

Sur la route de l'îlot de stabilité superlourd -Spectroscopie prompte des noyaux 246Fm et 256Rf Julien Piot

▶ To cite this version:

Julien Piot. Sur la route de l'îlot de stabilité superlourd - Spectroscopie prompte des noyaux 246Fm et 256Rf. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université de Strasbourg, 2010. Français. NNT : . tel-00617290

HAL Id: tel-00617290 https://theses.hal.science/tel-00617290v1

Submitted on 26 Aug 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre IPHC 010-013 N° d'ordre UdS 760



- Thèse présentée pour obtenir le grade de
- Docteur de l'Université de Strasbourg
- - Thès

Discipline : Physique subatomique

par Julien PIOT

Sur la route de l'îlot de stabilité superlourd Spectroscopie prompte des noyaux ²⁴⁶Fm et ²⁵⁶Rf

Soutenue publiquement le 20 octobre 2010

Membres du jury 🗖

M Benoît GALL, Professeur, IPHC - Université de StrasbourgDirecteurMme Marie Geneviève PORQUET, Directeur de Recherches, CSNSM OrsayRapporteurM Marek LEWITOWICZ, Directeur de Recherches, GANIL CaenRapporteurM Teng Lek KHOO, Directeur de Recherches, Argonne Nat. LaboratoryExaminateurM Paul GREENLEES, Directeur de Recherches, Université de JyväskyläExaminateurM Jerzy DUDEK, Professeur, IPHC - Université de StrasbourgExaminateur

M Olivier DORVAUX, Maître de Conférences, IPHC - Univ. de Strasbourg Co-encadrant

deux infinis





Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien Département de Recherches Subatomiques

Remerciements

Je tiens à remercier toutes celles et ceux que j'ai croisé au fil de ces trois années pour leur contribution à cette thèse. Je remercie Benoît Gall et Olivier Dorvaux pour leur direction et leur attention. Pour avoir sû me rattraper lorsque je partais trop vite et me pousser lorsque j'avais câlé. Je les remercie aussi de m'avoir permis de réaliser ce projet et découvrir tant de choses aussi bien scientifiquement que personnellement. Je remercie plus largement les membres du groupe CAN et de l'IPHC pour leur aide précieuse et leur accueil chaleureux.

I would like to thank Paul Greenlees and Teng-Lek Khoo for coming to France during a strike to judge my thesis. I also thank them for answering my questions and guiding me. I also thank the Gamma-RITU group of the University of Jyväskylä for all the good time I spent there, even while cabling detectors at 3 am. I especially thank Pauli Peura for his company and assitance on the setups. I also thank Pete Jones for the numerous hours he spent with me setting up the TNT2D cards and the wonderful work he did to set them up on JUROGAM.

Je remercie Patrice Medina, Marc Richer, Laurent Charles et Cayetano Santos pour leur travail sur les cartes TNT2D et leur aide pour les mettre en place.

Je remercie Marie-Geneviève Porquet, Marek Lewitowicz et Jerzy Dudek pour leur participation à mon jury de thèse malgr des transport aléatoires.

Je remercie Zouhair Asfari pour son travail sur le ⁵⁰Ti et sa patience et sa réactivité face à nos délais souvent microscopiques. Je remercie aussi Ali Ouadi, Sylvia Georg, Catherine Galindo, Murielle Keller et le groupe de Chimie Nucléaire de m'avoir laisser envahir leurs paillasses et leur temps.

Je remercie Araceli Lopez-Martens et Karl Hauschild pour leurs conseils précieux.

I thank Alexander Yeremin, Oleg Malishev, Victor Chepigin and the member of the VASSILISSA group at the Flerov Laboratory for Nuclear Reactions for their welcome.

Je remercie les membres du groupe de ski du CAES/SUAS pour leur accueil et toutes les traces faites en leur compagnie.

Je remercie Marie Vanstalle, Antonin Maire, Mohammad Moukadam, Alain Goasduff, Christina Dritsa, Dorthe Lebhertz, Mathieu Goffe, David Bodin, Didier Juiliani, Estelle Gasser, Florian Miconi et Swensy Jangal pour leur compagnie au long de ces trois ans.

Je remercie mes parents et ma famille pour leur soutien inconditionnel et leur curiosité vis-à-vis de mes recherches.

Je dédie cette thèse à ma compagne Pauline.

Merci pour ton soutien, ta patience et ton amour.

Table des matières

| 1 | Implications expérimentales de la théorie du champ moyen au-delà du ²⁰⁸ Pb | | | | | |
|--|---|---|----|--|--|--|
| | 1.1 | Abstract | 13 | | | |
| | 1.2 | Implications expérimentales de la théorie du champ moyen au-delà du ²⁰⁸ Pb | 18 | | | |
| | | 1.2.1 Influence de la déformation | 20 | | | |
| | | 1.2.2 Influence de la rotation | 27 | | | |
| | | 1.2.3 Prédictions pour l'îlot de stabilité | 31 | | | |
| 2 | Phys | ique des noyaux très lourds et superlourds | 33 | | | |
| | 2.1 | Abstract | 33 | | | |
| | 2.2 | Physique des noyaux très lourds et superlourds | 37 | | | |
| | | 2.2.1 Etude de la barrière de fission | 37 | | | |
| | | 2.2.2 La réaction de fusion-évaporation | 38 | | | |
| | | 2.2.3 Spectroscopie des noyaux transfermium | 40 | | | |
| | | 2.2.4 Techniques pour la spectroscopie des noyaux transfermium | 41 | | | |
| 3 | Inst | uments pour la spectroscopie des éléments très lourds | 47 | | | |
| | 3.1 | Abstract | 47 | | | |
| | 3.2 Instruments pour la spectroscopie des éléments très lourds | | | | | |
| | | 3.2.1 Le Laboratoire de l'Accélérateur à l'Université de Jyväskylä | 51 | | | |
| | | 3.2.2 Le Laboratoire Flerov pour les Réactions Nucléaires | 62 | | | |
| | | 3.2.3 Perspectives | 68 | | | |
| 4 | Mise | en place et tests des cartes TNT2D sur les spectromètres JUROGAM et JUROGAM 2 | 75 | | | |
| | 4.1 | Abstract | | | | |
| | 4.2 | Mise en place et tests des cartes TNT2D sur les spectromètres JUROGAM et JUROGAM 2 . | 78 | | | |
| | 4.3 Les cartes TNT2D | | 78 | | | |
| | | 4.3.1 Description des cartes TNT2D | 78 | | | |
| | | 4.3.2 Mesure de l'énergie | 78 | | | |
| | | 4.3.3 Mesure du temps | 81 | | | |
| | | 4.3.4 Le flux de données | 82 | | | |
| 4.4 Intégration au système d'acquisition du JYFL | | Intégration au système d'acquisition du JYFL | 82 | | | |
| | | 4.4.1 Les systèmes d'acquisition à déclenchement | 82 | | | |
| | | 4.4.2 Le système TDR | 83 | | | |
| | | 4.4.3 La solution TNT2D | 83 | | | |
| | | 4.4.4 Synchronisation et flux de données | 85 | | | |
| | 4.5 Comparaison TNT2/Analogique | | | | | |
| | | 4.5.1 Etude de la linéarité en énergie | 87 | | | |

| | 4.5.2 Evaluation statistique | | | | |
|------|---|--|--|--|--|
| | 4.5.3 Corrélation entre les données numériques et analogiques | | | | |
| 4.6 | Adaptation à JUROGAM 2 | | | | |
| | 4.6.1 Propagation de l'horloge | | | | |
| | 4.6.2 Gestion de l'offset pour les détecteur trèfles | | | | |
| Prép | paration d'un faisceau de ⁵⁰ Ti pour la production du noyau ²⁵⁶ Rf 99 | | | | |
| 5.1 | Abstract | | | | |
| 5.2 | Préparation d'un faisceau de ⁵⁰ Ti pour la production du noyau ²⁵⁶ Rf | | | | |
| | 5.2.1 Contexte théorique et expérimental | | | | |
| | 5.2.2 Techniques de production pour un faisceau de 50 Ti | | | | |
| | 5.2.3 Tests | | | | |
| | 5.2.4 Synthèse du composé avec du 50 Ti | | | | |
| | 5.2.5 Prévision de consommation | | | | |
| Spec | Spectroscopie du novau ²⁴⁶ Fm 12 | | | | |
| 6.1 | Abstract | | | | |
| 6.2 | Etude spectroscopique du ²⁴⁶ Fm | | | | |
| 6.3 | Dispositif expérimental et étalonnage | | | | |
| 6.4 | Sélection des noyaux | | | | |
| | 6.4.1 Identification des décroissances α | | | | |
| | 6.4.2 Sélection cinématique | | | | |
| 6.5 | Analyse des transitions promptes du ²⁴⁶ Fm | | | | |
| 6.6 | Moment d'inertie dynamique | | | | |
| 6.7 | Energie d'excitation et spin des premiers états excités | | | | |
| | 4.6 Pré 5.1 5.2 Spee 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5 6.6 6.7 | | | | |

Table des figures

| 1 | La conquête de l'îlot de stabilité | 12 |
|------|--|----|
| 1.1 | Distribution de la densité de matière nucléaire | 18 |
| 1.2 | Potentiels utilisables pour le confinement des nucléons dans le noyau atomique | 19 |
| 1.3 | Niveaux d'énergie de l'Oscillateur Harmonique modifié | 21 |
| 1.4 | Déformations possibles sur un seul axe à partir d'un noyau sphérique | 22 |
| 1.5 | Levée de la dégénérescence selon la projection de \vec{j} en fonction de la déformation | 23 |
| 1.6 | Moments angulaires et projections pour un noyau déformé | 24 |
| 1.7 | Energies des niveaux single particles pour les protons et neutrons en fonction de la déformation | 25 |
| 1.8 | Exemple de coexistence de formes dans le ¹⁹⁴ Pb | 26 |
| 1.9 | Exemple de spectre γ pour une bande de rotation | 29 |
| 1.10 | Comparaison des positions de l'îlot de stabilité pour les modèles H.F.B. et R.M.F. avec dif- | |
| | férentes paramétrisations | 31 |
| 2.1 | Demi-vies pour la fission dans la région transfermium | 38 |
| 2.2 | Section efficace et barrière de fission pour les VHE et SHE | 39 |
| 2.3 | Systématique de $\mathfrak{I}^{(2)}$ pour la région des transfermium et des actinides | 42 |
| 2.4 | Principe de la spectroscopie retardée et de la spectroscopie prompte | 43 |
| 2.5 | Principe de la méthode RDT | 45 |
| 2.6 | Exemple de spectre γ obtenu par RDT | 46 |
| 3.1 | Le système de détection de l'Université de Jyväskylä | 51 |
| 3.2 | Le spectromètre à rayons γ JUROGAM 2 | 52 |
| 3.3 | Schéma de JUROGAM 2 et de ses détecteurs | 53 |
| 3.4 | Schéma de du séparateur RITU | 55 |
| 3.5 | Acceptance de RITU en fonction de la réaction | 55 |
| 3.6 | Principe du séparateur à gaz | 56 |
| 3.7 | Le spectromètre GREAT | 58 |
| 3.8 | Schéma du compteur proportionnel à fils | 59 |
| 3.9 | Simulation de l'efficacité des détecteurs germanium au plan focal | 60 |
| 3.10 | Arrangement des cristaux du détecteur trèfle de GREAT. | 61 |
| 3.11 | Le séparateur électromagnétique VASSILISSA | 62 |
| 3.12 | Le multidétecteur GABRIELA | 64 |
| 3.13 | Schéma d'une unité MCP de VASSILISSA | 64 |
| 3.14 | Structure du support des détecteurs de GABRIELA | 65 |
| 3.15 | Etude de la résolution en énergie et de l'efficacité de détection du tunnel à électrons | 66 |
| 3.16 | Efficacité de détection γ pour GABRIELA | 67 |
| 3.17 | Intégration du spectromètre SAGE à l'Université de Jyväskylä | 68 |

| 3.18 | Coupe du spectromètre à électrons SAGE | 69 | | |
|------|---|-----|--|--|
| 3.19 | Modernisation du séparateur VASSILISSA | 70 | | |
| 3.20 | Schéma d'implantation du Super Séparateur Spectromètre S ³ pour SPIRAL2 | 71 | | |
| 3.21 | Schéma de principe du polyspectromètre situé au plan focal du séparateur S^3 | 72 | | |
| 3.22 | 2 Disposition des détecteurs germanium autour du plan focal de S^3 | | | |
| 4.1 | Circuit et interfaces de la carte TNT2D | 79 | | |
| 4.2 | Diagramme de l'algorithme de Jordanov | 80 | | |
| 4.3 | Effet du déficit balistique sur la forme du trapèze | 80 | | |
| 4.4 | Construction des signaux pour la mesure en temps dans les cartes TNT2D | 81 | | |
| 4.5 | Format d'enregistrement des évènements mesurés par la carte TNT2D | 82 | | |
| 4.6 | Système Total Data readout | 84 | | |
| 4.7 | Capture d'écran de l'interace graphique DTUC | 86 | | |
| 4.8 | Spectre γ de la source d'étalonnage de ¹³³ Ba et ¹⁵² Eu | 88 | | |
| 4.9 | Déviation en énergie pour les acquisitions numérique et analogique | 90 | | |
| 4.10 | Spectre en énergie γ pour l'acquisition numérique et analogique $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$ | 91 | | |
| 4.11 | Méthode danalyse pour le comparaison des acquisition numérique et analogique | 93 | | |
| 4.12 | Corrélation entre les évènements enregistrés dans les cartes TNT2D et ceux enregistrés dans | | | |
| | les cartes analogiques | 94 | | |
| 4.13 | Principe du couplage entre le cristal de germanium et le pré-amplificateur associé | 95 | | |
| 4.14 | Principe d'évolution de l'adaptation de l'offset en fonction du taux de comptage. | 96 | | |
| 4.15 | Interface de réglage de l'offset variable dans TUC | 97 | | |
| 5.1 | Fonction d'excitation pour le ^{257–256} Rf | 104 | | |
| 5.2 | Schéma de la ligne de faisceau au JYFL et efficacités de transmissions | 106 | | |
| 5.3 | Tête de four à induction avec four en Mo monté | 107 | | |
| 5.4 | Four en molybdène et creuset à côté ou inséré | 107 | | |
| 5.5 | Schéma de la chambre MIVOC | 108 | | |
| 5.6 | Diagramme d'Ellingham | 111 | | |
| 5.7 | Extrapolation de la consommation de TiO ₂ en fonction de l'intensité du faisceau | 112 | | |
| 5.8 | Intensité du faisceau en fonction de la température du four | 113 | | |
| 5.9 | Spectromètre de masse et source ECR de l'Université de Jyväskylä | 114 | | |
| 5.10 | Molécules organométalliques pour la méthode MIVOC | 115 | | |
| 5.11 | Résultat de la première synthèse de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ | 115 | | |
| 5.12 | Spectre de l'échantillon IIIb après une nuit de pompage | 116 | | |
| 5.13 | Etapes du test d'un composé MIVOC sur la source ECR | 117 | | |
| 5.14 | Oxydation d'un composé MIVOC | 117 | | |
| 5.15 | Adaptateur à vide pour les fioles de composé MIVOC | 118 | | |
| 5.16 | Spectre de masse du $Cp_2Ti(CH_3)_2$ | 119 | | |
| 5.17 | Spectre de masse du $Cp^*Ti(CH_3)_3$ | 120 | | |
| 5.18 | Evolution temporelle du Cp_2TiMe_2 | 120 | | |
| 5.19 | Test de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ dans du liquide ionique | 121 | | |
| 5.20 | Effet du liquide ionique sur le spectre de masse du $Cp_2Ti(CH_3)_2$ | 122 | | |
| 5.21 | Montage d'évaporation sous vide du ${}^{50}TiCl_4$ | 123 | | |
| 5.22 | Spectre de masse du $Cp_2^{50}TiMe_2$ | 124 | | |
| 6.1 | Fonction d'excitation pour la réaction ⁴⁰ Ar sur ²⁰⁸ Pb pour les voies 2n à 4n mesurée sur la séparateur SHIP au GSI. | 130 | | |

| 6.2 | Spectre α corrélé pour l'étalonnage du DSSSD | 131 |
|------|--|-----|
| 6.3 | Matrice Energie α vs. log2(Δ t) pour l'étalonnage en faisceau du détecteur d'implantation | 132 |
| 6.4 | Particules α correlées à un noyau | 134 |
| 6.5 | Temps de décroissance des noyaux en fonction de l'énergie de la particule α associée | 135 |
| 6.6 | Spectre de décroissance α du ²⁴⁶ Fm | 136 |
| 6.7 | Rayons- γ prompts associés au ²⁴⁶ Fm par marquage α | 136 |
| 6.8 | Matrices de sélection | 138 |
| 6.9 | Sélections possibles pour la matrice Temps de vol en fonction de l'énergie d'implantation et | |
| | leurs spectre γ associé | 140 |
| 6.10 | $t_{Implantation}$ - t_{γ} en fonction du temps de vol | 141 |
| 6.11 | Spectre γ prompt du ²⁴⁶ Fm par sélection cinématique | 142 |
| 6.12 | Spectre γ du ²⁴⁶ Fm à basse énergie. | 143 |
| 6.13 | Systématique des bandes rotationnelles dans les isotopes pair-pair du fermium | 144 |
| 6.14 | Moment d'inertie dynamique du ²⁴⁶ Fm comparé aux autres isotopes pair-pair connus du | |
| | fermium | 146 |
| 6.15 | Schéma de niveau de la bande de rotation construite sur l'état fondamental du ²⁴⁶ Fm | 148 |

Liste des tableaux

| 1.1 | Fermetures de couches prévues par différents modèles théoriques | 31 |
|-----|---|-----|
| 3.1 | Caractéristiques du séparateur RITU | 57 |
| 4.1 | Résolution en énergie en fonction du taux de comptage dans un détecteur trèfle | 85 |
| 4.2 | Comparatif des énergies mesurées avec les acquistions numérique et analogique | 89 |
| 5.1 | Rapports isotopiques du titane naturel | 105 |
| 5.2 | Caractéristiques thermophysique du titane | 105 |
| 5.3 | Intensités de faisceau de titane naturel à l'InESS | 109 |
| 5.4 | Liste des pastilles produites pour le test du four à induction | 110 |
| 5.5 | Points de fonctionnement du four à induction pour du TiO_2 | 110 |
| 5.6 | Molécules pour le méthode MIVOC | 114 |
| 5.7 | Paramètres pour les calculs de consommation de titane | 125 |
| 5.8 | Consommation de titane calculée | 125 |
| 6.1 | Modes de décroissance du ²⁴⁶ <i>Fm</i> . | 129 |
| 6.2 | Résolutions en énergie pour la face arrière du détecteur d'implantation. | 133 |
| 6.3 | Identification des pics α visibles sur les figures 6.5 et 6.4 | 134 |
| 6.4 | Contaminants possibles pour la réaction ²⁰⁸ Pb(⁴⁰ Ar,2n) ²⁴⁶ Fm | 134 |
| 6.5 | Raies-X observées dans le spectre prompt du ²⁴⁶ Fm | 143 |
| 6.6 | Affectation des transitions de la bande rotationnelle du ²⁴⁶ Fm | 145 |
| 6.7 | Paramètres des interpolations pour les moments d'inertie cinématique $\mathfrak{I}^{(1)}$ et dynamique $\mathfrak{I}^{(2)}$ | 147 |
| 6.8 | Assignation du spin du noyau ²⁴⁶ Fm | 147 |
| 6.9 | Energie des transitions $4^+ \rightarrow 2^+$ et $2^+ \rightarrow 0^+$ extrapolées à partir du moment d'inertie dynamique | 147 |

Introduction

Les recherches de Glenn T. Seaborg sur les actinides produits par capture neutronique en parallèle des réaction de fission thermonucléaire ont introduit l'idée de nouveaux éléments inconnus sur Terre. Ces recherches donnèrent le départ d'une régate qui se poursuit encore aujourd'hui. Grâce aux travaux des équipes du Lawrence Berkeley Laboratory, du Gesellschaft für SchwerIonenforschung, du Flerov Laboratory for Nuclear Reactions et de RIKEN, le tableau périodique s'est enrichi des éléments 101 à 118 [1] . L'archipel est découvert, mais son exploration reste à faire.

Une nouvelle route a été ouverte grâce ces découvertes, mais comme toute route, il faut une carte pour ses usagers. Ces informations sont patiemment cartographiées au travers de l'étude spectroscopique des noyaux transactiniens et transfermiens. Dans cette région, la structure du noyau prend plaisir à défier les interprétations physiques. Elle tord, écrase, dilate ou fait tourner les couches si bien rangées de nos modèles théoriques afin d'assurer l'existence de ces noyaux exotiques. Le physicien nucléaire est alors tantôt cartographe, classifiant et comparant des noyaux "sages", tantôt explorateur, précipité dans l'obscurité des incohérences de ses modèles et du chaos apparent de ses mesures. Peu à peu, émergent de ce tumulte quelques points de repère comme la rotation ou la présence d'états isomériques. Une image commence à se dessiner.

Ma thèse s'inscrit dans cette cartographie de la région des noyaux transfermium. Au sein du groupe Couches et Amas dans le Noyau à l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien, j'ai pu découvrir et prendre la mesure de ce domaine de la Physique Nucléaire, vaste comme un océan. Avec l'aide de mes directeurs de thèse, le Pr. Benoît J.-P. Gall et le Dr. Olivier Dorvaux, j'ai mis les pieds dans l'eau.

J'introduirai dans une première partie l'aspect théorique qui a permis d'envisager l'existence des noyaux très lourds et superlourds : le modèle en couches. Je présenterai ses variations face à la déformation, puis à la rotation, indispensables pour aborder la mer des noyaux transfermium. Je dresserai dans le chapitre suivant un tableau de cette région par le biais des noyaux pair-pair et de leurs carctéristiques et j'introduirai les techniques utilisées pour la spectroscopie.

Le troisième chapitre sera consacrée à la description des outils de navigation et décrira les instruments proprement dits.

La troisième partie présentera le travail que j'ai effectué durant ces trois ans d'exploration. L'étude du noyau ²⁵⁶Rf a tout d'abord constitué le point central de mon travail. Ce noyau représente la prochaine étape de la cartographie de la région transfermium. Il attend sagement depuis sa découverte en 1969 par A. Ghiorso *et al.* [2] que la spectroscopie par rayons γ permette d'identifier sa structure. La route n'est pas simple. Les instruments disponibles fonctionnent aux limites de leurs capacités et nombre de développements sont requis. L'arrivée de l'électronique numérique permet de vaincre une section efficace lilliputienne en autorisant l'utilisation de faisceaux intenses. L'installation et la fiabilisation des cartes TNT2D développées à l'IPHC a constitué une partie importante de mon travail. Ces développements sont détaillées au chapitre 4.

Le développement d'un faisceau de titane représente une difficulté plus spécifique à la synthèse du rutherfordium. Le chapitre 5 présentera les voies explorées pour atteindre cet objectif. Les résultats des tests réalisés seront détaillés.

Les marins le savent bien, le vent n'est pas toujours favorable et il faut savoir changer de cap quand cela est nécessaire. Les développements pour le faisceau de titane ayant bien avancé, mais n'étant pas encore arrivés à bon port, j'ai dû mettre le cap sur un nouvel objectif : le noyau ²⁴⁶Fm. Dans le chapitre 6, je décrirai l'expérience réalisée pour étudier la structure de ce noyau et je présenterai les détails de cette analyse complexe avant de donner les résultats et leur interprétation.

Ce travail de thèse se termine alors que s'ouvre la perspective d'utiliser des faisceaux d'intensités encore inégalées dans ce type d'études avec l'association du LINAC de SPIRAL 2 et de S^3 . La mise à jour du séparateur VASSILISSA qui se fait en parallèle, ouvre également un avenir plein de nouveaux résultats dans le prolongement du chemin que nous allons faire ensemble dans ces quelques pages.

Pour faciliter la lecture de cette thèse à un large public, chaque chapitre commence par un résumé en anglais.

J'espère que cette route vous satisfera. Bonne navigation.



FIGURE 1 – La conquête de l'îlot de stabilité vue par Yu. Ts. Oganessian. / The conquest of the Island of stability seen by Yu. Ts. Oganessian

Chapitre 1

Implications expérimentales de la théorie du champ moyen au-delà du ²⁰⁸Pb

1.1 Abstract

The dimensions of the atomic nucleus are determined by the extension of the nuclear potential constraining the nucleons. This potential is essentially created by the nucleons themselves. Each nucleon is therefore exposed to the mean field induced by the others.

The nuclear density has been investigated through elastic scattering experiments. The shape of the density distribution of matter has been fitted to the results of these experiments. Different parametrizations can be used to fit these results as shown on fig. 1.1 a) page 18. The simplest distribution resulting from this fit is shown on fig. 1.1 b) page 18. The figure highlights a saturation of the density at the center of the nucleus, implying that the mean radius of the nucleus is proportional to the number of nucleons. The edges of the nucleus are not sharp, but rather diffuse. These functions, fitted for a large number of nuclei can be in first approach fitted in the following way :

$$\rho(r) = \frac{\rho_0}{1 - exp(\frac{r-R}{a})} \tag{1.1}$$

where the skin thickness a $\simeq 0.5$ fm (diffuseness d = 4.4a), ρ_0 is the maximum density of the nuclear matter and *R* the mean radius of the nucleus [3].

The nuclear potential can be approximated by potentials scaled to fit the nuclear behaviour. The infinite square well and the harmonic oscillator are two such potentials (see fig. 1.2 page 19). However, if we use them to solve the Schrödinger equation, the calculated energies are not the ones experimentally observed. Therefore, we need an intermediate potential between the sharp edges of the infinite square well and the smooth edges of the harmonic oscillator. Furthermore, the separation energy of nucleons being finite does not agree with these idealized potentials. The Woods-Saxon potential is based on the shape of the nuclear matter density (see fig. 1.2 right). Its depth V_0 is defined so as to reproduce the nucleon separation energies, leading to a value between -40 and -50 MeV [3].

In order to take into account the coupling between the spin and the angular momentum of a nucleon, a spin-orbit term $(\vec{\ell}.\vec{s})$ refines the spherical radial potential. The degeneracy lifting caused by this correction allows to reproduce the shell closures observed experimentally : 2, 8, 20, 28, 50, 82 and 126. The figure 1.3 (on page 21) shows the effect of the spin-orbit term on the potential of the modified harmonic oscillator. This discovery awarded the Physics Nobel Prize to Maria Göppert-Mayer, J. Hans D. Jensen and Eugene P. Wigner in 1963. The shell closures represent anchor points for nuclear theories. The positions of the spherical shell closures beyond 82 protons and 126 neutrons are not experimentally known so far.

The modified harmonic oscillator defined by S.G. Nilsson in 1969 describes the nuclear potential as follows [4]:

$$V = V_{HO} + W_{MO} = \frac{1}{2} M \omega_0^2 r^2 - \kappa \hbar \omega_0 [2\vec{\ell}.\vec{s} + \mu(\ell^2 - \langle \ell^2 \rangle)]$$
(1.2)

This potential approximates the nuclear structure using a $\ell^2 - \langle \ell^2 \rangle$ term to lift the natural degeneracies from the basic harmonic oscillator V_{HO} .

The atomic nucleus exhibits radically different behaviour depending on its isobaric and isospin numbers. In the following paragraphs, I will focus on the behaviour of even-even nuclei. Deformation and rotation play a major role in the structure of nuclei. They will be discussed here.

Influence of the deformation

If extended or compressed along a defined axis (quadrupole deformation), a spherical nucleus can assume two shapes : prolate (fig. 1.4a., page 22) or oblate (fig. 1.4b., page 22). These shapes can be originally defined by the following formula $[3]^{1}$:

$$R(\theta, \phi) = R_{moy}[1 + \beta Y_{20}(\theta)] \tag{1.3}$$

with

$$\beta = \alpha_{20} = \frac{4}{3} \sqrt{\frac{\pi}{5}} \frac{c}{a} \frac{1}{R_{mov}}$$
(1.4)

where $\frac{c}{a}$ defines the ellipsis excentricity and R_{moy} the spherical mean radius of the nucleus.

We arbitrarily choose the *z* axis as the symmetry axis. On this basis, we can introduce the anisotropy in the isotrope harmonic oscillator by mean of definition of independent frequencies along the different axis. From this we introduce an orthogonal frequency scheme where ω_z defines the possible motion along the deformed axis and $\omega_{\perp} = \omega_x = \omega_y$ the frequency in the orthogonal plane where *x* and *y* are treated equally. From this we can define the deformation parameter ε so that :

$$\omega_z = \omega_0(\varepsilon)(1 - \frac{2}{3}\varepsilon) \tag{1.5}$$

$$\omega_{\perp} = \omega_0(\varepsilon)(1 + \frac{1}{3}\varepsilon)$$
(1.6)

Applying the frequencies ω_z and ω_{\perp} to the harmonic oscillator leads to the anisotropic harmonic oscillator formula :

$$V(x, y, z) = \frac{1}{2}m[\omega_{\perp}^{2}(x^{2} + y^{2}) + \omega_{z}^{2}z^{2}]$$
(1.7)

Lowering the symmetry of the originally spherical system lifts the degeneracy with respect to the projection of the angular momentum \vec{j} on the symmetry axis. The single particle energies will therefore vary depending on the deformation as seen on fig. 1.5 page 23. If we introduce the anisotropic harmonic oscillator potential (eq. 1.7) in the Schrödinger equation [4], we then obtain the following energies :

¹See the full time dependent development in [3]

$$E(n_z, n_\perp) = \hbar \omega_z \left(n_z + \frac{1}{2} \right) + \hbar \omega_\perp \left(n_\perp + 1 \right)$$
(1.8)

$$= \hbar\omega_0 \left(N + \frac{3}{2} + (n_\perp - 2n_z)\frac{\varepsilon}{3} \right)$$
(1.9)

with N = $2n_{\perp} + n_z$.

In the deformed potential, j and ℓ are no longer good quantum numbers and the spectroscopic notation, used to define energy levels in the spherical case, no longer applies. We define the asymptotic notation for high deformation as introduced by S.G. Nilsson [4] : $[Nn_z\Lambda]\Omega$ with

- *N* the main quantum number defined in the spherical case,
- n_z the number of quanta on the symmetry axis z,
- A the projection of the angular momentum \vec{l} on the z axis for the considered orbital,
- Ω the projection of the total angular momentum \vec{j} on the z axis for the considered orbital.

Equation 1.9 gives the energy as a function of deformation. Asymptotic quantum numbers N, n_z , Λ et Ω are used to label single particle levels as is the case on fig. 1.7b and 1.7a page 25. These figures show the behaviour of proton and neutron single particle levels versus deformation. As we can see, the deformation closes the spherical gaps and opens new ones for oblate and prolate structures. These gaps are responsible for the stability of transfermium nuclei which take advantage of the conjunction of neutron and proton deformed gaps around Z=102 and N=152. In the case of very-heavy elements, no spherical gaps exist.

The appearance of deformed gaps does not mean a nucleus cannot also assume a spherical shape. Depending on the orbitals present around the Fermi level with respect to deformation, a nucleus can exhibit shape coexistence as seen in ¹⁹⁴Pb (see fig. 1.8 page 26) [5].

Influence of the rotation

A nucleus can manifest its excitation mainly through three mechanisms :

- vibration,
- rotation,
- particle-hole excitations.

A spherical nucleus can choose only between the vibration and particle-hole excitation as it is forbidden for a quantum object to rotate around one of its symmetry axes. A deformed nucleus, however has the possibility to reach an excitation energy through rotation.

The angular momentum \vec{J} of the nucleus is defined by the sum of the angular momenta of the nucleons. It is generated by the collective homogeneous rotation of the nucleons in the case of a deformed nucleus, and the sum of the independent spins of the nucleons in the case of a spherical nucleus. The rotation of the nucleus is a collective behaviour and will exhibit regularly spaced transition energies (see fig. 1.9). The nucleus will rotate around an axis different from the symmetry axis.

