gamma}$  se notează energia razei  $\gamma$  emisă atunci când ionul fiică este într-o stare excitată și  $E_{punctul final}$  este limita superioară a spectrului de energie continuă generat în timpul dezintegrarii.

#### 3.2.2 Reacții nucleare

O altă metodă pentru determinarea masei atomice include utilizarea reacțiilor nucleare. Într-o reacție nucleară, un proiectil în mișcare, A, interacționează cu un ion țintă aflat în repaus, B, și generează noi produși, notați cu C și D.

$$A + B \to C + D \tag{3.11}$$

Energia eliberată într-o reacție nucleară ( $Q_{reactie}$ ) se calculează cu ajutorul diferenței dintre masa nucleelor inițiale și cea a produșilor finali, Ec. 3.12.

$$Q_{reactie} = (M_A + M_B - M_C - M_D)c^2$$
(3.12)

Reacțiile care au generat doi produși finali sunt studiate folosind metoda masei lipsă sau metoda masei invariante.

### 3.3 Metode de măsurare directă

Determinarea directă a maselor atomice poate fi efectuată folosind diferite metode care implică mișcarea particulelor în câmpuri electrice și/sau magnetice.

### 3.3.1 Penning Trap

Penning Trap sunt dispozitive care efectuează măsurători de masă foarte precise prin stocarea ionilor într-un câmp magnetic și electric. Mișcarea ionului este caracterizată prin trei mișcări independente de tip: axial ( $\omega_Z$ ), ciclotron modificat ( $\omega_+$ ) și magnetron ( $\omega_-$ ). Măsurarea lor este utilizată pentru determinări de masă prin calculul frecvenței ciclotron ( $\omega_C$ ), Eq. 3.13 [13]. Fig. 3.13 ilustrează separat cele trei mișcări cât și mișcarea combinată rezultată. Determinarea masei se poate face folosind metoda timpului de zbor [14] și metoda transformarii Fourier cu rezonanță ciclotron [15].

$$\omega_C = \left(\frac{q}{m}\right) B = \sqrt{\omega_+^2 + \omega_-^2 + \omega_Z^2}$$
(3.13)



Figura 3.2 Reprezentare schematică a celor trei oscilații (definite în legenda figurii) care descriu mișcarea ionilor în interiorul unui Penning Trap.

#### **3.3.2** Inele de stocare

Inelele de stocare sunt dispozitive mari (> 100 m în circumferință) și complexe care utilizează frecvențele de revoluție (Spectrometria de Masă Schottky, SMS) sau timpii de revoluție (Spectrometria de Masă Izocron, IMS) a ionilor pe o traiectorie închisă pentru a efectua măsurători de masă. Frecvența de revoluție, f, și timpul de revoluție, T, sunt corelate cu masa pe sarcina, m/q, ca în ecuația. 3.14 [16].

$$\frac{\Delta f}{f} = -\frac{\Delta T}{T} = -\frac{1}{\gamma_t^2} \frac{\Delta(m/q)}{(m/q)} + \left(1 - \frac{\gamma^2}{\gamma_t^2}\right) \frac{\Delta v}{v}$$
(3.14)

Aici,  $\gamma_t$  este punctul de tranziție al energiei la care frecvența este independentă de viteză,  $\beta$  introduce raportul dintre viteza particulelor și viteza luminii în vid și  $\gamma$  denotă factorul Lorentz relativist (adică  $\gamma = 1/\sqrt{1-\beta^2}$ ).

### 3.4 Spectrometre de masă cu timp de zbor

Spectrometrele de masă cu timp de zbor (ToF-MS) sunt dispozitive care deduc m/q folosind măsurători ale timpului de zbor al ionilor pe o traiectorie închisă [17]. În prezent, ele pot atinge puteri de rezoluție apropiate de 10<sup>6</sup> și precizii de 10<sup>-8</sup> [18].

Pentru un grup de ioni de mase diferite, având aceeași energie cinetică, care călătoresc pe o distanță fixă (D) sub influența unui câmp electric (U), timpul de zbor (t) va fi distribuit direct proporțional cu  $\sqrt{m/q}$ . Această observație este exprimată matematic în Ec. 3.15, unde constantele experimentale au fost notate cu  $a = \frac{2U}{D^2}$ . Această ecuație reprezintă principiul fundamental al TOF-MS.



Figura 3.3 Reprezentarea spectrometrelor de masă liniare (figura din stanga) și cu reflexie multiplă (figura din dreapta). Placa de injecție și detectorul sunt afișate cu roșu, respectiv verde. Cu portocaliu sunt reprezentate oglinzi de reflexie folosite pentru a mări distanța de zbor.

Puterea de rezoluție poate fi calculată atât cu ajutorul m/q cât și cu t și din FWHM corespunzător distribuțiilor măsurate ( $\Delta(m/q)$  sau  $\Delta t$ ), Ec. 3.16. Creșterea puterii de rezoluție se poate face prin creșterea distanței de parcurs și in consecinta a timpului de zbor. În Fig. 3.3 sunt prezentate schematic ToF-MS liniar și cu reflexie multiplă.

### 3.4.1 FRS și FRS-IC

FRagment Separator (FRS) este un spectrometru magnetic având patru trepte de dipoli magnetici pentru transportul și separarea ionilor și un set de detectoare pentru identificarea și analiza

particulelor (PID). În Fig. 3.4 este prezentat un desen schematic al ansamblurilor FRS și FRS-Ion Catcher (FRS-IC). Fig. 3.5 prezintă în partea de sus o diagramă de identificare a particulelor realizată cu FRS, având o rezoluție de  $\sigma_Z = 0.16$  și  $\sigma_{A/Q} = 0.003$ .

Ansamblul FRS-IC are trei componente principale: o celulă criogenică de stopare (CSC) [19, 20] umplută cu gaz, un cuadrupol cu frecvență radio (RFQ) [21, 22] și un Spectrometru de masă cu timp de zbor și reflecție multiplă (MR-ToF-MS) [23]. Acesta oferă informații despre raportul masă-sarcină al ionilor folosind tehnica MR-ToF-MS [24]. Un astfel de spectrometru de masă cu rezoluție înaltă permite o identificare completă folosind doar raportul masă-sarcină măsurat [25].



Figura 3.4 Desen schematic al ansamblurilor FRS [26] și FRS-IC [27]. Setul de detectoare SCI [28], TPC [29] și MUSIC [30, 31] alcătuiesc FRS PID, folosit pentru identificare înainte de CSC, în timp ce MR-ToF-MS furnizează prin măsurători precise de mase identificarea după CSC. Deasupra sunt prezentate energiile corespunzătoare particulelor de-a lungul ansamblului experimental. Mai jos sunt indicați timpii de zbor în diferite puncte ale ansamblului.



Figura 3.5 Exemplu de diagramă FRS PID în care sistemul a fost optimizat pentru măsurarea <sup>109</sup>In (figura din stanga). Distribuția distanțelor ionilor din FRS PID la planul focal final în Al (figura din dreapta). Calculul se bazează pe fit-uri de date [32]. Densitatea areală și poziția CSC în interval este marcată cu roșu.

### 3.5 Rezumat

Descrierea ansamblurilor FRS și FRS-IC prezentată în acest capitol este inclusă în următoarea publicație: A. Spătaru et al., *First coupling of the FRS particle identification and the FRS-Ion Catcher data acquisition systems: The case of 109In*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 522, 2022

# Tranziții de fază

De-a lungul hărții nucleare, nucleele au arătat că posedă diferite forme (sferice sau deformate), în funcție de numărul de protoni și neutroni. Prin studierea punctelor de tranziție dintre două forme nucleare se obțin informații importante despre interacțiunea dintre nucleoni ce sunt utilizate pentru dezvoltarea modelelor nucleare.

Acest capitol prezintă aspectele de bază ale modelelor în pături și colective care descriu formele sferice și deformate ale nucleelor. Punctele de tranziție dintre formele nucleare sunt discutate cu ajutorul studiilor ce folosesc observabile ale stărilor excitate, precum și ale stărilor fundamentale ale nucleelor.

### 4.1 Forme nucleare si modele nucleare de structură

Un număr mare de nuclee sunt deformate avand o simetrie axială, în timp ce pentru un anumit număr de protoni și neutroni, denumite în mod obișnuit numere magice (de exemplu, Z, N = 2, 8, 20, 28, 50, 82, 126 etc.) nucleele prezintă o formă sferică. În Fig. 4.1 sunt reprezentate schematic forma sferică și cele mai comune forme deformate simetric.

Deformările suprafeței sunt descrise matematic în Ec. 4.1 folosind armonicile sferice  $(Y_{\lambda\mu}(\theta, \phi))$  și o amplitudine  $(\alpha_{\lambda\mu})$ , care definește deformarea, adunată la raza nucleului sferic,  $R_0$ . În cazul în care parametrii de deformare  $\alpha_{\lambda\mu} = 0$ , nucleul are formă sferică.

$$R(\theta,\phi) = R_0 \left[ 1 + \sum_{\lambda \ge 1} \sum_{\mu = -\lambda}^{-\lambda} \alpha_{\lambda\mu} Y_{\lambda\mu}(\theta,\phi) \right]$$
(4.1)

Modelele nucleare oferă o perspectivă simplificată asupra structurii nucleului atomic. Modelul nuclear în pături [33, 34] folosește una dintre primele abordări de stabilire a unui model nuclear, care a demonstrat caracterizarea cu succes a nucleelor sferice. Modelul nuclear în pături pentru nuclee deformate, cunoscut și sub denumirea de model Nillson [35] ia în considerare forma în schimbare a nucleului, așa cum este descrisă în Ec. 4.1.