The rotating nucleus can be compared to a solid in rotation, allowing the rotational energy to be defined by analogy to classical mechanics :

$$E_{rot} = \frac{1}{2} \Im_{rigid} \omega^2 \tag{1.10}$$

with \mathfrak{I}_{rigid} the moment of inertia for a rigid body, equal to the sum of the moments of inertia of the nucleons $\sum_{nucl} m_i r_i^2$ (r_i being the radial coordinate). If we introduce the angular momentum \vec{L} for this rigid body, we can then define the rotation energy as :

$$E_{rot} = \frac{L^2}{2\mathfrak{I}_{rigide}} \tag{1.11}$$

If we now quantize the rotation, we replace the angular momentum L^2 by the operator \hat{J}^2 , which yields the following Hamiltonian for the rigid body :

$$\hat{H}_{rig} = \frac{\hbar^2 \left[\hat{J}_x^2 + \hat{J}_y^2 + \hat{J}_z^2 \right]}{2\Im} = \frac{\hbar^2}{2\Im_\perp} \hat{J}^2 - \frac{\hbar^2}{2\Im_z} \hat{K}^2$$
(1.12)

which then gives the rotation energy for an even-even nuclei :

$$E^* = \frac{\hbar^2}{2\Im} \left[J(J+1) - K^2 \right]$$
(1.13)

The rotational frequency is defined by derivative of the energy by the spin, which gives :

$$\hbar\omega = \frac{dE}{dJ} \tag{1.14}$$

Experimentaly, the frequency is defined by

$$\hbar\omega \approx \frac{\Delta E}{\Delta J} = \frac{E_{\gamma}}{2} \tag{1.15}$$

if $\Delta J = 2$.

Experimentaly, the rotation is characterised by the regular spacing of the γ -ray transitions as seen on fig. 1.9. The rotational energy for the nucleus can be described using the moment of inertia \Im . The energy of the γ -ray emission is therefore linked to this moment of inertia through the relation :

$$E_{\gamma}(J \to J - 2) = E^*(J) - E^*(J - 2) = \frac{\hbar^2}{2\Im}(2J - 1)$$
(1.16)

If we know the spin of one of the states involved, we can therefore calculate the kinematic moment of inertia from the γ -ray energies of the rotational band [6] :

$$\mathfrak{S}^{(1)} = \frac{\hbar^2 (2J-1)}{2E_\gamma (J \to J-2)} \tag{1.17}$$

expressed in $\hbar^2 \text{MeV}^{-1}$.

If we calculated the energy difference between two γ -ray transitions from equation 1.16, we see that it is constant :

$$\Delta E_{\gamma} = E_{\gamma}((J+2) \to J) - E_{\gamma}(J \to (J-2)) = \frac{4\hbar^2}{\Im}$$
(1.18)

This explains the regular spacing of the electromagnetic transitions in the spectra. If we calculate the moment of inertia from equation 1.18, we obtain the dynamical moment of inertia $\Im^{(2)}$ expressed in $\hbar^2 \text{MeV}^{-1}$:

$$\mathfrak{I}^{(2)} = \frac{4\hbar^2}{E_{\gamma}((J+2) \to J) - E_{\gamma}(J \to (J-2))}.$$
(1.19)

We also define an average rotational frequency :

$$<\hbar\omega>=\frac{\hbar\omega((J+2)\to J)+\hbar\omega(J\to (J-2))}{2}=\frac{E_{\gamma 1}-E_{\gamma 2}}{4\hbar}$$
(1.20)

As the moment of inertia is calculated using the difference between two successive γ -ray transitions, we use the average frequency to plot the variation of the moment of inertia with respect to the frequency. The variations of the dynamical moment of inertia reflect the existence of non-yrast rotational bands and the alignment of one or more nucleons to the rotation axis of the nucleus. This observable is especially interesting as it is both experimentally and theoretically accessible. This makes the dynamical moment of inertia an important keypoint of the experiment/theory interaction.

The model of the atomic nucleus I described are expressed throughout many regions of the nuclide chart. It is especially true in the region of transfermium nuclei.

Predictions for the Island of stability

The existence of nuclei beyond Z = 100 is solely due to quantum shell effects. The previsions regarding the next shell closure beyond N = 126 and Z = 82 vary depending on the model and force used. The expected values of the next proton and neutron shell closures are summarized in tab. 1.1 page 31. Even within a single model, the effect of the force used to simulated the interactions between nucleons varies quite widely. This effect is shown on fig. 1.10 page 31 [7]. As we can see, the next shell closures are not sharply defined, but rather represent a diffuse region of enhanced stability. We can no longer expect a sharp magicity as for ⁴⁸Ca or ²⁰⁸Pb. Therefore the term "Island of stability" fits quite well.

It is difficult to forsee the next shell closures, whether spherical or deformed. The resolution of this conundrum lies partly in the spectroscopic study of the transfermium and super-heavy nuclei regions.

1.2 Implications expérimentales de la théorie du champ moyen au-delà du 208**Pb**

Les nucléons du noyau évoluent dans un potentiel qui modélise l'extension spatiale du noyau et détermine sa structure. Les nucléons forment eux-mêmes leur propre potentiel, on parle donc de champ moyen. L'hamiltonien d'un noyau sphérique s'écrit de la manière suivante en coordonnés cylindriques :

$$H_{sph} = -\frac{\hbar^2}{2M} \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} r + \frac{\ell^2(\theta, \phi)}{2Mr^2} + V(r)$$
(1.21)

où V(r) est le potentiel agissant sur un nucléon, créé par l'ensemble des nucléons restant. On définit aussi fréquemment un potentiel effectif

$$V_{eff}(r,\theta,\phi) = V(r) + \frac{\ell^2(\theta,\phi)}{2Mr^2}$$
(1.22)

Le potentiel effectif est composé de deux termes dépendant de variables différentes, on peut donc séparer l'hamiltonien par variables. Les fonctions propres de la partie angulaire de l'hamiltonien sont les harmoniques sphériques $Y_{\lambda\mu}(\theta, \phi)$. On ne doit donc plus résoudre que la partie radiale de l'équation de Schrödinger :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2M}\frac{1}{r}\frac{d^2}{dr^2}r + \frac{\hbar^2\ell(\ell+1)}{2Mr^2} + V(r) - E\right]R(r) = 0$$
(1.23)

Pour résoudre cette équation dans le cadre du noyau atomique, il faut identifier un potentiel V(r) modélisant au mieux le comportement des nucléons dans le noyau.



FIGURE 1.1 – a) Contribution monopolaire de la densité neutron pour le ¹⁵²Sm dans le modèle SKM*HF (Ligne continue) comparée à une approximation de la décomposition multipolaire de l'équation 1.24 [8]. b) Forme de la distribution de densité générique de la matière nucléaire dans le noyau atomique obtenue par interpolation sur un ensemble de noyaux étudiés par diffusion élastique. / *a*) Monopole part of the SKM* *HF neutron density for* ¹⁵²Sm (solid line) compared to the approximation of the multipole decomposition of equation 1.24 [8]. b) Generic distribution of the nuclear matter density in the atomic nucleus fitted over a range of nuclei studied using elastic diffusion.

La distribution de densité de la matière nucléaire a été testée au travers d'expériences de diffusion élastique sur le noyau atomique. La forme générale de la distribution de densité est interpolée à partir des résultats de ces expériences. La figure 1.1 a) montre différentes modélisations possibles de la densité de la matière nucléaire (ici pour le noyau ¹⁵²Sm [8]). La fonction d'interpolation la plus simple est la fonction de Fermi représentée sur la figure 1.1 b). Cette figure met en lumière une saturation de la densité de matière nucléaire au centre du noyau. Cette saturation implique la proportionnalité du volume nucléaire au nombre de nucléons contenus dans le noyau. Elle détermine donc la taille du noyau, ce qui permet de définir le rayon moyen du noyau atomique par $R = r_0 A^{1/3}$ avec $r_0 = 1,2$ fm. Les "bords" du noyau ne sont toutefois pas précisément définis et comportent un gradient de densité. Comme on peut le voir sur la figure 1.1 b), on définit donc l'épaisseur de peau correspondant à la diffusivité des bords, notée *a* [3].

A partir de ces observations, on définit la densité de la matière nucléaire $\rho(r)$ dans le noyau par :

$$\rho(r) = \frac{\rho_0}{1 - exp(\frac{r-R}{a})} \tag{1.24}$$

où R est le rayon moyen du noyau, d = 4,4 (a $\simeq 0.5$ fm) l'épaisseur de peau du noyau et ρ_0 la valeur de saturation de la densité de la matière nucléaire.

La forme du potentiel nucléaire peut être approximée à l'aide de potentiels qui sont "nucléarisés" de manière à bien reproduire les comportements du noyau. On peut utiliser le puit carré infini ou l'oscillateur harmonique (voir figure 1.2). La résolution de l'équation de Schrödinger avec l'un de ces deux potentiels organise les niveaux énergétiques selon une structure en couches. Cependant, les fermetures de couches ne correspondent pas directement à celles observées expérimentalement. Il faut trouver un potentiel qui suive la distribution de la densité de la matière nucléaire de façon à représenter le plus fidèlement possible les caractéristiques macroscopiques du noyau atomique. Un potentiel suivant cette distribution représenterait un intermédiaire entre le puit carré (fig. 1.2 à gauche) et l'oscillateur harmonique (fig. 1.2 au centre). Nous avons besoin d'un potentiel qui ne soit pas infini, puisque l'énergie de séparation des nucléons est finie. C'est ainsi que le potentiel de Woods-Saxon représenté à droite de la figure 1.2 est obtenu. Il prend en compte le rayon moyen R et l'épaisseur de peau a définis précédemment. La profondeur du potentiel V_0 est fixée de manière à reproduire les énergies de séparation des nucléons et vaut en général entre -40 et -50 MeV.



FIGURE 1.2 – Potentiels utilisables pour le confinement des nucléons dans le noyau atomique. / Possible potentials for the confinement of nucleons in the nuclei.

Un terme de "spin-orbite" ($\vec{l}.\vec{s}$) doit être ajouté au potentiel radial V(r) pour rendre compte le couplage

entre le spin d'un nucléon et son orbitale. Il vient apporter à l'hamiltonien la levée de dégénérescence nécessaire à obtenir les fermeture de couches observées expérimentalement. L'amplitude de ce terme dépend du modèle utilisé.

La présence du terme de spin-orbite au potentiel de Woods-Saxon permet de retrouver les fermetures de couches (nombre "magiques") observées expérimentalement comme le montre la figure 1.3. La partie droite indique les couches pures pour l'oscillateur harmonique simple. L'ajout des termes en $\vec{\ell}^2$ et spin-orbite permettent de réarranger les niveaux provenant de l'oscillateur harmonique et de retrouver les fermetures de couches observées expérimentalement. Cette découverte valut à Maria Goppert-Mayer, Hans Jensen et Eugene Wigner le Prix Nobel de Physique en 1963. On observe bien la présence des gaps aux valeurs 2, 8, 20, 28, 50, 82 et 126. Ces nombres magiques sphériques servent à caler en première approximation le modèle nucléaire. Leur observation en fait des points d'ancrage. Les gaps proton au-delà de 82 et neutron au-delà de 126 n'ont pas été atteints expérimentalement pour le moment. Les positions exactes des prochaines fermetures de couches n'ont donc pas été expérimentalement fixées. Différentes prévisions existent pour le positionnement de cette fermeture de couches avec d'autres paramétrisations du potentiel.

Nous avons donc à notre disposition un potentiel qui reproduit la structure du noyau sphérique. Cependant, il n'est pas possible de résoudre analytiquement l'équation de Schrödinger appliquée au potentiel de Woods-Saxon. Les énergies propres de ce potentiel doivent être calculées de manière numérique pour chaque cas.

S.G. Nilsson a introduit l'oscillateur harmonique modifié [4] qui permet d'approcher la structure nucléaire. Cependant, l'oscillateur harmonique tel que défini à l'équation 1.25 fournit une structure en couches qui ne correspond pas à celle observée expérimentalement.

$$V_{OH}(x, y, z) = \frac{1}{2}kr^2 = \frac{1}{2}m\omega^2 r^2 = \frac{1}{2}m\omega^2 (x^2 + y^2 + z^2)$$
(1.25)

Ce potentiel ne faisant pas la différence entre les différentes valeurs de ℓ pour une valeur de N donnée, il est nécessaire de lever la dégénérescence en l des états N>2 pour réordonner les orbitales et déplacer les fermetures de couches. Cet effet est obtenu par l'introduction d'un terme en $\ell^2 - \langle \ell^2 \rangle$ qui vient corriger le terme en $\ell(\ell + 1)$ du potentiel effectif. On obtient donc le potentiel suivant :

$$V_{MO} = \frac{1}{2}M\omega_0^2 r^2 - \kappa\hbar\omega_0 [2\vec{\ell}.\vec{s} + \mu(\ell^2 - \langle \ell^2 \rangle)]$$
(1.26)

où κ et μ sont des paramètres ajustables permettant de jouer sur cette correction [4]. J'utiliserai le potentiel de l'oscillateur harmonique dans la suite pour décrire les effets de la déformation et de la rotation sur le noyau atomique.

Le noyau atomique présente des comportements radicalement différents selon qu'il possède un nombre pair de protons et de neutrons ou non. Lors de ma thèse, je me suis intéressé à des noyaux ayant un nombre de neutrons et un nombre de protons pairs. Je limiterai donc la portée de ce chapitre aux noyaux pair-pairs.

1.2.1 Influence de la déformation

Considérons la déformation d'une sphère selon un axe arbitraire. Selon que l'on étire la sphère ou qu'au contraire on la compresse selon l'axe de symétrie, on obtiendra les deux formes possibles : oblate (fig. 1.4.a) ou prolate (fig. 1.4.b). Ces formes sont définies à l'aide des fonctions harmoniques sphériques pour lesquelles on introduit le paramètre de déformation β :

$$R(\theta, \phi) = R_{moy}[1 + \beta Y_{20}(\theta)] \tag{1.27}$$

avec

$$\beta = \alpha_{20} = \frac{4}{3} \sqrt{\frac{\pi}{5}} \frac{c}{a} \frac{1}{R_{moy}}$$
(1.28)



FIGURE 1.3 – Reproduction des niveaux d'énergie pour le modèle de l'oscillateur harmonique modifié. A gauche sont représentées les couches pures de l'oscillateur harmonique. Au centre, on ajoute un terme correctif en ℓ^2 pour rapprocher le spectre de celui obtenu avec le potentiel de Woods-Saxon. A droite, le terme de couplage spin-orbite ℓ .s vient compléter le potentiel. (D'après [4]). / Energy levels for the modified harmonic oscillator. On the left hand side are plotted the shells for the pure harmonic oscillator. In the center, a ℓ^2 correction term is added to approach the structure given by the Woods-Saxon potential. On the right hand side, the spin-orbit term ℓ .s completes the potential. (From [4])



FIGURE 1.4 – Déformations possibles sur un seul axe à partir d'un noyau sphérique. Le paramètre β définit la déformation. / Possible deformations along a single axis from a spherical nucleus. The parameter β defines the deformation.

où $\frac{c}{a}$ représente l'excentricité de l'ellipse [3].

On peut généraliser le comportement de l'oscillateur harmonique pour décrire les formes présentées ci-dessus en écrivant le potentiel sous la forme :

$$V(x, y, z) = \frac{1}{2}m(\omega_x^2 x^2 + \omega_y^2 y^2 + \omega_z^2 z^2)$$
(1.29)

On choisit arbitrairement l'axe *z* comme axe de symétrie et donc $\omega_x = \omega_y = \omega_{\perp}$. On introduit le paramètre de déformation ε tel que :

$$\omega_z = \omega_0(\varepsilon)(1 - \frac{2}{3}\varepsilon) \tag{1.30}$$

$$\omega_{\perp} = \omega_0(\varepsilon)(1 + \frac{1}{3}\varepsilon)$$
 (1.31)

Les formules sont choisies de manière à ce que $\omega_z \omega_{\perp}^2 = \omega_0^3$. On en tire la définition du paramètre de déformation ε en fonction des pulsations :

$$\varepsilon = \frac{\omega_{\perp} - \omega_z}{\omega_0} \tag{1.32}$$

Si on introduit les pulsations ω_z et ω_{\perp} dans l'équation 1.29, le potentiel de l'oscillateur harmonique anisotrope peut être écrit de la façon suivante :

$$V(x, y, z) = \frac{1}{2}m[\omega_{\perp}^{2}(x^{2} + y^{2}) + \omega_{z}^{2}z^{2}]$$
(1.33)

La nouvelle symétrie introduit une levée de dégénérescence pour la projection du moment angulaire \vec{j} sur l'axe de symétrie du noyau déformé. Les énergies des orbitales à une particule (*single particle*) vont donc évoluer en fonction de la déformation comme le montre la figure 1.5. Par conséquent, l'ordre relatif de ces orbitales va évoluer aussi en fonction de la déformation et modifier plus ou moins profondément la structure du noyau, ouvrant de nouveaux gaps et en fermant d'autres. Dans un potentiel déformé, j et ℓ ne sont plus des bons nombres quantiques. La notation spectroscopique $j\ell$ utilisée pour définir les états dans le cas sphérique n'est donc plus valable. On définira maintenant les niveaux d'énergie en utilisant la notation asymptotique valable à grande déformation introduite par S.G. Nilsson dans [4] : $[Nn_z\Lambda]\Omega$ avec



FIGURE 1.5 – Levée de la dégénérescence selon la projection de \vec{j} sur l'axe de symétrie en fonction de la déformation. / Effect of the deformation on the degeneracy linked to the projection of \vec{j} on the symmetry axis.

- N le nombre quantique principal défini dans le cas sphérique,
- n_z le nombre de quantas sur l'axe z,
- A la projection du moment angulaire orbital $\vec{\ell}$ associé à l'obitale considérée sur l'axe z,
- Ω la projection du moment angulaire total \vec{j} associé à l'obitale considérée sur l'axe z.

On définit maintenant les niveaux en utilisant Ω , la projection de \vec{j} sur l'axe de symétrie (voir fig. 1.6). On introduit le potentiel 1.33 déformé dans l'équation de Schrödinger [9]. On obtient alors les énergies suivantes :

$$E(n_z, n_\perp) = \hbar \omega_z \left(n_z + \frac{1}{2} \right) + \hbar \omega_\perp \left(n_\perp + 1 \right)$$
(1.34)

$$= \hbar\omega_0\left(N+\frac{3}{2}\right) + \hbar\omega_0\left(n_\perp - 2n_z\right)\frac{\varepsilon}{3}$$
(1.35)

avec N = $2n_{\perp} + n_z$

L'équation 1.35 donne l'énergie en fonction de la déformation. Elle illustre la levée de dégénérescence causée par la déformation visible sur la figure 1.5. Nous utilisons les nombres quantiques asymptotiques N, n_z , Λ et Ω pour identifier les orbitales sur les diagrammes *single particle* en fonction de la déformation comme c'est le cas sur les figures 1.7b et 1.7a.

Les figures 1.7a et 1.7b représentent les énergies des niveaux à une seule particule pour les protons et neutrons dans la région des noyaux transfermium en fonction de la déformation (représentée par le paramètre $\alpha_{20} = \beta$). On peut constater que la déformation ferme certains gaps sphériques et en ouvre de nouveaux. Ces gaps déformés permettent la stabilisation de noyaux en dehors des couches sphériques. Ainsi les gaps visibles à Z = 102 et Z = 104 (fig. 1.7a) sont inexistants à déformation nulle (α_{20} = 0), mais apparaissent à partir de $\alpha_{20} = 0,12$. Le même phénomène est visible pour les neutrons sur la figure 1.7b avec de nouveaux gaps



FIGURE 1.6 – Moments angulaires et projections pour un noyau déformé. / Angular momenta and projections for a deformed nucleus.

apparaissant à N = 152 et N = 154. On peut en déduire que le Nobélium (Z = 102) et le Rutherfordium (Z = 104) auront une structure déformée du fait de la présence de gaps déformés proton et neutron renforçant leur stabilité. Ils n'existaient pas à déformation nulle. Les exemples des noyaux 252 No et 254 No sont très représentatifs de l'effet de la déformation sur la structure du noyau atomique comme nous le verrons un peu plus tard. Les effets de la déformation ne sont bien évidemment pas limités à quelques noyaux, mais influencent toute la région de masse.

L'apparition d'un minimum d'énergie déformé ne signifie pas que le noyau ne puisse pas posséder une forme sphérique. La déformation va déplacer les orbitales responsables de la stabilité de ce noyau, qui possédera donc une structure différente dans son état déformé et dans son état sphérique. Ainsi un même noyau peut exister à la fois avec une forme sphérique et une ou plusieurs déformations : c'est la coexistence de forme (voir fig. 1.8) [5]. Un noyau sujet à une coexistence de forme présentera des gaps à différentes déformations, aussi bien prolate qu'oblate. Ces gaps se situent souvent à des énergies différentes, ce qui signifie que la forme du noyau changera en fonction de son énergie d'excitation. Au niveau expérimental, on atteindra les différentes formes d'un noyau en modifiant l'énergie d'excitation et le spin du noyau composé formé.

La figure 1.7b présente par exemple deux gaps à 164 neutrons, l'un à déformation nulle et l'autre autour de $\alpha_{20} = 0,25$. On constate que le gap déformé est situé plus haut en énergie et qu'il est moins important que le gap sphérique. Selon la position des niveaux de Fermi proton et neutron, cette structure favorisera l'une ou l'autre des déformations. Il faut en général que les gaps neutron et les gaps proton apparaissent à la même déformation, comme c'est le cas pour les noyaux très lourds. Un noyau favorable avec 164 neutrons sera sphérique dans son état fondamental pour Z = 110, mais pourra prendre une forme prolate ($\alpha_{20} > 0$) pour un nombre de protons différent ou encore pour des états excités.



FIGURE 1.7 – Energies des niveaux à une seule particule pour les protons (haut) et neutrons (bas) en fonction de la déformation quadrupolaire $\alpha_{20}[10]$. Les lignes rouges mettent en évidence l'intrusion des orbitales fermant les gaps sphériques à 126 protons et 196 neutrons autour du nveau de fermi des noyaux déformés dans la région transfermium. / Single particle energies for protons (top) and neutrons (bottom) with respect to quadrupole deformation α_{20} [10]. The red lines emphasize the intrusion of the orbitals closing the Z=126 and N=196 spherical gaps at the Fermi level of deformed nuclei in the transfermium region.



FIGURE 1.8 – Exemple de coexistence de formes dans le ¹⁹⁴Pb [11]. / *Example of shape coexistence in* ¹⁹⁴Pb [11].

1.2.2 Influence de la rotation

L'excitation d'un noyau peut se manifester principalement selon trois mécanismes,

- la vibration,
- la rotation,
- les excitations particule-trou.

Un noyau sphérique pourra choisir entre la vibration et les excitations particule-trou puisque la rotation lui étant interdite. Un noyau déformé devra choisir le mode de désexcitation la plus adapté parmis ces trois modes. Il s'agit le plus souvent de la rotation, qui permet de générer des états excités sans mettre en jeu trop d'énergie.

Pour décrire la rotation, on choisit par convention l'axe x, perpendiculaire à l'axe de déformation, comme axe de rotation (voir figure 1.4). Le moment angulaire \vec{J} du noyau est défini par la somme des moments angulaires de ses nucléons. Il peut être généré soit par la rotation, soit par l'alignement du spin \vec{j} d'un ou plusieurs nucléons sur l'axe de rotation. La rotation du noyau relève d'une excitation collective des nucléons du noyau, tandis que l'alignement du spin sur l'axe de rotation est un phénomène individuel. Une rotation dite "individuelle" implique que si la somme des moments angulaires des nucléons soit non nulle. Les nucléons étant appariés, cette situation ne sera pas très favorable énergétiquement. Produire du moment angulaire en alignant \vec{j} sur l'axe x donnera lieu à un spectre irrégulier. Dans le cas des noyaux sphériques, c'est la seule manière de produire du moment angulaire.

Dans le cas d'une rotation collective, c'est tout le noyau qui tourne avec un moment angulaire \vec{R} . Le noyau étant un objet quantique, la rotation n'est alors possible que si ce dernier est déformé. Un système quantique ne peut pas tourner autour de son axe de symétrie. Dès lors que le noyau est déformé la rotation collective devient possible. En pratique, la rotation collective se fait sur un axe perpendiculaire à l'axe de symétrie (voir fig. 1.4).

On peut comparer dans ce cas le noyau à un solide en rotation et définir l'énergie de rotation par analogie avec la mécanique classique [12] :

$$E_{rot} = \frac{1}{2} \sum_{nucl} m_i v_i^2 \tag{1.36}$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{nucl} m_i r_i^2 (\frac{v_i}{r_i})^2$$
(1.37)

$$= \frac{1}{2} \sum_{nucl} m_i r_i^2 \omega_i^2 \tag{1.38}$$

(1.39)

où r_i est la coordonnée radiale. En supposant que tous les nucléons ont la même fréquence de rotation et en utilisant la définition du moment d'inertie pour un corps rigide $\Im_{rigide} = \sum_{nucl} m_i r_i^2$, on obtient

$$E_{rot} = \frac{1}{2} \Im_{rigide} \omega^2 \tag{1.40}$$

Si on définit classiquement le moment cinétique total de la manière suivante :

$$\vec{I} = \sum_{i} \vec{l}_{i} = \sum_{i} \vec{r}_{i} \wedge \vec{p}_{i} \tag{1.41}$$

la norme du moment cinétique peut s'exprimer en fonction de la fréquence de rotation $\omega = v/r$:

$$L = \sum_{i} r_{i} m v_{i} \tag{1.42}$$

$$= \sum_{i} m r_i^2 \frac{v_i}{r_i} \tag{1.43}$$

Dans l'hypothèse d'un noyau rigide, tous les nucléons ont la même fréquence, donc on peut factoriser par ω dans l'équation 1.43 :

$$L = \Im_{rigide} \omega \tag{1.44}$$

On obtient alors dans le cadre de cette description classique :

$$E_{rot} = \frac{L^2}{2\mathfrak{P}_{rigide}} \tag{1.45}$$

Si le mouvement de rotation est quantifié, on remplace le moment cinétique L^2 par l'opérateur \hat{J}^2 qui donne l'hamiltonien suivant :

$$H_{rot} = \frac{\hbar^2 \left[\hat{J}_x^2 + \hat{J}_y^2 + \hat{J}_z^2 \right]}{2\Im} = \frac{\hat{f}^2}{2\Im_b ot} - \frac{\hat{K}^2}{2\Im_z}$$
(1.46)

En remplaçant les opérateurs par leur valeur attendue pour l'opérateur, on obtient pour un noyau pair-pair l'équivalent quantique de l'énergie de rotation :

$$E^*(I) = \frac{\hbar^2}{2\Im} \left[J(J+1) - K^2 \right]$$
(1.47)

Du point de vue expérimental, la rotation est caractérisée par des transitions électromagnétiques d'énergie régulièrement espacés formant une bande de rotation (voir figure 1.9). Une bande de rotation peut être construite sur l'état fondamental ou sur un état excité. Une bande rotationnelle construite sur l'état fondamental d'un noyau pair-pair présentera une progression en spin de deux en deux comme on peut le voir sur la figure 1.9.

La description de la rotation du noyau introduit la notion de moment d'inertie et de fréquence. La fréquence de rotation est définie par la dérivée de l'énergie d'excitation du noyau par rapport au spin :

$$\hbar \omega = \frac{dE}{dJ} \tag{1.48}$$

Expérimentalement, la fréquence de rotation est définie par

$$\hbar\omega = \frac{dE}{dJ} \approx \frac{\Delta E}{\Delta J} = \frac{E_{\gamma}}{2} \tag{1.49}$$

si $\Delta J = 2$, ce qui est le cas pour la bande fondamentale d'un noyau pair-pair.

En remplaçant 1.48 dans 1.44 [14], on peut exprimer le moment d'inertie par

$$\mathfrak{S}^{(1)} = \frac{\hbar J}{\omega} = J\hbar^2 \left(\frac{dE}{dJ}\right)^{-1} \tag{1.50}$$

Le moment d'inertie s'exprime en $\hbar^2 MeV^{-1}$.

L'énergie des rayons- γ émis lors de la rotation est elle aussi liée au moment d'inertie, ce qui permet de calculer ce dernier directement à partir des mesures expérimentales :

$$E_{\gamma}(J \to (J-2)) = E^*(J) - E^*(J-2) = \frac{\hbar^2}{2\Im}(2J-1)$$
(1.51)



FIGURE 1.9 – Exemple de spectre γ pour une bande de rotation dans le ²⁵⁴No [13]. Les transitions appartenant à la bande de rotation présentent bien un écart en énergie régulier. / *Example of a \gamma-ray spectrum for the ground-state rotational band in* ²⁵⁴No [13]. The transitions belonging to the rotational band display a regular energy difference.

A condition de connaitre le spin de l'état, on peut déduire de la formule 1.51 le moment d'inertie cinématique du noyau à partir de la mesure des transitions γ de la bande de rotation [6] :

$$\mathfrak{S}^{(1)} = \frac{\hbar^2 (2J-1)}{2E_{\gamma}(J \to (J-2))} \tag{1.52}$$

Si on dérive à nouveau l'énergie d'excitation par rapport au moment angulaire, on obtient le moment d'inertie dynamique $\mathfrak{I}^{(2)}$:

$$\mathfrak{S}^{(2)} = \hbar \frac{dJ}{d\omega} = \hbar^2 \left(\frac{d^2 E}{dJ^2}\right)^{-1} \tag{1.53}$$

A partir de l'équation 1.51 on calcule que l'écart entre deux transitions γ dans une bande rotationnelle vaut

$$\Delta E_{\gamma} = E_{\gamma}((J+2) \to J) - E_{\gamma}(J \to (J-2)) = \frac{4\hbar^2}{\Im}$$
(1.54)

Si le moment d'inertie \Im est constant, l'écart entre deux transitions γ d'une bande de rotation est constant comme l'indique l'équation 1.54. Expérimentalement on constate que cet écart varie légèrement avec la fréquence de rotation. Pour cette raison, le moment d'inertie \Im nous renseigne sur les comportements collectifs du noyau.

On montre ici qu'on peut s'affranchir de la dépendence en J que nous avons encore avec $\mathfrak{I}^{(1)}$ en calculant le moment d'inertie à partir de l'équation 1.54, ce qui donne le moment d'inerte dynamique :

$$\mathfrak{S}^{(2)} = \frac{4\hbar^2}{E_{\gamma}((J+2) \to I) - E_{\gamma}(I \to (I-2))}.$$
(1.55)

La grandeur $\mathfrak{I}^{(2)}$ est appelé moment d'inertie dynamique car il nous renseigne sur les variations du moment d'inertie cinématique.

On peut donc tracer l'évolution du moment d'inertie en fonction de la fréquence de rotation. Comme on l'a vu, la fréquence est calculée à partir des énergies des transitions γ tandis que le moment d'inertie dynamique est calculé à partir des écarts entre ces transitions. On utilisera donc pour le tracé du moment d'inertie dynamique $\mathfrak{I}^{(2)}$ une fréquence moyenne $<\hbar\omega >$ définie par :

$$<\hbar\omega>=\frac{\hbar\omega((I+2)\to I)+\hbar\omega(I\to (I-2))}{2}$$
(1.56)

L'étude du moment d'inertie nous renseigne sur le comportement de la collectivité dans le noyau, mais aussi sur sa structure. Les variations du moment d'inertie dynamique reflètent l'existence de bandes de rotation basées sur un état de projection K non nulle ou sur l'alignement d'un ou plusieurs nucléons sur l'axe de rotation du noyau. Le grand avantage du moment d'inertie dynamique tient au fait qu'il est accessible expérimentalement et théoriquement. Il est donc un point clé de l'interaction en expérience et théorie.

Les interprétations théoriques du noyau atomique que nous venons de voir trouvent leur application dans de nombreuses régions de la charte des noyaux. La région située au-delà des actinides m'intéresse particulièrement. Elle concerne les noyaux transfermiens et les noyaux superlourds. Les noyaux transfermiens représentent une région où les comportement décrits ci-dessus peuvent être étudiés. Je reviendrai sur ces études dans le chapitre suivant. Les noyaux superlourds ont situés à la limite des nos capacités de mesures actuelles. Ils représentent un test à la fois pour le matériel de spectroscopie et pour les modèle théoriques, généralement développés à partir de données prises plus proche de la vallée de stabilité.

| | Ζ | Ν | ref. |
|----------|-----|-----|------|
| W.S. | 114 | 184 | [15] |
| F.R.D.M. | 114 | 178 | [15] |
| H.F.B. | 126 | 184 | [7] |
| R.M.F. | 120 | 172 | [7] |

TABLE 1.1 – Fermetures de couches prévues par différents modèles théoriques [1]. / Shell closure predictions from various models [1].

1.2.3 Prédictions pour l'îlot de stabilité

La modélisation macroscopique du noyau, par le modèle de la goutte liquide par exemple, prévoit que l'interaction coulombienne devienne trop importante pour permettre l'existence d'un noyau cohérent au-delà de cette valeur. La possibilité de noyaux stables au-delà du ²⁰⁸Pb (Z=82 et N=126) a été envisagée vers 1955 par J.A. Wheeler [16, 17] sur les bases du Modèle en Couches nouvellement créé. On parle alors d'îlot de stabilité superlourd. Les prévisions pour la prochaine fermeture de couche sont fortement dépendantes du modèle utilisé et des forces ou potentiels introduits dans ces modèles. Si la plupart des modèles s'accordent sur les noyaux sphériques et stables dans la vallée de stabilité, il en est autrement dès que l'on s'en éloigne. Les prévisions pour la position des fermetures de couches sphériques sont résumées en fonction du modèle utilisé dans le tableau 1.1.



FIGURE 1.10 – Comparaison des positions de l'îlot de stabilité pour les modèles H.F.B. et R.M.F. avec différentes paramétrisations [7]. / Comparison of the position of the island of stability for the H.F.B. and R.M.F. models [7].

Au sein d'un même modèle on peut également avoir des différences entre les résultats obtenus à l'aide de différentes forces. La figure 1.10 [7] illustre ce point en montrant les positions obtenues pour l'îlot de stabilité avec différentes forces pour les modèles Hatree-Fock-Bogoliubov (H.F.B. avec les forces SkP, SkI3,

SLy6 et SkI4) et champ moyen relativiste (R.M.F. avec les forces NL3 et NL-Z2). On constate que la position de l'îlot varie fortement, comme l'indique les nombres de nucléons présentés dans le tableau 1.1. Un autre constat ressort de cette figure : la stabilité n'est plus strictement définie sur une ligne isotonique et une ligne isotopique précise, mais sur une région assez large, ce sur quoi tous les calculs semblent s'accorder. On ne peut plus parler de magicité ou de fermeture de couche au sens strict du terme comme pour le ²⁰⁸Pb ou le ⁴⁸Ca. Pour cette raison, le terme d'îlot stabilité est particulièrement bien adapté.

Il est difficile de prévoir exactement la position des prochaines fermetures de couches, qu'elles soient sphériques ou déformées. La résolution de ce problème passe par l'étude des noyaux dans les régions transfermium et superlourds.

Chapitre 2

Physique des noyaux très lourds et superlourds

2.1 Abstract

The region of transfermium nuclei represents a link between the actinides and the superheavy nuclei. This region is therefore ideal to investigate the behaviour of nuclear structure at the limits of our knowledge. The presence of consequent deformed gaps enhances the stability of the transfermium nuclei. We have access to several observables and techniques in order to study this region.

Study of the fission barrier

The behaviour of the fission barrier in the region of transfermium nuclei is illustrated through their spontaneous fission half-lives on fig. 2.1 page 38. As we can see, the half-lives of the even-even isotopes from californium to nobelium indicate a strong increase of the fission barrier around neutron number 152. This fits well with the energy level calculations with respect to deformation in the region. A deformed gap is indeed hypothesized for 152 neutrons as can be seen on fig. 1.7b page 25. The deformation has a stabilizing effect on the nuclei with 152 neutrons. However, if we add protons and reach rutherfordium and seaborgium this behaviour shifts dramatically. The enhancement of the fission barrier is no longer focused at 152 neutrons, but probably at 162 neutrons. Another deformed gap at N = 162 could exist and cause this stabilization.

The effect of the deformed gaps is also visible through the cross-section of the reactions used to produce these nuclei. The figure 2.2 page 39 shows the fusion-evaporation cross-section in the transfermium region (upper panel) and the fission barrier height (lower panel). As we can see, the neutron number 152 also has an effect on the cross-section. The presence of a deformed gap will stabilize the compound nucleus and increase its survival probability against spontaneous fission. As a consequence, the cross-section for the production by fusion-evaporation will be increased. The same phenomenon is visible for 162 neutrons, albeit with smaller intensity.

The same effect takes place for superheavy nuclei beyond 112 protons and 170 neutrons. This represents the first hint of the Island of stability.

The fusion-evaporation reaction

Nuclei beyond the actinides do not have sufficient half-lives to exist on Earth. Therefore they have to be produced artificially. For this we use fusion-evaporation to create a compound nucleus from a projectile and a target. The kinetic energy of the projectile is a critical parameter for this reaction. It has to be high enough to ovecome the Coulomb barrier of the target nuclei and low enough so that the compound nucleus does not

fission immediately afterwards. Once the nuclei have fused, the energy gained through the reaction has to be released. The heat of the reaction $X + a \rightarrow Y^* + b$ producing the excited compound nucleus Y^* is defined by :

$$Q_{ex} = (m_X + m_a - m_Y^* - m_b)c^2 = Q_0 - E_{ex}$$
(2.1)

where Q_0 is the heat of the reaction ending on the ground state of the nucleus.

The excitation energy E_{ex} can be evaporated through the emission of one or more particles. Nuclei in the transfermium region will preferably evaporate a number of neutrons depending on the value of the heat of the reaction and the kinetic energy of the beam (see for example the excitation function $\sigma(E)$ on fig. 6.1 page 130). Once enough energy has been exhausted, the nucleus will deexcite through electromagnetic radiation, either by γ -ray or conversion electron emission depending on the transition energy and type. These radiations are measured to gather information on the structure of the nuclei.

The spectroscopy of transfermium nuclei

Internal conversion

Quantum mechanics allows electrons to penetrate the nucleus. The deep shells of the electronic cloud therefore have a non zero probability of recieving energy from the nucleus that would otherwise have been emitted through a γ -ray [18, 19]. If this energy is larger than its binding energy, the electron is ejected from the atom. The subsequent rearrangement of the electron cloud causes the emission of X-rays.

The probability of electron conversion depends on the transition type (E1, E2, M1,...) and increases with the depth of the electron shells and the number of protons, as the probability of the two wave functions overlapping increases. The probability for conversion also increases for lower energies. For very heavy and superheavy nuclei, a sizeable amount of information is lost on the low energy transitions if the conversion electrons are not detected. This effect is particularly problematic in odd nuclei. This can be taken care of by coupling an electron spectrometer with a germanium array as is done with the SAGE spectrometer [20] (see chap. 3).

Study of the collectivity

Single particle energy spectra exhibiting rotationnal structures indicate that nuclei in the transfermium region are deformed. As we have seen in the previous chapter, a deformed nucleus is compatible with collective rotation. In this case one can observe the variations of its moment of inertia. The study of the kinematical moment of inertia $\mathfrak{I}^{(1)}$ and dynamical moment of inertia $\mathfrak{I}^{(2)}$ brings information on the collective behaviour of the nuclei with respect to the frequency. The dynamical moments of inertia of the known even-even nuclei of the upper actinide and transfermium region are shown on fig. 2.3 page 42 [21]. The trends of the dynamical moment of inertia show a progressive loss in pairing. The presence of a sharp rupture of the behaviour of $\mathfrak{I}^{(2)}$ in plutonia show the presence of a backbending, revealing the sudden breaking of a nucleon pair and its alignment with the nuclear spin.

K-isomers in the transfermium region

K-isomerism defines nuclear states with an increased lifetime due to a large ΔK value, with K being the projection of the spin on the symmetry axis (see fig. 1.6 page 24) [22]. Orbitals with a large K value are strongly coupled to the nuclei deformation. Their alignment on the rotation axis implies the transfer of a large amount of angular momentum and is therefore strongly hindered. For this reason, these states show increased lifetimes and generate isomeric phenomena.

The spectroscopic study of high-K states has two main interests. Their large lifetime allows a delayed measurement, isolated from other radiations. These states also allow the isolation of single particle states

with a defined K value, which constrains the orbitals taking part in that level. The spectroscopy of high-K isomers therefore provides a strong insight into the nuclear structure.

Techniques for the spectroscopy of transfermium nuclei

The fusion-evaporation cross-sections in the studied transfermium nuclei range from tens of nanobarns to microbarns. In parallel, other reactions take place in the target. Transfer reactions have much higher cross-sections, and coupled to the scattered beam, produce a sizeable background noise that completely covers the radiations of interest. Most of the compound nuclei will fission immediately after fusion. The fission products account for a large part of the background and need to be separated from the nuclei of interest. Therefore, the use of a recoil separator is mandatory to identify and isolate the nuclei of interest. Measurements can take place both at the target position (prompt spectroscopy) and at the focal plane of the separator (delayed spectroscopy). The principle and detectors used for both techniques are shown on fig. 2.4 page 43.

Delayed spectroscopy

Delayed spectroscopy is based on the identification of the nuclei through the detection of its decay radiation or that of the parent nucleus [21]. For that purpose, detectors are installed at the focal plane of the separator. The time of flight and energy deposition of the nuclei are measured in order to identify its mass. The implantation energy completes this identification and allows the nuclei of interest to be discriminated from the other nuclei. The implantation detector has to be position sensitive to measure the (x,y) position of the implanted nuclei. The subsequent detection of a decay signal at the same postion within a defined time allows to unambiguously identify the nuclei, provided we have available information on its decay. Any signal detected between the implantation and the decay is considered to belong to the identified nuclei.

However, in the case of α decay, the particles are emitted with enough recoil energy to exit the implantation detector. The partial energy deposition is of little use in the identification. Therefore, this method only has an efficiency of about 50%, since the α particles can exit at backward angles. In the case of low statistics, one can need to resort to other identifications, for example with the detectors cited in the previous paragraph.

Detectors are placed around the implantation detector to measure the emission of γ and X rays and conversion electrons. This allows to study the deexcitation of the identified nucleus or the daughter nucleus, and therefore their structure. However, during the time of flight through the separator, prompt deexcitation of the nuclei occurs. This technique therefore only allows to study delayed deexcitation from metastable states or α decay for example. The study of nuclei with metastable states such as high-K isomers allows to probe the excited structure of the nuclei [23]. The study of α -decay brings information on the spin and parity of the initial and final states.

Internal conversion is important in transfermium nuclei. As we have seen before, low energy transitions have a high conversion probability. These transitions are close to α emitting levels. The α decay of a nucleus can lead to a band built on an isomeric state in the daughter nucleus. The lower states of the band usually have a low energy, leading to a high internal conversion probability. If the emission of conversion electrons happens soon enough after the α decay, the energies of both particles can be summed in the implantation detector. The summing of the electrons and α kinetic energies may lead to an overestimation of the α particle energy. One has to be aware of this phenomenon when analyzing α decay spectra in the region of transfermium nuclei, where the occurrence of isomeric states has been proved.

Prompt spectroscopy

Prompt spectroscopy corresponds to the study of the prompt deexcitation of the nucleus in the target. For these studies, γ ray detectors, or an electron spectrometer are placed around the target. Both spectrometers
can also be coupled to perform a more powerful measurement. These detectors are coupled to the detection setup at the focal plane, used for the identification of the nuclei of interest as described in the previous paragraph.

Figure 2.5 page 45 shows the correlation method between the two detection systems. Recoiling nuclei are identified at the focal plane with a fitting selection. If the time of flight through the separator is known, one can associate the prompt emissions with their nuclei by delayed coincidence.

The coincidence can be made simply with the recoiling nuclei (Recoil-tagging) or with its decay (Recoil-Decay Tagging [24, 25]). The use of the separator along with the tagging method can considerably "clean" the spectra recorded around the target. In the region of transfermium nuclei, with low cross-sections the quality of the selection is especially important to ensure accurate measurements. Recoil- α correlations give the unambiguous assurance of the identity of the nucleus and can efficiently "clean" the prompt γ ray spectra. In the case of low statistics, one can resort to Recoil-tagging only after the position of the nuclei of interest has been defined. This allows the statistics in the spectra to be increased. An example of this method is given in chapter 6 for the analysis of the prompt spectroscopy of ²⁴⁶Fm.

The next chapter will focus on the detectors used to apply these techniques.

2.2 Physique des noyaux très lourds et superlourds

La région des noyaux transfermium représente le lien entre les actinides et les noyaux superlourds. A ce titre, les noyaux de cette région sont un excellent laboratoire pour étudier le comportement de la structure nucléaire aux limites de nos connaissances. L'intérêt de cette région est double : l'étude spectroscopique de noyaux déformés permet d'une part de mettre en évidence des comportements collectifs et individuels des orbitales. D'autre part, elle donne des points d'ancrage pour les modèles et, pour les noyaux les plus riches en neutrons, des points d'accroche potentiels pour certaines chaînes de décroissance des noyaux superlourds. Nous avons pu voir sur les figures 1.7a et 1.7b que la région des noyaux transfermium est caractérisée par des gaps déformés importants. Ces gaps sont responsables de la stabilité des noyaux transfermium face à la fission. Dans le cadre des modèles macroscopiques comme celui de la Goutte Liquide, il est impossible de maintenir un novau cohérent dans cette région de masse car la répulsion coulombienne est trop importante. La théorie du champ moyen permet d'expliquer l'existence de ces noyaux. Les "effets de couche" introduits par le caractère quantique de ces objets correspondent à une augmentation de l'énergie de liaison pour certains noyaux. Cela se traduit par la stabilisation de ces noyaux. Des fermetures de couches additionnelles peuvent être obtenues sous l'effet de la déformation. Les mesures réalisées dans la région des novaux transfermium dont l'existence peut ainsi être obtenue ont pour but de vérifier ces hypothèses. Pour cela, plusieurs observables sont à notre disposition.

2.2.1 Etude de la barrière de fission

Les effets de couches intervenant dans la région transfermium ont un effet important sur le mode de décroissance et les temps de vie des noyaux. Le comportement de la barrière de fission observé expérimentalement dans la région des noyaux transfermium est représenté sur la figure 2.1.

Les demi-vies pour les isotopes pair-pairs du californium au nobelium indiquent que le nombre de neutrons N = 152 joue un rôle important dans la stabilité de ces noyaux face à la fission. La demi-vie marque un maximum à cette valeur pour ces trois lignes isotopiques, ce qui indique une barrière de fission maximale. Ce résultat est cohérent avec les calculs d'énergies des états à une seule particule dans cette région. En effet, on retrouve un gap déformé à N = 152 dans les énergies des orbitales neutrons sur la figure 1.7b. On a donc un effet de la déformation sur la structure de ces noyaux qui tend à accroître leur stabilité. Si on reste sur une même ligne d'isotones, on constate que la demi-vie diminue avec l'augmentation du nombre de protons jusqu'au rutherfordium (Z = 104) et seaborgium (Z = 106). Ces deux derniers éléments ne suivent pas la même tendance que les autres. L'influence du gap à N = 152 n'est donc plus suffisante dans ces noyaux pour maintenir une barrière de fission assez haute. *A contrario*, on observe que la demi-vie augmente pour le rutherfodium et le seaborgium si on augmente le nombre de neutrons. On peut supposer qu'un gap existerait pour un nombre de neutrons plus élevé (par exemple N = 162) et aurait pour les éléments plus lourds, un effet similaire à celui cité précédement.

La figure 2.2 présente la section efficace de production des noyaux très lourds et superlourds (en haut) et la hauteur de la barrière de fission en fonction du nombre de neutrons (en bas) [27, 28].

On retrouve pour la barrière de fission l'effet des isotones N = 152 et N = 162 décrites précédemment. On constate que la barrière de fission décroît pour les éléments superlourds (Z > 106) et augmente à nouveau vers N = 184, ce qui correspond à l'une des prévisions pour la fermeture de couche neutron de l'îlot de stabilité. L'encart du haut de la figure 2.2 indique la section efficace de production par fusion-évaporation en fonction de la réaction utilisée. La section efficace est maximale autour du nobelium pour 152 neutrons. Le gap présent dans cette région stabilise le noyau comme nous l'avons vu précédemment. Par conséquent, le potentiel de ces noyaux est plus profond que celui de leurs voisins et la probabilité que le noyau fissionne immédiatement après sa fusion est réduite. La section efficace totale de production augmente donc.

Le même comportement est observé pour les noyaux superlourds à partir de l'élément 112 pour 170



FIGURE 2.1 – Demi-vies partielles pour la fission spontanée pour les noyaux pair-pair et pair-impair de la région transfermium [26]. / Partial half-lives for spontaneous fission of even-even and odd-even nuclei in the transfermium nuclei region [26].

neutrons. Cette tendance de la section efficace et de la hauteur de la barrière de fission traduit la présence de fermetures de couches dans le voisinage. C'est la première indication de la présence de l'îlot de stabilité superlourd.

2.2.2 La réaction de fusion-évaporation

Les noyaux au-delà des actinides ne possèdent pas d'isotopes présentant une durée de vie suffisante pour être présents sur Terre. Leur étude requiert donc une synthèse artificielle. Les premiers éléments artificiellement synthétisés provenaient des explosions de bombes atomiques réalisées au laboratoire de Los Alamos au Nouveau-Mexique [29, 1]. Certains autres éléments peuvent être synthétisés dans un réacteur nucléaire comme c'est le cas du ²⁴⁹Bk synthétisé par irradiation de cibles d'américium et curium au Oak Ridge National Laboratory [30]. Cependant, au-delà du fermium, il n'est plus possible de produire des noyaux en quantités suffisantes pour en permettre l'étude. Pour cette raison, la synthèse de nombreux noyaux très lourds et superlourds se fait par réaction de fusion-évaporation entre un faisceau d'ions et une cible.

L'énergie cinétique du projectile est un paramètre critique pour la fusion des noyaux projectile et cible. Elle doit être suffisante pour lui permettre de franchir la barrière coulombienne, mais suffisamment basse



FIGURE 2.2 – Section efficace de production par fusion-évaporation et hauteur de la barrière de fission pour les noyaux très lourds et superlourds en fonction du nombre de neutrons [27, 28]. / Cross-section for the production by fusion-evaporation and fission barrier height for very heavy and superheavy nuclei versus the neutron number [27, 28].

pour que le noyau composé ne fissionne pas. Les ions du faisceau sont accélérés à des énergies autour de 5 MeV par nucléon, ce qui leur permet de vaincre la répulsion coulombienne au contact du noyau cible. Une fois que les deux noyaux sont en contact, les distributions de matière vont fusionner à l'intérieur du puits de potentiel nucléaire. En fonction du paramètre d'impact et de l'énergie cinétique du projectile, le système ainsi créé va évoluer vers un noyau composé ou fissionner. Dans le cas qui nous intéresse, les deux noyaux vont fusionner pour former un nouveau noyau dans un état excité. Cependant, la majorité des noyaux créés vont fissionner immédiatement, soit à cause d'une énergie d'excitation trop importante pour maintenir la cohésion des nucléons, soit à cause d'un paramètre d'impact trop élevé qui génèrera un système trop peu lié avec un moment angulaire trop important.

La chaleur de la réaction X + a \rightarrow Y^{*} + b est définie pour un noyau composé excité Y^{*} par

$$Q_{ex} = (m_X + m_a - m_Y^* - m_b)c^2 = Q_0 - E_{ex}$$
(2.2)

où Q_0 est la chaleur de réaction débouchant sur le niveau fondamental du noyau composé. Une fois le noyau composé formé, l'énergie d'excitation E_{ex} doit être évacuée. Le moyen le plus efficace pour "dépenser" de l'énergie est l'évaporation de particules. Pour la région des noyaux transfermium, l'évaporation de neutrons est la voie majoritaire. L'énergie d'excitation influe sur le nombre de neutrons évaporés et sur la section efficace de production du noyau final (voir la fonction d'excitation du ²⁴⁶Fm fig. 6.1 page 130).

Une fois que l'énergie d'excitation est trop faible pour justifier l'évaporation de nucléons supplémentaires, la désexcitation se fait par émission électromagnétique. Ce sont ces émissions que l'on cherche à mesurer afin d'obtenir des informations sur la structure du noyau.

2.2.3 Spectroscopie des noyaux transfermium

La spectroscopie électromagnétique permet d'obtenir des informations sur la structure du noyau étudié par l'observation des rayonnements électromagnétiques émis lors de sa désexcitation. La désexcitation se fait majoritairement par l'émission de rayons- γ dont l'énergie cinétique nous donne l'énergie séparant deux états du noyau. La région des noyaux transfermium est caractérisée par une forte conversion des transitions électromagnétiques en électrons.

La conversion électronique

La mécanique quantique autorise les électrons à passer dans le noyau contrairement à un modèle purement orbital. Le noyau excité va donc pouvoir transférer une partie de son énergie d'excitation à un des électrons des couches profondes K, L ou M. Ce phénomène entre en compétition avec l'émission de photons γ [18, 31, 19]. Si l'énergie transférée est supérieure à l'énergie d'ionisation de ces orbitales, un électron est émis à la place d'un photon γ . Le réarrangement du nuage atomique conséquent à la libération de l'électron donne ensuite lieu à l'émission de rayons-X. Le transfert d'énergie n'a lieu que si les fonctions d'onde du noyau et du nuage électronique se recouvrent. Pour cette raison, la probabilité de ce processus est croissante avec le nombre de protons. La conversion électronique est aussi plus importante pour des transitions de basse énergie. On observera donc principalement l'émission d'électrons pour les premiers états de bandes rotationnelles. Pour l'étude des noyaux très lourds, on perd donc l'information sur les transitions de plus basse énergie des bandes observées.

Les électrons de conversion représentent une partie de l'information spectroscopique dont il faut tenir compte dans la région des noyaux transfermium. Leur détection est effectuée à l'aide de spectromètres dédiés qui peuvent être associés aux spectromètres à rayons- γ . Le spectromètre SAGE [20] en est un exemple, et est décrit au chapitre 3.

Etude de la collectivité

Les schémas de niveaux en fonction de la déformation indiquent que les noyaux de la région transfermium sont déformés (voir figures 1.7a et 1.7b page 25). Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, un noyau déformé peut tourner et donc il est possible de déterminer ses moments d'inertie cinématique $\Im^{(1)}$ et dynamique $\Im^{(2)}$. Cette information nous donne des renseignements sur le comportement collectif des nucléons au sein du noyau et sur l'évolution de ces comportements en fonction de la fréquence de rotation. La figure 2.3 représente les moments d'inertie dynamiques des noyaux pair-pairs connus dans la région [21].

La variation du moment d'inertie dynamique en fonction de la fréquence de rotation nous informe sur l'alignement des nucléons sur l'axe de rotation. Tous les moments d'inertie dynamiques augmentent pour les noyaux de cette région, signant une perte d'appariement. Par exemple, on peut constater que dans le noyau de ²⁵²No les paires de nucléons vont s'aligner plus rapidement que dans le noyau du ²⁵⁴No, introduisant une pente plus forte du moment d'inertie dynamique. D'autre part, on constate la présence d'un pic autour de la fréquence $\hbar \omega = 250$ keVdans le moment d'inertie dynamique $\Im^{(2)}$, des noyaux de plutonium. Ces pics correspondent au phénomène de backbending, c'est-à-dire la brisure soudaine d'une paire de nucléons et l'alignement brutal de leurs spins sur celui du noyau. Le moment d'inertie du noyau se trouve donc brutalement réduit puisque leur rotation ne profite plus à la collectivité.

Isomères-K dans la région des noyaux transfermium

L'isomérie K définit des états ayant une durée de vie supérieure à la moyenne des états excités à cause d'une valeur de ΔK importante ; le nombre quantique K représentant la projection du spin sur l'axe de symétrie d'un noyau déformé (voir figure 1.6) [22]. Un état avec une valeur de K élevée est fortement couplé à la déformation du noyau. Le réalignement sur l'axe de rotation implique le transfert d'un grand nombre d'unités de moment angulaire et donc un effet brutal de réarrangement nucléaire. Ce transfert est fortement empêché par les règles de sélection des transitions électromagnétiques. Pour cette raison, les état isomériques K (on parle aussi d'états métastables) ont une durée de vie qui peut aller de quelques dizaines de microsecondes à plusieurs années. Dans la région des noyaux transfermium, on observe des durées de vie allant de 78 μ s pour le ²⁵¹No à 275,7 jours pour le ²⁵⁴Es [32].

Ces états présentent deux intérêts pour l'étude spectroscopique. Le premier réside dans leur durée de vie qui autorise leur sélection pour une étude isolée. Il peuvent en effet être étudiés en spectroscopie retardée au plan focal d'un séparateur (voir 2.2.4), à l'abris du bruit de fond causé par les interactions du faisceau avec la cible. Les états excité situés à une énergie inférieure à l'état métastable peuvent être étudiés par cette technique. Le deuxième intérêt des états isomériques de haut K est qu'ils permettent l'isolation et l'identification d'états à une particule. Ces états possèdent une valeur de K fixe, qui va donc définir les orbitales intervenant dans cet état. Ces orbitales sont différentes de celles mises en jeu pour les états construits sur le niveau fondamental. L'étude des états construits sur un état isomérique K, comme par exemple une bande de rotation fournit des informations sur la structure excitée du noyau. La région des noyaux transfermium présente des exemples parfaits de ces études, notamment pour les noyaux ²⁵⁴No [33] ou ²⁵³No [34].

2.2.4 Techniques pour la spectroscopie des noyaux transfermium

Les sections efficaces de production des noyaux transfermium vont de quelques dizaines de nanobarns à quelques microbarns. La fission immédiate du noyau composé est la réaction la plus fréquente. La section efficace de fission est généralement 4 à 6 ordres de grandeur plus élevée que la section efficace de fusionévaporation recherchée [28]. Les réactions de transfert qui ont lieu dans la cible en parallèle de la fusionévaporation possèdent elles aussi des sections efficaces de quatre à cinq ordres de grandeur plus importantes. Ajoutés aux noyaux du faisceau n'ayant pas interagi dans la cible et aux éventuelles diffusions dans la ligne de faisceau, ces produits de réaction forment un bruit de fond qui "noie" complètement les produits



FIGURE 2.3 – Systématique du moment d'inerte dynamique $\mathfrak{I}^{(2)}$ pour certains noyaux connus dans la région des transfermium et des actinides [21]. / Systematics of the dynamical moment of inertia for the known nuclei in the transfermium and actinide region [21].

de la fusion-évaporation que nous cherchons à étudier. Par conséquent, l'utilisation d'un séparateur pour discriminer les noyaux d'intérêt est indispensable. Les mesures spectroscopiques utilisent la sélectivité du séparateur pour assurer la parenté des rayonnements mesurés. On distingue la spectroscopie prompte, dont les mesures d'intérêt principal ont lieu au niveau de la cible, de la spectroscopie retardée, dont les mesures ont lieu en aval de la cible. Ces deux techniques sont complémentaires. Le principe de ces deux méthodes est présenté sur la figure 2.4.



FIGURE 2.4 – Principe de la spectroscopie retardée et de la spectroscopie prompte et disposition des détecteurs utilisés. / *Principle of the delayed spectroscopy and prompt spectroscopy and layout of the detectors*.

La spectroscopie retardée

La spectroscopie retardée est basée sur l'identification du noyau par sa décroissance [21]. Elle nécessite des détecteurs installés au plan focal du séparateur. Plusieurs informations sont nécessaires à l'identification des noyaux de recul sélectionnés par le séparateur. On mesure le temps de vol du noyau ainsi que son dépôt d'énergie dans un matériau de référence. Ces deux grandeurs sont caractéristiques de la masse du noyau et permettent une première identification. La résolution de ces mesures est toutefois assez mauvaise (surtout dans le cas d'un séparateur à gaz, voir chap. 3), et la présence de produits de transfert issus de la cible ayant une masse et une énergie de recul proches viennent perturber cette sélection. L'énergie d'implantation du noyau vient ajouter une information supplémentaire permettant son identification. Le détecteur d'implantations doit permettre la mesure de la position (x,y). La détection d'une émission (généralement une particule α ou des fragments de fission) à la même position (x,y) dans un intervalle de temps donné permet d'identifier le noyau de manière certaine¹. De cette manière, tous les rayonnements émis entre l'implantation et la décroissance sont associés à ce noyau. Cette technique présente toutefois un inconvénient de taille dans le cas d'une décroisance α . Les particules α sont émises avec une énergie cinétique (5 à 9 MeV pour la région des noyaux transfermium) suffisante pour s'échapper du détecteur d'implantation. Leur énergie cinétique n'est donc pas toujours complètement déposée dans le détecteur d'implantation. De fait, on considère que l'efficacité de détection des particules α dans un détecteur d'implantation est de 50%². Dans le cas de noyaux

¹Cette technique n'est bien entendu valable que dans le cas de noyaux connus dont la décroissance a déjà été observée. L'identification de nouveaux éléments, notamment dans la région des noyaux superlourds requiert la détection d'une cascade de particules α aboutissant à des noyaux connus. Cette méthode spécifique est nommée "corrélation génétique"

²Les noyaux de recul s'implantent typiquement à des profondeurs de 1 à 10 μ m. Le parcours d'une particule α de 8 MeV dans le silicium est de l'ordre de 45 μ m. On en déduit que les particules α émises dans la direction d'entrée du noyau vont sortir du cristal

ayant une faible section efficace de production, il faut utiliser une autre méthode de sélection pour permettre une mesure spectroscopique correcte des rayonnements électromagnétiques. On peut dans ce cas utiliser les informations du temps de vol, du dépôt d'énergie et de l'énergie d'implantation pour identifier le noyau. Ces méthodes moins précises dans la détermination du noyau émetteur, mais de plus grande efficcacité, sont utilisées pour l'analyse du ²⁴⁶Fm au chapitre 6.

On place autour du détecteur d'implantation des détecteurs au germanium pour les rayons γ et X et au silicium pour les électrons de conversion. On observe ainsi la désexcitation du noyau identifié. Ces détecteurs nous fournissent des informations sur la désexcitation du noyau implanté et donc sur sa structure ou celle de ses fils. Cependant, le noyau a été produit dans la cible, de quelques microsecondes à quelques dizaines de microsecondes avant son implantation. Pendant cet intervalle de temps, le noyau s'est déjà fortement désexcité. Les rayonnements émis au plan focal par ce noyau ne peuvent correspondre qu'à la désexcitation à partir d'états isomériques [23]. Dès que le temps de vie de l'état métastable est supérieur au temps de vol dans le séparateur, sa décroissance vers le niveau fondamental peut être observée par cette méthode. Les rayons γ , X et les électrons de conversions émis dans ce cas nous renseignent sur ces structures métastables et en particulier sur la valeur de la projection K de l'état isomérique.

Cette méthode permet aussi d'étudier la structure des noyaux à partir de leur décroissance α . La mesure des intensités des différentes voies de décroisssance α fournit des informations sur le spin et la parité des noyaux père et fils [35]. Le spin et la parité de l'état final d'une décroissance α sont fortement dépendants de celui de l'état initial. Dans les noyaux impairs, la fragmentation de la décroissance à partir d'états excités permet d'obtenir des informations sur la structure du noyau.

Un paramètre important est à prendre en compte pour la mesure des particules α dans la région des noyaux transfermium. Les transitions électromagnétiques de basse énergie (transitions E2 inférieures à 200 keV et M1 inférieures à 400 keV [21]) sont fortement converties. Ces transitions sont généralement proches des états à partir desquels une émission α prend place. La sommation des énergies de recul de la particule α et des électrons de conversion fausse la mesure de l'énergie en surévaluant l'énergie de la particule α [18]. Il faut donc tenir compte de la conversion électronique lors de l'analyse des spectres α .

La spectroscopie prompte

La spectroscopie prompte mesure la désexcitation prompte du noyau composé. Autour de la cible sont placés des détecteurs de rayons γ , comme une sphère de détecteurs germanium telle que JUROGAM 2 (voir chapitre 3) ou un spectromètre à électrons tel que SACRED [36]. Les deux spectromètres peuvent être couplés comme dans le cas de SAGE [20] (voir chapitre 3). Ces spectromètres sont couplés au système décrit précédemment qui est utilisé pour l'identification des noyaux.

La figure 2.5 schématise la méthode de corrélation entre les deux spectromètres. Les noyaux produits sont identifiés au plan focal avec la sélection adéquate. La connaissance précise du temps de vol³ des produits de réaction dans le séparateur permet d'associer les émissions promptes aux informations du plan focal par coincidence temporelle retardée. Les rayonnements détectés au niveau de la cible au moment de la désexcitation prompte du noyau sont donc rétroactivement associés à ce dernier.

L'association peut être faite avec le seul noyau implanté (on parle de Recoil Tagging) ou avec sa décroissance (on parle de Recoil-Decay Tagging (RDT) [24, 25]). Ce choix dépend de la précision requise, du bruit de fond observé et de la statistique disponible. Comme nous le verrons au chapitre 6, l'utilisation des deux techniques est parfois nécessaire. La sélection des rayonnements par leur noyau émetteur permet de "nettoyer" considérablement les spectres enregistrés autour de la cible et surtout d'attribuer sans ambiguité

avant d'être arrêtées. La mesure de ces énergies ne pourra donc pas être prise en compte, supprimant environ 50% de la statistique.

³La précision requise dépend de la demi-vie du noyau étudié, mais surtout de la fréquence des évènements au plan de cible et au plan focal. Plus la fréquence sera élevée, plus la probabilité des corrélations aléatoires sera importante et donc la précision dans la connaissance du temps de vol importante.