Nucleele medii-grele și grele prezintă caracteristici care nu au putut fi explicate în cadrul modelului în pături sau Nillson (de exemplu, scăderea lină a energiei primei stări excitate în funcție de numărul de masă). Observațiile au fost justificate prin influența mișcării colective a nucleonilor: vibrațiile și rotațiile nucleare.



Figura 4.1 Reprezentare schematică a formei nucleare sferice și a celor două forme deformate prolate și oblate.

### 4.2 Tranziții de fază

Comportamentul tranzițional al nucleelor este analizat din punct de vedere teoretic utilizând Modelul de Interacțiune Bosonic (IBM) [36]. Modelul consideră tranzițiile dintre cele trei forme nucleare colective, ce sunt clasificate în două grupe: tranziții de fază de ordinul întâi (tranziție între forma sferică și forma deformată axial) și tranziție de fază de ordinul doi (tranziție între forma sferică și forma deformată cu instabilitate  $\gamma$ ) [37].

Din punct de vedere microscopic tranziția între o formă sferică și o formă deformată este legată de interacția dintre nucleonii de valență.

### 4.2.1 Observabilele stărilor excitate

Măsurătorile observabilelor stării excitate ale nucleului, cum ar fi energia primei stări excitate și momentele cuadrupolare, au fost primele care au afișat caracteristici ale proprietăților colective ale nucleelor.

Raportul energetic dintre prima stare  $4_1^+$ ,  $E(4_1^+)$  și prima stare  $2_1^+$ ,  $E(2_1^+)$ , Ec. 4.2 indică tipare regulate cu schimbări bruște în anumite puncte critice. În Fig. 4.2 raportul este calculat pentru nucleele par-pare cu Z = 56 - 66 și situate deasupra păturii închise de la N = 82. Această regiune este tipică pentru tranziția între  $R_{4/2} \approx 2$  și  $R_{4/2} \approx 3$ , care în cazul unor nuclee (de exemplu Sm, Gd, Dy) este mai bruscă, indicând tranziția de fază.

$$R_{4/2} = \frac{E(4_1^+)}{E(2_1^+)} \tag{4.2}$$

Un al doilea parametru ce este utilizat ca indicator al tranziției de fază, utilizează tăria cuadrupolului electric (E2). Raportul  $B_{4/2}$  (definit în Ec. 4.3) indică regiunea tranziției de fază prin valori descrescătoare, de ex.  $B_{4/2} = 2$  în regiunea nucleelor sferice și  $B_{4/2} = 1.4$  în regiunea nucleelor deformate.

$$B_{4/2} = \frac{B(E2; 4_1^+ \to 2_1^+)}{B(E2; 2_1^+ \to 0_1^+)}$$
(4.3)



Figura 4.2 Raportul dintre energia primelor stări excitate  $4^+$  și  $2^+$  în jurul punctului critic N = 90 pentru nucleele cu un număr par de protoni și neutroni. Date de la https://www.nndc.bnl.gov/ensdf/

### 4.2.2 Observabilele stărilor fundamentale

Energia de legătură nucleară, B(Z,N), este definită în Ec. 4.4 pentru un nucleu de masă nucleară M(Z,N) și conform cu notațiile folosite în Capitolul 3.

$$B(Z,N) = [Z \cdot m_p + N \cdot m_n - M(Z,N)] \cdot c^2$$

$$(4.4)$$

Energia de separare a doi neutroni,  $S_{2n}$  (Eq. 4.5), oferă mai multe detalii ale caracteristicilor structurii nucleare.

$$S_{2n}(Z,N) = B(Z,N) - B(Z,N-2)$$
(4.5)

În partea superioară a figurii 4.3 este prezentată evoluția  $S_{2n}$  ca funcție de numărul de neutroni pentru nucleele par-pare situate deasupra păturii închise de la N = 82. Abaterile de la liniaritate observate în lanțurile izotopice de neodim, samariu și gadoliniu sunt evidențiate cu un cerc punctat în Fig. 4.5. Acest efect indică regiunea de tranziție între formele sferice și cele deformate (adică tranziția de fază de ordinul întâi).

$$dS_{2n}(Z,N) = \frac{S_{2n}(Z,N+2) - S_{2n}(Z,N)}{2}$$
(4.6)

Prima derivată a energiei de separare a doi neutroni este un al doilea parametru care este utilizat în studiile tranzițiilor de fază nucleare prin măsurători de masă, Eq. 4.6. În partea de jos a Fig. 4.3 și Fig. 4.4 sunt prezentate evoluțiile  $dS_{2n}$  pentru nuclee par-pare și par-impare în jurul N = 90.

### 4.3 Summary

Evoluția  $S_{2n}$  și  $dS_{2n}$  pentru nucleele cu N = 90 reprezintă subiectul unei publicații viitoare: A. Spătaru et al., Accurate mass measurements near the N=90 shape phase transition region at the FRS-IC, in progress



∳

100

98

96

4

2

8

88

86

84

82

80

18

16

(V9M)<sub>n</sub>2 <del>7</del>

12

even-even



pentru nucleele cu numar par de protoni și neutroni, situate deasupra păturii închise de la N = 82. Regiunea tranziției de fază de la N = 90 este indicată cu un cerc punctat. Valorile extrapolate nu sunt luate în considerare. Date de la [38].

de fază de la N = 90 este indicată cu un cerc punctat. Valorile Figura 4.4 Energia de separare a doi neutroni și prima derivată pentru nucleele cu numar par de protoni și impar de neutroni, situate deasupra păturii închise de la N = 82. Regiunea tranziției

extrapolate nu sunt luate în considerare. Date de la [38].

## Sisteme de achiziții de date

Ansamblurile FRS și FRS-IC au două metode de identificare a particulelor (PID) independente, ce au fost detaliate în Capitolul 3. Acest capitol prezintă prima cuplare între sistemele PID ale FRS și MR-ToF-MS de la GSI.

### 5.1 Cuplarea FRS și FRS-IC DAQ

Cuplarea celor două sisteme permite, în cazul funcționării standard, corelarea evenimenteveniment cu rate de până la ~50 Hz pentru semnalele FRS. Pentru a include informațiile referitoare la măsurătorile de mase cu rezoluție înaltă de la MR-ToF-MS în sistemul de achiziție de date (DAQ) al FRS, semnalele de start și stop au fost divizate și înregistrate simultan atât în sistemul FRS DAQ, cât și în MR-ToF-MS. Mai mult, în FRS DAQ, evenimentele, inclusiv măsurătorile de masă cu rezoluție înaltă, au fost marcate în timp cu marcaje locale, oferind o etichetă temporală unică fiecărui eveniment înregistrat înainte și după CSC și, prin urmare, făcând posibilă o corelare între cele două ansambluri. O reprezentare schematică a ansamblului electronic utilizat pentru cuplarea celor două sisteme DAQ este prezentată în Fig. 5.1.

### 5.2 Calibrarea si precizia măsurătorilor

În cazul experimentului discutat aici, ionii de <sup>124</sup>Xe cu o energie de 600 MeV/u au interacționat cu o țintă de beriliu 1622 mg/cm<sup>2</sup> în zona de interacție de la intrarea în FRS. Pulsurile fasciculului primar au avut o durată de 5 s, cu un interval de pauză de 10 s între ele. Ionii de interes (IoI) folosiți pentru a testa cuplarea sistemelor au fost <sup>109</sup>In.

Spectrul de masă măsurat cu MR-ToF-MS acoperă un interval de masă foarte mare de 30 de unități de masă. Cu toate acestea, chiar și cu un interval mare al maselor masurate a fost posibil să se separe starea fundamentală a IoI de cele două stări izomere, precum în Fig. 5.2.

În Fig. 5.2 sunt prezentate fit-urile gaussiene ale celor trei stări nucleare, precum și valorile evaluate [43] (linii punctate). Diferența relativă de masă dintre literatură [43] și măsurătoare  $(m_{masurata} - m_{literatura})/m_{literatura}$  obținută în cazul stării fundamentale și a celei de-a doua stări izomere este de ordinul 10<sup>-7</sup>, în timp ce pentru prima stare izomeră este mai mare, deoarece funcția gaussiană folosită pentru descrierea distribuțiilor nu este suficientă pentru a gestiona distribuțiile suprapuse [44].



Figura 5.1 Schema electronică utilizată pentru cuplarea celor două sisteme DAQ. Figura din ref. [39].



Figura 5.2 Spectrul masă pe sarcină măsurat pentru <sup>109</sup>In<sup>1+</sup> în stare fundamentală și cele două stări izomere ce au fost înregistrate cu sistemul de achiziție de date FRS după divizarea semnalului. Valorile de masă din literatură [40, 41] ale stării fundamentale și cele izomere sunt prezentate cu linii punctate. Figură preluată din ref. [42].

### 5.3 Îmbunătățirea raportului semnal-fundal pe baza structurii pulsurilor de fascicul



Figura 5.3 Comparație între spectrul masă-pesarcină total (panoul superior), măsurat în timpul pulsurilor (al doilea panou), măsurat în timpul pauzelor dintre două pulsuri consecutive (al treilea panou) și spectrul masă-pe-sarcină când a fost aplicată condiția pe <sup>109</sup>In <sup>1+</sup> în diagrama PID (panoul de jos). Liniile întrerupte indică ionii care au fost suprimați în mod semnificativ. Figura din ref. [42].