FIGURE 2.5 – Principe de la méthode de corrélation temporelle pour la spectroscopie prompte avec la méthode dite du Recoil Tagging ou du Recoil-Decay Tagging appliqué au système expérimental installé à l'Université de Jyväskylä. / Layout of the time correlation for prompt spectroscopy using the Recoil Tagging or Recoil-Decay Tagging method applied to the experimental setup installed at the University of Jyväskylä.

les transitions observées au noyau émetteur. L'interaction du faisceau avec la cible ou encore avec le gaz du séparateur, dans le cas de RITU, produisent un rayonnement considérable qui "noie" les transitions qui nous intéressent. Dans le cas des noyaux de la région transfermium, les faibles sections efficaces ajoutées à la faible efficacité d'un spectromètre à rayons γ tel que JUROGAM 2 (5,46% à 121 keV) engendrent des statistiques extrêmement réduites. La qualité de la sélection a donc un impact important sur la validité des spectres obtenus et sur la qualité des mesures qui leur sont appliquées. La figure 2.6 illustre bien l'importance de l'identification des noyaux et de la sélection des rayons γ . L'analyse des mesures effectuées sur le ²⁴⁶Fm présentée au chapitre 6 en est un exemple encore plus frappant.



FIGURE 2.6 – Exemple du pouvoir de sélection de la méthode RDT pour la spectroscopie prompte par rayons γ , sur la réaction ¹⁴⁴Sm(³⁶Ar,4n)¹⁷⁶Hg. En haut : Spectre total des rayons γ . Au milieu : Rayons γ en coincidence avec un noyau détecté au plan focal de RITU (Recoil Tagging). Le spectre est dominé par la désexcitation du ¹⁷⁶Pt. En bas : Rayons γ en coincidence avec la particule α caractéristique du ¹⁷⁶Hg. [21] / *Example of the power of the RDT technique applied to prompt* γ *ray spectroscopy for the reaction* ¹⁴⁴Sm(³⁶Ar,4n)¹⁷⁶Hg. Top : Total singles γ ray spectrum. Middle : γ rays correlated to nuclei detected at the focal plane of RITU. The spectrum is dominated by the deexcitation of ¹⁷⁶Pt. Bottom : γ rays correlated to the characteristic α particle decay of ¹⁷⁶Hg. [21]

Il faut cependant noter que la qualité d'une sélection par décroissance α au plan focal permet d'assigner sans ambiguité les transitions à un noyau. En effet, les spectres α présentent en général un faible bruit de fond. Il est donc possible de "nettoyer" en grande partie le fond restant par des sélections additionnelles sur le temps de vol.

Ces techniques sont couramment utilisées lors d'expériences de spectroscopie nucléaire. Les instruments permettant de les appliquer sont décrits dans le chapitre suivant.

Chapitre 3

Instruments pour la spectroscopie des éléments très lourds

3.1 Abstract

During my thesis, I took part in spectroscopy experiments at the Accelerator Laboratory of the University of Jyväskylä and at the Flerov Laboratory for Nuclear Reactions in Dubna.

The Accelerator Laboratory at the University of Jyväskylä

The Accelerator Laboratory of the University of Jyväskylä hosts an ensemble of detectors designed for γ -ray spectroscopy using the Recoil Decay Tagging method. The spectrometer JUROGAM 2 is composed of 39 Compton-suppressed High Purity Germanium detectors placed around the target position (see fig. 3.2 page 52). Twenty four clover detectors from the former EUROGAM array are disposed in two rings around 90° and fifteen EUROGAM Phase I tapered detectors are placed at the backward angles (see fig. 3.3 page 53). The array covers 30.27% of 4π with an efficiency of 5.95% at 1.33 MeV [37]. The detectors have been instrumented using TNT2D digital acquisition cards to record the signals from the Germanium detectors and their BGO shields. The use of digital electronics allows to deal with γ -ray counting rates up to at least 36 kHz per clover crystal with reasonable energy resolutions. The improvements brought by the use of digital electronics for prompt γ -ray spectroscopy will be detailed in chapter 4.

The gas-filled separator RITU (Recoil Ion Transport Unit) [38, 39] is designed for the study of heavy ions through decay tagging. The formula of the separator (QDQQ) (see fig. 3.4 page 55) is optimized to ensure the best possible transmission for the recoiling nuclei produced in fusion-evaporation reactions [38]. Specifically, the first quadrupole focalizes the beam spot vertically in order to fit the acceptance of the magnetic dipole. The transmission of RITU varies also depending on the thickness of the target and the reaction, ranging from 2% for light projectiles (N, O, Ne) to 25% for heavier ones (Ca,Ti, Cr) (see fig. 3.5 page 55)[40]. The use of gas inside the volume of RITU focalizes the charge distribution of the ions on an average value depending on Z. The magnetic rigidity of the separator is then changed to $B\rho \approx 0.0227A/Z^{1/3}$, therefore changing the selection from $B\rho = mv/q$ to A/q. Then the ions follow a trajectory centered on the average charge of the ion (see fig. 3.6 page 56). Therefore all charge states are transported to the focal plane. This leads to a better transmission of the produced nuclei by reducing the spatial spread in the separator. The main characteristics of RITU are summarized in table 3.1 page 57.

The nuclei transported through RITU are implanted into the focal-plane spectrometer GREAT (see fig. 3.7 page 58) [41]. GREAT is composed of several detectors that measure the characteristics of the recoiling nuclei and their decays. Immediately after the separator is placed the MultiWire Proportionnal Chamber (see

fig. 3.8 page 59), which records the energy loss and stops the time of flight measurement in coïncidence with the implantation detector. It is composed of an isobutane volume enclosed by mylar windows $(120\mu g/cm^2)$. The position of the recoiling nuclei is recorded by two position-sensitive wire planes in X and Y coordinates with a precision around 1 mm. The anode situated at the center of the chamber is an aluminium covered mylar foil, used to record the energy loss.

The nuclei are implanted downstream in a Double Sided Silicon Strip Detector. The detector is composed of two juxtaposed crystals with active areas of $60x40 \text{ mm}^2$ and a thickness of $300 \mu \text{m}$. The strips have a pitch of 1 mm and create 4800 pixels. The amplification of both sides is independent to allow the detection of different particles of interest.

The diode tunnel is placed upstream from the DSSSD to detect the conversion electrons and alpha particles escaping from the site of implantation. The detector is composed of 28 PIN photodiodes with an active area of 28x28 mm² and a thickness of 500 μ m. This geometry gives a collection efficiency of 30%. The energy resolution is measured to be 5 keV for conversion electrons [41].

Behind the DSSSD is placed a planar germanium detector. This detector measures low energy γ -rays and X-rays as well as high energy β particles that could pass through the stop detector. The active area is 120x60 mm² for a thickness of 15 mm. The detection efficiency for 100 keV γ -rays is 30% as seen on fig. 3.9 page 60.

In order to study the delayed γ -ray emissions for isomeric states or the spectroscopy of daughter nuclei, a large volume clover germanium detector is placed above the focal plane. This detector completes the planar detector for higher energy γ -rays, with a 5% collection efficiency above 200 keV (see fig. 3.9 page 60). Additional germanium detectors can be disposed around the focal plane to complete this setup.

The Flerov Laboratory for Nuclear Reactions

The GABRIELA spectrometer is the result of a franco-russian collaboration between the CNRS/IN₂P₃ and the JINR. The spectrometer is placed at the focal plane of the VASSILISSA separator at the Flerov Laboratory for Nuclear Reactions in Dubna. VASSILISSA is an electromagnetic separator composed of two stages of separation (see fig. 3.11 page 62). Three electric dipoles discriminate the fusion-evaporation products from the other reaction products. The first dipole selects the recoiling nuclei with respect to their speed in order to suppress the beam-like components. The two following dipoles suppress the transfer products with a selectivity higher than 10^4 [42]. The second stage separation is ensured by a magnetic dipole. The 37° magnet has been replaced by the original 8° dipole to increase the transmission of the separator for transfermium elements to 5% [43]. The VASSILISSA separator has a transmission ranging from 1% to 40% for reactions using respectively beams of 16 O to 48 Ca.

The GABRIELA spectrometer (fig. 3.12 page 64) is designed for the delayed spectroscopy of transfermium elements with a special emphasis of the detection of K-isomers. The time of flight measurement is made by a succession of two MicroChannel Plate modules (shown on fig. 3.13a and 3.13b page 64) placed 40 cm apart. The recoiling ion passes through gold-covered formvar foils whose secondary electrons are collected by the two MCPs placed at 90° on each side of the foil. The time measurement is made through a Time to Amplitude Converter giving a time resolution as low as (400±30) ps. The thickness of the formvar foils has been reduced from 20-30 μ g/cm² to 15-20 μ g/cm² in order to increase the transmission of fusion-evaporation products with low recoiling velocities.

The nuclei are then implanted in a stop detector. The original silicon crystal was 60x60 mm² by 300 μ m with sixteen resistive strips cooled through the supporting frame (see fig. 3.14 page 65) [44]. This detector was replaced in 2009 by a Double Sided Silicon Strip Detector of 60x60 mm² by 300 μ m with 48 strips on each side (1.15 mm strip width on the front and 0.97 mm at the back). The front side is instrumented with three independent preamplifiers and the back side with two. These preamplifiers allow the use of specific gains in order to detect the implantation energy, the decay through α emission or spontaneous fission and

conversion electrons. The cooling of the crystals allows an energy resolution down to 17 keV for α particles [43, 45].

Upstream from the stop detector is placed a tunnel of silicium detectors as shown on fig. 3.14. The tunnel is designed to detect α -particles and conversion electrons escaping from the DSSSD. The original detector was composed of four 50x50 mm² by 500 μ m silicon crystals segmented in four strips along the beam axis [44]. The new detector uses four 50x60 mm² crystals with thicknesses of 0.715 mm, 0.740 mm and 1 mm. The crystals are segmented in 32 strips chained four by four in order to minimize the channel number. The detector was not cooled during the 2009 campaign, leading to an energy resolution of 20 keV instead of 10 keV with -20°C cooling. The detection efficiency is measured to be of the order of 18% for 100-550 keV electrons (see fig. 3.15b page 65).

The focal plane is surrounded by seven High-Purity germanium detectors from the French-UK Loan Pool (see fig. 3.12 page 64). Six Compton-suppressed crystals are arranged in a star configuration centered on the stop detector. The seventh crystal is unsuppressed and placed directly at the back of the DSSSD with a distance as short as possible between the germanium and the Silicon crystals . The casing of this last detector as well as the thickness of the implantation detector housing have been reduced as much as possible to increase the γ -ray detection efficiency of the spectrometer (see fig. 3.16 page 67). The germanium array has a γ -ray detection efficiency of 16% at 100 keV and 5.4% at 665 keV [43].

Upcoming detectors for the spectroscopy of the transfermium elements

SAGE

The SAGE spectrometer (Silicon And GErmanium spectrometer) is the combination of the JUROGAM 2 array and an electron spectrometer (see fig. 3.17 page 68). This spectrometer will allow to complete the prompt γ -ray measurements with the conversion electrons from the low energy transitions in the transfermium elements. The electron detector is a segmented silicon disc placed at -176.8° with respect to the beam direction. The electrons are guided by two solenoids placed around the target and directed backwards to the detector (see fig. 3.18 page 3.18). The δ electrons produced by the interaction of the beam with the target are suppressed by a high voltage barrier and the position of the detector. The detection efficiency is estimated to 9.5% for 200 keV conversion electrons [20].

Upgrade of the VASSILISSA separator

The separator VASSILISSA has an insufficient transmission for the study of nuclei produced in asymmetric reactions. In order to improve this transmission, the architecture of the separator is to be changed from the original three electric dipoles to two successive couples of electric and magnetic dipoles as shown on fig. 3.19 page 70. The separator will be changed into a velocity filter. In order to accompany this upgrade, the detectors of GABRIELA will also be modified. The DSSSD will be expanded to 100x100 mm² with 128x128 strips. The electron tunnel will be composed of four crystals of 100x60 mm². The back germanium detector will be replaced by a clover detector in order to cover the area of the DSSSD. The electronics will also be upgraded.

The Super Separator Spectrometer S³ for SPIRAL2

This new separator will be installed at GANIL as part of the SPIRAL2 project, in order to use very high intensity stable beams for

- the synthesis of superheavy elements,
- the spectroscopy of nuclei in the transfermium region,
- the spectroscopy of nuclei in the 100 Sn region.

The separator is composed of two stages as shown on fig. 3.20 page 71. The first stage is a momentumachromat with a 1/1000 rejection power. The second stage is a mass-achromat with a mass resolution of 1/300. An intermediary target plane can be installed between the two stages, at the focal plane of the first stage. The separator is designed to be compatible with recoil-decay tagging experiments. A detection system is designed specifically for the focal plane of S³ on the principle of GREAT and GABRIELA (see fig. 3.21 page 72). The time of flight measurement will be made by Secondary Electron Detectors. The stop detector will be a 100x100 mm² DSSSD with 128x128 strips. The thickness and doping of the crystal are still under discussion. A second Silicon crystal could be installed behind the DSSSD as a punch-through veto detector. The conversion electrons and α -particles escaping the implatation detector will be received in a tunnel of four 100x100 mm² silicon crystals placed upstream. The focal plane will be surrounded by seven EXOGAM clover detectors for the detection of γ -rays in a configuration similar to GABRIELA (see fig. 3.22) page 73. This germanium array has an estimated maximum detection efficiency of 55% at 100 keV [46].

3.2 Instruments pour la spectroscopie des éléments très lourds

Au cours de ma thèse, j'ai participé à des expériences utilisant des systèmes de détection dédiés à la spectroscopie prompte et à la spectroscopie par décroissance. Ces expériences se sont déroulées au sein de deux laboratoires en particulier : le Département de Physique de l'Université de Jyväskylä et le Laboratoire Flerov pour les Réactions Nucléaires (FLNR) à Dubna (Russie). Dans ce chapitre seront décrits les systèmes de détection utilisés pour la spectroscopie prompte et retardée à l'Université de Jyväskylä et pour la spectroscopie par décroissance au FLNR.

3.2.1 Le Laboratoire de l'Accélérateur à l'Université de Jyväskylä

Le Département de Physique de l'Université de Jyväskylä en Finlande, le JYFL (Jyväskylä Yliopisto Fisiikan Laito), abrite un ensemble de détecteurs permettant de faire de la spectroscopie par rayons- γ en utilisant la méthode dite du "Recoil-Decay-Tagging" (RDT) : le spectromètre γ JUROGAM 2, le séparateur RITU et le multi-détecteur GREAT (voir figure 3.1). Les expériences sont réalisées auprès du cyclotron K130 équipé de deux sources ECR de 14GHz [47] ou de 6,4 GHz [48] de fréquence. La présence de JUROGAM 2 est le fruit d'un investissement du groupe de Physique Nucléaire et d'années d'expérience dans le domaine, qui font de l'Université de Jyväskylä une des rares installations en Europe permettant de réaliser des expériences de spectroscopie en rayons γ prompts.



FIGURE 3.1 – Le système de détection installé au Laboratoire de l'Accélérateur de l'Université de Jyväskylä est composé du spectromètre à rayons γ JUROGAM 2, du séparateur magnétique à gaz RITU et du spectromètre de plan focal GREAT [49]. / *The detection setup installed at the Accelerator Laboratory of the University of Jyväskylä is composed of the* γ *-ray spectrometer JUROGAM 2, the gas-filled recoil separator RITU and the focal plane spectrometer GREAT* [49].



FIGURE 3.2 – Le spectromètre à rayons γ JUROGAM 2. / The γ -ray spectrometer JUROGAM 2.

JUROGAM 2

JUROGAM 2 est la troisième version de spectromètre à rayons- γ installé à l'Université de Jyväskylä après JUROSPHERE [50] et JUROGAM. Il est composé de 39 détecteurs au germanium hyper-pur issus de la collaboration EUROGAM, dont 24 cristaux de type trèfle et 15 détecteurs de type tronconique comme indiqué sur la figure 3.3.

Les détecteurs sont répartis sur une sphère autour de la cible de la manière suivante :

- deux anneaux de 12 détecteurs de type trèfle orientés respectivement à 75,5° et 104,5° par rapport à la direction du faisceau,
- dix cristaux tronconiques sont disposés à l'arrière autour de la ligne de faisceau à 133,57°,
- cinq détecteurs de type tronconique peuvent être placés sur un dernier anneau à 157,6°.

Les cinq derniers cristaux laissent pour l'instant la place au spectromètre à électrons SAGE qui sera décrit dans la section 3.2.3. Dans sa configuration complète, JUROGAM 2 affiche une efficacité de détection γ de 5,95 % à 1,33 MeV pour une couverture angulaire de 30,27 % de 4 π [37].

Chaque cristal de germanium est protégé des échappements Compton par des enceintes formées de cristaux de germanate de bismuth (BGO) [51]. Les figures 3.3 (b) et (c) montrent respectivement la structure d'un bouclier anti-diffusion Compton associé à un détecteur germanium de type tronconique et son enveloppe. Un photon diffusé par effet Compton dans le cristal de germanium a de grandes chances de ne pas y perdre la totalité de son énergie. La mesure d'une partie de l'énergie initiale du photon tandis que l'énergie résiduelle est déposée hors du cristal de germanium contribue au bruit de fond continu, ce qui pollue les coïncidences entre rayons γ . Les photons diffusés sont détectés dans les cristaux de germanate de bismuth



FIGURE 3.3 – Schéma du spectromètre JUROGAM 2 qui utilise la structure de l'ancien spectromètre EU-ROGAM 2. (a) Vue latérale de la structure générale du spectromètre. (b) Coupe d'un détecteur germanium de type tronconique inséré dans son enceinte anti diffusion Compton. (c) Enceinte des cristaux de BGO pour un détecteur germanium de géométrie tronconique. (d) Vue extérieure d'un détecteur germanium de type trèfle. (e) Ensemble des quatre cristaux de germanium formant un détecteur de type trèfle [6]. / *Diagram of the spectrometer JUROGAM 2 that uses the structure of the former germanium array EUROGAM 2. (a) Side view of the general structure of the spectrometer. (b) Cross-section of a tapered germanium detector encased in its BGO shield. (c) Housing of the BGO shields for a tapered germanium detector. (d) External view of a clover germanium detector. (e) Group of four germanium crystals composing a clover detector [6].*

dont la scintillation est convertie en signal électrique par les photomultiplicateurs associés. Le signal issu des photomultiplicateurs est utilisé comme veto pour l'acquisition des signaux du détecteur germanium. Les détecteurs tronconiques sont associés à un seul signal provenant de l'enceinte anti-diffusion Compton, les photomultiplicateurs du bouclier étant chainés. Pour les détecteurs trèfle, le bouclier est séparé en deux, une moitié des photomultiplicateurs sert de veto pour les deux cristaux qu'elle entoure.

Les détecteurs de JUROGAM 2 ont été instrumentés par des cartes TNT2D produites par l'IPHC Strasbourg [52]. L'ensemble représente 106 voies numériques pour l'acquisition des signaux issus des détecteurs germanium ainsi que 58 voies veto provenant des enceintes anti-diffusion Compton. Les cartes numériques traitent les signaux plus rapidement et présentent un temps mort plus faible, ce qui autorise le doublement du taux de comptage dans les détecteurs.

Par conséquent, les taux de comptage acceptables dans les détecteurs au germanium situés au plan de cible ont été relevés de 15 kHz à 36 KHz pour des cristaux de type tronconique, soit un taux de comptage cumulé de 144 kHz pour les quatre voies d'une carte TNT2D. L'électronique analogique qui instrumentait JUROGAM à l'origine permettait une intensité de faisceau de 40 pnA maximum sur la cible. Le passage à une électronique numérique avec les cartes TNT2D a permis de relever ce chiffre à 71 pnA. De plus, la réduction du temps mort permet de traiter un plus grand nombre de coups et de résoudre des évènements qui se seraient empilés dans un système plus lent. Les améliorations apportées par les cartes TNT2D sur JUROGAM et JUROGAM 2 seront détaillées au chapitre 4 dédié à cette partie de mon travail de thèse.

RITU

Le séparateur RITU (Recoil Ion Transport Unit) [38, 39] est un séparateur magnétique à gaz conçu pour l'étude des ions lourds par identification de leur décroissance. La formule optique du séparateur est optimisée pour la sélection des noyaux lourds formés par fusion-évaporation. La composition classique d'un séparateur magnétique (Dipôle magnétique + Quadrupôle vertical + Quadrupôle horizontal) a été complétée par un quadrupôle vertical avant l'entrée dans le dipôle comme le montre la figure 3.4.

Cet aimant permet de focaliser verticalement les noyaux issus de la cible afin d'adapter leur trajectoire à l'acceptance du dipôle magnétique. De cette façon, un plus grand nombre de noyaux produits dans la cible pénètrent dans le séparateur et la transmission de ce dernier est améliorée. Cette conception a volontairement sacrifié le pouvoir de résolution en masse au profit de la transmission afin d'accéder à des noyaux ayant une section efficace de fusion-évaporation de l'ordre du nanobarn. Le quadrupôle définit les dimensions de l'ouverture angulaire du séparateur à 80 milliradians verticalement et 30 milliradians horizontalement, soit un angle solide de 10 millistéradians. Outre sa géométrie, la transmission d'un séparateur dépend également de l'épaisseur de la cible et de la réaction utilisée. Dans le cas de RITU, la transmission varie entre 2% pour les projectiles légers (N, O, Ne) et 25% pour les projectiles lourds (Ca, Ti, Cr) comme on peut le voir sur la figure 3.5 [40]. En effet, la dispersion angulaire due aux neutrons, et surtout celle due aux interactions coulombiennes dans la cible sont fortement dépendantes de la vitesse de recul qui est plus faible dans le cas des faisceaux légers.

Les deux autres quadrupôles permettent de focaliser le faisceau sur le plan focal afin de limiter sa dispersion et donc son étalement spatial.

Le dipôle magnétique assure la fonction de séparation grâce à l'action de la force de Lorentz. Une particule de masse *m* et de charge *q* se mouvant à une vitesse *v* perpendiculairement à un champ magnétique homogène de norme *B* aura une rigidité magnétique notée $B\rho$ définie par la relation

$$B\rho = \frac{m\nu}{q}[T.m] \tag{3.1}$$

où ρ décrit le rayon de la trajectoire de la particule. La trajectoire d'un noyau dans un séparateur magnétique dépend donc de sa masse, de sa charge et de sa vitesse. La fonction de séparation et de réjection du séparateur



FIGURE 3.4 – Schéma du séparateur magnétique à gaz RITU (Recoil Ion Transport Unit) de type QDQQ (D : dipôle, Q : quadrupôle) au Département de Physique de l'Université de Jyväskylä [53]. / Layout of the gas-filled recoil separator RITU (Recoil Ion Transport Unit) of QDQQ type (D : dipole, Q : quadrupole). RITU is installed at the Accelarator Laboratory in the University of Jyväskylä [53].



FIGURE 3.5 – Simulation de l'acceptance de RITU en fonction de l'épaisseur de la cible pour deux réactions de fusion-évaporation avec différents rapports de masse. Plus la réaction est asymétrique, plus l'acceptance décroît rapidement (d'après [40]). / Simulation of the acceptance of RITU as a function of the target thickness for two fusion-evaporation reactions with different mass ratios. The more asymmetric the reaction, the lower the acceptance. (From [40]).



FIGURE 3.6 – Trajectoires des ions soumis au champ d'un dipôle magnétique pour un séparateur sous vide (a) et rempli de gaz (b). Dans le séparateur sous vide les ions d'un même élément suivent des trajectoires distinctes selon leur état de charge. Lorsque le séparateur est rempli de gaz, les trajectoires sont regroupées et centrées sur celle de l'état de charge moyen de l'élément [53]. / Ion paths in a dipole magnetic field within a vaccum separator (a) and a gas-filled separator (b). In the vaccum separator, ions from a same element follow distinct trajectories depending on their charge state. If the separator volume is filled with gas, the trajectories are gathered and focused on the trajectory of the average charge state of the element [53].

est basée sur cette relation. Chaque état de charge d'un même ion s'implante à une position différente au plan focal et la distribution spatiale des ions sélectionnés peut être très large. Il est donc difficile voire impossible d'observer la totalité des ions produits dans la cible.

Ce problème a été résolu pour RITU en remplissant ce séparateur d'un gaz à basse pression tel que l'hydrogène ou l'hélium. La présence d'un gaz dans le séparateur permet de focaliser la charge des ions sur une valeur moyenne dépendante de Z. En effet, les collisions entre les ions produits et les molécules de gaz vont engendrer des échanges de charges. Selon la théorie de Bohr sur l'atome [54], tous les électrons se déplaçant à une vitesse orbitalaire inférieure à une vitesse $v_o = 2, 19.10^6$ m/s (vitesse de Bohr) sont arrachés lors d'une collision. Le modèle de l'atome de Thomas-Fermi permet de calculer que le nombre moyen d'électrons arrachés est

$$\overline{q} = \frac{v}{v_o} Z^{1/3} \tag{3.2}$$

pour des vitesses comprises dans l'intervalle $1 < v/v_o < Z^{1/3}$. Au terme d'un nombre suffisant de collisions, la trajectoire des ions ne dépend plus de leur état de charge initial et suit celle de l'état de charge moyen \overline{q} . La rigidité magnétique devient donc

$$B\rho = \frac{mv}{e\overline{q}} = \frac{mv}{\left[\frac{ev}{v_o}Z^{1/3}\right]} \approx 0,0227\frac{A}{Z^{1/3}} \quad [T.m]$$
(3.3)

Les ions d'un même élément suivront donc tous une trajectoire similaire centrée sur celle définie par la charge moyenne \overline{q} comme illustré dans la figure 3.6.

La totalité des états de charge sont donc transportés au plan focal du séparateur. Pour cette raison, la transmission d'un séparateur à gaz est meilleure que celle d'un séparateur sous vide. La focalisation de l'état de charge se fait toutefois au détriment de la résolution en masse. La sélection des noyaux doit être affinée

par l'utilisation de détecteurs situés au plan focal comme un compteur proportionnel ou une mesure de temps de vol.

Le séparateur RITU accepte des rigidités magnétiques jusqu'à 2.2 Tm et possède une résolution en masse de $\Delta A/A=1/100$ sous vide. Pour la séparation des noyaux dans la région transfermium, RITU est rempli d'hélium à une pression voisine de 1 mbar. Les principales caractéristiques du séparateur RITU sont présentées dans le tableau 3.1.

TABLE 3.1 - Caractéristiques du séparateur RITU [38]. / Characteristics of the RITU separator [38].

| Configuration | $Q_v \mathrm{D} Q_h Q_v$ |
|--------------------------|--------------------------|
| Rigidité magnétique max. | 2,2 T.m |
| Rayon de déviation | 1,85 m |
| Acceptance verticale | $\pm 80 \text{ mrad}$ |
| Acceptance horizontale | $\pm 30 \text{ mrad}$ |
| Acceptance angulaire | 10 msr |
| Dispersion | 10 mm/% |
| Angle de déviation | 25° |
| Longueur totale | 4,8 m |

GREAT

Le plan focal de RITU est équipé d'une succession de détecteurs dont l'association permet d'identifier les noyaux issus de la réaction ayant traversé RITU et d'en détecter la décroissance. Ces détecteurs forment le spectromètre GREAT [41, 55]. Il est composé des éléments suivants :

- un compteur proportionnel à fils (MWPC) pour mesurer le dépôt d'énergie et permettre la mesure du temps de vol,
- un détecteur silicium double face à pistes (DSSSD) pour mesurer l'implantation des noyaux et leur décroissance α et β,
- un tunnel des diodes silicium pour mesurer les électrons de conversion,
- un germanium planaire pour mesurer les rayons γ de basse énergie,
- des germaniums trèfles pour mesurer les rayons γ au delà de 200 keV.

GREAT est un détecteur développé par le groupe de Physique Nucléaire de Daresbury en collaboration avec les universités de Liverpool, York, Manchester, Surrey, Keele et Jyväskylä.

le compteur proportionnel à fils (MWPC) Le compteur proportionnel à fils (Multi-Wire Proportionnal Counter) consiste en une enceinte fermée par deux fenêtres en mylar de $120 \ \mu g/cm^2$ contenant de l'isobutane à 3 mbars. Les fenêtres permettent d'isoler le compteur de l'hélium contenu dans RITU et du vide dans lequel opèrent les détecteurs de GREAT. Dans le volume de gaz sont situés un plan de fils enregistrant la position en X, une anode en mylar aluminisé ($240 \ \mu g/cm^2$) et un plan de fils enregistrant la position en Y. La postion du faisceau est obtenue par une mesure résistive dans les deux plans de fils avec un pas de 1 mm. La résolution spatiale est similaire à celle du DSSSD. Le passage d'un noyau ionise les films d'aluminium de l'anode, arrachant des électrons de part et d'autre du film de mylar. Le signal causé par cette ionisation donne le dépôt d'énergie caractéristique de l'ion et fournit le signal d'arrêt de la mesure du temps de vol. Les



FIGURE 3.7 – Disposition des détecteurs du spectromètre GREAT placé au plan focal du séparateur RITU [41]. / *The GREAT spectrometer* [41].

électrons sont accélérés par les champs électriques régnant de part et d'autre de l'anode vers les cathodes à chaque extrémité du détecteur. La collection des électrons sur les fils résitifs fournit une information de position. Une coordonnée est fournie par le fil touché et l'autre par les signaux reçus à chaque extrémité du fil. L'anode fournit la valeur du dépôt d'énergie spécifique de l'ion traversant le film de mylar. Ce signal est aussi employé pour la mesure du temps de vol effectuée entre le compteur proportionnel à gaz et le détecteur d'implantation. Le signal collecté à l'anode du compteur proportionnel à gaz est retardé jusqu'à l'arrivée d'un signal en provenance de détecteur silicium. La différence en temps est convertie en amplitude pour donner la valeur du temps de vol entre les deux détecteurs.



FIGURE 3.8 – Schéma de principe du compteur proportionnel à gaz. / Working scheme of the multiwire proportionnal counter.

Les détecteurs d'implantation (Double Sided Strip Silicon Detector) Les noyaux sont implantés dans deux cristaux de silicium de 60 mm de large, 40 mm de haut et de 300 μ m d'épaisseur, séparés de 4 mm et situés en aval du compteur proportionnel à fils. Les cristaux sont segmentés en pistes avec un pas de 1 mm, formant 4800 pixels.

Les détecteurs d'implantation de GREAT sont montés sur une structure creuse qui permet la circulation d'un liquide permettant de les refroidir jusqu'à -20°C. Le maintien de la température des cristaux à une valeur aussi basse permet de réduire les courants de fuite qui prennent place dans les détecteurs au silicum et affectent la résolution en énergie.

Les détecteurs d'implantation permettent la mesure de l'énergie d'implantation d'un noyau ainsi que l'énergie de recul des particules α et β émises lors de sa décroissance. Afin de permettre un réglage adéquat pour les gammes d'énergie associées à chacune de ces particules, l'amplification des deux faces du DSSSD est indépendante. On peut donc utiliser la face avant (segmentée verticalement) pour détecter les électrons de conversion et la face arrière (segmentée horizontalement) pour détecter l'implantation des noyaux de recul et leur décroissance α . On utilise en général une amplification de 12 keV par canal pour les électrons et de 32 keV par canal pour les noyaux de recul et les particules α . La corrélation des signaux des deux faces permet d'obtenir la position du noyau implanté et de contraindre spatialement la recherche de ses décroissances.

L'efficacité totale de collection des noyaux de recul, acceptance du séparateur déduite, est estimée à environ 95%.

Le Tunnel de diodes PIN L'implantation d'un noyau de recul a généralement lieu entre 1 et 10 μ m dans le silicium du détecteur d'implantations. Les électrons de conversion ou certaines particules α émise vers l'arrière ont donc une forte probabilité de s'échapper du détecteur d'implantation¹. Pour cette raison, leur énergie est mesurée dans un tunnel de diodes placé en amont du détecteur d'implantation. Il est constitué de vingt-huit photodiodes PIN avec une surface active de 28 mm par 28 mm et une épaisseur de 500 μ m. Les diodes atteignent une résolution en énergie de 5 keV pour des électrons et le tunnel offre une efficacité géometrique de 30% environ [41].

Le refroidissement des photodiodes est assuré par le même circuit que celui du détecteur d'implantations.

Le germanium planaire En aval du détecteur d'implantation se trouve un détecteur germanium planaire. Il mesure les rayons-X et les rayons- γ de faible énergie (entre ~10 keV et ~200 keV) en complément des détecteurs disposés autour du plan focal. Il peut aussi enregistrer des particules β de haute énergie qui auraient traversé le détecteur d'implantation. Sa surface active mesure 120 mm par 60 mm sur 15 mm d'épaisseur. Les deux faces du cristal sont segmentées avec un pas de 5 mm d'intervalle afin d'obtenir une mesure de la position cohérente avec la résolution spatiale du détecteur silicium. Le détecteur au germanium planaire présente une efficacité de collection des rayons γ atteignant les 30% à 100 keV comme l'indiquent les résultats de la simulation présentée sur la figure 3.9.



FIGURE 3.9 – Simulation Monte Carlo de l'efficacité absolue du germanium planaire et du détecteur germanium trèfle en fonction de l'énergie des rayons- γ . La simulation réalisée sous GEANT suppose une distribution de source réaliste et prend en compte l'atténuation dans les matériaux environnants [41]. / *Monte Carlo simulation of the* γ *-ray detection efficiency for the planar and clover germanium detector in GREAT. The simulation was conducted with GEANT, taking into account a realistic source distribution and the neighbouring materials absorption* [41].

Le germanium de type trèfle Les rayons γ au-delà de 200 keV sont détectés dans le cristal de germanium de type trèfle placé au dessus du détecteur d'implantation et du détecteur germanium planaire. Le détecteur

¹Un électron de 100 keV parcours 85 μ m dans du silicium avant son arrêt complet. Une particule α de 5 MeV parcours 30 μ m

| A2 | A1 | B3 | ľ | B2 |
|--------------------------|------|---------------------|-----|---------------|
| 348 | 345 | 324 | | 321 |
| p2 A0 | p1 | p5 | BO | p6 |
| 344 | | $ \longrightarrow $ | 320 | \rightarrow |
| | | | c1 | / |
| A3 \ 00 | A4 | B4 | | B 1 |
| 347 | 346 | 323 | | 322 |
| p3 | p0 | p4 | | p7 |
| D1 | D4 | C4 | Í | C3 |
| 340 | 337 | 332 | | 329 |
| p15 D0 | p12 | p8 | | p11 |
| 336 | | | 328 | |
| | | | 20 | / |
| D2 \sim c ³ | / D3 | C1 | | C2 |
| 339 | 338 | 331 | | 330 |
| p14 | p13 | р9 | | p10 |

FIGURE 3.10 – Dénominations des cristaux du détecteur de type trèfle de GREAT. La position des cristaux est visualisée de dessous avec les pieds pointant dans la direction du faisceau. A0 = Denomination ORTEC. 344 = Numéro du canal de l'amplificateur. c0 = Dénomination dans le logiciel d'analyse GRAIN [56]. / Naming of the crystals for the clover detector of GREAT. The position of the crystals is seen form under with feet pointing in the beam direction. A0 = ORTEC nomenclature. 344 = Amplifier channel number. c0 = GRAIN nomenclature [56].

est composé de quatre cristaux de 105 mm de long et d'un diamètre de 70 mm avant taille. Les premiers 30 mm de chaque cristal sont fuselés avec un angle de 15° sur les deux faces extérieures comme le montre la figure 3.3e. Chaque cristal est segmenté en quatre comme indiqué sur la figure 3.10.

Le détecteur trèfle possède une efficacité absolue de collection des rayons γ simulée à 5 % au-delà de 200 keV. Le cristal est inséré dans une enceinte anti-diffusion Compton de 185 mm de long, formée de cristaux de germanate de bismuth [41]. La détection des rayons γ au plan focal peut être complétée par d'autres détecteurs au germanium autour du plan focal.



FIGURE 3.11 – Le séparateur électromagnétique VASSILISSA au FLNR à Dubna. Les trois dipôles électrostatiques séparent les produits issus du mécanisme de la fusion-évaporation du faisceau résiduel et des produits de transfert. Le dipôle magnétique supprime le faisceau diffusé [57, 58, 59]. / *The electromagnetic separator VASSILISSA at the FLNR Dubna. The three electrostatic dipoles discriminate the fusion-evaporation products from the residual beam and transfert products. The magnetic dipole suppresses the scattered beam* [57, 58, 59].

3.2.2 Le Laboratoire Flerov pour les Réactions Nucléaires

Le polyspectromètre GABRIELA [44] est né d'un collaboration franco-russe. Il est placé au plan focal du séparateur VASSILISSA [57, 58, 59] au Flerov Laboratory for Nuclear Reactions à Dubna en Fédération de Russie. Cet instrument a pour objectif d'étudier les noyaux dans la region transfermium en spectroscopie retardée. Il se concentre particulièrement sur la recherche et la mesure d'états isomériques de haut K dans cette région. Le choix de VASSILISSA a été motivé par la possibilité d'utiliser des cibles radioactives pour la production de noyaux par réaction de fusion-évaporation très asymétriques. Cet objectif n'a pas encore pû être réalisé en raison de la transmission insuffisante de VASSILISSA. La mise à jour qui permettra de réaliser ce programme est en cours et sera décrite dans la section 3.2.3.

VASSILISSA

Le séparateur VASSILISSA fut installé en 1987 au FLNR auprès du cyclotron U400. Il s'agit d'un séparateur électromagnétique de structure QQQ E E E QQQ D (où Q sont des quadrupôles magnétiques, E des dipôles électrostatiques et D un dipôle magnétique). Présenté sur la figure 3.11, VASSILISSA possède une acceptance angulaire de 15 msr (soit 4° verticalement et horizontalement), définie par le premier quadrupôle après la cible. La transmission des produits de réaction dans le séparateur varie entre 1% et 40% pour des réactions utilisant des faisceaux allant respectivement du ¹⁶O au ⁴⁸Ca [42, 60, 61]. Les noyaux de recul produits dans la cible sont déviés dans le premier dipôle électrique tandis que le faisceau n'ayant pas réagi poursuit sa trajectoire pour venir s'arrêter dans la cage de Faraday. En effet, son énergie cinétique est notablement plus importante que celle des produits de réaction et le rayon de courbure de sa trajectoire est donc plus important. La suppression du faisceau est supérieure à 10^{14} .

Les deux dipôles suivants assurent la suppression des produits de transfert avec une sélectivité supérieure à 10^4 [42]. La rigidité électrique $E\rho$ de l'élément est définie par

$$E\rho = \frac{\gamma M v^2}{q} \tag{3.4}$$

exprimé en Volts, où *M* est la masse de l'ion, *v* sa vitesse et *q* son état de charge. Le séparateur VASSILISSA accepte des rigidités électriques jusqu'à 2 MV dans sa forme actuelle.

La dernière étape de séparation a lieu dans le dipôle magnétique situé juste avant le plan focal de VAS-SILISSA. Ce dipôle dévie les ions de 37° et permet une suppression du faisceau diffusé d'un facteur 10 à 50.

Ce dernier élément a été remplacé par l'aimant originial de VASSILISSA en 2008, ramenant la déviation à 8°. La transmission du séparateur a ainsi été portée à 5% pour les éléments de la région transfermium produits par fusion chaude [43].

GABRIELA

Les états de charge sélectionnés dans VASSILISSA sont regroupés au plan focal et s'implantent au sein de GABRIELA. Le spectromètre est composé des détecteurs suivants :

- une mesure de temps de vol utilisant des galettes à microcanaux,
- un détecteur d'implantation des noyaux de recul et leur décroissance,
- un tunnel de détecteurs silicium pour la mesure des électrons de conversion,
- sept détecteurs germanium de type tronconique pour mesurer les rayons γ, équipés d'enceintes anti diffusion Compton pour six d'entre eux.

Le détecteur original est décrit à la référence [44]. GABRIELA a été l'objet d'un certain nombre d'améliorations au cours du temps. Cette section décrit les détecteurs originaux ainsi que les évolutions apportées pour la campagne d'expérience de 2009 [62, 63].

La mesure du temps de vol La mesure du temps de vol a été développée de manière à fournir la meilleure précision en temps tout en réduisant autant que possible l'arrêt ou le ralentissement des noyaux. La mesure est réalisée entre deux détecteurs d'électrons secondaires comme celui illustré figure 3.13a. Les films de l'unité amont fournissant le signal de démarrage et de l'unité aval fournissant le signal d'arrêt sont séparés de 40 cm. Les deux signaux retardés de manière adéquate sont envoyés à un convertisseur d'amplitude en temps qui mesure le temps de vol.

Les électrons secondaires sont générés par le faisceau traversant une feuille de formvar de $20-30\mu g/cm^2$ recouverte d'une couche d'or de 10-20 $\mu g/cm^2$. La feuille est disposée perpendiculairement au faisceau supposé parallèle. Les électrons sont ensuite transportés vers les galettes micro-canaux situés à 90° de part et d'autre de la feuille par une combinaison de champs magnétiques et électriques. Des micro-grilles polarisées disposées de chaque côté de la feuille de formvar accélèrent les électrons afin de les extraire du voisinage de la feuille. Un aimant entoure la chambre et créé un champ magnétique qui dévie les électrons de 90° pour les diriger vers les galettes micro-canaux. La collection des électrons se fait de chaque côté de la feuille émettrice afin d'augmenter l'efficacité de détection. Les champs \vec{B} et \vec{E} sont optimisés de manière à assurer l'isochronicité des trajectoires des électrons, ce qui garantit la précision de la mesure en temps. La résolution en temps atteint (400±30) ps pour une efficacité de détection voisine de 100% pour les noyaux lents (environ 10-20 MeV d'énergie cinétique totale) d'une masse autour de A=200.



FIGURE 3.12 – Le multidétecteur GABRIELA installé dans au plan focal de VASSILISSA au FLNR, Dubna. On distingue au fond en jaune le dernier dipôle magnétique de VASSILISSA enchassé dans le mur séparant l'aire expérimentale de VASSILISSA [44]. / *The multispectrometer GABRIELA installed at the focal plane of the separator VASSILISSA at the FLNR Dubna. The last magnetic dipole of VASSILISSA can be seen in yellow, embedded in the wall separating the experimental hall from the separator [44].*



FIGURE 3.13 – Schéma d'une des deux unités à galettes micro-canaux permettant la mesure du temps de vol au plan focal de VASSILISSA [64]. / Working scheme and 3D design of une MCP unit for the time of flight measurement at the focal plane of VASSILISSA [64].



FIGURE 3.14 – Support des détecteurs de GABRIELA. Les quatre détecteurs d'électrons sont placés autour du silicium d'implantation. Le fluide caloporteur circule dans la bride (en gris autour du détecteur d'implantation) et dans les tiges pour refroidir les pré-amplificateurs des diodes [44, 40]. / Frame of the detectors of GABRIELA. The four electron detectors are placed around the implantation detector. The cooling fluid circulates within the flange [44, 40].

Depuis la campagne de mesures de 2008, les deux films émetteurs ont été remplacés par de plus fins (15-20 μ g/cm² de formvar). Cette modification permet à la fois de réduire la perte d'énergie des résidus d'évaporation dans le film et de limiter leur dispersion angulaire. La distance entre les deux unités de mesure ainsi que la distance avec le détecteur d'implantation ont aussi été réduites afin d'améliorer encore la transmission. Ces modifications ont permis de porter la transmission des noyaux issus de réactions avec un faisceau de ²²Ne de 1% à plus de 6% [43].

Le détecteur d'implantation (Double Sided Strip Silicon Detector) Le détecteur d'implantation original était un détecteur au silicium simple face de 60 mm x 60 mm d'épaisseur 300 μ m. Le cristal était segmenté en seize pistes résistives permettant la mesure de la position d'implantation. Le détecteur ainsi que les pré-amplificateurs étaient refroidis par un fluide caloporteur circulant dans son support, permettant une résolution en énergie de l'ordre de 20 keV pour les particules α .

Le nouveau détecteur au silicium est un cristal à pistes à double face de 60 mm par 60 mm d'épaisseur 300 μ m. Le cristal est segmenté en 48 pistes horizontales à l'avant et 48 pistes verticales à l'arrière. Les pistes mesurent 1,15 mm de large à l'avant et 0,970 mm à l'arrière. La face avant est connectée à trois séries de pré-amplificateurs différents et la face arrière à deux séries de pré-amplificateurs. Ces cinq voies permettent d'utiliser des gammes en énergie différentes pour traiter à la fois les noyaux de recul, les particules α ou les fragments de fission et les électrons de conversion. Cette électronique permet de mesurer des électrons jusqu'à 100 keV ainsi que des fragments de fission jusqu'à 150 MeV. La chambre abritant le détecteur a été spécialement usinée afin de réduire le plus possible l'épaisseur d'aluminium entre le lieu d'implantation du noyau de recul et les cristaux de germanium. Le fond de la chambre, derrière le DSSSD, a notamment été affiné de 6,5 mm à 1,5 mm. La résolution globale en énergie est de 17 keV pour les particules α [43, 45].

Le tunnel à électrons En amont du détecteur d'implantation se trouvent quatre détecteurs au silicium formant un tunnel. Le tunnel permet de détecter les particules s'échappant du DSSSD et principalement les

électrons de conversion. Il peut cependant aussi détecter les particules α ou des fragments de fission. Le tunnel est particulièrement important dans le cas de GABRIELA car les transitions γ isomériques sont fortement converties dans la région transfermium. Sa présence permet d'identifier des transitions électromagnétiques qui seraient invisibles à des détecteurs au germanium. Les particules s'échappant du détecteur d'implantation vont être sujet à une forte dispersion dans le silicium. Lors de la conception de GABRIELA, des simulations Monte-Carlo ont été réalisées afin d'étudier l'effet de la profondeur d'implantation sur l'efficacité de collection et la résolution en énergie pour les électrons [44]. Il est ressorti de cette étude que la résolution et l'efficacité se dégradent fortement avec l'augmentation de la profondeur d'implantation pour des électrons de basse énergie (en dessous de 100 keV). L'impact est moindre pour des électrons entre 100 keV et 400 keV et négligeable au delà de 500 keV [44]. Pour cette raison, il faut minimiser la profondeur d'implantation par l'installation d'un dégradeur en amont du DSSSD. La figure 3.15a montre le décalage en énergie et la perte de résolution pour les électrons en fonction de la profondeur d'implantation des noyaux. Les efficacités de collection des électrons dans le tunnel ont été simulées sous GEANT 4 pour des profondeurs d'implantation du noyau émetteur de 3 μ m et 4 μ m dans le détecteur silicium. Les valeurs expérimentales proviennent des réactions de calibration réalisées lors de la campagne 2009 [63].





(a) Simulation de l'énergie détectée dans le tunnel à électrons pour un électron de 50 keV en fonction de la profondeur d'implantation du noyau émetteur [63].

(b) Efficacité de collection des électrons dans le tunnel de diodes.

FIGURE 3.15 – Etude de la résolution en énergie et de l'efficacité de détection du tunnel à électrons [63]. / Study of the energy resolution and the electron detection efficiency for the electron tunnel [63].

Le détecteur original comportait quatre cristaux de 50 mm par 50 mm sur 500 μ m d'épaisseur. Chaque cristal était segmenté en quatre pistes parallèles à l'axe du faisceau. Les pré-amplificateurs associés étaient fournis par le GANIL et reglés pour la détection des électrons de conversion et des particules α s'échappant du détecteur d'implantations. Le refroidissement était assuré par la même unité cryogénique que le détecteur d'implantations, assurant une résolution en énergie de l'ordre de 10-12 keV.

Dans la seconde version, chaque cristal a une surface active de 50 x 60 mm^2 . Deux des cristaux ont une épaisseur de 740 et 715 micromètres et deux une épaisseur de 1 mm. Les détecteurs sont segmentés en 32 pistes chaînées quatre à quatres afin de réduire le nombre de pré-amplificateurs nécessaires. Les diodes ne sont pas refroidies, ce qui altère fortement la résolution en énergie. Cette dernière passe à ~ 20 keV au lieu de 10 keV avec un refroidissement à -20°C. L'efficacité de détection a été mesurée avec la décroissance des noyaux de radon dont les transitions sont fortement converties [63]. Pour des électrons de 100 keV à 550 keV l'efficacité de détection est de l'ordre de 18% comme le montre la figure 3.15b.

Les détecteurs au germanium La détection des rayons- γ est assurée par sept détecteurs au germanium hyper pur. Il s'agit de cristaux tronconiques provenant du fond franco-anglais LoanPool qui gère les détecteurs de l'ancien spectromètre EUROBALL. Six des détecteurs sont disposés en étoile à 90° autour du plan focal, centrés sur la face avant du DSSSD. Les cristaux de germanium sont situés à environ 130 mm du centre du détecteur d'implantation. Chacun de ces cristaux est inséré dans une enceinte BGO afin de supprimer les diffusions Compton sortantes et de réduire le bruit de fond ambiant. Le septième détecteur est placé derrière le DSSSD sans enceinte BGO. L'enveloppe de protection de ce cristal a été racourcie en 2006 afin de minimiser autant que possible la distance entre le détecteur d'implantation et le cristal de germanium. Ce dernier cristal participe pour moitié à l'efficacité de collection comme on peut le voir sur la figure 3.16. L'ensemble du spectromètre atteint dans cette configuration une efficacité de détection de 16% à 100 keV et de 5,4% à 665 keV, soit le double de la valeur originale [43].



FIGURE 3.16 – Efficacité de détection absolue des rayons- γ pour le spectromètre GABRIELA. \Box , mesurés sur les six cristaux de l'anneau avec des sources de ¹³³Ba, ¹⁵²Eu, ¹¹³Sn et ¹³⁹Ce. \circ , mesurés sur le détecteur arrière avec des sources de ¹³⁹Ce et ¹¹³Sn. Le point * a été mesuré en faisceau sur la désexcitation du ²⁰⁷Rn utilisée pour étalonner le tunnel de diodes [63]. / Absolute γ detection efficiency for the GABRIELA spectrometer. \Box , measured on the six germanium crystals of the ring with ¹³³Ba, ¹⁵²Eu, ¹¹³Sn and ¹³⁹Ce sources. \circ , measured on the back detector with ¹³⁹Ce and ¹¹³Sn sources. The * point has been measured in-beam with the deexcitation of ²⁰⁷Rn used as a calibration run for the electron tunnel [63].



FIGURE 3.17 – Le spectromètre SAGE, associé au séparateur à gaz RITU et au spectromètre de plan focal GREAT. Le spectromètre à électrons vient s'insérer dans la structure pré-existante de JUROGAM 2 afin de compléter la spectroscopie prompte par la détection des électrons de conversion [20]. / *The SAGE spectrometer, associated with the gas-filled separator RITU and the focal plane spectrometer GREAT. The electron spectrometer is embedded in the preexisting JUROGAM 2 \gamma-ray spectrometer to complete the prompt spectroscopy with the conversion electrons detection [20].*

3.2.3 Perspectives

Lors de ma thèse l'amélioration des systèmes existants a permis de repousser les limites de détection. Les détecteurs présentés dans ce chapitre trouvent leur suite logique dans des projets à plus ou moins long terme tels que SAGE au JYFL, la modernisation de VASSILISSA au FLNR ou *S*³ au GANIL. Ces projets permettront de réaliser des expériences hors de portée des systèmes actuels ou de compléter les données acquises avec les systèmes existants.

SAGE

Dans la région des éléments transfermium la conversion interne d'électrons entre fortement en compétition avec l'émission de rayons γ pour la désexcitation des noyaux. Par conséquent, l'utilisation de spectromètres γ ou électrons seuls ne fournit qu'une information parcellaire sur les états énergétiques des noyaux, notamment à basse énergie. SAGE (Silicon And GErmanium spectrometer) est un spectromètre composé de la sphère de détecteurs au germanium JUROGAM 2 et d'un détecteur au silicium segmenté. Cinq détecteurs germanium tronconiques situés sur le dernier anneau autour de la ligne de faisceau ont été retirés pour permettre l'instalation du spectromètre à électrons. Cette modification ramène l'efficacité de collection γ de JUROGAM 2 à 5,46 % pour une couverture angulaire de 27,62 % de 4 π [37]. Couplé au séparateur à gaz RITU et au spectromètre GREAT comme le montre la figure 3.17, il permettra d'associer la spectroscopie des rayons γ et des électrons de conversion dans un même dispositif pour la mesure des transitions promptes des éléments transfermium.

Les électrons sont implantés dans un détecteur en silicium segmenté en 100 pixels situé à 180° par rapport à la cible visible sur la figure 3.18. Deux solénoïdes disposés de part et d'autre de la cible génèrent un champ magnétique ramenant les électrons émis par le noyau vers le détecteur. L'ensemble du spectromètre présente un angle de 3,2° avec la direction du faisceau afin de minimiser la dispersion par effet Doppler [36], tout en évitant de faire passer le faisceau incident au centre du détecteur. Le positionnement du détecteur en amont de la cible permet de réduire grandement le flux des électrons δ émis lors de l'interaction du faisceau dans la cible. La barrière haute-tension placée entre le détecteur et la cible permet de réduire encore ce flux.

L'efficacité de détection des électrons de conversion est estimée à 9,5% autour de 200 keV [20].



FIGURE 3.18 – Coupe du spectromètre à électrons SAGE. Le faisceau arrive par la gauche avec un angle de 3,2° par rapport à l'axe du détecteur. Les solénoïdes produisent le champ magnétique guidant les électrons de conversion vers le détecteur. La barrière haute-tension empêche les électrons δ produits lors de l'interaction du faisceau avec le cible d'atteindre le détecteur. Les cônes rouges entourant la cible représentent les cônes d'ouverture des détecteurs au germanium [20]. / Cross-section of the electron spectrometer SAGE. The beam arrives from the left with a 3.2° angle with respect to the detector axis. The colenoids produce a magnetic field guiding the conversion electrons towards the detector. The high-voltage barrier prevents the δ electrons produced by the interaction of the beam in the target to reach the detector. The red cones surrounding the target represent the aperture cones of the germanium detectors [20].

Modernisation du séparateur VASSILISSA

La modernisation du séparateur VASSILISSA permettra d'accéder à de nouvelles réactions et donc à de nouvelles veaux éléments. Premièrement il s'agit d'améliorer la transmission de VASSILISSA pour les réactions très asymétriques telles que ${}^{16}O + {}^{244}Pu$ ou ${}^{22}Ne + {}^{238}U$. Une tentative visant à réaliser cette dernière réaction avait révélé que la transmission de VASSILISSA est insuffisante pour réaliser ce type d'expériences. Cette modernisation du séparateur devrait apporter un facteur deux à trois dans la transmission des résidus d'évaporation pour les réaction très asymétriques et permettre d'accéder à des réaction très symétriques telles que ${}^{136}Xe + {}^{136}Xe$. Dans ce but, le séparateur verra le remplacement des trois déflecteurs électriques par deux couples de dipôles électriques et de dipôles magnétiques afin de passer d'un séparateur en énergie à un filtre de vitesse comme on peut le voir sur la figure 3.19. La nouvelle version sera donc un séparateur sous vide avec une géométrie (Q-Q-Q) (E-D) (E-D) (Q-Q-Q) D (où Q est un quadrupôle magnétique, E un dipôle électrique et D un dipôle magnétique). L'alimentation haute-tension des aimants du séparteur sera aussi modernisée.

Dans cette optique, les détecteurs de GABRIELA seront aussi adaptés à la nouvelle transmission de VASSILISSA. Le détecteur d'implantation sera remplacé par un détecteur silicium à pistes de 100 x 100 mm² segmenté en 128 x 128 pistes et produit par l'entreprise Micron. Le tunnel de diodes sera aussi remplacé pour s'adapter au nouveau détecteur d'implantation. Il sera constitué de huit cristaux de silicium de 50 x 50 mm² juxtaposés et segmentés en 32 pistes. Le détecteur germanium tronconique situé en aval du détecteur d'implantation devrait être remplacé par un détecteur de type "trèfle" afin de couvrir toute la surface du plan focal. Enfin, l'électronique et le multiplexage des voies des détecteurs silicium seront modifiés pour s'adapter à la nouvelle configuration et permettre l'utilisation de multiples amplifications sur le détecteur d'implantation.



FIGURE 3.19 – Modernisation du séparateur VASSILISSA. La modification des composants centraux permettra de transformer VASSILISSA en filtre de vitesse et d'augmenter sa transmission pour les réactions très asymétriques dans la région des noyaux transfermium [65]. / Upgrade of the separator VASSILISSA. The upgrade will change the spectrometer to a velocity filter and increase its transmission for very asymmetric reaction in the transfermium region [65].

La Physique des éléments très lourds et superlourds auprès de S³

Le Super Séparateur Spectromètre S^3 sera installé au Grand Accélérateur National d'Ions Lourds à Caen dans le cadre du projet SPIRAL 2 (Système de Production d'Ions RadioActifs en Ligne - génération 2). Le séparateur spectromètre S^3 sera installé directement en aval du LINAG (Accélérateur linéaire supra-conducteur). Il est conçu pour recevoir des faisceaux d'ions stables de très haute intensité pour

- la synthèse des noyaux superlourds,
- la spectroscopie de noyaux de la région transfermium,
- la spectroscopie de noyaux situés autour du ¹⁰⁰Sn.



FIGURE 3.20 – Schéma d'implantation du Super Séparateur Spectromètre S^3 pour SPIRAL2. / Layout of the Super Separator Spectrometer S^3 for SPIRAL2.

Le séparateur sera composé de deux étages, selon un dessin proposé par le Argonne National Laboratory (voir figure 3.20). Le premier étage sera un achromate d'impulsion ayant un taux de réjection de 1/1000 au minimum . Le second étage sera un séparateur en masse afin de permettre la sélection des produits de fusion des réactions périphériques avec une résolution en masse de 1/300. Un premier plan de cible sera situé à l'entrée du séparateur. Un potentiel second plan de cible "intermédiaire" sera situé au plan focal du premier étage. Ainsi le faisceau issu du LINAG pourra interagir avec la première cible et ainsi produire un faisceau secondaire d'isotopes inaccessibles à une source d'ion stables.

Le séparateur sera compatible avec la technique du Recoil Decay Tagging pour permettre l'étude des noyaux au plan focal et/ou au plan de cible intermédiaire. Le plan focal de S^3 sera équipé d'un polyspectromètre dédié, développé en collaboration entre l'IN₂P₃, le CEA, le GSI, le Argonne National Laboratory et le FLNR Dubna. Le principe du système de détection au plan focal est similaire à celui de GREAT et GABRIELA comme on peut le voir sur la figure 3.21 :

• un détecteur de temps de vol,


FIGURE 3.21 – Schéma de principe du polyspectromètre situé au plan focal du séparateur S^3 . / Working principle of the polyspectrometer situated at the focal plane of the S^3 separator.

- un détecteur d'implantation silicium à pistes,
- un tunnel de diodes pour détecter les électrons de conversion,
- des détecteurs au germanium entourant le plan focal.

Une première phase du plan focal sera développée sur la base de solutions existantes, afin de respecter les échéances des projets SPIRAL 2 et S^3 . La deuxième phase devrait voir le développement de détecteurs optimisés.

La mesure du temps de vol devrait être assurée par des détecteurs d'électrons secondaires (SED). Le détecteur d'implantations sera un cristal de silicium à pistes double face de 100x100 mm², chaque face étant segmentée par 128 pistes. Le cristal devra être le plus épais possible selon la technologie choisie (jusqu'à 1 mm si possible), afin de permettre la détection des électrons de conversion. Le dopage du cristal n'est pas déterminé et les tests sont en cours. Un deuxième détecteur au silicium plus fin pourrait être placé derrière pour une utilisation en anti-coïncidence afin de supprimer les particules trop énergétiques du spectre des résidus d'évaporation. Les dimensions et l'utilité de ce détecteur restent à évaluer.

Les électrons de conversion s'échappant du détecteur d'implantation seront recueillis dans un tunnel placé en amont de ce dernier. Il est prévu d'utiliser des cristaux de silicium de surface 100x100 mm². La segmentation sera *a priori* limitée car la résolution en position n'est pas critique pour les électrons de conversion.

Le plan focal sera entouré de détecteurs au germanium pour la détection des rayons γ. Plusieurs géométries sont simulées afin d'obtenir la meilleure efficacité de détection possible. La première phase du spectromètre utiliserait six détecteurs de type trèfle issus de la collaboration EXOGAM disposés en étoile autour du plan focal comme indiqué sur la figure 3.22 et un septième placé à l'arrière du détecteur d'implantation. Les simulations GEANT 4 réalisées pour cette géométrie donnent une efficacité de détection de 55% à 1332 keV [46]. Ces simulations ne prennent toutefois pas en compte la présence d'enceinte anti-diffusion Compton qui réduiront l'efficacité en eloignant les cristaux de germanium de la zone d'implantation des noyaux de recul.



FIGURE 3.22 – Disposition des détecteurs germanium de type trèfle provenant du spectromètre EXOGAM autour du plan focal de S³. Les cristaux sont placés de manière à obtenir la meilleure efficacité de détection possible, soit 55 % [46]. Les enceintes anti-diffusion Compton ne sont pas prises en compte dans cette simulation. / Placement of the EXOGAM clover detectors around the focal plane of S³. The crystals are placed in order to obtain the best possible detection efficiency, namely 55% [46]. The BGO shields are not taken into account in this simulation.

Chapitre 4

Mise en place et tests des cartes TNT2D sur les spectromètres JUROGAM et JUROGAM 2

4.1 Abstract

The region of Transfermium nuclei is characterised by a sharp decrease of the fusion-evaporation crosssection. Higher beam intensities are therefore required to keep investigating this region with statistics compatible with spectroscopy. This means an increase of the counting rate in Germanium detectors placed around the target. In order to cope with these counting rates, digital acquisition cards are needed to replace the standard analogue ADC used for γ -ray spectrosocpy. The TNT2D cards (Tracking Numerical Treatement 2 Dubna) [52] have been developped by the team of P. Medina at IPHC to fit the needs of γ -ray spectroscopy with high counting rates and Compton rejection.

The TNT2D cards

The TNT2D are four channel digital acquisition cards sampling the signal at 100 MHz with a 14 bits flash ADC. Each energy channel has a veto input that can be used for anti-Compton BGO signals. The Data processing is performed within a VIRTEX II FPGA using a full pipeline architecture. The signal is continuously digitized and processed by the Jordanov algorithm [66]. The signal pulse is shaped into a trapezoid with adjustable risetime *k* and plateau length *m* (see fig. 4.2 on page 80). The energy is measured at the end of the plateau to be independent of the effects of the balistic deficit (see fig. 4.3 on page 80). For Germanium detectors, the value of *k+m* should be equal to or higher than 1.5 μ s [67].

The time measurement method can be chosen within three different settings :

- a simple energy threshold on the raw signal,
- an energy Timing Filter Amplifier (fig. 4.4.a),
- a Constant Fraction Discriminator (fig. 4.4.b).

Only the CFD method is independent of the amplitude of the pulse. The zero crossing point is constant thanks to the bipolar shape of the signal and therefore does not depend of the risetime and amplitude of the signal. The computation of the CFD shape is performed online by the FPGA and therefore does not induce a dead time in the acquisition chain. The use of the digital CFD allows a time resolution of the order of 15 to 17 ns [67].

The data recorded by the TNT2D cards are sent through USB links to a dedicated server. The events are coded on 112 bits using 16 bits for the energy, 48 bits for the timestamp and 8 bits for the channel number. The signals from the BGO shields or other veto systems are coded on the spare bits of the last word. The format of the data words is described on fig. 4.5 page 82 [68].

The cards are controled and set through the TUC software (TNT USB Control) and its distributed version DTUC created by M. Richer [69, 70].

Integration to the acquisition system at JYFL

The acquisition system used at the Accelerator laboratory of the University of Jyväskylä is designed to operate triggerless. Acquisition systems traditionally use a trigger on a certain kind of detector or combination of detectors to start the record of an event. All signals coming during the defined time window after a trigger are considered to belong to the event. This method implies deadtimes of the acquisition system if delayed coincidence is used, between a focal plane identification and a prompt measurement for example. These deadtimes are critical for nuclei with long lifetimes. In order to solve that problem, triggerless systems have been introduced. The principle of the triggerless system is to record all events incoming at all time and tag them with their arrival time defined with respect to an absolute reference. The coincidence is then made offline using the timestamps of the events to identify and correlate them. This enables to optimise the coincidence window on the full statistics. This latter property is very important for experiments with low cross-sections. The Total Data Readout (TDR) system used at the University of Jyväskylä is triggerless [71].

The timing of the TDR system is ensured by the metronome. When the start of the acquisition is hit, the metronome send a RESYNC signal to all the ADCs to reset their clock. During the acquisition, a SYNC signal is regularly sent and therefore included in the stored data to ensure the synchronisation and redefine the absolute clock.