În Fig. 5.3 este prezentată comparația între spectrul de masă total (panoul de sus), cel înregistrat în timpul pulsurilor (panoul al doilea) și cel înregistrat în intervalul de timp dintre pulsuri ( al treilea panou). O evaluare a procedurii a fost efectuată prin verificarea raportului semnal (evenimente <sup>109</sup>In<sup>1+</sup>) la fundal (evenimente ce nu aparțin IoI, sursei de calibrare sau unui izotop Kr). Cu această metodă se poate obține o creștere de peste 50% a raportului semnalfundal, având o eficiență de 98% (evenimente <sup>109</sup>In<sup>1+</sup> în timpul versus în afara pulsurilor). Mai mult, așa cum era de așteptat, a fost observată și o suprimare a calibranților indicată în Fig. 5.3.

### 5.4 Monitorizare on-line

Corelarea FRS și MR-ToF-MS PID deschide posibilitatea măsurării în timp real a unor parametri cruciali pentru funcționarea FRS și FRS-IC, cum ar fi timpul de extracție al CSC. Acest lucru face posibilă observarea în timp real a efectelor de sarcină spațială în CSC sau a deplasării dispozitivului de la parametrii optimi.

Compararea distribuțiilor temporale ale tuturor ionilor detectați înainte de CSC (negru) și ionilor de <sup>109</sup>In<sup>1+</sup> detectați cu ajutorul MR-ToF-MS (albastru), prezentată în Fig. 5.4, evidențiază o deplasare temporală. Aceasta reprezintă suma timpului de extracție al CSC cât și a timpului necesar ionilor pentru a fi detectați cu MR-ToF-MS. Evaluarea timpului de extracție este facută prin deplasarea temporală a distribuției ionilor înainte de CSC, evidențiată cu roșu în Fig. 5.4. Se observă o diferență de 120 ms între distribuții.

### 5.5 Îmbunătățirea raportului semnal-fundal pe baza corelării evenimentelor

Informația temporală s-a dovedit a fi eficientă în suprimarea unei părți a fundalului, prin urmare aceasta poate fi utilizată și pentru realizarea unei corelații detaliate eveniment cu eveniment între ionii din fața și de după CSC.

Pentru a valida această procedură, au fost selectați toți ionii de <sup>109</sup>In<sup>1+</sup> identificați cu FRS PID (detalii în secțiunea 3.4.1), așa cum este indicat în Fig. 5.5. Se presupune ca intervalul de timp necesar pentru extracția și detecția lor este între 40 și 200 ms, această condiție fiind impusă ca și fereastră de timp în urma detectării evenimentelor cu FRS PID. Ionii detectați de MR-ToF-MS în această fereastră au fost adăugați histogramei prezentată în Fig. 5.3 (panoul de jos). 90% din totalul de ioni de <sup>109</sup>In<sup>1+</sup> măsurați cu MR-ToF-MS se încadrează condiției de timp impuse. Din cauza ratelor ridicate de ioni în timpul pulsurilor, aplicarea condiției pe un izotop diferit din diagrama PID (de exemplu, <sup>112</sup>Sn<sup>1+</sup>) duce la recreerea spectrului din timpul pulsurilor și, astfel, la o creștere la 2.37 a ratei de ioni de <sup>109</sup>In<sup>1+</sup> detectați versus evenimente totale, ce nu aparțin IoI sau unui izotop Kr.



Figura 5.4 Comparație între distribuțiile temporale din timpul pulsurilor a tuturor ionilor detectati cu detectorul de scintilație înainte de CSC (negru) și a ionilor de <sup>109</sup>In<sup>1+</sup> măsurați cu MR-ToF-MS (albastru). Diferența de timp dintre punctele negre și cele roșii este de 120 ms, aceasta reflectand diferența temporală dintre oprirea ionilor în CSC și detectarea lor în MR-ToF-MS (vezi explicația din text). Figura din ref. [42].



Figura 5.5 Casetele albe indică selecția ionilor din diagrama FRS PID care sunt utilizați mai departe la verificarea ionilor ce urmează să fie detectați cu MR-ToF-MS. Figura din ref. [42].

### 5.6 Rezumat

Metoda prezentată este un prim pas în extinderea FRS PID cu informații suplimentare pentru o identificare mai precisă a IoI. Rezultatele prezentate sunt incluse în următoarele publicații: A. Spătaru, *Extension of the particle identification at the GSI Fragment Separator by high resolution mass spectrometry*, 2016, Master Thesis, Faculty of Physics, University of Bucharest, A. Spătaru et al., *First coupling of the FRS particle identification and the FRS-Ion Catcher data acquisition systems: The case of 109In*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 522, 2022.

# Măsurători ale fragmentelor de fisiune și evaluarea maselor la FRS-IC

Fisiunea spontană, discutată în detaliu în Capitolul 2, este un mecanism de reacție accesibil pentru producerea de nuclee bogate în neutroni, deoarece nu necesită nicio interacție externă. Acest capitol discută măsurătorile de masă ale produșilor de fisiune spontană efectuate la ansamblul FRS-IC.

### 6.1 Ansamblul experimental și măsurători

O sursă de  $^{252}$ Cf de activitate 37 kBq a fost montată în interiorul CSC și ToF-ul produșilor de fisiune spontană a fost măsurat cu MR-ToF-MS. S-au efectuat un total de cinci seturi de măsurători, dintre care patru au fost optimizate să aibe un număr mare de întoarceri (320 și 350) în analizor, în timp ce pentru un set numarul de întoarceri a fost mai mic (64). Un număr de 68 de ioni diferiți, situați la nord-vest de numerele magice Z = 50 și N = 82, au fost extrași din CSC.



Figura 6.1 Reprezentare schematică a ansamblului FRS-IC utilizat în măsurătorile discutate. Sursa de <sup>252</sup>Cf, indicată cu roșu, a fost plasată în interiorul CSC. IoI sunt transportați și extrași din CSC și apoi trimiși către MR-ToF-MS prin ansamblul RFQ. Acolo, o placă de injecție, indicată cu gri, stochează ionii înainte ca aceștia să zboare cu reflexii repetate în interiorul unui analizor. Cu albastru este indicat detectorul ToF de la sfârșitul MR-ToF-MS. Figura din ref.[45].

### 6.2 Procedura de evaluare a datelor

Evaluarea maselor pentru măsurătorile de ToF este o procedură elaborată dezvoltată de grupul FRS-IC și detaliată în Ref. [44].

#### 6.2.1 Conversia către spectrul de masă și calibrare

MR-ToF-MS produce măsurători de ToF care sunt convertite în masă-pe-sarcină m/q, folosind Eq. 6.1. Aici,  $\Delta t$ , timpul în care ionii sunt stocați în MR-ToF-MS, și  $N_{it}$ , numărul de întoarceri pe care ionii le efectuează în interiorul analizorului, sunt doi parametri de măsurare cunoscuți. Parametrii c și b conectează lungimea unei întoarceri,  $s_{turn}$ , lungimea de la placa de injecție la detector fără întoarceri,  $s_0$  și potențialul electric mediu din analizor, U, prin  $b = \frac{s_{turn}}{s_0}$ ,  $c = \frac{2eU}{s_0}$ . Ultimul parametru al formulei,  $t_0$ , este o întârziere temporală cauzată de electronică.

$$\frac{m}{q} = c \frac{(\Delta t - t_0)^2}{(1 + N_{it}b)^2}$$
(6.1)

În timpul măsurătorilor, tensiunile aplicate electrozilor analizorului se pot modifica, ceea ce face ca ionii cu același raport masă-pe-sarcină să zboare pe lungimi diferite și, prin urmare, distribuția măsurată este mai largă. Acest efect influențează parametrul *b*. Corectarea acestuia implică un calcul al evoluției parametrului pe întreg intervalul de timp, denumită de obicei calibrare dedicată de timp (TRC). Impactul modificărilor tensiunilor în timpul unei măsurători de câteva ore și efectul TRC sunt ilustrate în Fig. 6.2.

Influența calibranților asupra parametrului c a fost testată prin îndepărtarea a câte o specie de ioni din calibranți, Fig. 6.3. Acest studiu indică faptul că parametrul c are o variație mică față de medie. În consecință, ionii de calibrare pot fi tratați ca și IoIs.

### 6.2.2 Determinarea formei distribuțiilor

În spectrometria cu ToF, pentru un spectru dat, forma distribuției unui ion este independentă de specia acestuia. Acest lucru permite determinarea formei distribuțiilor pornind de la distribuția unui ion abundent și folosirea acesteia pentru calculul masei IoIs.

Parametrii formei distribuțiilor sunt obținuți cu ajutorul unei funcții de tip Gaussian modificată exponențial (hyper-EMG) [20],Ec. 6.2, folosind metoda celor mai mici pătrate. Aici, *A* reprezintă aria distribuției, iar  $\sigma_G$  și  $\mu_G$  media gaussianei și deviația standard. Scala și tăria părții exponențiale pozitive și negative ale distribuției sunt reprezentate de  $\tau$  și  $\eta$ ,iar puterea lor relativă la una dintre orientările pozitive sau negative de  $\Theta$ . În Fig. 6.4 este prezentată folosirea funcției hiper-EMG în cazul ionului <sup>142</sup>Ba.

$$f(x) = A\Theta \sum_{i=1}^{m} \frac{\eta_{-i}}{2\tau_{-i}} exp\left[\left(\frac{\sigma_{G}}{\sqrt{2}\tau_{-i}}\right)^{2} + \frac{(x-\mu_{G})}{\tau_{-i}}\right] erfc\left[\frac{\sigma_{G}}{\sqrt{2}\tau_{-i}} + \frac{(x-\mu_{G})}{\sqrt{2}\sigma_{G}}\right] + A(1-\Theta) \sum_{i=1}^{m} \frac{\eta_{+i}}{2\tau_{+i}} exp\left[\left(\frac{\sigma_{G}}{\sqrt{2}\tau_{+i}}\right)^{2} - \frac{(x-\mu_{G})}{\tau_{+i}}\right] erfc\left[\frac{\sigma_{G}}{\sqrt{2}\tau_{+i}} - \frac{(x-\mu_{G})}{\sqrt{2}\sigma_{G}}\right]$$
(6.2)

În cazul folosirii funcției de fit pentru IoI, parametrul  $\mu$  este liber, în timp ce  $\Theta$  și  $\eta$  sunt preluate din determinarea formei distribuției. Parametrii  $\sigma$  și  $\tau$  sunt scalați la IoI ca în Eq. 6.3



Figura 6.2 Spectrele de <sup>142</sup>Ba văzute cu software-ul MAc înainte de TRC (panoul superior) și după (panoul de jos).

unde  $R_{calibrant}$  și  $R_{IoI}$  reprezintă puterea de rezoluție a calibrantului utilizat pentru determinarea formei distribuției și cea a IoI.

$$S = \frac{R_{calibrant} \cdot \left(\frac{m}{q}\right)_{IoI}}{R_{IoI} \cdot \left(\frac{m}{q}\right)_{calibrant}}$$
(6.3)

### 6.2.3 Determinarea masei și a incertitudinii

Metoda utilizată în cazul distribuțiilor suprapuse urmează exemplul menționat în AME20 [38]. În acest caz, raportul masă-pe-sarcină măsurat este calculat ca media dintre valorile raportului din starea fundamentală și starea izomeră, Ec. 6.4.

$$\overline{\left(\frac{m}{q}\right)} = \frac{1}{2} \left[ \left(\frac{m}{q}\right)_{ground-state} + \left(\frac{m}{q}\right)_{isomer} \right]$$
(6.4)

Incertitudinea totală a fiecărui IoI măsurat,  $\sigma_{total}$ , este calculată ca suma pătratică a mai multor contribuții de incertitudine, Ec. 6.5. În cazul măsurătorilor fragmentelor de fisiune, au fost luate în considerare opt contribuții de incertitudine ce sunt detaliate în continuare.

$$\sigma_{total} = \left(\sum_{i} \sigma_{i}\right)^{1/2} \tag{6.5}$$



Figura 6.3 Dependența parametrului c față de numărul de întoarceri ale calibranților într-o măsurătoare.



Figura 6.4 Funcția Hyper-EMG, Eq.6.2 (roșu), folosită în cazul ionului <sup>142</sup>Ba prin metoda celor mai mici pătrate (LS), afișată în scală liniară (sus) și scală logaritmică (jos). Cu linia galbenă este reprezentată estimarea inițială și cu puncte negre datele.

- 1. Incertitudinea statistică ( $\sigma_{Statistical}$ ) este determinată folosind o abordare empirică.
- 2. Incertitudinea parametrilor de calibrare  $(t_0, c)$ ,  $(\sigma_{t_0}, \sigma_c)$ : Parametrii  $t_0$  și c ai Ec. 6.1 sunt determinați împreună cu incertitudinile lor folosind software-ul MAc, vezi Secțiunea 6.2.1.
- 3. Incertitudinea ionului calibrant ( $\sigma_{Calibrant}$ ): Se calculează folosind Ec. 6.6, unde  $\sigma_{(m/q)_{lit}}$  și  $\sigma_{(m/q)_{lit}}$  reprezintă incertitudinea literaturii și a statisticii.

$$\sigma_{calibrant} = \left(\frac{m}{q}\right)_{IoI} \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{(m/q)_{lit}}}{\left(\frac{m}{q}\right)_{lit}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{(m/q)_{fit}}}{\left(\frac{m}{q}\right)_{fit}}\right)^2}$$
(6.6)

4. Incertitudinea formei distribuțiilor ( $\sigma_{peak-shape}$ ): Contribuția incertitudinii în masă provine de la parametrii fit-ului și de la influența TRC asupra lărgirii distribuției.

- 5. Incertitudinea din contaminare și fundal ( $\sigma_{Contaminare}, \sigma_{fundal}$ ): Sunt determinate pe baza densității și ariei medie a distribuțiilor contaminanților, calculate cu software-ul MAc.
- 6. Incertitudinea de ejecție non-ideală (NIE) ( $\sigma_{NIE}$ ): Calculul incertitudinii NIE urmează o abordare empirică utilizând măsurători ale abaterii ToF ( $\Delta t_{NIE}$ ) în timpul unei scanări a timpului în care ionii sunt stocați în interiorul analizorului. Această măsurătoare este efectuată pentru un ion de referință cu masa-pe-sarcină  $\left(\frac{m}{q}\right)_{ref}$ . Incertitudinea NIE a IoI este calculată folosind Eq. 6.7 [44], unde  $t_{total,IoI}$  reprezintă ToF total al IoI și  $\left(\frac{m}{q}\right)_{IoI}$  masa-pe-sarcină măsurată.

$$\sigma_{NIE} = \frac{2\Delta t_{NIE}}{t_{total,IoI}} \sqrt{\frac{\left(\frac{m}{q}\right)_{IoI}}{\left(\frac{m}{q}\right)_{ref}}} \left(\frac{m}{q}\right)_{IoI}$$
(6.7)

 Incertitudinea contaminării izomere (σ<sub>izomer</sub>): Calculul incertitudinii în masă cauzată de contaminarea IoI cu stări izomere nerezolvate urmează metoda prezentată în AME20 [38], Eq. 6.8.

$$\sigma_{isomer} = \frac{\sqrt{3}}{6} \left[ \left( \frac{m}{q} \right)_{isomer} - \left( \frac{m}{q} \right)_{ground-state} \right]$$
(6.8)

#### 6.2.4 Metodă de mediere pentru mai multe măsurători independente

În multe cazuri sunt disponibile mai multe măsurători independente pentru același izotop. Prin urmare, o metodă de mediere este necesară pentru a calcula masa finală și valoarea incertitudinii.

Procedura de mediere aplicată analizei datelor la FRS-IC utilizează metoda medierii ponderate în care toate masele măsurate ale unui izotop dat (se notează numărul cu K) sunt ponderate invers proporțional cu pătratul incertitudinii lor totale,  $\frac{1}{\sigma_{\text{total.i}}^2}$ , Eq.6.9.

$$\overline{m}_{\text{eval}} = \frac{\sum_{j=1}^{K} \frac{m_j}{\sigma_{\text{total},j}^2}}{\sum_{j=1}^{K} \frac{1}{\sigma_{\text{total},j}^2}}$$
(6.9)

Medierea incertitudinilor presupune împărțirea incertitudinilor individuale în două categorii: dependente și independente de condițiile experimentale. Cele două grupuri sunt adunate pătratic pentru a genera incertitudinea totală a fiecărui IoI, Eq. 6.10. Incertitudinile independente și dependente totale ale fiecărui ion sunt calculate utilizând varianța mediei ponderate (partea independentă) și media ponderată (partea dependentă), Ec. 6.11.

$$\sigma_{\text{total},\overline{m}}^2 = \sigma_{\text{independent},\overline{m}}^2 + \sigma_{\text{dependent},\overline{m}}^2$$
(6.10)

$$\sigma_{\text{total},\overline{m}}^{2} = \frac{\sum_{i=1}^{N} \frac{\sigma_{\text{indep},i}^{2}}{\sigma_{\text{total},i}^{4}} + \left(\sum_{i=1}^{N} \frac{\sigma_{\text{dep},i}}{\sigma_{\text{total},i}^{2}}\right)^{2}}{\left(\sum_{i=1}^{N} \frac{1}{\sigma_{\text{total},i}^{2}}\right)^{2}}$$
(6.11)

Un exemplu al efectului procedurii de mediere este prezentat în Fig. 6.5 pentru <sup>157</sup>Sm.



Figura 6.5 Devierea în masă de la valoarea AME20 a patru măsurători independente cu număr mare de întoarceri ale <sup>157</sup>Sm (portocaliu, verde, albastru și roșu) în comparație cu valoarea medie calculată (violet). Zona albastră din figură reprezintă incertitudinea AME20.

### 6.2.5 Rezultatele calibrării măsurătorilor fragmentelor de fisiune

În Fig. 6.6 este prezentată distribuția deviației de masă ca functie de numărul de întoarceri pentru una dintre măsurătorile cu număr mare de întoarceri. Rezultatele sunt în acord cu așteptările, avand valori împrăștiate în jurul lui zero. Acest rezultat oferă posibilitatea efectuării unei recalibrări folosind același ion pentru toate IoI din spectru.



Figura 6.6 Devierea în masă de la valoarea AME20 a calibranților utilizați într-una dintre măsurătorile cu număr mare de întoarceri. Pe axa x este afișat numărul de întoarceri efectuate de calibrantul corespunzător în analizor.

### 6.3 Rezumat

Acest capitol a prezentat măsurători de mase ale nucleelor bogate în neutroni efectuate la FRS-IC, cât și procedura de evaluare a datelor folosită pentru a obține valori precise de masă.

Evaluarea datelor discutată în acest capitol va fi inclusă într-o publicație viitoare: A. Spătaru et al., *Accurate mass measurements near the N=90 shape phase transition region at the FRS-IC*, in progress

# Măsurători de masă și tranziții de fază la N = 90

Programul experimental ce a avut loc la FRS-IC pentru măsurători ale produșilor de fisiune spontană a sursei  $^{252}$ Cf și procedura de evaluare a masei au fost discutate în detaliu în Capitolul 6. Legătura dintre masele stării fundamentale și tranziția de fază prin evoluția parametrilor S<sub>2n</sub> și dS<sub>2n</sub> a fost prezentată în Capitolul 4.