The TNT2D cards have been installed to replace the analogue ADCs that formerly intrumented the JUROGAM array. A server is connected to six cards. It relays the start and stop orders and clock synchronisation from the main control and sends the data coming from every card to the Merge Unit who sorts the data coming from the various detectors (see fig. 4.6 on page 84). The timestamps coming from the TNT2D clock are recalibrated inside the Merge Unit to fit with the absolute clock (Metronome) of the TDR system. The Event Builder unit then receives the complete data flow and transfers it to the storage unit.

Comparison between Analogue and Digital acquisition

Before using the TNT2D cards as the acquisition system for JUROGAM, this system has been tested in comparison with the existing analogue one during an experiment. The detectors were connected to both the analogue ADCs and the TNT2D cards. The data coming from both systems were recorded in parallel. This setup has allowed to quantify the advantages of using digital electronics for prompt γ -ray spectroscopy [72, 73].

Study of the energy linearity

The linearity of the acquisition system is critical for γ -ray spectrosocpy. In order to estimate the linearity of both the analogue and digital acquisition systems, I compared their records of a calibration run using a ¹⁵²Eu - ¹³³Ba source. I compared the measured energies to the reference values and plotted the difference on fig. 4.9 on page 90. As we can see, the deviation for the TNT2D cards stays below 0.5 keV, whereas it reaches 3 keV for analogue ADCs. This translates into integral non-linearity (eq. 4.1) of 0.0065% for the TNT2D cards and 0.022% for the analogue ADCs.

Correlation between the digital and analogue data

I have developped a programme to compare the γ -ray events recorded by both acquisition systems by reading the files in parallel. This programme uses the SYNC signals to synchronise the data files and then compares the events base on the timestamps, the channel numbers, and the energies. The time window for the indentification is 500 ns wide. The principle of the comparison is illustrated on fig. 4.11 on page 93. The result of this test is that 13% of the events recorded in the analogue cards are not seen in the digital data, while 44% of the event recorded in the digital cards are not seen in the analogue data. The digital cards bring a 36% increase in the statistics compared to the analogue recorded data for an average counting rate of 10 kHz.

Adaptation to JUROGAM 2

The germanium array JUROGAM 2 is composed of 39 Germanium detectors that represent 111 channels. The full instrumentation of JUROGAM 2 therefore requires 28 TNT2D cards, which is more than twice the number used for JUROGAM. While setting these cards, we realised that the clock synchronizing the cards to the first one used as a master did not propagate correctly and did not reach past the twelveth or fourteenth card. This was due to amplitude losses in the LVDS chain that transmits the clock from one card to another. This problem was solved by L. Charles form IPHC by reamplifying the clock signal in each card. This has allowed us to run the 28 cards with only one master card.

Another problem was discovered when instrumenting the clover detectors coming from the former EU-ROGAM array. The crystals of the clover detectors are coupled to the preamplifiers by a capacitive circuit (see fig. 4.13.b on page 95). This coupling filters the slow component of the signal coming from the detector. The closer and higher the signals, the more the baseline of the ADC will diverge from the ground. An offset is defined in the TNT2D settings to fit the baseline and the signal amplitude within the dynamic range of the ADC. However, if the baseline shifts with respect to the counting rate, we will loose a part of the dynamic range of the ADC. This has been solved by L. Charles by adding an automatic offset adaptation. Threshold values of the counting rate are defined and associated with a fitting offset value. The card then samples the counting rate and adapts the offset value accordingly. An hystersis cycle is used to avoid oscillations around the threshold values. The principle of the offset adaptation is illustrated on fig. 4.14 on page 96.

4.2 Mise en place et tests des cartes TNT2D sur les spectromètres JURO-GAM et JUROGAM 2

La région des noyaux transfermium et au-delà, la région des noyaux superlourds, sont caractérisées par un baisse rapide de la section efficace de fusion. Pour contrer ce phénomène et fournir une statistique raisonnable pour la spectroscopie dans un temps compatible avec la durée des expériences, il faut augmenter l'intensité du faisceau afin d'accroître la production des noyaux. Ceci se traduit par une forte augmentation du taux de comptage au plan de cible qui n'est pas compatible avec les cartes d'acquisition utilisées habituellement. Ces dernières fonctionnent avec une électronique analogique que les temps morts (jusqu'à plusieurs dizaines de microsecondes) rendent peu efficaces pour des taux de comptage supérieurs à 10 kHz par cristal. Pour cette raison, l'utilisation de cartes d'acquisition numériques est indispensable pour étudier en spectroscopie prompte des noyaux ayant une section efficace de production inférieure à 100 nanobarns.

Les cartes numériques TNT (Tracking Numerical Treatement) [52] ont été dévelopées à l'IPHC par l'équipe de P. Medina pour répondre aux besoins des équipes du laboratoire. La version TNT2D (type Dubna) est une variante principalement dévelopée pour la spectroscopie par rayons- γ avec des détecteurs germanium associés à des systèmes anti-diffusion Compton. Elles ont été développées pour le polyspectromètre GABRIELA, puis utilisées sur les spectromètres γ JUROGAM et JUROGAM 2.

Les cartes TNT2D ont été installées sur le spectromètre JUROGAM à partir de septembre 2007, puis sur son successeur JUROGAM 2 jusqu'en janvier 2010. Durant cette période les cartes ont été testées, améliorées et finalement validées en tant que système d'acquisition unique pour le spectromètre γ . Après une description de la carte TNT2D et de son fonctionnement, je présenterai les résultats des tests réalisés pour valider ces cartes comme système d'acquisition de JUROGAM 2.

4.3 Les cartes TNT2D

4.3.1 Description des cartes TNT2D

La carte TNT2D est une carte digitale quatre voies avec une entrée veto par voie de façon à autoriser la réjection des photons diffusés par effet Compton. Il existe en outre la possibilité de traiter et d'utiliser quatre signaux NIM dédiés à des voies précises comme conditions externes pour la carte. Les cartes sont cadencées à 100 MHz (horloge interne ou chaînage par la face arrière). Les signaux d'entrée sont numérisés à 100 MHz par un flash ADC 14 bits permettant des mesures de l'énergie et du temps rapides et précises. Le traitement des signaux est géré par des algorithmes programmés dans le FPGA (Field Programmable Gate Array) Virtex II. Quatre sorties d'inspection programmables permettent de visualiser le fonctionnement de la carte. Les données enregistrées sont transférées par un protocole USB au système d'acquisition avec l'identifiant du détecteur touché et le temps d'arrivée codé à partir de l'horloge de référence. Les divers paramètres de la carte sont gérés par le logiciel TUC (TNT USB Control) [69] ou sa version globale DTUC (Distributed TNT USB Control) [70] qui permet de contrôler plusieurs cartes en même temps. Ces programmes sont développés et maintenus par Marc Richer et Laurent Charles à l'IPHC.

Le circuit et les faces avant et arrière d'une carte TNT2D est présenté sur la figure 4.1.

4.3.2 Mesure de l'énergie

La numérisation en continu du signal issu du cristal de germanium permet de traiter cette information rapidement et de laisser la mesure de l'énergie à un algorithme programmé dans le FPGA Virtex II. Le signal provenant du détecteur est échantillonné à 100 MHz par un convertisseur analogique-numérique (flash ADC) qui encode l'information sur un registre de 14 bits. Il est important de noter que la gamme de fonctionnement du convertisseur n'est pas utilisée entièrement afin d'assurer une réponse linéaire en énergie. Les extrémités



FIGURE 4.1 - Circuit et interfaces de la carte TNT2D. / Circuit and interface of the TNT2D card.

de la gamme sont donc exclues par un réglage optimal du gain. Le signal numérisé est transformé en forme trapézoïdale grace à l'algorithme dit "de Jordanov" [66] schématisé sur la figure 4.2. Cet algorithme est programmé dans un FPGA Virtex II comportant 3 millions de portes logiques [74]. Le logiciel TUC permet de régler le temps de montée k et la longueur du plateau m du trapèze (voir figure 4.3). Chaque voie de la carte possède son propre convertisseur et son propre canal dans le FPGA, ce qui permet d'avoir quatre voies totalement indépendantes dont les temps morts ne se recouvrent pas. Le traitement des données dans la carte se fait à la volée (en "pipeline"), c'est-à-dire que seule la porte logique qui traite l'impulsion est occupée, laissant le reste du circuit disponible pour d'autres signaux. De cette façon, le temps mort ne correspond plus à une durée pendant laquelle la carte ne peut pas recevoir d'information, mais seulement à la durée nécessaire à chaque porte logique pour traiter le signal en cours.

L'énergie est mesurée à la fin du plateau du trapèze de longueur *m*, ce qui permet de supprimer les effets du déficit balistique qui faussent la mesure en énergie sur l'impulsion électrique. En effet, la géométrie des cristaux de germanium est telle que le champ électrique n'est pas parfaitement uniforme dans tout le volume. Les charges émises dans les zones de plus faible champ mettront plus longtemps à rejoindre l'anode et subiront un nombre plus important de recombinaisons que les autres. Le temps de collection de ces charges et donc le temps de montée du signal seront plus longs que la normale comme le montre la figure 4.3.a. Par conséquent, pour un temps de mise en forme fixe la hauteur de l'impulsion n'atteindra pas son maximum. La différence constitue le déficit balistique. Lorsque le signal traité dans l'ADC suivant une distribution gaussienne, on mesure une énergie inférieure à celle réellement déposée dans le détecteur comme le montre la figure 4.3.b. Si le signal est numérisé en continu et mis en forme en utilisant un trapèze on peut compenser cet effet (voir figure 4.3.c). Si la longeur k+m est suffisante, on acquiert la hauteur totale du trapèze et l'information n'est donc plus erronée à cause du déficit balistique. Pour des détecteurs germanium, la somme k+m doit être supérieure ou égale à 1,5 μ s pour obtenir une résolution en énergie optimale [67].



V.T. Jor dano v, G. F. Knoll NIM A345(1994)337-345

FIGURE 4.2 – Diagramme de l'algorithme de Jordanov pour transformer une impulsion électrique en trapèze permettant la mesure de la hauteur d'impulsion avec une précision compatible avec la spectroscopie [75]. Les opérations sont réalisées sur l'impulsion numérisée fournie par le flash ADC. / Diagram of the Jordanov algorithm transforming the electric pulse in a trapezoid in order to measure the pulse height with an accuracy compatible with spectroscopy [75]. The operations are performed on the digitized pulse provided by the flash ADC.



FIGURE 4.3 – Effet du déficit balistique sur la forme du trapèze. La mesure de l'énergie à la fin du plateau supprime les effets du déficit balistique. / *Effect of the ballistic deficit on the trapezoidal shape. The energy measurement is performed at the end of the trapezoid, suppressing the effects of the ballistic deficit.*



FIGURE 4.4 – Construction des signaux pour la mesure en temps avec un TFA et avec un discriminateur à fraction constante digital. / *Processing of the signals for the time measurement using a TFA or a CFD*.

4.3.3 Mesure du temps

Le déclenchement de la mesure peut être assuré de trois manières différentes, par un seuil en énergie sur le signal brut comme sur un oscilloscope, par un seuil sur le signal différencié et moyenné (TFA, voir fig. 4.4.a), ou par un discriminateur numérique à fraction constante (CFD, voir fig. 4.4.b).

Le seuil en énergie sur le signal brut est la méthode la plus simple, mais la moins précise, ce qui fait qu'elle n'est pas utilisée. Le module TFA (Timing Filter Amplifier) différencie le signal avec un retard réglable (de 20 à 300 ns sur les cartes TNT2D), puis lui applique un lissage afin de transformer l'impulsion en gaussienne comme on le voit sur la figure 4.4.a. Cette modification a pour effet réduire le bruit et de diminuer les temps de montée et de décroissance. De cette manière, la mesure du temps est plus précise, rendant le déclenchement plus fiable et plus rapide. Cependant, par cette méthode, l'instant du déclenchement dépend encore de l'amplitude, ce qui la rend vulnérable au déficit balistique.

La solution permettant de s'affranchir de la dépendance en amplitude est l'utilisation d'un discriminateur à fraction constante. Le signal est amplifié et différencié afin de créer une forme bipolaire avec un passage à zéro le plus abrupt possible. Ce point de passage à zéro est identique pour tous les signaux, quelle que soit leur amplitude. On obtient donc une mesure du temps très précise et invariable. L'utilisation des impulsions numérisées pour construire le signal du CFD permet d'obtenir une bonne résolution en temps et de réduire le seuil en énergie sans affecter le temps mort. La gestion à la volée des signaux ne bloque pas la voie pendant la construction du CFD.

La rapidité de traitement des signaux et le déclenchement par CFD numérique permettent aux cartes TNT2D d'atteindre des résolutions en temps de l'ordre 15 à 17 ns [67]. Les paramètres de mise en forme du



FIGURE 4.5 – Format d'enregistrement des évènements mesurés par la carte TNT2D. / Data format for the events coming from the TNT2D card.

CFD sont réglables par l'intermédiaire de l'interface TUC.

4.3.4 Le flux de données

Les énergies mesurées dans la carte sont envoyées vers le système d'acquisition sous la forme de mots de 112 bits dans le format présenté sur la figure 4.5.

Le temps de mesure est calculé à partir de l'horloge utilisée et codé sur 48 bits. Cette information permet d'associer les photons enregistrés avec d'autres mesures faisant partie du même évènement physique (voir 4.4.2). L'énergie mesurée est enregistrée sur un mot de 16 bits. Etant donné que le convertisseur analogiquedigital ne compte que 14 bits, les deux bits de poids fort du champ de l'énergie ne sont pas utilisés. L'identifiant du canal qui a enregistré l'évènement est enregistré sur les 4 derniers bits. Les bits supplémentaires du dernier mot de 16 bits sont utilisés pour enregistrer des informations supplémentaires. Deux bits sont utilisés pour enregistrer l'arrivée d'un signal de veto, soit provenant de l'enceinte anti-diffusion Compton par la voie dédiée, soit par l'entrée NIM, provenant de tout autre détecteur utilisable. Un bit signale la détection d'une sommation pour cet évènement. Il est possible de choisir le comportement de la carte lors de la détection d'une sommation. On pourra soit ignorer cet évènement, soit le conserver et utiliser ce bit pour le signaler afin d'en tenir compte lors de l'analyse. Un quatrième bit est utilisé pour indiquer la saturation de l'ADC par la signal d'entrée. La mesure de l'énergie est alors incomplète. L'octet restant permet une synchronisation logique entre les cartes [68].

Les données sont regroupées en tampons de longueur paramétrable et transférées par protocole USB au serveur qui gère la carte. Ces données sont ensuites intégrées au système d'acquisition local.

4.4 Intégration au système d'acquisition du JYFL

Les cartes TNT2D sont venues se greffer sur le système TDR (Total Data Readout) développé et utilisé pour les expériences de spectroscopie au Département de Physique de l'Université de Jyväskylä. Il a fallu adapter le système aux spécificités des cartes et permettre la synchronisation avec les données des autres détecteurs.

4.4.1 Les systèmes d'acquisition à déclenchement

Les systèmes d'acquisition à déclenchement utilisaient les signaux d'un ou plusieurs détecteurs en coïncidence pour déclencher la construction d'un évènement. Le déclenchement ouvrait une fenêtre en temps durant laquelle tout signal provenant des détecteurs était enregistré et considéré comme partie intégrante d'un même évènement. Cette méthode introduit un temps mort lors de son utilisation. Ce temps mort peutêtre très important lors de l'utilisation de la méthode du Recoil Decay Tagging (voir 2.2.4). En effet, le déclenchement est assuré au plan focal et on cherche à y associer les signaux recueillis au niveau de la cible, ces derniers étant retardés pour maintenir la cohérence en temps. Pendant la durée de la fenêtre de validation, les détecteurs du plan focal sont aveugles et tout évènement d'intérêt arrivant durant ce laps de temps était perdu. Cette façon de fonctionner était très préjudiciable pour l'étude des éléments à faible section efficace et/ou à long temps de vie, notamment pour l'étude d'états isomériques qui introduisent une nouvelle échelle de temps après la décroissance au plan focal. En effet, il était fort complexe de régler la coïncidence dans le cas de noyaux à faible section efficace de production. Ces systèmes ne sont donc pas très bien adaptés pour le marquage par noyau (recoil tagging) et encore plus délicats pour le marquage par décroissance (recoil decay tagging ou RDT).

4.4.2 Le système TDR

Le système TDR [71] a été développé pour des expériences de spectroscopie par identification des noyaux par leur décroissance, le Recoil Decay Tagging (RDT) [23]. La solution apportée par le système TDR est de supprimer le déclenchement commun (trigger) et d'enregistrer tous les évènements (voir figure 4.6). La reconstuction des évènements par corrélation temporelle des données enregistrées dans les divers détecteurs est faite ultérieurement à partir des données. Ce système implique une identification et un marquage temporel des données enregistrées afin de pouvoir les combiner pour en extraire les informations nécessaires à l'analyse. Pour cette raison, une horloge ultraprécise (le métronome [71]) fournit une référence en temps commune à l'ensemble du système. Chaque signal enregistré dans un détecteur est marqué de son temps d'arrivée, ce qui permet de l'associer aux signaux issus des autres détecteurs proches en temps. Lors de l'analyse, la comparaison des temps associés aux signaux permettra de reconstruire la suite des signaux de passage ou de décroissance qui forment un même évènement. De cette manière on évite de paralyser les détecteurs et de perdre les particules détectées durant le temps mort. Cette méthode permet aussi de bénéficier d'une certaine flexibilité quant à la définition des évènements. Il est possible de tout enregistrer ou de filtrer les données sur la base de critères définis par l'utilisateur. Cette solution a été rendue possible par l'augmentation rapide de la puissance des ordinateurs.

Afin d'assurer la référence en temps, l'horloge commune émet régulièrement un signal de synchronisation contenant la valeur absolue du temps de référence.

4.4.3 La solution TNT2D

Les cartes TNT2D sont venues remplacer les cartes d'acquisition analogiques qui instrumentaient les détecteurs germanium de JUROGAM. Chaque voie est associée à un cristal et son entrée véto au bouclier anti-diffusion Compton dédié. Le nombre de voies nécessaire pour JUROGAM était de 43 (une pour chaque détecteur de type tronconique). Ce nombre est passé à 111 pour JUROGAM 2 puisque chaque détecteur trèfle est composé de quatre cristaux (voir section 3.2.1) et requiert donc quatre voies pour l'énergie. Les vetos des détecteurs trèfle ont été regroupés par côté du détecteur (gauche/droite). Le même signal est donc utilisé pour deux cristaux.

Les cartes sont installées dans des chassis au format NIM qui fournissent l'alimentation électrique et le refroidissement par convection forcée des cartes. Chaque chassis NIM contient au plus six cartes TNT2D à cause de la puissance consommée. Les cartes sont reliées par un cable USB à un serveur dédié. Les serveurs abritent une version serveur de DTUC qui gère la réception des données et la réception des signaux de démarrage et d'arrêt par la commande du système d'acquisition. L'ensemble des cartes est controlé par un PC sur lequel fonctionne le client DTUC. Cette interface, conçue et mise en place par Marc Richer pour cette collaboration, permet de régler les paramètres de toutes les cartes connectées et de les mettre à jour. Il contrôle aussi le démarrage et l'arrêt des cartes, et donc l'ouverture des flux de données avec un connecteur réseau (socket) par carte. Une fois que les connections réseau sont actives pour toutes les cartes et que DTUC leur a donné l'ordre de démarrer, les cartes TNT2D sont prêtes à envoyer des données au système d'acquisition.



FIGURE 4.6 – Système d'acquisition et de contrôle Total Data Readout à l'Université de Jyväskylä. / Total Data Readout acquisition and control system at the University of Jyväskylä.

| Taux de comptage | Résolution à 121 keV (keV) | Résolution à 1332 keV (keV) |
|------------------|----------------------------|-----------------------------|
| 5000 | 1,8252 | - |
| 10000 | 1,8486 | - |
| 15000 | 1,9071 | - |
| 20000 | 1,8954 | 2,3634 |
| 45000 | 2,0124 | 2,4687 |
| 55000 | 2,1294 | 2,6208 |
| 70000 | 2,2194 | 2,6208 |
| 90000 | 2,4804 | 2,808 |

TABLE 4.1 – Résolution en énergie en fonction du taux de comptage dans un détecteur trèfle. Les mesures ont été effectuée sur des sources de ⁶⁰Co et ¹⁵²Eu [67]. / Energy resolution as a function of the counting rate in a clover detector. The measurement have been done using ⁶⁰Co and ¹⁵²Eu sources [67].

L'ordre de transmission des données est envoyé via le système d'acquisition et reçu par DTUC sur chaque serveur, ce qui va ouvrir la transmission des paquets de données par les cartes TNT2D et l'ensemble des autres cartes d'acquisition. Les paquets envoyés par les cartes TNT2D sont relayés par les serveurs vers l'unité Event Builder qui regroupe toutes les données (voir figure 4.6).

Les flux de données sont lus en sortie de l'ordinateur d'acquisition TNT et expédiés vers l'acquisition principale via les programmes de l'unité de regroupement (Merge Unit) développés par le Dr. Pete Jones. Outre la connexion réseau ("socket") entre chaque carte TNT2D et le système d'acquisition, cette unité remplace dans le flux de données les marquages en temps générés par les cartes TNT2D par les marquages en temps du système TDR recalculés à partir des signaux de synchronisation.

En plus de vérifier la mise en temps, l'unité de regroupement va traduire le format natif des données issues des cartes TNT2D vers le format TDR et convertir le temps d'arrivée de l'horloge de la carte maître vers l'horloge du système TDR. Cette conversion garantit la compatibilité des données TNT2D avec celles des autres détecteurs. Les données sont ensuite transmises au serveur de sauvegarde qui les enregistre sur disque dur.

La numérisation des impulsions et leur traitement en ligne permet d'accéder à de hauts taux de comptage dans le détecteur, tout en conservant une bonne résolution en énergie. Le tableau 4.1 indique l'évolution de la résolution en énergie pour un détecteur de type trèfle en fonction du taux de comptage mesurées en source par Christina Dritsa et Olivier Dorvaux [67]. On peut constater que la résolution en énergie se détériore légèrement avec l'augmentation du taux de comptage. Cependant, les cartes TNT2D permettent d'accéder à des taux de comptage inenvisageables pour des cartes analogiques.

4.4.4 Synchronisation et flux de données

La synchronisation des horloges et la gestion des flux de données sont fondamentales pour assurer la validité des données et leur utilisation. Comme nous l'avons vu précédemment, la référence en temps du système TDR est fournie par une horloge unique, le métronome. Cependant, il a été choisi d'utiliser l'horloge interne des cartes TNT2D pour leur fonctionnement interne. Afin d'assurer une plus grande cohérence entre les données issues des cartes TNT2D et de limiter le travail de conversion effectué par l'unité Event Builder, une seule carte fournit la référence d'horloge à toutes les autres. Cette carte est considérée comme maître. Elle fonctionne sur son horloge interne et démarre en dernier car elle envoie un signal de synchronisation à toutes les cartes esclaves. Les cartes sont chaînées par une connectique LVDS située sur la face arrière (voir figure 4.1). Les horloge à 100 MHz des cartes filles sont générées à partir du signal d'horloge à 20 MHz transmis par le chaînage LVDS. L'horloge à 100 MHz est à nouveau recomposée au sein de la carte esclave.



FIGURE 4.7 – Capture d'écran de l'interace graphique DTUC [70]. / Screenshot of the DTUC GUI [70].

Les flux de données fournis par les détecteurs peuvent atteindre des valeurs dépassant la capacité de transfert du réseau. Dans ce cas, les paquets bloqués sont jetés afin de ne pas induire un retard permanent. Pour cette raison, il est important d'assurer régulièrement la mise en temps du système. L'horloge commune du système TDR envoie donc toutes les 655,37 μ s un signal SYNC (entrée 6 sur la face avant des cartes TNT2D) contenant la valeur absolue du temps. Afin de limiter la taille des fichiers des données, le temps d'arrivée enregistré avec chaque signal ne représente que les 28 bits bas du temps absolu. Cette valeur est suffisante pour assurer l'unicité de la corrélation temporelle sur les temps caractéristiques d'une décroissance. Le système nécessite une synchronisation en début d'acquisition ausuré par le signal RESYNC (entrée 5 sur la carte TNT2D) expédié par le métronome à toute l'acquisition au démarrage. Il est de fait nécessaire de démarrer les cartes TNT2D avant le reste du système TDR pour être sûr de capter le signal qui indique le démarrage de la conversion des données lues sur chaque socket au niveau de l'unité de regroupement. L'envoi régulier de signaux complets permet de vérifer si des paquets ont été perdus et, le cas échéant, de re-synchroniser le programme d'analyse.

Le logiciel DTUC gère l'ensemble des cartes connectées comme nous l'avons vu dans la section précédente. La sélection des paramètres des cartes et la mise à jour de celles-ci lui sont aussi dévolues. La figure 4.7 représente une partie de l'interface graphique de DTUC.

TUC permet aussi de charger un programme en VHDL dans le FPGA Spartan II. Cette fonctionnalité permet de tester une version différente des algorithmes de la carte sans intervenir physiquement sur la carte pour mettre à jour le FPGA Virtex II.

4.5 Comparaison TNT2/Analogique

Les cartes TNT2D nous ont permis d'effectuer la spectroscopie γ prompte pour des sections efficaces inférieures à 100 nb. La validation de leur fonctionnement a dû être faite avant d'abandonner l'ancien système analogique permettant de traiter les données du spectromètre JUROGAM. Pour cette validation, chaque détecteur germanium du spectromètre était branché en parallèle sur les deux systèmes d'acquisition afin d'y recevoir exactement les mêmes données et de pouvoir constater et quantifier les améliorations apportées par l'utilisation de cartes numériques [72, 73]. Après une phase de test et de réglage en source dont j'ai eu la charge, une validation a été réalisée lors d'une expérience sur le ²⁵²No en avril 2008 utilisant le spectromètre JUROGAM, le séparateur RITU et le spectromètre GREAT. Durant cette expérience, les données des deux systèmes ont été enregistrées sur disque en parallèle.

4.5.1 Etude de la linéarité en énergie

La linéarité des systèmes de codage et d'acquisition est très importante en spectroscopie γ . Ceci est d'autant plus vrai pour les systèmes multi-détecteurs pour lesquels on est amené à superposer les données de différents détecteurs ayant chacun leur propre étalonnage et leurs propres avantages/désavantages. Dans ces systèmes, la résolution en énergie va être directement liée à la linéarité de la réponse des cartes d'acquisition.

La figure 4.9 illustre bien la différence de linéarité en énergie entre les cartes numériques et analogiques. Ce phénomène est clairement visible à basse énergie. Afin de quantifier la déviation en énergie, la linéarité des deux systèmes de détection a été testée sur les données d'étalonnage des détecteurs germanium. Une source de ¹³³Ba et ¹⁵²Eu était placée dans la chambre à réaction au centre de la sphère de JUROGAM fermée. Cette source présente l'avantage d'un nombre important de transitions γ réparties entre 80 keV et 1408 keV (voir figure 4.8).

On peut ainsi tester la réponse en énergie du système sur une grande partie de la gamme en énergie utilisée pour la spectroscopie γ prompte (0-2 MeV). Les mesures présentées ici ont été faites sur le détecteur tronconique numéro 17 en utilisant les spectres étalonnés "propres", c'est-à-dire débarrassés des évènements sommés et des diffusions Compton. Les énergies sont extraites en interpolant pour chaque pic une fonction gaussienne avec l'algorithme MINUIT de ROOT. Les valeurs mesurées avec les erreurs associées sont regroupées dans le tableau 4.2. Ce procédé a été appliqué au flux des cartes TNT2D et au flux analogique.

J'ai ensuite comparé les valeurs mesurées aux énergies de référence pour le ¹³³Ba et le ¹⁵²Eu. La figure 4.9 montre la déviation par rapport à ces valeurs pour les deux systèmes d'acquisition. La déviation en énergie de la carte TNT2D reste inférieure à 0,5 keV sur toute la gamme d'énergie étudiée. En comparaison, les mesures analogiques montrent une déviation allant jusqu'à 3 keV à basse énergie.

Afin de quantifier la linéarité en énergie des deux systèmes, on calcule leur non-linéarité intégrale définie par la formule suivante :

$$NLI = \frac{\Delta E_{max}}{E_{max}} \tag{4.1}$$

où ΔE_{max} est l'écart maximal en énergie entre une valeur mesurée et sa référence, et $E_{max} = 1408,11$ keV comme énergie maximale, ce qui correspond à la transition de plus haute énergie utilisable pour l'étalonnage avec cette source. On obtient les valeurs suivantes :

| | TNT2D | Analogique |
|-------------------------|----------|------------|
| Non-linéarité intégrale | 0,0065 % | 0,022 % |

La valeur trouvée pour les cartes TNT2D est cohérente avec la valeur de 0,008% mesurée par Christina Dritsa et Olivier Dorvaux en 2005 [67].



FIGURE 4.8 – Spectre γ de la source d'étalonnage de ¹³³Ba et ¹⁵²Eu obtenu avec les cartes TNT2D sur JUROGAM. Les énergies indiquées sont celles mesurées sur le spectre étalonné. / Spectrum of the ¹³³Ba et ¹⁵²Eu γ -ray calibration source from the TNT2D cards on JUROGAM. The provided energies have been measured on the calibrated spectrum.

| Energie tabulée | Energie Numérique | Erreur Numérique | Energie Analogique | Erreur Analogique |
|-----------------|-------------------|------------------|--------------------|-------------------|
| (keV) | (keV) | (keV) | (keV) | (keV) |
| 80.9971 | 84.1 | -3.1 | 80.8 | 0.2 |
| 121.782 | 119.7 | 2.1 | 121.8 | -0.0 |
| 244.697 | 244.1 | 0.6 | 244.7 | -0.0 |
| 276.4 | 276 | 0.4 | 276.3 | 0.1 |
| 302.851 | 302.6 | 0.3 | 302.8 | 0.1 |
| 344.279 | 344.2 | 0.1 | 344.3 | -0.0 |
| 356.013 | 355.9 | 0.1 | 356 | 0.0 |
| 383.848 | 383.9 | -0.1 | 383.8 | 0.1 |
| 411.116 | 411.1 | 0.0 | 411.3 | -0.2 |
| 444 | 444.2 | -0.2 | 444 | 0.0 |
| 778.904 | 779.3 | -0.4 | 779 | -0.1 |
| 867.378 | 867.8 | -0.4 | 867.3 | 0.1 |
| 964.1 | 964.4 | -0.3 | 964 | 0.1 |
| 1085.84 | 1086.2 | -0.4 | 1086.1 | -0.3 |
| 1112.07 | 1112.1 | -0.0 | 1112 | 0.1 |
| 1212.95 | 1213.1 | -0.2 | 1212.7 | 0.3 |
| 1299.14 | 1299 | 0.1 | 1299.1 | 0.0 |
| 1408.01 | 1407.5 | 0.5 | 1407.9 | 0.1 |

TABLE 4.2 – Valeurs de l'analyse de contenu du spectre d'étalonnage ¹³³Ba et ¹⁵²Eu pour les systèmes d'acquisition numérique et analogique. / *Comparison of the energies measured through the digital and analogue acquisition for the* ¹³³Ba et ¹⁵²Eu source calibration.



FIGURE 4.9 – Différence entre les énergies tabulées pour les raies provenant de la décroissance de la source de ¹³³Ba et ¹⁵²Eu [32] et les valeurs mesurées avec les cartes TNT2D et l'acquisition analogique. / *Energy deviation from the tabulated values for the decay of the* ¹³³Ba et ¹⁵²Eu [32] calibration source for the TNT2D cards and the analogue acquisition.



FIGURE 4.10 – Spectre en énergie γ pour l'acquisition numérique et analogique. / Energy spectra for the digital and analogue acquisition.

On peut en conclure que les cartes TNT2D présentent une linéarité en énergie accrue par rapport au système d'acquisition analogique. Cette amélioration est principalement visible en dessous de 300 keV (cf figure 4.10), zone en énergie critique pour l'étude spectroscopique des éléments très lourds.

4.5.2 Evaluation statistique

La comparaison en source des deux systèmes ayant été concluante, nous sommes passé à une comparaison en faisceau dans le cadre de l'expérience visant létude du noyau ²⁵²No. Lors de cette expérience, JUROGAM a été instrumenté par des cartes TNT2D issues d'une part de cartes IPHC financées pour le projet (3 cartes), de cartes prêtées par Marc Rousseau (2 cartes), Gilbert Duchêne (4 cartes) et de cartes issues de la collaboration GABRIELA (6 cartes). La figure 4.10 présente le spectre en énergie total d'une partie de l'expérience pour la somme de tous les détecteurs de JUROGAM. L'insert présente la partie basse énergie de ce spectre. On constate que le spectre des voies numériques (TNT2D en rouge) contient un nombre plus important de coups que celui des voies analogiques (en bleu). Lorsqu'on compare le nombre de coups enregistrés dans un détecteur par les deux cartes, on constate que les cartes TNT2D apportent un gain de statistique de l'ordre de 36 %, principalement à basse énergie. La linéarité à basse énergie associée à la qualité CFD digital et la rapidité de traitement des cartes TNT2D permettent d'abaisser le seuil de détecteurs.

4.5.3 Corrélation entre les données numériques et analogiques

Après avoir comparé les statistiques enregistrées par les deux systèmes d'acquisition, il était intéressant d'évaluer dans quelle mesure les cartes TNT2D enregistraient les mêmes évènements que les cartes analogiques. J'ai développé un programme permettant de comparer les données issues des deux systèmes d'acquisition. Le programme lit en parallèle les deux fichiers contenant les données issues des cartes TNT2D d'une part et des cartes analogiques d'autre part afin de comparer les évènements γ enregistrés. Pour cela, il faut s'asssurer que les évènements se retrouvent d'un fichier à l'autre. Les deux fichiers sont indépendants, mais les signaux d'horloge enregistrés dans chacun sont identiques. En effet, les données enregistrées dans les deux fichiers sont au format TDR et contiennent les signaux de l'horloge absolue. Le programme utilise les signaux de re-synchronisation de l'horloge pour caler la lecture des fichiers. Le fichier contenant les données analogiques est considéré comme maître, c'est-à-dire que l'on parcourt l'autre fichier en comparaison de ses données (cf figure 4.11). A l'ouverture du fichier, le programme parcourt les évènements jusqu'à trouver un signal de synchronisation de l'horloge. Il fait de même pour le second fichier, puis compare la valeur du signal. Si les valeurs sont différentes, le fichier ayant la valeur la plus faible est parcouru jusqu'à la lecture du signal d'horloge correspondant. Une fois les deux fichiers calés, c'est-à-dire pour une même valeur d'horloge, on commence à comparer les évènements γ . A chaque signal d'horloge, le programme vérifie le calage des deux fichiers et refait la synchronisation si nécessaire.

Les évènement situés entre deux signaux d'horloge sont lus dans chaque fichier. Ceux issus des détecteurs germanium sont stockés dans deux vecteurs qui seront comparés. Les évènements sont stockés sous forme d'objets C++ contenant l'énergie, l'identifiant du détecteur et son temps d'arrivée. La mise en corrélation des évènements se fait par la valeur du temps d'arrivée, délivré par la même horloge pour les deux systèmes. Seuls les évènements qui ne sont pas marqués comme somme ou diffusion Compton sont pris en compte.

A chaque évènement dans le vecteur contenant les données analogiques, le programme parcourt l'autre vecteur à la recherche d'un évènement correspondant. La fenêtre en temps est fixée à ± 250 ns (soit 50 périodes d'horloge) autour du temps d'arrivée de l'évènement analogique comme le montre la figure 4.11. Quand un évènement numérique est trouvé dans cette fenêtre, le programme compare les numéros des détecteurs ayant enregistré l'évènement, puis la valeur de l'énergie enregistrée. Un évènement est associé dans les deux fichiers lorsqu'il a été enregistré par le même détecteur avec une différence en énergie de 5 keV



FIGURE 4.11 – Méthode d'association des évènements γ enregistrés dans deux fichiers différents par les systèmes d'acquisition analogique et numérique (TNT2D). / Algorithm used for the association of the data recorded in parallel by the digital (TNT2D) and analogue acquisition.

au plus. Une fois cette association effectuée, on incrémente la matrice représentant l'énergie mesurée par le système analogique en fonction de celle mesurée par les cartes TNT2D.

Le taux de comptage maximal enregistré dans JUROGAM durant l'expérience était de 18 kHz par cristal, soit un évènement toutes les 1,6 μ s. La probabilité de recevoir un second photon dans le même détecteur dans la fenêtre de 500 ns est donc très faible. De plus, la multiplicité des évènements γ dans cette fenêtre en temps est de 2 au maximum et ces cas ne représentent que 0,75% de la statistique par détecteur. Les fausses corrélations ne sont donc pas un problème pour l'identification des évènements γ dans ce cas.

La figure 4.12 illustre la corrélation entre les évènements γ identifiés dans les deux fichiers. La correspondance en énergie est confirmée sur une grande partie de la gamma en énergie. En dessous de 300 keV, on retrouve la non linéarité des cartes analogiques déjà mise en évidence sur la figure 4.9.

Le programme permet donc d'associer dans les données provenant des deux systèmes d'acquisition les évènements identiques. Il ressort de cette étude que 13 % des évènements enregistrés par les cartes analogiques ne sont pas retrouvés dans les données numériques, contre 44 % pour le cas inverse. Cette différence s'explique par un gain de statistique de 36 % en faveur des cartes numériques pour un taux de comptage de l'ordre de 10 kHz.

Ces chiffres confirment la fiabilité des cartes TNT2D en tant que système d'acquisition pour JUROGAM. Le gain en nombre de coups enregistrés est fondamental pour des expériences de faible section efficace dans la région des noyaux transfermium.

4.6 Adaptation à JUROGAM 2

JUROGAM 2 a été instrumenté par des cartes TNT2D issues d'une part de cartes IPHC financées pour le projet (3 cartes), de cartes prétées par Marc Rousseau (2 cartes), Gilbert Duchêne (4 cartes) et Philippe Dessagne (6 cartes), et de cartes issues de la collaboration GABRIELA (11 cartes).

4.6.1 Propagation de l'horloge

Les 28 cartes doivent être chainées afin d'asservir les 27 dernières à la première qui définit la référence en temps. Ce chainage utilise les prises LVDS présentes à l'arrière des cartes afin de lire et de propager le signal de l'horloge fourni par la carte maître. Lors de l'installation des cartes, il s'est avéré que la propagation du signal d'horloge ne se faisait pas jusqu'au bout de la chaîne, empêchant les cartes de toutes se synchroniser



FIGURE 4.12 – Corrélation entre les évènements enregistrés dans les cartes TNT2D et ceux enregistrés dans les cartes analogiques. La non linéarité des cartes analogiques à basse énergie est bien visible dans l'insert. Les trainées verticales correspondent à des corrélations aléatoires au niveau des raies X du plomb et du nobelium. / Correlation between the events recorded by the TNT2D cards and the analogue acquisition. The non-linearity of the analogue ADC at low energy is visible in the inset. The vertical lines represent the random correlations with the Lead and Nobelium X-rays.



FIGURE 4.13 – Principe du couplage entre le cristal de germanium et le pré-amplificateur associé. a) Couplage résistif pour un détecteur tronconique. b) Coupage capacitif pour un détecteur trèfle. / Working principle of the coupling between the germanium crystal and the pre-amplifier. a) Resistive coupling for a tapered detector. b) Capacitive coupling for a clover detector.

et donc de débuter l'acquisition. Le signal se propageait de manière correcte sur deux chassis NIM, soit 12 cartes, mais était perdu dans le suivant du fait de l'atténuation du signal. La dernière carte recevant le signal n'était pas toujours la même. Une solution consistait à régler en maître non plus une, mais deux cartes qui transmettaient leur horloge à la moitié des cartes restantes. Les cartes TNT2D ont fonctionné dans cette configuration jusqu'à la modification du programme interne des cartes TNT2D.

Le problème de propagation a été résolu par Laurent Charles dans une version modifiées du programme de la carte TNT2D. Le signal d'horloge reçu par la carte est maintenant amplifié avant d'être transmis à la carte suivante afin d'éviter son atténuation le long de la chaîne de propagation. Cette amélioration a permis de chaîner les 28 cartes et de n'utiliser qu'une seule carte comme maître.

4.6.2 Gestion de l'offset pour les détecteur trèfles

L'impulsion électrique générée sur l'électrode d'un détecteur germanium est trop faible pour être mesurée directement avec la précision nécessaire à une analyse physique. Pour cette raison, un pré-amplificateur est associé à chaque cristal pour envoyer à la carte d'acquisition un signal suffisament puissant. Le pré-amplificateur peut être couplé au cristal par un circuit résistif (continu) ou un circuit capacitif (alternatif) comme détaillé sur la figure 4.13. Le choix du couplage dépend de la position de la haute tension qui polarise la jonction P-N du détecteur. Si le couplage avec le pré-amplificateur est fait sur la même électrode que le branchement de la haute tension, on utilise un couplage capacitif. Dans le cas contraitre, on utilise un couplage résistif.

Les détecteurs trèfle de EUROGAM requièrent le branchement de la haute tension à l'intérieur des quatre cristaux. En effet, si les électrodes situées à l'extérieur ne sont pas à la masse, leur potentiel sera différent lors de la mise sous tension en raison de la structure spécifique de chaque cristal. La polarisation à quelques milliers de volts va entrainer des claquages entre les cristaux. Pour éviter ce problème, la haute-tension de polarisation est toujours appliquée sur l'électrode centrale des détecteurs composites. Etant donné que la mesure de l'énergie est aussi faite au centre du détecteur, on utilise un couplage capacitif entre les quatre cristaux de germanium et leur pré-amplificateur comme indiqué sur la figure 4.13.b.

Cependant, le circuit capacitif ne permet pas de transmettre cette composante continue et entraine un



FIGURE 4.14 – Principe d'évolution de l'adaptation de l'offset en fonction du taux de comptage. /Working principle of the automatic offset adaptation as a function of the couting rate.

filtrage de la composante lente du signal fourni par le détecteur. De fait, la capacitance doit rester en valeur moyenne à zéro. Ainsi, plus les signaux reçus sont amples et rapprochés, plus la ligne de base va s'écarter de la masse, induisant un décalage (offset) à l'entrée du pré-amplificateur.

Les cartes TNT2D disposent d'un réglage d'offset permettant de compenser le décalage de la ligne de base et donc d'optimiser la dynamique de codage du flash ADC. Le gain et l'offset du convertisseur sont reglés de manière à prendre en compte la totalité du signal reçu tout en utilisant au maximum la dynamique du codeur afin d'obtenir la meilleure résolution possible. La variation de la ligne de base va rendre ces réglages caduques dès lors que le taux de comptage sera différent de celui pris en compte lors du réglage de la carte. Dans notre cas, où la ligne de base dépend du taux de comptage, la dynamique disponible diminue avec le taux de comptage.

Pour cette raison, le code embarqué dans les FPGA Virtex II a été modifié par Laurent Charles afin d'introduire une correction automatique de l'offset en fonction du taux de comptage. La correction est basée sur cinq niveaux de taux de comptage associés à cinq valeurs d'offset comme schématisé sur la figure 4.14. Dès que le taux de comptage mesuré par la carte passe un seuil, la valeur de l'offset est adaptée afin de maintenir le signal dans la dynamique du codeur. Afin d'éviter un effet d'oscillation autour d'une valeur seuil, le changement d'offset est sujet à un cycle d'hysteresis dont le principe est représenté sur la figure 4.14. Le passage à une valeur d'offset supérieure se fait lorsque le taux de comptage atteint le palier supérieur. Si le taux de comptage redescend sous le seuil, l'offset n'est pas adapté immédiatement. Il faut que le taux de comptage descende sous le seuil inférieur. Cet hysteresis permet d'éviter que l'offset ne soit constament réadapté si le taux de comptage oscille autour d'une valeur seuil.

Les valeurs des seuils en taux de comptage et les valeurs des offset à appliquer sont réglables via l'interface de TUC ou de DTUC. La figure 4.15 représente l'onglet de réglage de l'offset variable dans TUC.

L'adaptation variable de l'offset est désactivable via l'interface TUC ou DTUC.

Ce système d'offset variable a été utilisé lors de l'expérience sur le ²⁴⁶Fm qui est analysée au chapitre 6. Deux jeux de paramètres ont été générés, l'un pour un taux de comptage maximal de 30 kHz, l'autre pour un taux de comptage maximal de 40 kHz. Les deux jeux de paramètres ont été utilisés au cours de l'expérience. L'adaptation de l'offset a permis de faire varier l'intensité du faisceau sans avoir à intervenir sur les réglages des cartes TNT2D.

| and the second se | Oscillor | trammes de la | carte nº1210 | Histogramme | s des énerci | es Ontions | | | | |
|---|---|-------------------|----------------|--------------------|----------------------------------|---|---|--|---|---|
| | Oscilloş | grammes de la | | riistogramme | s des ellergi | es options | | | | |
| Détecte | er les cartes | s numériques | Carte : D | 1210 T SPAI | БЛРНСИ NT2 D RTAN -D :V 1.2 | -08//10/2008, ton - 06/2009 | ctionne en :USB | 2 | | |
| Detection | n ico curtos | manenques | Curto. In | VII-T | NT2-DUBNA :V | 2.1 SEEPROMS - | 06/2009 | | | |
| aramètres | s de la carte s | électionnée 1/3 | Paramètres 2/3 | Paramètres 3/3 | Jyva 2009 | 3 | | | Card ve | ersion: Tnt2-D |
| | | | | | | | | | | |
| Enable | | | | | | | | | | |
| Auto | matic offset a | adjustment | | | 000 | | 000 | 0/1 1 0 | 0.004 | 0// 10 |
| - | | Utiset | CKT E 144 | UTISELA | 10.000 | UTISEL B | LK3 | 11 520 | 04 576 | 011set D |
| | 2 | 22 320 | 6 144 | 10 944 | 12 200 | 15 104 | 10 432 | 11 520 | 24 576 | 7 690 |
| | 3 | 22 520 | 6144 | 18 9/4 | 12 200 | 15 104 | 18 432 | 11 520 | 24 576 | 7 680 |
| | 4 | 22 528 | 6144 | 18 944 | 12 288 | 15 104 | 18 432 | 11 520 | 24 576 | 7 680 |
| | | 22.020 | 0.111 | 10011 | 12.200 | | 10 102 | | 21010 | |
| 100 | | | | | | | | | | |
| liles es | uu diaital aain | (E-made) | | | | Offset . | applied | | | |
| Jusene | w algital gain | (E mode) | | | | 04 | and the second second | | | |
| Taskis | 0 shills a shi /T is | | 10 cm | | | Unset_D | | ┈┍┽┯ | - 23 | |
| | Audpack (Ein | node) | in sp. | | | Offrat C | | † | | |
| | | | | | | Unseco | Г | | | |
| | | | | | | Offset B | † | | | |
| Innut of | ionals cames | from road amplifi | | | | | | | | |
| _ input si | ignais cames | from reset amplin | ier | | | | | - - | | |
| _ input si | gnais cames | from reset amplin | ier | | | Offset A | . F. F | | | |
| _ input si | ignais camee | from reset amplin | ier | | | Offset_A | -[-] | | | |
| _ input si | | rrom reset amplin | ler | | | Offset_A | - | → | Chappel | munting |
| _ mput si | gruis curres | rom reset amplin | ier | | | Offset_A | | | Channel | counting |
| _ mput si | gruis curres | nom reset amplin | ler | | | Offset_A | | • | Channel r: | counting ate |
| _ mput si | grue cance | nom reset amplin | ier | | | Offset_A | CR1 CR | 2 CR3 CR4 | Channel rz | counting |
|] Fast sig | inals (TFA) | nom reset amplin | ler | | | Offset_A | CR1 CR | 2 CR3 CR4 | Channel rz | counting ate |
| Fast sig | inals (TFA) | nom reset amplin | ler | | | Offset_A Offset Automatic | CR1 CR | 2 CR3 CR4 | Channel ra counting r | counting ate |
|] Fast sig | inals (TFA) | nom reset amplin | ler | | | Offset_A Offset Automatic | CR1 CR coffset adju | 2 CR3 CR4 istment with or a given cl | Channel ra counting r nannel) | oounting ate |
|] Fast sig | inals (TFA) | nom reset ampin | ler | | Ŕ | Offset_A Offset Automatic flu | CR1 CR coffset adju | 2 CR3 CR4 istment with or a given cl | Channel r counting r nannel) | counting ate |
|] Fast sig | inals (TFA) | | ler | | | Offset_A Offset Automatic flu | CR1 CR coffset adju | 2 CR3 CR4 Istment with | Channel r counting r nannel) | counting te ate |
| Fast sig | inals (TFA) r paramètre | es Sauv | regarder param | Inter | roger carte | Offset_A Offset Automatic flu | CR1 CR coffset adju uctuation (fo | 2 CR3 CR4 Istment with | Channel rz counting r nannel) | ocunting ate ate MAJ cartes |
| Fast sig | nals (TFA) r paramètre | es Sauv | vegarder param | Inter | roger carte | Offset_A Offset Automatic flu | CR1 CR coffset adju cutuation (fo | 2 CR3 CR- istment with or a given cl | Channel r counting r hannel) | counting ate ate MAJ cartes |
| Fast sig | nals (TFA) r paramètre s données e | es Sauv | regarder param | Inter | roger carte Acquis | offset_A Offset Automatic fit | CR1 CR coffset adju uctuation (fo | 2 CR3 CR istment with or a given cl | Channel r counting r hannel) tionnée sur le | mounting ate MAJ cartes |
| Fast sig Charge stion der Sauvega | nals (TFA) r paramètre s données e rder | es Sauv | regarder param | Inter | roger carte | Offset Offset Automatic flu | CR1 CR coffset adju actuation (for IAJ carte | 2 CR3 CR4 istment with or a given cl ellement sélec s: | Channel rannel) tionnée sur le | MAJ cartes |
| Fast sig Charge stion des Sauvega | nais (TFA) r paramètro s données e rder | es Sauv | regarder param | Inter | roger carte Acquis | offset Offset Automatic flu | CR1 CR coffset adju uctuation (for IAJ carte Octets reque | 2 CR3 CR4 Istment with or a given cl | Channel r counting r nannel) | MAJ cartes MAJ Safes bus USB: 0 00.00 Mo/s |
| Fast sig Charge Sauvega | nais (TFA) r paramètre s données e rder | es Sauv | regarder param | Inter | roger carte Acquis Start a | offset_A Offset Automatic flu ition | CR1 CR coffset adju uctuation (for IAJ carte Carte actue Octets reque | 2 CR3 CR4 istment with or a given cl ellement sélec s: | Channel r counting r nannel) | MAJ cartes MAJ Cartes bus USB: 0 00.00 Mo/s |
|] Fast sig Charge stion des Sauvega | nals (TFA) r paramètre s données e rder | es Sauv | regarder param | Inter | roger carte Acquis Start a | Offset Offset Automatic flu | CR1 CR coffset adju uctuation (for IAJ carte Carte actue Octets reque Total octets reque | 2 CR3 CR- 2 CR3 CR- 1 Stment with 1 Stment sélection 2 State of the selection of the se | Channel r counting n hannel) | MAJ cartes MAJ cartes bus USB: 0 00.00 Mo/s |
| Fast sig | nals (TFA) r paramètre s données e rder | es Sauv | regarder param | Inter | roger carte Acquis Start a | offset Offset Automatic flu | CR1 CR coffset adju uctuation (fo IAJ carte Carte actua Octets recus Total octets re toutes les cart | 2 CR3 CR4 istment with or a given cl ellement sélect s: cus pour es: | Channel r counting r hannel) | MAJ cartes MAJ cartes 0 00.00 Mo/s 0 |
| Fast sig Charge lion des lauvega | nals (TFA) . r paramètre s données e r/ r | es Sativ | regarder param | Inter | roger carte Acquis Start a | offset_A Offset Automatic flu ition | CR1 CR coffset adju actuation (for IAJ carte Carte actue Octets recus Total octets re- toutes les cart Répertoire: Di | 2 CR3 CR4 istment with or a given cl ellement sélec s: cus pour es: | Channel r counting r nannel) | MAJ cartes MAJ cartes bus USB: 0 00.00 Mo/s 0 |

FIGURE 4.15 – Interface de réglage de l'offset variable dans TUC. / Screenshot of the GUI for the offset adaptation in TUC.

Chapitre 5

Préparation d'un faisceau de ⁵⁰**Ti pour la production du noyau** ²⁵⁶**Rf**

5.1 Abstract

Theoretical and Experimental context

The nucleus of ²⁵⁶Rf represents the next major step in the spectroscopic study of the transfermium region. This nucleus is located on the 152 neutrons isotone (mentionned in chapter 2) where we see the sharp decrease in the fission barrier between Nobelium and Rutherfordium on the 152 neutrons isotone. It should also complete the results from the decay spectroscopy experiments preformed in the Lawrence Berkeley Laboratory and the Argonne National Laboratory [76, 77] whose conclusion on the presence of high K isomers in ²⁵⁶Rf diverge. Nuclei of ²⁵⁶Rf can be produced through the fusion-evaporation reaction ²⁰⁸Pb(⁵⁰Ti,2n)²⁵⁶Rf with a cross-section of the order of 15 nb [78] at a 240 MeV beam energy. Given the low cross-section, a minimal beam intensity of 60 pnA is proposed to gather a reasonnable statistics at the target position. This experiment therefore requires the production of a high intensity ⁵⁰Ti beam.

Techniques for the production of a ⁵⁰Ti beam

Titanium has five stable isotopes which are listed in table 5.1 on page 105 with their isotopic ratio. The production of a beam of 50 Ti requires enriched titaniumn 50 if we want to reach intensities compatible with this spectroscopic study.

We investigated the use of an inductive oven developped at the University of Jyväskylä based on the one used at GSI [79]. The high fusion temperatures of titanium (1668°C) and titanium dioxide (1855°C) require very high temperatures with a fine control. The inductive oven is composed of a Molybdenum oven, placed inside spires inducing currents in the oven's metal (see fig. 5.3 on page 107)). A crucible can be inserted inside the oven in order to protect it from reaction with the heated material. This crucible can be built out of carbon or tungsten for example (see fig. 5.4 on page 107).

Another solution for the production of a titanium beam is the use of the MIVOC technique developped at the University of Jyväskylä [80]. This method uses volatile organometallic compounds to transport the metal in the plasma chamber solely with the vapour pressure of the compound. The flow of molecules is regulated by a micrometric valve (see fig. 5.5 on page 108). However this method introduces a sizeable amount of other elements in the plasma. These atoms can pollute the plasma and compromise the production of the beam. Special care has to be taken in choosing the used compounds. This method can produce beam intensities of the order of tens of microamperes with consumptions lower than 1 μ g/h.

Tests

Preliminary test at the Institut d'Electronique du Solide et des Systèmes

The use of metallic titanium to produce a beam was first tested on the implantation source available at InESS with the help of Y. LeGall. Powder of metallic titanium was put in the Freeman ion source [81] and heated at 240°C. Two different gases were tested to transport the titanium in the plasma chambre : CCl_4 and Cl_2 . Both worked equally well. We obtained a total intensity of 70 μ A for an hour. The detail of the isotopic intensities is shown in table 5.3 on page 109. This method however used 74 mg/h of titanium. This test has shown that metallic titanium can be used to produce a beam. However, the consumption is absolutely unacceptable for enriched titanium (US\$ 16 for 1 mg). This method would also require the use of Chlorine which is hazardous to the sealings of the beamline.

High temperature titanium beam

Different pellets of titanium have been tested on the inductive oven at the University of Jyväskyä. A pellet of metallic titanium was obtained by reducing TiO_2 using the procedure described in [82]. From 100 mg of TiO_2 we obtained 42.9 mg of partially reduced titanium (the stoechiometric proportions of the reaction were not respected, leading to an incomplete reduction).

Based on Elligham diagrams (see fig. 5.6 on page 111) we selected aluminium and chromium to blend with TiO_2 to reduce it within the oven. The different pellets prepared to test this principle are listed in table 5.4 on page 110.

A first test was performed using TiO_2 provided by the FLNR Dubna. The pellet was inserted in a carbon crucible. It produced a beam of 30 pnA of ⁴⁸Ti at the exit of the cyclotron (point BB1 on fig. 5.2 on page 106). We recorded two reference points for the settings of the oven, which are detailed in table 5.5 on page 110. The beam intensity dropped to 22 pnA after 3 hours and to zero over the night. The pellet was completely consummed when the oven was opened and we could not make any consumption estimation.

The metallic pellet was also tested. It provided a beam of 1-2 μ A at the exit of the source. However, a leak in the ECR source caused an oxygen intake that oxidized the titanium. The pellet was weighted and we measured a mass gain of 16.2 mg due to the oxidation.

A pellet with a blend of 99% TiO₂ and 1% Cr was tested. The idea was to use the reaction power of the mix. It provided a 330 enA beam intensity at the BB1 point, meaning 22 pnA on target. The oven was not pushed higher in temprature in order not to damage it. From this test we recorded two beam intensities with the corresponding settings for the oven (100 enA and 330 enA on the BB1 point). From these measurements I extrapolated the titanium consumption and the oven temperature needed to produce a 600 enA beam. These calculations give a consumption between 3.1 and 5.3 mg/h and an oven temperature between 1740 and 1765 °C.

MIVOC compounds

We investigated four molecules for the use of the MIVOC chamber. These molecules are listed in table 5.6 and represented on fig. 5.10 on page 115. All of them can be synthesized from TiCl₄ [83]. Only two molecules gave a sufficient vapour pressure on the mass spectrometer at the University of Jyväskylä : $Cp^*Ti(CH_3)_3$ and $Cp_2Ti(CH_3)_2$. Their mass spectra are represented on fig. 5.17 and 5.16 respectively. These results were obtained with the collaboration of R. Seppälä form the University of Jyväskylä. These molecules performed well on the mass spectrometer and were expected to provide a beam when tested on the ECR source. The first tests were however inconclusive. The various titanocene molecules are sensitive to moisture and rapidly decompose when exposed to air. The failure of the first tests were due to air intakes at various points on the connection to the ECR source. We had a new adpatator engineered at IPHC to directly

connect vials containing the titanocene to the mass spectrometer and to the ECR source (see fig. 5.15 on page 118). This adaptator is attached to a micrometric valve to ensure the flow regulation.

Once the airtightness of the process was validated, we continued the tests to find a suitable solvent to keep the titanocene in liquid phase during storage and transport and therefore protect it from air. Chloroform provides a good solution as it can be quite easily evaporated for the preparation of the sample for the beam. The spectra shown on fig. 5.18.c on page 120 shows the evolution of the mass spectrum of $Cp_2Ti(CH_3)_2$ with a residue of choloroform. We can see that the peak of chloroform (*CHCl*₂) decrases rapidly while the peaks containing partial molecules of titanocene rise accordingly.

We also tested an ionic liquid as a protection "in-use" of the titanocene. These liquids have a very low partial pressure and are considered chemically completely inert. We performed a mass measurement on a sample before and after the dilution in ionic liquid. The spectra are shown on fig. 5.19 on page 121. They indicate a decrease of 25% of the peak intensity for titanium compounds after the addition of ionic liquid. Given the advantage of ionic liquid as a protection this is an acceptable decrease because it offers a long term protection. The concentration of the product must however be carefully adjusted to maximise the titanocene output. This study will be continued.

Final tests were performed on the ECR 2 (14 GHz) source after the failure of the test on ECR 1 (6.4 GHz). The $Cp_2Ti(CH_3)_2$ provided a 2.8 eµA ⁴⁸Ti¹⁰⁺ beam out of the source, meaning 8 pnA on target. This intensity is rather low but promising.

Synthesis of the enriched compound

Based on the success to produce a beam out of $Cp_2Ti(CH_3)_2$, we proceeded to synthesize this molecule with 90% enriched ${}^{50}TiCl_4$. The enriched ${}^{50}TiCl_4$ is packaged in an aluminium can under vacuum. We had to develop a method to extract the liquid from the can under vacuum with the maximum efficiency and the minimum risks. We used cryogenic pumping as shown on the picture 5.21 on page 123. The ${}^{50}TiCl_4$ was pumped through three cryogenic traps immersed in liquid Nitrogen. The first trap was a vial used to recover the product. It was carefully maintained just above the fusion point of $TiCl_4$ to ensure that it stayed in the vial but did not freeze in the input tube. The efficiency of the extraction process is 98%.

We extracted 402.5 mg and 2439 mg of $TiCl_4$ from the two cans. The enriched $Cp_2Ti(CH_3)_2$ was synthesized by Z. Asfari and diluted in chloroform at 0.82 mole/L. The product was tested on the mass spectrometer to ensure it did fit the requirements. The mass spectrum (see fig. 5.22 on page 124) indicates the correct evaporation of the titanocene and confirms the presence of ⁵⁰Ti. The titanocene was not completely dry and could explain the slightly lower intensities seen on the spectrum due to a vapor pressure ratio of the two compounds in the vial.

The product was however sent on the ECR2 source to produce a beam.

Unfortunately the A/q ration of the ${}^{50}\text{Ti}{}^{10+}$ is the same as that of ${}^{35}\text{Cl}{}^{7+}$, preventing us to evaluate the actual intensity of the beam. The presence of chlorine is due to the remainders of chloroform in the sample. The use of chloroform for later tests and beam production will from now on be avoided. Ether could provide a suitable replacement, as well as the ionic liquid.

The beam intensity was however estimated from the 11^+ charge state which gave a 0.5 to 1 eµA out of the ECR2 source. Using a 3/4 ratio the $10^+/11^+$ charge states measured from a previous test, we estimate a 0.3 to 0.7 eµA intensity for the ${}^{50}\text{Ti}{}^{11+}$. This means 1.2 pnA of ${}^{50}\text{Ti}$ on target.

A problem with the MIVOC connection limited the beam production. The sample was maintained under vaccum by pumping on the mass spectrometer overnight. After this was solved, the sample produced a beam intensity of 150 enA out of the cyclotron, meaning 14 pnA on target. This was still too low to perform the experiment.

The $Cp_2Ti(CH_3)_2$ molecule has been shown to produce a beam, though with lower intensities than expected. We intend to secure the process on the synthesis part and on the beam production part to ensure

the production of a 50 Ti in the short term.

Consumption calculations

In prevision of the acquisition of the enriched titanium, I estimated the consumption of ⁵⁰Ti needed for the expriment and the subsequent production of ²⁵⁶Rf nuclei. I estimated the effect of the synthesis of $Cp_2Ti(CH_3)_2$ from $TiCl_4$ with a 49% efficiency and the reduction of TiO₂ with an efficiency of 35.2%. I used an enrichment value of 92% for both forms. The results for 30 pnA and 75 pnA beam intensities in both cases are indicated in table 5.8 on page 125. It shows that the MIVOC method is estimated to be 90% more efficient than the inductive oven.

The production of ²⁵⁶Rf nuclei per day has been calculated for two cases : 30 pnA on a 0.5 mg/cm² ²⁰⁸Pb target and 75 pnA on a 0.2 mg/cm² target. I obtain 106 nuclei per day and 180 nuclei per day for both hypothesis respectively.

5.2 Préparation d'un faisceau de ⁵⁰Ti pour la production du noyau ²⁵⁶Rf

5.2.1 Contexte théorique et expérimental

La physique du Rutherfordium

Le noyau ²⁵⁶Rf (Z = 104) représente la prochaine étape dans l'étude spectroscopique de la région des noyaux transfermium. Ce noyau est situé sur l'isotone N = 152 que j'ai déjà mentionné au chapitre 2. Comme le montre la figure 2.1, le rutherfordium inaugure un comportement différent de celui des éléments de masse inférieure. Contrairement au fermium (Z = 100) et au nobelium (Z = 102), sa barrière de fission ne présente pas un maximum pour l'isotone 152. Le rutherfordium semblerait bénéficier d'un gap à N = 162 comme le seaborgium (Z = 106). Ces observations vont à l'encontre du comportement que l'on attendrait au vu des noyaux plus légers car la rupture est très importante (environ 7 ordres de grandeur pour la demi-vie [84]). Ce comportement s'expliquerait par une diminution de la barrière de fission extérieure, ce qui implique une barrière de fission totale plus fine et donc plus perméable à la fission [85, 86, 87]. L'étude de sa structure permettrait donc d'en apprendre plus sur les orbitales impliquées dans cette stabilité et de comprendre ce qui le différencie tellement du nobelium voisin.

Un autre intérêt de l'élément ²⁵⁶Rf réside dans la recherche d'états isomériques de haut K. Ces états sont notoirement présents autour des gaps proton Z = 102 et 104 et neutron N = 152. Le cas du ²⁵⁴No est un parfait exemple de la présence de ces états métastables [33]. Des expériences menées au Argonne National Laboratory [77] sur le séparateur FMA et au Lawrence Berkeley Laboratory [76] sur le séparateur BGS ont observé la présence d'états isomériques de haut K dans le noyau ²⁵⁶Rf. Cependant les conclusions de ces expériences sont contradictoires. Ces mesures ont été réalisées en spectroscopie retardée au plan focal du séparateur. Il n'existe à ce jour pas de données concernant la désexcitation prompte du noyau ²⁵⁶Rf. L'expérience prévue a pour objectif de combler ce manque. Ce noyau serait situé sur deux gaps déformés à Z = 104 et N = 152. On s'attend donc à observer une structure rotationnelle construite sur l'état fondamental.