În acest capitol masele rezultate sunt prezentate și comparate cu măsurătorile directe sau indirecte anterioare. Suprapunerea lor cu regiunea de tranziție de fază la N = 90 permite investigarea schimbărilor dintre formele nucleare folosind măsurători directe de masă. Valorile  $S_{2n}$  și  $dS_{2n}$  sunt calculate folosind masele măsurate și sunt discutate abaterile de la liniaritate în evoluția lor ca funcție de numărul de neutroni.

### 7.1 Rezultate experimentale

Aproape 70 de mase au fost măsurate simultan într-o campanie experimentală care a avut loc la ansamblul FRS-IC. O mare parte dintre acestea au fost măsurate anterior la ansambluri cu Penning Trap, cum ar fi CARIBU și JYFLTRAP. O treime din mase nu au o măsurătoare directă anterioară, masele lor fiind calculate din măsurători ale energiei eliberate într-o reacție sau dezintegrare nucleară. În această secțiune, măsurătorile sunt comparate cu valorile lor anterioare.

### 7.2 Discuție

Masele măsurate au fost utilizate pentru a calcula valorile  $S_{2n}$  și  $dS_{2n}$  ale nucleelor corespondente. Evoluția lor ca funcție a numărului de neutroni este studiată pentru nuclee măsurate, acestea fiind separate pe baza parității sau a imparității protonilor și neutronilor. Evoluția lor este comparată cu cea a calculelor teoretice ale unui model bazat pe o abordare Hartree-Fock.

### 7.3 Rezumat

Măsurătorile nucleelor la N = 90 demonstrează capacitățile ansamblului FRS-IC pentru măsurători directe de masă a produșilor de fisiune spontană.

Valorile  $S_{2n}$  și  $dS_{2n}$  calculate cu măsurătorile FRS-IC confirmă abaterile de la scăderea liniară și respectiv vârfurile pentru binecunoscutele nuclee Nd și Sm. Valorile pentru nucleele Ce au fost comparate cu un model teoretic și arată un acord perfect în cazul nucleelor par-pare.

Măsurătorile și discuțiile din acest capitol sunt incluse în următoarele publicații: A. Spătaru et al., *Nuclear Structure Studies with High-Precision Mass Measurements of Spontaneous Fission Fragments at the FRS Ion Catcher*, Bulg. J. Phys. 48, 535-540 (2021), A. Spătaru et al., *Accurate mass measurements near the N=90 shape phase transition region at the FRS-IC*, in progress

# Producerea de izotopi bogați în neutroni prin reacții de transfer multinucleonic

Procesul MNT este unul dintre mecanismele de producere a nucleelor bogate în neutroni, discutat în Capitolul 3, care prezintă o secțiune eficace crescută pentru N = 126 în comparație cu reacțiile de fragmentare.

Acest capitol prezintă rezultatele simulărilor producerii de nuclee exotice bogate în neutroni folosind reacțiile MNT pentru cazul a două programe experimentale planificate la instalația Ion Guide Isotope Separator On-Line (IGISOL) de la JYFL Accelerator Laboratory și FRS Ion Catcher la GSI.

### 8.1 Programe experimentale la FRS-IC și IGISOL

La ansamblul FRS-IC este planificat un program experimental ce utilizează reacțiile MNT pentru producerea de nuclee bogate în neutroni folosind tehnica celulelor cu gaz. În acest scop, ansamblul FRS va fi utilizat pentru transportul fasciculului, în timp ce reacția va avea loc în interiorul CSC. Reacțiile MNT planificate implică utilizarea unui fascicul <sup>238</sup>U (10<sup>7</sup> particule/s) și a patru tipuri de ținte. Două dintre ținte, <sup>64</sup>Ni și <sup>209</sup>Bi, au fost studiate anterior în Ref. [8] și Ref. [46] și vor fi folosite pentru optimizarea ansamblului și pentru dovedirea principiului de funcționare. Țintele <sup>164</sup>Dy și <sup>198</sup>Pt vor fi utilizate în producerea și măsurarea IoI. În studiile prezentate în acest capitol, sunt considerate doar trei dintre ținte: <sup>64</sup>Ni, <sup>209</sup>Bi și <sup>164</sup>Dy. Preconizările pentru ținta <sup>198</sup>Pt vor fi extrapolate din cazurile studiate.

Un alt program experimental ce consideră reacția MNT folosind tehnica celulelor cu gaz a fost planificat la ansamblul IGISOL de la JYFL. Aici studiile sunt planificate să fie efectuate folosind un fascicul <sup>136</sup>Xe și două ținte de <sup>209</sup>Bi și <sup>198</sup>Pt. În cazul <sup>136</sup>Xe + <sup>209</sup>Bi măsurătorile au avut loc și au fost folosite pentru a valida experimentul. Rezultatele acestui experiment sunt raportate în Ref. [46].

Unghiurile de emisie (conform modelului Langevin [6, 7]) pentru reacțiile planificate a fi utilizate la ambele ansambluri prezintă secțiuni eficace mari la unghiuri mari, vezi Fig. 8.2. Pentru ambele programe experimentale este planificat un opritor de fascicul, care va bloca



Figura 8.1 Desen schematic al experimentelor cu MNT la ansamblul IGISOL de la JYFL. Figura din Ref. [47].

fasciculul primar de a intra mai departe în gaz. Cele două ansambluri sunt limitate în ceea ce privește energia și acceptarea unghiulară. Prin urmare, o optimizare precisă a experimentului este crucială pentru maximizarea randamentelor.



Figura 8.2 Secțiunile eficace de reacție pentru TLF, calculate cu modelul Langevin, în funcție de unghiul de emisie în cazul reacțiilor considerate la cele două ansambluri: FRS-IC (panoul din stânga) cu fascicul <sup>238</sup>U la 2856 MeV pe <sup>64</sup>Ni și <sup>164</sup>Dy și IGISOL (panoul din dreapta) cu fascicul <sup>136</sup>Xe la 890 MeV pe <sup>209</sup>Bi și la 885 MeV pe <sup>198</sup>Pt. Figura din Ref.[48].

### 8.2 Implementarea procesului și a ansamblului în GEANT4

Simulările începând cu generarea produșilor de reacție în țintă până la termalizarea acestora în gazul celulei au fost efectuate cu pachetul de simulare GEANT4 și analizate cu ROOT. Scopul simulărilor ansamblului FRS-IC a fost de a optimiza grosimea țintei și lungimea CSC pentru a maximiza generarea și termalizarea produselor de reacție, precum și pentru a studia ratele IoIs. Pe de altă parte, simulările ansamblului IGISOL au fost folosite pentru compararea cu măsurătorile existente. Pentru aceste studii au fost adăugate trei module la software:

1. Generarea fasciculului primar: Aici sunt descrise proprietățile fasciculului primar.

2. Secțiunile eficace ale reacțiilor: Aici sunt implementate secțiunile eficace ale reacțiilor ce sunt calculate cu modelele GRAZING și Langevin folosind Eq. 8.1 și 8.2.

$$\sigma_{Grazing}(E/A) = \frac{\sigma(E, A, Z)}{\sum_{A, Z} \sigma(E, A, Z)}$$
(8.1)

$$\frac{d^{4}\sigma_{Langevin}}{dZdAdEd\Omega}(A, Z, E, \theta) = \int_{0}^{b_{max}} \frac{\Delta N(b, A, Z, E, \theta)}{N_{tot}(b)} \frac{bdb}{\Delta Z \Delta A \Delta E \sin \theta \Delta \theta}$$
(8.2)

3. Geometriile ansamblurilor experimentale: Geometriile ansamblurilor IGISOL și FRS-IC sunt implementate așa cum este prezentat schematic în Fig. 8.3.



Figura 8.3 Reprezentare schematică a ansamblurilor experimentale implementate în GEANT4 atât pentru IGISOL, cât și pentru FRS-IC. Distanțele dintre țintă și opritorul de fascicul sunt notate cu  $d_1$  și  $d_2$  iar cu săgeți sunt indicate fragmentele eliberate din țintă. Figura din Ref. [48].

### 8.3 Simulări ale ansamblului FRS-IC

### 8.3.1 Rezultate folosind modelul GRAZING

Primul pas al simulării îl reprezintă găsirea grosimii optime a țintei de <sup>64</sup>Ni pentru care un maxim de produși de reacție sunt eliberați în gazul CSC. Ratele produșilor generați și eliberați, în funcție de grosimea țintei, sunt prezentate în Fig. 8.4 cu cercuri roșii și, respectiv, pătrate albastre. Grosimea optimă a țintei este de 40  $\mu$ m.

La 5 cm de țintă, în interiorul celulei cu gaz, se plasează un opritor de fascicul cu o grosime de 3 mm și același diametru precum ținta.

Dependența ratei produșilor stopați de lungimea L a celulei cu gaz este prezentată în Fig. 8.5. Rata de saturație este atinsă pentru lungimi de aproximativ 60 cm, însă considerand valoarea optimă de 25 cm pentru sarcina spațială de ioni de heliu și efectele deplasării ionilor discutate mai sus va implica faptul că lungimea optimă CSC este de aproximativ 40 cm.

Distribuția ionilor generați (cercuri negre) și eliberați (cercuri roșii) în funcție de energie este prezentată în Fig. 8.6. Pentru o lungime CSC de 40 cm, aproximativ 3,8% din PLF și TLF sunt opriți în gazul CSC, însemnând rate ale produșilor de reacție stopați de aproximativ 47 PLF/s și 6 TLF/s.



Figura 8.4 Rata ionilor generați (roșu) în comparație cu rata ionilor eliberați (albastru) în funcție de grosimea țintei. Figura din Ref. [48].



Figura 8.5 Rata ionilor stopați pentru diferite lungimi ale celulei. Figura din Ref. [48].



Figura 8.6 Panourile din stânga (sus și jos) arată distribuțiile de energie ale PLF și TLF. Panourile din dreapta (sus și jos) arată distribuțiile unghiulare ale PLF și TLF. Cercurile negre, roșii și albastre reprezintă ratele generate, eliberate și, respectiv, stopate. Figura din Ref. [48].

### Efectul de sarcină spațială

Fasciculul primar care pătrunde în țintă generează sarcină spațială în regiunea de dinainte de opritorul de fascicul.

Suprafața de energie potențială (PES) a câmpului electric generat de electrozii DC ai CSC, calculată de software-ul SIMION 8.1, este prezentată în Fig. 8.7 pentru planul longitudinal (panoul din stânga) și plan transversal (panoul din dreapta).

Efectul de sarcină spațială indus asupra traiectoriilor produșilor de reacție este prezentat în Fig. 8.8. Pachetul PIC (Particle-In-Cell) din cadrul SIMION 8.1 calculează dinamic câmpul electric dependent de timp și spațiu generat de toți ionii grei și ionii de He<sup>+</sup>, pe măsură ce se propagă și interacționează între ei în câmpul DC aplicat, prezentat în Fig. 8.7. Conform acestor calcule nu se găsește un impact semnificativ al regiunii de sarcină spațială primară asupra timpului și eficienței de extracție a ionilor grei.



Figura 8.7 PES electric al electrozilor CSC: componenta longitudinală în panoul din stanga și componenta transversală în panoul din dreapta. Figura din Ref. [48].



Figura 8.8 Simularea PIC a traiectoriilor ionilor grei (linii roșii) și He<sup>+</sup> (linii negre) în PES aplicat (plasă verde) cu software-ul SIMION 8.1. Ținta este reprezentată cu o casetă albastră, opritorul de fascicul cu o casetă roșie și covorul de radio-frecvență cu o linie galbenă. Figura din Ref. [48].

### 8.3.2 Rezultate folosind modelul Langevin

Simulări privind reacția MNT la FRS-IC au fost efectuate folosind secțiuni eficace de reacție din modelul Langevin. În acest caz, au fost luate în considerare trei tipuri de ținte: <sup>64</sup>Ni, <sup>209</sup>Bi și <sup>164</sup>Dy. Rezultatele au inclus o optimizare a grosimii celor trei ținte pe baza numărului de ioni/s eliberați din ținte și ulterior termalizați în interiorul gazului de heliu al CSC și a distribuțiilor de energie și unghi de emisie. Optimizarea lungimii CSC se face prin studierea ratei de ioni/s termici la diferite lungimi ale celulei.

### 8.4 Măsurători și simulări folosind ansamblul IGISOL

Măsurători ale procesului MNT folosind reacția <sup>136</sup>Xe + <sup>209</sup>Bi au avut loc la IGISOL și au fost raportate în Ref. [46]. Distribuția dominantă a spectrului este <sup>211</sup>Ba, urmată de cea a stării fundamentale și stării izomere a <sup>211</sup>Po. Din cauza eficienței scăzute a ansamblului (sub 10%), cele două stări ale <sup>211</sup>Po au fost măsurate cu o rată de 45 de evenimente/min.

Simulări ale experimentului au fost realizate folosind secțiunile eficace de reacție estimate cu modelul Langevin, ce au fost implementate în GEANT4 împreună cu caracteristicile ansamblului experimental.

În Fig. 8.9 sunt reprezentate distribuțiile unghi-energie pentru ionii TLF (204 < A < 214) și <sup>211</sup>Po în cazul a trei poziții din ansamblul experimental. Deoarece majoritatea IoI sunt produși cu energii de 1-1.5 MeV/A, ei vor fi eliberați din fereastra de havar în gazul de heliu cu energii de 0.1-0.7 MeV/A și doar câțiva ioni (< 0.5 <sup>211</sup>Po/s) îndeplinesc conditiile pentru a fi termalizați.

O a doua reacție, <sup>136</sup>Xe + <sup>198</sup>Pt, este planificată pentru a fi măsurată folosind ansamblul IGISOL. Rezultatele simulărilor GEANT4 sunt prezentate în Fig. 8.10 în cazul a două grosimi diferite ale țintei de <sup>198</sup>Pt. În cazul țintei de 6  $\mu$ m, TLF-urile sunt eliberate cu un raport E/A mai mic decât pentru ținta de 3  $\mu$ m din cauza numărului crescut de împrăștieri în țintă. Această caracteristică va permite unui număr mai mare de ioni să fie termalizați atunci când este folosită ținta de 6  $\mu$ m.



Figura 8.9 Distribuții unghi-energie (E -  $\theta$ ) simulate ale TLF-urilor și <sup>211</sup>Po din reacția <sup>136</sup>Xe + <sup>209</sup>Bi care: (a) sunt eliberate din țintă (b) intră în fereastra de havar (c) sunt eliberate din fereastra de havar



Figura 8.10 Distribuții unghi-energie (E -  $\theta$ ) simulate ale TLF-urilor din reacția <sup>136</sup>Xe + <sup>198</sup>Pt care: (a) sunt eliberate din țintă, (b) lovesc opritorul de fascicul, (c) intră în fereastra de havar, considerandu-se o țintă de 3  $\mu$ m și 6  $\mu$ m grosime

### 8.5 Rezumat

Studiul reacției MNT folosind ansamblul FRS-IC a vizat optimizarea acestuia cu ajutorul modelului GRAZING și Langevin, cât și a simulărilor GEANT4. Simulările MNT pentru ansamblul IGISOL arată o rată scăzută a ionilor termalizați din cauza energiei inițiale mari și a volumului mic al celulei de gaz.

Lucrarea prezentată în acest capitol face parte din următoarele publicații: A. Spătaru et al., *Production of exotic nuclei via MNT reactions using gas cells*, Acta Physica Polonica B 51, (2020), A. Spătaru et al., *Multi-Nucleon Tramsfer reactions in 238U+64Ni using Grazing model*, U.P.B. Sci. Bull. A 82 (2020), A. Spătaru et al., *Study of exotic nuclei produced in multinucleon transfer reactions at the IGISOL facility*, ELI-NP Annual Reports 2022, A. Spătaru et al., *Multi-Nucleon Transfer studies of* <sup>238</sup>U induced reactions on <sup>64</sup>Ni, <sup>164</sup>Dy and <sup>209</sup>Bi targets using a Langevin-type model, in progress

# **Rezumat si perspective viitoare**

Ansamblurile experimentale Fragment Separator (FRS) și FRS-Ion Catcher (FRS-IC) [27] de la GSI, Darmstadt au fost utilizate pentru a efectua măsurătorile discutate în această teză. Cele două ansambluri sunt separate în ceea ce privește sistemele de achiziție de date, însă lucrează împreună în studiul fasciculelor izotopice produse cu ajutorul reacției de fragmentare.

Pentru început a fost realizat un studiu referitor la extensia sistemului FRS DAQ cu măsurători precise de mase de la FRS-IC, ce a fost inclus în Ref. [42]. Această metodă a dovedit posibilitatea măsurării în timp real a unor parametrii cruciali ai ansamblului FRS-IC.

Măsurătorile fragmentelor de fisiune spontană provenite de la o sursă de <sup>252</sup>Cf la FRS-IC, discutate în Capitolele 6, 7 și incluse în Ref. [45, 49], au arătat capabilitățile ansamblului pentru măsurători directe de masă a aproape 70 de ioni simultan. Masele măsurate au fost utilizate pentru a calcula valori ale parametrilor  $S_{2n}$  și prima derivată ( $dS_{2n}$ ) pentru ionii identificați, despre care se știe că prezintă abateri de la liniaritate atunci când parametrii sunt evaluați ca funcție de numărul de neutroni. Valorile măsurate confirmă abaterile, ceea ce se observă și în valorile calculate cu ajutorul modelului Skyrme-Hartree-Fock-BCS [50].

Studiile actuale pot fi extinse către sisteme nucleare mai grele bogate în neutroni atunci când se utilizează reacții nucleare. Un mecanism care a demonstrat recent că poate produce nuclee bogate în neutroni cu secțiuni eficace mai mari [1] decât reacția de fragmentare este reacția de transfer multincleonic. Au fost studiate două programe experimentale planificate să aibă loc la ansamblurile Ion Guide Isotope Separator On-Line (IGISOL) de la JYFL Accelerator Laboratory și la FRS-IC.

Investigațiile prezentate în această teză oferă informații cruciale despre comportamentul ionilor termalizati cât și despre măsurătorile de mase ale acestora pentru studiile structurii nucleare. Astfel de cunoștințe sunt utile pentru viitoarele facilități, cum ar fi ansamblul ELISOL de la ELI-NP. Aici sunt planificate studii de structură nucleară ale fragmentelor de fotofisiune folosind o celulă de gaz și un spectrometru de masă [51].

# Listă de figuri

2.1	Reprezentarea schematică a mecanismului reacției de fragmentare din punct de	
	vedere al modelului de abraziune-ablație.	2
2.2	Reacția de fotofisiune folosește fotoni pentru a excita nucleele la energii precise	
	deasupra barierei de fisiune.	3
2.3	Abraziune-fisiune este procesul în care, la parametrii de impact mici, un nucleu	
	se abraează după interacțiunea cu o țintă cu număr atomic mic. Ca și consecință,	
	nucleul este lăsat excitat și fisioneaza.	3
2.4	Fisiune-Coulomb este procesul prin care un nucleu se excită și fisionează în urma	
	schimbului unui foton virtual (indicat ca $hv$ în desen)	3
2.5	În timpul reacțiilor de transfer multinucleonic proiectilul și ținta interacționează	
	prin schimbul a mai mulți nucleoni, fără formarea unui nucleu compus, ducând	
	astfel la formarea unui fragment asemănător proiectilului (PLF) și a unui fragment	
	asemănător țintei (TLF).	4
3.1	Prima regiune a diagramei de stabilitate în funcție de parametrii Mathieu. Doar	
	masa $m_2$ se află în interiorul regiunii de stabilitate, colorată cu roz, și poate fi	
	transmisă. Vârful regiunii este la $a = 0,237$ și $q = 0,706$ și reprezintă punctul în	
	care filtrul de masă ar transporta o singură masă	6
3.2	Reprezentare schematică a celor trei oscilații (definite în legenda figurii) care	
	descriu mișcarea ionilor în interiorul unui Penning Trap	8
3.3	Reprezentarea spectrometrelor de masă liniare (figura din stanga) și cu reflexie	
	multiplă (figura din dreapta). Placa de injecție și detectorul sunt afișate cu roșu,	
	respectiv verde. Cu portocaliu sunt reprezentate oglinzi de reflexie folosite pentru	
	a mări distanța de zbor.	9
3.4	Desen schematic al ansamblurilor FRS [26] și FRS-IC [27]. Setul de detectoare	
	SCI [28], TPC [29] și MUSIC [30, 31] alcătuiesc FRS PID, folosit pentru identi-	
	ficare înainte de CSC, în timp ce MR-ToF-MS furnizează prin măsurători precise	
	de mase identificarea după CSC. Deasupra sunt prezentate energiile corespunză-	
	toare particulelor de-a lungul ansamblului experimental. Mai jos sunt indicați	
	timpii de zbor în diferite puncte ale ansamblului.	10
3.5	Exemplu de diagramă FRS PID în care sistemul a fost optimizat pentru măsurarea	
	<sup>109</sup> In (figura din stanga). Distribuția distanțelor ionilor din FRS PID la planul	
	focal final în Al (figura din dreapta). Calculul se bazează pe fit-uri de date [32].	
	Densitatea areală și poziția CSC în interval este marcată cu roșu	10

4.1	Reprezentare schematică a formei nucleare sferice și a celor două forme defor-	
	mate prolate și oblate	12
4.2	Raportul dintre energia primelor stări excitate $4^+$ și $2^+$ în jurul punctului critic	
	N = 90 pentru nucleele cu un număr par de protoni și neutroni. Date de la	
	https://www.nndc.bnl.gov/ensdf/	13
4.3	Energia de separare a doi neutroni și prima derivată pentru nucleele cu numar par	
	de protoni și neutroni, situate deasupra păturii închise de la $N = 82$ . Regiunea	
	tranziției de fază de la $N = 90$ este indicată cu un cerc punctat. Valorile extrapolate	
	nu sunt luate în considerare. Date de la [38]	14
4.4	Energia de separare a doi neutroni și prima derivată pentru nucleele cu numar	
	par de protoni și impar de neutroni, situate deasupra paturii inchise de la $N = 82$ .	
	Regiunea tranziției de faza de la $N = 90$ este indicata cu un cerc punctat. Valorile	14
	extrapolate nu sunt luate în considerare. Date de la [38]	14
5.1	Schema electronică utilizată pentru cuplarea celor două sisteme DAQ. Figura din	
	ref. [39]	16
5.2	Spectrul masă pe sarcină măsurat pentru $^{109}$ In $^{1+}$ în stare fundamentală și cele	
	două stări izomere ce au fost înregistrate cu sistemul de achiziție de date FRS	
	după divizarea semnalului. Valorile de masă din literatură [40, 41] ale stării	
	fundamentale și cele izomere sunt prezentate cu linii punctate. Figură preluată	
	din ref. [42]	16
5.3	Comparație între spectrul masă-pe-sarcină total (panoul superior), măsurat în	
	timpul pulsurilor (al doilea panou), măsurat în timpul pauzelor dintre două pul-	
	suri consecutive (al treilea panou) și spectrul masă-pe-sarcină când a fost aplicată	
	condiția pe <sup>109</sup> In <sup>1+</sup> în diagrama PID (panoul de jos). Liniile întrerupte indică	
	ionii care au fost suprimați în mod semnificativ. Figura din ref. [42].	
	17	
5.4	Comparație între distribuțiile temporale din timpul pulsurilor a tuturor ionilor	
	detectati cu detectorul de scintilație înainte de CSC (negru) și a ionilor de <sup>109</sup> In <sup>1+</sup>	
	masurați cu MR-ToF-MS (albastru). Diferența de timp dintre punctele negre și	
	cele roșii este de 120 ms, aceasta reflectand diferența temporala dintre oprirea	
	ionilor in CSC și detectarea lor în MR-IoF-MS (vezi explicația din text). Figura	10
<b>- -</b>	din rei. [42].	18
5.5	departe la varificarea ionilor de urmanză că fie detectati au MR. TaE MS. Figure	
	dip ref. [42]	19
		10
6.1	Reprezentare schematică a ansamblului FRS-IC utilizat în măsurătorile discu-	
	tate. Sursa de <sup>252</sup> Cf, indicată cu roșu, a fost plasată în interiorul CSC. IoI sunt	
	transportați și extrași din CSC și apoi trimiși către MR-ToF-MS prin ansamblul	
	RFQ. Acolo, o placă de injecție, indicată cu gri, stochează ionii înainte ca aceștia	
	să zboare cu reflexii repetate în interiorul unui analizor. Cu albastru este indicat	
	detectorul ToF de la sfârșitul MR-ToF-MS. Figura din ref.[45]	19

6.2	Spectrele de <sup>142</sup> Ba văzute cu software-ul MAc înainte de TRC (panoul superior)	
	și după (panoul de jos)	21
6.3	Dependența parametrului c față de numărul de întoarceri ale calibranților într-o	
	măsurătoare	22
6.4	Funcția Hyper-EMG, Eq.6.2 (roșu), folosită în cazul ionului <sup>142</sup> Ba prin metoda	
	celor mai mici pătrate (LS), afișată în scală liniară (sus) și scală logaritmică (jos).	
	Cu linia galbenă este reprezentată estimarea inițială și cu puncte negre datele.	22
6.5	Devierea în masă de la valoarea AME20 a patru măsurători independente cu	
	număr mare de întoarceri ale 157Sm (portocaliu, verde, albastru și roșu) în	
	comparație cu valoarea medie calculată (violet). Zona albastră din figură re-	
	prezintă incertitudinea AME20	24
6.6	Devierea în masă de la valoarea AME20 a calibranților utilizați într-una dintre	
	măsurătorile cu număr mare de întoarceri. Pe axa x este afișat numărul de	
	întoarceri efectuate de calibrantul corespunzător în analizor.	24
8.1	Desen schematic al experimentelor cu MNT la ansamblul IGISOL de la JYFL.	
	Figura din Ref. [47].	28
8.2	Secțiunile eficace de reacție pentru TLF, calculate cu modelul Langevin, în	
	funcție de unghiul de emisie în cazul reacțiilor considerate la cele două ansam-	
	bluri: FRS-IC (panoul din stânga) cu fascicul <sup>238</sup> U la 2856 MeV pe <sup>64</sup> Ni și <sup>164</sup> Dy	
	și IGISOL (panoul din dreapta) cu fascicul <sup>136</sup> Xe la 890 MeV pe <sup>209</sup> Bi și la 885	
	MeV pe <sup>198</sup> Pt. Figura din Ref.[48]	28
8.3	Reprezentare schematică a ansamblurilor experimentale implementate în GEANT4	
	atât pentru IGISOL, cât și pentru FRS-IC. Distanțele dintre țintă și opritorul de	
	fascicul sunt notate cu $d_1$ și $d_2$ iar cu săgeți sunt indicate fragmentele eliberate	
	din țintă. Figura din Ref. [48].	29
8.4	Rata ionilor generați (roșu) în comparație cu rata ionilor eliberați (albastru) în	
	funcție de grosimea țintei. Figura din Ref. [48]	30
8.5	Rata ionilor stopați pentru diferite lungimi ale celulei. Figura din Ref. [48]	30
8.6	Panourile din stânga (sus și jos) arată distribuțiile de energie ale PLF și TLF.	
	Panourile din dreapta (sus și jos) arată distribuțiile unghiulare ale PLF și TLF.	
	Cercurile negre, roșii și albastre reprezintă ratele generate, eliberate și, respectiv,	
	stopate. Figura din Ref. [48]	30
8.7	PES electric al electrozilor CSC: componenta longitudinală în panoul din stanga	
	și componenta transversală în panoul din dreapta. Figura din Ref. [48]	31
8.8	Simularea PIC a traiectoriilor ionilor grei (linii roșii) și He <sup>+</sup> (linii negre) în PES	
	aplicat (plasă verde) cu software-ul SIMION 8.1. Ținta este reprezentată cu o	
	casetă albastră, opritorul de fascicul cu o casetă roșie și covorul de radio-frecvență	
	cu o linie galbenă. Figura din Ref. [48].	31
8.9	Distribuții unghi-energie (E - $\theta$ ) simulate ale TLF-urilor și <sup>211</sup> Po din reacția	
	$^{136}$ Xe + $^{209}$ Bi care: (a) sunt eliberate din țintă (b) intră în fereastra de havar (c)	
	sunt eliberate din fereastra de havar	32

8.10	Distribuții unghi-energie (E - $\theta$ ) simulate ale TLF-urilor din reacția <sup>136</sup> Xe + <sup>198</sup> Pt	
	care: (a) sunt eliberate din țintă, (b) lovesc opritorul de fascicul, (c) intră în	
	fereastra de havar, considerandu-se o țintă de 3 $\mu$ m și 6 $\mu$ m grosime	32

**Keywords:** FRS-IC, celulă criogenică de stopare, măsurători de masă, tranziții de fază, transfer multinucleonic.

# Bibliografie

- [1] Y. X. Watanabe and et al. Pathway for the production of neutron-rich isotopes around the n=126 shell closure. *Physical Review Letters*, 115(17):172503, oct 2015.
- [2] J.-J. Gaimard and K.-H. Schmidt. A reexamination of the abrasion-ablation model for the description of the nuclear fragmentation reaction. *Nuclear Physics A*, 531(3-4):709–745, sep 1991.
- [3] A.S. Goldhaber. Statistical models of fragmentation processes. *Physics Letters B*, 53(4):306–308, dec 1974.
- [4] A.M. Mattera and et al. Nuclear data sheets for a=252. *Nuclear Data Sheets*, 172:543–587, feb 2021.
- [5] Aage Winther. Grazing reactions in collisions between heavy nuclei. *Nucl Phys A*, 572(1):191–235, may 1994.
- [6] A. V. Karpov and V. V. Saiko. Modeling near-barrier collisions of heavy ions based on a langevin-type approach. *Phys Rev C*, 96(2):024618, aug 2017.
- [7] V. V. Saiko and A. V. Karpov. Analysis of multinucleon transfer reactions with spherical and statically deformed nuclei using a langevin-type approach. *Phys Rev C*, 99(1):014613, jan 2019.
- [8] L. Corradi and et al. Multinucleon transfer processes in64ni + 238u. *Phys Rev C*, 59(1):261–268, jan 1999.
- [9] Florian Greiner and et al. Removal of molecular contamination in low-energy RIBs by the isolation-dissociation-isolation method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 463:324–326, jan 2020.
- [10] Edmond de Hoffmann and Vincent Stroobant. Mass spectrometry: Principles and applications, 3rd edition. John Wiley and Sons, Inc., 2007.
- [11] J. H. Block. Peter h. dawson: Quadrupole mass spectrometry and its application, elsevier scientific publishing company, amsterdam-oxford-new york 1976. 349 seiten, preis: Dfl 129,-,US \$ 49.75. Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie, 81(8):777– 777, aug 1977.
- [12] D.Sc Norman William McLachlan. Theory and application of mathieu functions. *Clarendon Press*, 1951.
- [13] H.-Jürgen Kluge. Penning trap mass spectrometry of radionuclides. *International Journal* of Mass Spectrometry, 349-350:26–37, sep 2013.
- [14] G. Graeff, H. Kalinowsky, and J. Traut. A direct determination of the proton electron mass ratio. Zeitschrift fur Physik A: Atoms and Nuclei, 297(1):35–39, mar 1980.
- [15] Alan G. Marshall and et al. Fourier transform ion cyclotron resonance mass spectrometry: A primer. *Mass Spectrometry Reviews*, 17(1):1–35, 1998.

- [16] Y H Zhang and et al. Storage ring mass spectrometry for nuclear structure and astrophysics research. *Physica Scripta*, 91(7):073002, jun 2016.
- [17] H. Wollnik. Principles of time-of-flight mass analyzers. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 298(1-3):156–160, dec 1990.
- [18] I. Mardor and et al. Mass measurements of as, se, and br nuclei, and their implication on the proton-neutron interaction strength toward the n=z line. *Physical Review C*, 103(3):034319, mar 2021.
- [19] M. Ranjan and et al. Design, construction and cooling system performance of a prototype cryogenic stopping cell for the super-FRS at FAIR. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 770:87–97, jan 2015.
- [20] S. Purushothaman and et al. First experimental results of a cryogenic stopping cell with short-lived, heavy uranium fragments produced at 1000 MeV/u. *EPL (Europhysics Letters)*, 104(4):42001, nov 2013.
- [21] M. P. Reiter. Pilot experiments with relativistic uranium projectile and fission fragments thermalized in a cryogenic gas filled stopping cell. *PhD thesis Justus-Liebig-University of Gieβen*, 2015.
- [22] E. Haettner and et al. New high-resolution and high-transmission modes of the FRS for FAIR phase-0 experiments. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 463:455–459, jan 2020.
- [23] T. Dickel and et al. A high-performance multiple-reflection time-of-flight mass spectrometer and isobar separator for the research with exotic nuclei. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 777:172–188, mar 2015.
- [24] Wolfgang R. Plaß and et al. Multiple-reflection time-of-flight mass spectrometry. *International Journal of Mass Spectrometry*, 349-350:134–144, sep 2013.
- [25] C. Hornung and et al. Complete ion identification by proton and mass number via high-resolution mass spectrometry at the (super-)frs. *GSI Sci. Rep.*, 2017.
- [26] H. Geissel and et al. The GSI projectile fragment separator (FRS): a versatile magnetic system for relativistic heavy ions. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, 70(1-4):286–297, aug 1992.
- [27] W.R. Plaß and et al. The FRS ion catcher a facility for high-precision experiments with stopped projectile and fission fragments. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 317:457–462, dec 2013.
- [28] B. Voss and et al. The scintillation-detector equipment of the GSI projectile—fragment separator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 364(1):150–158, sep 1995.
- [29] R. Janik and et al. Time projection chambers with c-pads for heavy ion tracking. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 640(1):54–57, jun 2011.
- [30] M. Pfützner and et al. Energy deposition by relativistic heavy ions in thin argon absorbers. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 86(3-4):213–218, apr 1994.
- [31] A. Stolz and et al. A detector system for the identification of relativistic heavy ions at high rates. *GSI Scientific Report*, page 174, 1998.

- [32] E. Hanelt. Study of the momentum loss achromate and its application to the measurement of the  $\beta$ -delayed neutron radioactivity of <sup>14</sup>be, <sup>17</sup>b, and <sup>19</sup>c. *PhD thesis Darmstadt, Techn. Hochschule*, 1992.
- [33] Maria Goeppert Mayer. On closed shells in nuclei. II. Physical Review, 75(12):1969–1970, jun 1949.
- [34] Otto Haxel and et al. On the "magic numbers" in nuclear structure. *Physical Review*, 75(11):1766–1766, jun 1949.
- [35] S. G. Nilsson. Dan. Mat. Fys. Medd 16, 29, 1955.
- [36] F. Iachello and A. Arima. The interacting boson model. aug 1987.
- [37] R. F. Casten. Shape phase transitions and critical-point phenomena in atomic nuclei. *Nature Physics*, 2(12):811–820, dec 2006.
- [38] Meng Wang and et al. The AME 2020 atomic mass evaluation (II). tables, graphs and references. *Chinese Phys C*, 45(3):030003, mar 2021.
- [39] A. Spătaru. Extension of the particle identification at the gsi fragment separator by high resolution mass spectrometry. *Master Thesis*, 2016.
- [40] Meng Wang and et al. The AME2016 atomic mass evaluation (II). tables, graphs and references. *Chinese Physics C*, 41(3):030003, mar 2017.
- [41] Ashok Kumar Jain and et al. Atlas of nuclear isomers. *Nuclear Data Sheets*, 128:1–130, sep 2015.
- [42] A. Spătaru and et al. First coupling of the FRS particle identification and the FRS-ion catcher data acquisition systems: The case of 109in. Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B Beam Interact Mater At, 522:32–37, jul 2022.
- [43] G. Audi and et al. The NUBASE2016 evaluation of nuclear properties. *Chinese Physics C*, 41(3):030001, mar 2017.
- [44] Samuel Ayet San Andrés and et al. High-resolution, accurate multiple-reflection time-offlight mass spectrometry for short-lived, exotic nuclei of a few events in their ground and low-lying isomeric states. *Physical Review C*, 99(6):064313, jun 2019.
- [45] A. Spătaru and et al. Nuclear structure studies with high-precision mass measurements of spontaneous fission fragments at the FRS ion catcher. *Bulgarian Journal of Physics*, 48(5-6):535–540, dec 2021.
- [46] T. Dickel and et al. Multi-nucleon transfer reactions at ion catcher facilities a new way to produce and study heavy neutron-rich nuclei. *J. Phys.: Conf. Ser.*, 1668(1):012012, oct 2020.
- [47] A. Spătaru and et al. Study of exotic nuclei produced in multinucleon transfer reactions at the igisolfacility. *ELI-NP Annual Report*, 2022.
- [48] A. Spătaru and et al. Multi-nucleon transfer reactions in 238u+64ni using grazing model. *U.P.B. Sci. Bull., Series A*, 82(1):285, 2020.
- [49] A. Spătaru and et al. Accurate mass measurements near the n=90 shape phase transition region at the frs-ic. *in progress*, 2023.
- [50] N. Minkov and et al. K-isomeric states in well-deformed heavy even-even nuclei. *Physical Review C*, 105(4):044329, apr 2022.
- [51] D.L. Balabanski and et al. Photofission experiments at ELI-NP. *Romanian Reports in Physics*, 68(Supplement):S621–S698, 2016.