Au-delà de l'isotope 256, les informations sur l'ensemble des rutherfordia devraient apporter des informations supplémentaires sur la région transfermium et plus particulièrement sur la transition entre cette région et celle des noyaux superlourds. On considère en effet que l'élément rutherfordium est le premier élément superlourd en raison de son comportement différent face à la fission [1].

Section efficace et production

L'élément ²⁵⁶Rf peut être produit par fusion froide suivant la réaction ²⁰⁸Pb(⁵⁰Ti,2n)²⁵⁶Rf. Cette réaction a une section efficace de 15 nb environ à une énergie de 240 MeV [78]. La fonction d'excitation de fusion-évaporation pour les voies 1n (²⁵⁷Rf) et 2n (²⁵⁶Rf) représentée sur la figure 5.1 a été mesurée au Lawrence Berkeley Laboratory à l'Université de Berkeley.

Cette expérience introduit un certain nombre de difficultés techniques qui en ont jusqu'à présent retardé la réalisation. En raison de la faible section efficace, il faut être en mesure d'utiliser un faisceau de haute intensité pour produire un nombre suffisant de noyaux de ²⁵⁶Rf. La valeur de 60 pnA¹ constitue une limite inférieure pour obtenir une statistique compatible avec la spectroscopie γ prompte. Cependant, l'expérience de spectroscopie prompte visant à étudier le ²⁴⁶Fm (voir chap. 6) montre qu'une intensité moyenne de 41 pnA sur deux semaines permet d'observer une bande rotationnelle sur le niveau fondamental. Ce noyau possède une section-efficace de prodution mesurée à 11 nb. On peut donc estimer qu'une intensité de faisceau de 41 pnA serait une valeur acceptable pour cette expérience.

¹Le pA ou particule ampère est l'unité couramment utilisée pour les intensités de faisceaux d'ions. Elle représente le flux d'ions correspondant à l'intensité électrique mesurée sur la ligne de faisceau. La conversion entre Ampères et particules-ampères se fait en divisant l'intensité électrique par la charge moyenne des ions composant le faisceau. Un pnA correspond à 10^{-9} pA.



FIGURE 5.1 – Fonction d'excitation pour les voies 1n et 2n de la réaction d'un faisceau de ⁵⁰Ti sur une cible de ²⁰⁸Pb [78]. / *Excitation function for the 1n and 2 n channels for a* ⁵⁰Ti beam impinging on a ²⁰⁸Pb target [78].

De telles intensités produisent un flux de photons γ et X important qui dépasse les capacités de traitement de l'électronique analogique utilisée jusque là pour la spectroscopie. Pour cette raison, le spectromètre JUROGAM et son successeur JUROGAM 2 ont été instrumentés avec les cartes TNT2D décrites au chapitre 4. Comme nous l'avons vu, ces cartes sont à même de traiter l'important flux de données généré par cette expérience. Ce système a été testé en conditions réelles lors de l'expérience sur le noyau ²⁴⁶Fm qui sera décrite au chapitre 6.

La réalisation de l'expérience visant l'étude du noyau ²⁵⁶Rf pose un dernier problème, celui du faisceau de ⁵⁰Ti. La suite de ce chapitre sera consacrée à la description du développement des méthodes permettant d'accéder à un faisceau de titane 50.

5.2.2 Techniques de production pour un faisceau de ⁵⁰Ti

L'élément ⁴⁸Ca a joué un rôle important dans la synthèse des éléments superlourds et très lourds au travers de l'excès de liaison qui le caractérise du fait de sa double magicité. Cependant, l'utilisation de cibles de plus en plus lourdes est nécessaire pour la synthèse des derniers éléments superlourds. La production des faisceaux métalliques au-delà du calcium est une étape indispensable pour la poursuite de la spectroscopie dans la région transfermium avec des cibles et des faisceaux stables. Les réactions accessibles pour la fusion-évaporation sont limitées par les éléments stables disponibles. L'extension de la spectroscopie au-delà du lawrencium (Z = 103) est donc conditionnée à l'accès à des faisceaux de haute intensité de titane (Z = 22), vanadium (Z = 23) ou chrome (Z = 24) afin de pouvoir continuer à utiliser des cibles de plomb (Z = 82) ou de bismuth (Z = 83). La production d'isotopes du rutherfordium (Z = 104) par fusion froide impose le couple titane-plomb, notamment ⁵⁰Ti et ²⁰⁸Pb pour le noyau ²⁵⁶Rf.

La production de faisceau d'ions titane a déjà été réussie, notamment au GSI Darmstadt [79], à l'Université de Berkeley [88], à l'Argonne National Laboratory ou à l'Université de Jyväskylä [89]. Dans les deux premiers cas, la source d'ions utilisait un four à induction permettant la fusion de titane métallique pour son introduction dans la chambre à plasma de la source ECR. Le laboratoire d'Argonne utilise quant à lui une source à sputtering [90]. Dans le dernier cas, un composé organo-métallique volatil contenant du titane est utilisé selon la méthode MIVOC (Metal Ion VOlatile Compound) développée à l'Université de Jyväskylä [80]. Cette dernière méthode permet de réaliser des faisceaux avec des consommations isotopiques raisonnables, mais demande des développements chimiques complexes.

| Isotope | Masse atomique (amu) | Rapport isotopique (%) |
|------------------|----------------------|------------------------|
| ⁴⁶ Ti | 45,95263156 (89) | 8,25 (3) |
| ⁴⁷ Ti | 46,95176309 (88) | 7,44 (2) |
| ⁴⁸ Ti | 47.94794628 (88) | 73,72 (3) |
| ⁴⁹ Ti | 48,94786998 (88) | 5,41 (2) |
| ⁵⁰ Ti | 49,94479119 (88) | 5,18 (2) |

TABLE 5.1 – Rapport isotopiques naturels des isotopes stables du titane, associés à leur masse atomique [91]. / Isotopic ratios for natural titanium with their atomic mass [91].

Propriétés et Enrichissement du titane

Le titane se trouve naturellement sous forme oxydée. Il possède une très forte affinité avec l'oxygène. Pour cette raison, une couche d'oxyde se forme en surface comme dans le cas de l'aluminium. En raison de cette affinité, le titane est très difficile à réduire comme nous le verrons par la suite.

| | Ti | TiO ₂ | TiCl ₄ |
|-------------------------------|------|------------------|-------------------|
| Température de fusion (°C) | 1668 | 1885 | -24,8 |
| Température d'ébullition (°C) | 3287 | 2500-3000 | 136,4 |

TABLE 5.2 – Caractéristiques thermophysiques du titane [92]. / *Thermophysical characteristics of titanium* [92].

Le titane naturel comporte cinq isotopes stables dont les rapports isotopiques sont détaillés dans le tableau 5.1. L'utilisation de l'isotope ⁵⁰Ti pour la synthèse d'un faisceau intense implique donc l'utilisation de matériel enrichi. En effet, pour obtenir une intensité raisonnable (minimum 20 pnA sur cible) de cet isotope avec du titane naturel, il faudrait obtenir un faisceau de 400 pnA sur cible. La transmission depuis la sortie de la source jusqu'à la cible est de 4,7% à l'Université de Jyväskylä. La figure 5.2 indique les valeurs de l'efficacité de transmission du faisceau des différents composants de la ligne de faisceau entre la source ECR2 et la cible.

Le titane enrichi ne se trouve que sous deux formes disponibles commercialement, le dioxyde de titane et le tétrachlorure de titane. L'enrichissement se fait par séparation de masse et non par centrifugation comme pour l'uranium.

J'ai envisagé la solution de l'enrichissement de composé organiques du titane afin de partir d'un produit disponible commercialement, le titanocène $(CH_3)_5C_5Ti(CH_3)_3$. Cependant, la fragilité de ce produit et l'impossibilité d'accéder à des centrifugeuses ont rendu cette option caduque.

La seule solution possible est donc d'acheter du titane enrichi sous l'une ou l'autre forme et de le modifier pour l'adapter aux techniques de production de faisceau que je vais détailler par la suite.

Four à induction

Le titane ayant une température de fusion de 1668 °C, et l'oxyde de titane 1855 °C avec des températures d'ébullition aux environs de 3000 °C. Les méthodes de production d'un tel faisceau à haute température nécessitent donc l'usage d'un four à induction. L'Université de Jyväskylä a développé une tête de four à induction sur la base du four utilisé au GSI [79].

Le four à induction est constitué d'une pièce en molybdène qui chauffe sous l'influence des courants induits. Le four externe utilise un chauffage inductif pour vaporiser le métal afin de l'amener dans la chambre



FIGURE 5.2 – Schéma de la ligne de faisceau entre la source ECR2 et la cible au Laboratoire de l'Accélérateur à l'Université de Jyväskylä. Les valeurs des efficacités de transmission de différents composants sont indiquées. / Diagram of the beam line between the ECR2 source and the target at the Accelerator Laboratory in the University of Jyväskylä. The transmission efficiencies of the different components of the beam line are indicated.

à plasma de la source ECR. Le métal est placé dans un creuset entouré par un système de chauffage inductif (voir figure 5.3). Le chauffage inductif permet de contrôler précisément la température pour atteindre le point d'ébulition du matériau. A haute température, certains métaux interagissent entre eux, induisant des réactions pouvant être fortement exothermiques. Pour préserver le four, on intercale lorsque c'est nécessaire un creuset en carbone ou en tungstène entre le four et les pastilles (voir photo 5.4) [93]. Dans le cas du dioxyde de titane, le carbone risque de réagir avec le matériau par la réaction $TiO_2 + C \rightarrow Ti + CO_{2gaz}$. Il est donc prudent dans le cas du titane d'éviter le carbone. En ce qui concerne le creuset en tungstène, il est extrêmement difficile d'obtenir un creuset de bonne qualité physique et mécanique du fait de la faible épaisseur nécessaire pour la paroi. Moyennant l'usage d'outils dédiés, il a été possible d'usiner à l'IPHC les creusets nécessaires en tungstène. Le fonctionnement du four demande une pression de vapeur de l'ordre de 10^{-2} à 10^{-3} Torr pour fournir un flux suffisant au plasma [94].



FIGURE 5.3 – Tête de four à induction avec four en molybdène monté. (Photo M. Savonen) / Inductive oven head with its Molydbenum oven mounted. (Picture M. Savonen)



FIGURE 5.4 – Four en molybdène et creuset à côté ou inséré. (Photo M. Savonen) / Molybdenum oven with the Tungsten crucible (Picture M. Savonen)

Méthode MIVOC

La méthode MIVOC utilise des composés organométalliques volatils pour apporter le métal dans la chambre à plasma [80]. Une chambre contenant le composé est connectée à la source ECR par une vanne qui permet de régler le débit du composé vers le plasma (voir figure 5.5).

Le composé doit avoir une pression de vapeur saturante supérieure ou égale à 10^{-3} mbar à température ambiante pour être utilisable ($8x10^{-4}$ mbar dans le cas de la chambre décrite dans [80]). Une fois la vanne


FIGURE 5.5 – Schéma de la chambre MIVOC et connexion à la chambre à plasma de la source ECR [80]. / Schematic drawing of the MIVOC chamber and its connection to the ECR plasma chamber [80].

de contrôle ouverte, les molécules du composé organométallique sont transportées vers le plasma par le seul effet de la pression. Les molécules sont alors brisées dans le plasma et chaque atome est ionisé individuellement. L'inconvénient majeur du système MIVOC réside dans la grande quantité des "polluants" introduits par les chaînes organiques de la molécule. Pour cette raison, il faut utiliser les molécules les plus simples possible étant donné que les ions produits seront tous accélérés hors de la source. L'analyse des courants en sortie se fait par mesure du rapport A/q qui peut se superposer pour différents ions. Il faut tenir compte de cette contrainte lors du choix des molécules utilisées pour la méthode MIVOC.

La méthode MIVOC permet d'obtenir des faisceaux métalliques de plusieurs dizaines de microampères d'intensité avec de consommations inférieures à 1mg/h.

5.2.3 Tests

Test préliminaire à l'Institut d'Electronique du Solide et des Systèmes

Un premier essai de production d'un faisceau de titane a été réalisé sur l'implanteur de l'Institut d'Electronique du Solide et des Systèmes avec l'aide de Yann LeGall. L'implanteur utilise une source de type Freeman [81] dans laquelle le métal est placé dans un four chauffé par conduction. Les atomes évaporés sont transportés dans la chambre à plasma par un flux gaz qui traverse le four. De la poudre de titane oxydé est placée dans le four en molybdène. La température de fonctionnement pour le titane est de 240°C. Deux gaz différents ont été utilisés pour le transport : le CCl₄ et le Cl₂ avec une pression de 0,8 mmHg (810,6 hPa). Le test a été conduit pendant une demi-heure avec chaque gaz. Les intensités obtenues sont équivalentes avec les deux gaz et sont présentées dans le tableau 5.3. On constate que les rapports des intensités obtenues correspondent bien aux rapports isotopiques du titane naturel. L'intensité totale obtenue est de 70 μ A sur une heure de fonctionnement. La pesée du titane utilisé donne une consommation de 74 mg par heure.

Il faut toutefois prendre en compte que le chlore est un oxydant puissant et qu'il attaque l'élastomère des

| Isotope | Rapport isotopique (%) | Intensité (μ A) |
|---------|------------------------|----------------------|
| 46 | 8,25 | 9 |
| 47 | 7,44 | 10 |
| 48 | 73,72 | 50 |
| 49 | 5,41 | 6 |
| 50 | 5,18 | 6 |

TABLE 5.3 – Intensités de faisceau obtenues sur l'implanteur à l'InESS avec du titane métallique. / Beam intensities achieved on the InESS implantation source with metallic titanium.

joints utilisés pour la ligne de faisceau. C'est pourquoi, son utilisation n'est pas envisagée pour le moment. D'autre part, la source ECR utilisée à l'Université de Jyväskylä présente une efficacité de production de 5 % environ [95]. Bien que son fonctionnement soit différent de la source de l'InESS, si on extrapôle les consommations mesurées, on obtient une consommation de l'ordre 20 grammes de titane pour 23 jours. Etant donné le prix d'un tel composé enrichi (autour de 16 US\$ par milligramme pour du dioxyde de titane enrichi à 92% en ⁵⁰Ti), il est impossible de fonctionner avec de tels rendements.

Suite à ce test encourageant quant à l'utilisation de titane sous forme solide, des tests sur le four à induction installé à l'Université de Jyväskylä ont été préparés.

Faisceaux de titane à haute température

Préparation des tests Pour tester la synthèse de faisceau de titane dans le four de l'Université de Jyväskylä, nous avons préparé différents éléments à l'IPHC. Dans un premier temps, nous avons préparé une pastille de titane métallique à partir de poudre d'oxyde de titane fournie par le FLNR Dubna. La réduction du TiO₂ utilise la réaction suivante :

$$Ti0_2 + 2CaH_2 \rightarrow Ti + 2CaO + 2H_2 \tag{5.1}$$

On presse une mole de TiO_2 pour deux moles de CaH_2 sous forme de pastille la plus homogène possible. La pastille est placée dans un creuset en molybdène et chauffée à 900°C sous atmosphère d'argon sec [82]. La réduction de la pastille contenant 100 mg de TiO_2 et 100 mg de CaH_2 , réalisée par Ali Ouadi, a permis d'obtenir 42,9 mg d'une poudre noire composée d'un mélange de titane métallique et de dioxyde de titane. Les proportions stoechiométriques n'ayant pas été respectées, la moitié du dioxyde de titane n'a donc pas pu être réduite. On a donc un rendement de 64% pour cette réaction, ce qui est en deçà des 80% indiqués dans [82].

En parallèle, il a fallu développer une série de pastilleurs générant des pastilles de différents diamètres. Le titane métallique comme le dioxyde de titane se présentent sous forme de poudres micromètriques. Afin de faciliter leur manipulation ainsi que le chargement du four, on presse ces poudres sous forme de pastilles de 2,9 à 3,9 mm de diamètre. Ces dimensions correspondent aux diamètres internes respectifs des creusets et du four en molybdène. Nous avons donc fait produire à l'IPHC des pastilleurs adaptés afin de préparer les pastilles de titane. Nous avons basé leur technologie sur les techniques de pastillages ayant été utilisées pour les accélérateurs électrostatiques de notre laboratoire.

Dans un second temps, nous avons préparé une série de pastilles d'oxyde de titane. Le comportement des métaux à haute température peut être décrits à l'aider d'une description de l'énergie libre de Gibbs et de la seconde loi de thermodynamique :

$$\Delta G = \Delta H - T \Delta S \tag{5.2}$$

On détermine ainsi l'influence d'une variation de température T, d'enthalpie ΔH ou encore d'entropie ΔS . Les industriels utilisent le diagramme d'Ellingham pour les aider à interpréter les réactions d'oxydoréduction à haute température. Un exemple de tracé d'Ellingham est donné en figure 5.6. On peut ainsi y lire que du TiO₂ réagira à haute température avec du carbone pour donner du CO₂ et du titane métallique. Nous avons utilisé ces courbes pour nous guider dans le choix des catalyseurs à ajouter au TiO₂ pour faciliter les réactions dans le creuset. Sur cette base, nous avons réalisé différents mélanges qui ont été pastillés et sont en attente de test à Jyväskylä. Les pastilles produites sont présentées dans le tableau 5.4.

| Composition | Pression (Tonnes) | Diamètre (mm) |
|-------------------------------|-------------------|---------------|
| 99% TiO ₂ + 1% Al | 2 | 3,8 |
| 90% TiO ₂ + 10% Al | 2 | 3,8 |
| 75% TiO ₂ + 25% Al | 2 | 3,8 |
| 99% TiO ₂ + 1% Cr | 1,6 | 3,8 |
| 90% TiO ₂ + 10% Cr | 2 | 3,8 |
| 75% TiO ₂ + 25% Cr | 1,6 | 3,8 |

TABLE 5.4 – Liste des pastilles produites pour le test du four à induction. / List of the pellets produced for the inductive oven test.

Test du four à induction Nous avons débuté les tests avec une pastille de dioxyde de titane provenant du FLNR Dubna. La pastille était insérée dans un creuset en carbone. Après mise sous vide de la source et chauffage du plasma, l'intensité mesurée était de 30 pnA de ⁴⁸Ti à la sortie du cyclotron (point BB1). La source a été maintenue selon ces paramètres durant trois heures afin de tester la stabilité du faisceau. Au terme des trois heures, l'intensité mesurée au point BB1 avait diminué jusqu'à 22 pnA. Les réglages de la source ECR ont été affiné afin d'optimiser l'intensité produite. Nous avons pris deux points de mesure pour corréler la température du four à induction et l'intensité produite. Ces valeurs sont présentées dans le tableau 5.5.

| Tension du four (V) | Température (°C) | Intensité sortie du cyclotron (nA) | Intensité BB1 (nA) |
|---------------------|------------------|------------------------------------|--------------------|
| 37 | 1700 | 220 | 138,6 |
| 40 | 1730 | 310 | 195,3 |

TABLE 5.5 – Points de fonctionnement du four à induction pour du TiO₂. / Working points of the inductive oven for TiO_2 .

Après un certain temps, le four ne produisait plus de faisceau. A l'ouverture de la source, il s'est avéré que le four était vide. Nous n'avons pas d'explications quant à la disparition totale de la pastille. Il est possible que le carbone du creuset ait réagit avec l'oxyde de titane pour former du titane métallique et du monoxyde de carbone. Etant donné qu'il n'a pas été possible de peser la pastille après le test, nous n'avons pas de mesure de la consommation. Ce test a démontré la faisabilité de cette mméthode. D'autres tests sont à prévoir.

La pastille de titane métallique a à son tour été testée dans le four à induction. La pastille a dû être pressée à nouveau car elle s'était délitée durant le transport. La nouvelle pesée indiquait 41,1 mg au lieu des 42 mg enregistrés à Strasbourg. Durant la soirée, la pompe primaire de la source ECR a cassé, forçant une intervention sur la source. Une vérification de l'état du four a montré que le titane avait attaqué la paroi. La pastille a été pesée, donnant un poids de 57,3 mg. Une oxydation du titane métallique est l'explication la



FIGURE 5.6 – Diagramme d'Ellingham [96]. / Ellingham Diagram [96].

plus probable. La rupture de la pompe a certainement causé une entrée d'air dans la source, ce qui a permis la réaction du titane avec le four et provoqué son oxydation.

L'une des pastilles mélangée a ensuite été testée dans le four. Il s'agit du mélange de 99% de TiO₂ et de 1% de Chrome métallique. Cette pastille a fourni un faisceau de 330 nA au point BB1, soit 22 pnA sur cible. Cependant, le four à induction n'a pas été poussé plus haut en température afin de ne pas risquer de l'endommager.

Nous avons relevé deux points de fonctionnement de la source avec le four à induction à la sortie du cyclotron (mesure BB1), l'un à 100 nA et l'autre à 330 nA. Les réglages du four sont calculés à l'aide d'abaques spécifiques à chaque matériau. Ces abaques définissent la tension à appliquer pour contrôler la température, ainsi que la consommation en fonction de la température du four. En interpolant les points des abaques, j'ai obtenu une fonction reliant la consommation de TiO_2 à la température du four. J'ai appliqué cette fonction aux deux points relevés pour obtenir les estimations des consommations correspondantes. J'ai ensuite utilisé une extrapolation linéaire et une extrapolation exponentielle à partir de ces deux points pour encadrer la consommation de TiO_2 à 600 nA. La courbe verte sur la figure 5.7 représente l'estimation utilisant l'extrapolation avec une fonction exponentielle, tandis que la courbe rouge représente l'extrapolation avec une fonction avec une fonction exponentielle, tandis que la courbe rouge représente l'extrapolation avec une fonction avec une fonction exponentielle, tandis que la courbe rouge représente l'extrapolation avec une fonction exponentielle (courbe verte) pour un faisceau de 600 nA au point BB1.



FIGURE 5.7 – Extrapolation de la consommation de TiO₂ en fonction de l'intensité du faisceau. / *Extrapolation of the TiO*₂ *consumption as a function of the beam intensity.*

A partir de l'abaque définissant la relation entre lintensité du faisceau et la température du four, j'ai extrapolé la consigne de température pour un faisceau de 600 nA. J'ai interpolé cette fonction et lui ai ajouté la contrainte des deux points mesurés à 100 et 330 nA. L'extrapolation de la température pour 600 nA est obtenue pour les deux extrapolations utilisées précédemment, en rouge pour la fonction linéaire et en vert pour la fonction exponentielle sur la figure 5.8. L'interpolation polynomiale fournit une température de 1765°C (courbe rouge) et l'interpolation exponentielle 1740°C (courbe verte).

Ces tests ont permis de montrer que le four à induction permet d'obtenir un faisceau de titane à partir d'oxyde. Le fonctionnement à très haute température est possible. Cependant les intensités obtenues restent insuffisantes pour satisfaire les besoins de l'expérience. En décembre 2009, l'équipe de la source ECR de



FIGURE 5.8 – Extrapolation de l'intensité du faisceau à la sortie de la source en fonction de la température du four à induction. *Extrapolation of the beam intensity as a function of inductive oven temperature*.

l'Université de Jyväskylä a procédé à un nouveau test du four à induction avec de l'oxyde de titane. Il a été produit un faisceau de 6 μ A en moyenne à la sortie de la source ECR pendant deux heures. Ce résultat est encourageant et permet d'envisager la réalisation d'un faisceau. En effet, la production d'un faisceau de ⁵⁰Ti de 1 μ A en sortie de source permet d'obtenir une intensité de l'ordre de 60 pnA sur cible. Si les fonds nécessaire pour supporter l'achat 2,7 grammes de TiO₂ sont disponibles, cette option est valable.

Composé MIVOC

Le développement de faisceaux et plus particulièrement de composés MIVOC représente un domaine de recherche à cheval entre la Chimie et la Physique. Il demande des chimistes pour la synthèse et les tests des composés et des physiciens pour le développement des instruments et l'analyse des compositions des faisceaux expédiés sur cible. Seuls certains laboratoires disposent encore à ce jour des compétences nécessaires pour une tâche aussi complexe. C'est le cas de l'IPHC, né de la fusion d'un laboratoire de Physique Subatomique, d'un laboratoire de Chimie, et d'un laboratoire de Biologie.

L'Université de Jyväskylä présente également des compétences complémentaires en Chimie et en Physique pour le développement de nouveaux faisceaux. Après avoir initié la méthode MIVOC [80], l'Université de Jyväskylä a chargé le chimiste Raimo Seppälä de l'exploration des différents composés MIVOC permettant la production de faisceaux. Il a pour cela testé tous les composés volatils d'intérêt disponibles dans le commerce. Il disposait d'un spectromètre de masse QMS200 (voir figure 5.9 à gauche) dont le fonctionnement est basé sur l'évaporation sous vide des échantillons. Une fois évaporés, les composés volatils sont ionisés auprès de l'anode du spectromètre et finalement analysés. Cette méthode permet de faire aisément la distinction entre les éléments n'ayant pas une pression de vapeur suffisante et ceux qui présentent une réelle potentialité pour être testés sur la tête de source du cyclotron de l'Université de Jyväskylä (voir figure 5.9 à droite). Ce second niveau de test est en effet nécessaire pour valider le composé étant donné que d'une part, la pression de vapeur peut ne pas être suffisante et d'autre part, le composé peut ne pas sortir correctement du plasma de la source du fait de la présence de composés perturbateurs, voire suppresseurs ("getters"). Concernant le titane seul un composé commercial a satisfait aux critères de la méthode MIVOC, le (Triméthyl)pentamethylcyclopentadienyltitane $Cp^*Ti(CH_3)_3$. C'est un produit utilisé dans les catalyseurs automobiles et produit à l'échelle industrielle. Il présente une bonne pression de vapeur saturante et a permis à l'Université de Jyvaskyla de fournir un faisceau de 48Ti(73,8%) de 100 pnA sur cible [89]. Du fait de la composition isotopique du titane naturel, cela représente un faisceau maximum de 7 pnA ⁵⁰Ti(5,5%) sur cible. Cette intensité est nettement insuffisante pour envisager de faire des réactions nucléaires de synthèse d'éléments très lourds pour lesquels les sections efficaces de production sont extrêmement faibles.



FIGURE 5.9 – Spectrometre QMS à gauche et source d'ions ECR2 à droite. / QMS Spectrometer QMS (left) and ECR2 ion source (right).

Forts de ce constat et souhaitant rendre possible l'étude spectroscopique du ²⁵⁶Rf qui nécessite la fusion de ⁵⁰Ti et ²⁰⁸Pb, nous nous sommes attelés au développement de solutions permettant de synthétiser et d'utiliser des faisceaux intenses de ⁵⁰Ti. Il nous a fallu développer une cible rotative permettant l'usage de cibles de plomb sans qu'elles ne fondent du fait des intensités très élevées prévues. Sur la base du retour d'expérience de Raimo Seppälä et de l'expertise de deux chimistes de notre laboratoire, Ali Ouadi et Zouhair Asfari, nous avons identifié quatre composés volatils du titane qu'il était possible de synthétiser et représentaient des composés MIVOC potentiels. Ces molécules sont présentées dans le tableau 5.6.

| Molélcule | Formule | Masse molaire |
|---|--------------------|------------------|
| (Triméthyl)pentamethylcyclopentadienyltitane | $Cp^*Ti(CH_3)_3$ | mw = 228 g/mole |
| (Diméthyl)bis-pentamethylcyclopentadienyltitane | $Cp_2^*Ti(CH_3)_2$ | mw = 348 g/mole |
| (Triméthyl)cyclopentadienyltitane | $CpTi(CH_3)_3$ | mw = 128 g/mole |
| (Diméthyl)bis-cyclopentadienyltitane | $Cp_2Ti(CH_3)_2$ | mw = 208 g/mole |

TABLE 5.6 – Molécules organométalliques du titane candidates pour la méthode MIVOC. /Potential titanium organometallic compounds for the MIVOC method.

Les molécules de ces quatre composés sont représentées sur la figure 5.10. Les synthèses de ces composés se font toutes à partir de tétrachlorotitane $TiCl_4$. La première étape



FIGURE 5.10 – Molécules organométalliques envisagées pour la production d'un faisceau de titane par la méthode MIVOC. / Organometalic molecules forseen to produce a titanium beam through the MIVOC method.

consiste à implanter les cyclopentanes pour obtenir un composé organique chloré. La seconde consiste à remplacer les chlores restants par des groupes méthyls. Les rendements de synthèse obtenus sont de l'ordre de 85% par étape, soit un rendement total de l'ordre de 70% [83]. Une ultime troisième étape peut être pratiquée de manière à purifier le produit par cristallisation. Les produits étant suffisamment purs à l'issue de la seconde étape, il s'avère que cette dernière étape n'a pas été nécessaire. Elle n'a été pratiquée qu'une seule fois en 2004. Une autre raison qui nous a poussé à ne pas trop purifier le produit est liée à sa sensibilité à l'humidité et la lumière. Nous avons préféré conserver et transporter ce produit en phase liquide protégé par un solvant.



FIGURE 5.11 – Résultat de la première synthèse de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ effectuée en 2004 en collaboration avec l'ITC/ITU de Karlsruhe. Dans le flacon du centre le résidu sec de purification (orange) entouré de deux vues des cristaux secs de Cp_2TiMe_2 . / Results of the first synthesis of $Cp_2Ti(CH_3)_2$ performed in collaboration with the ITC/ITU Karlsruhe. The purification residue is in the center vial (orange), surrounded by pure crystalised product (samples left and right).

Dans un premier temps, nous avons démarré un programme de synthèses partielles à partir de composé volatils chlorés commerciaux. Une fois ces composés qualifiés, nous sommes passés à la synthèse complète des produits. Le premier produit étudié est le Cp_2TiMe_2 . Dans les premières observations, ce produit a semblé présenter des problèmes de cinétique évolutive. Si les spectres de masse présentent bien les pics caractéristiques des produits de décomposition de la molécule ($Cp_2^{48}TiMe$ iw² :193, Cp_2Ti iw :178 et CpTi

²iw : masse isotopique, somme des masses des éléments isotopiques. Dans le cas du titane, on a un pic central issu du 48Ti et

iw : 113), ces derniers disparaissent assez rapidement alors que des pics assez intenses signant la présence de chlore et chloroforme (*CHCl*₃ iw : $118/120^3$, *CHCl*₂ iw 84/86, *CHCl* iw : 48/50) sont présents. La première indication claire de la caractéristique MIVOC de cette molécule vient du test d'une troisième synthèse pour lequel une belle pression de vapeur est obtenue après un pompage sous vide suffisant pour supprimer les traces de chloroforme issues du solvant de protection. La figure 5.12 représente le spectre de masse de cet échantillon. Le prolongement de ce test sur la tête de source du cyclotron n'a pas donné de résultat.



FIGURE 5.12 – Spectre de l'échantillon IIIb après une nuit de pompage. / Spectrum of the sample IIIb after 1 night pumping.

Ces tests ont eu lieu avant le début de ma thèse. A mon arrivée, les développements ont été relancés afin de préparer l'expérience sur le noyau ²⁵⁶Rf que je devais ensuite analyser. Zouhair Asfari a réalisé, la première synthèse complète de Cp_2TiMe_2 . Le produit issu de cette synthèse a été testé en août 2009 sur le spectromètre de masse, puis sur la source ECR. Cet échantillon semble présenter une affinité pour le chloroforme que nous n'avions pas dans les synthèses précédentes. Le produit reste "humide" et le spectre de masse présente principalement une contribution liée au chloroforme. Testé sur tête de source, il n'a pas donné de faisceau de titane. Le produit a probablement été inihibé par le chloroforme et n'a pas atteint la chambre à plasma. La figure 5.13 présente les étapes de la préparation du produit pour l'utilisation sur la source ECR. Un test a été réalisé avec le reste du Cp_2TiMe_2 produit lors d'une précédente synthèse. Bien que ce produit ait permit de produire un faisceau lors du test précédent, ce test n'a pas fonctionné. Il a confirmé la sensibilité du produit à l'air et mis en évidence des fuites sur les vannes de fixation de la chambre MIVOC

des pics satellites caractéristiques nettement plus faibles correspondant aux contributions des autres isotopes du titane. Dans le cas du titane, seule la masse correspondant au 48Ti majoritaire est donnée ici.

³Dans le cas du Chlore, deux isotopes composent le chlore naturel ³⁵Cl (75%) et ³⁷Cl (25%) des atomes. Dans le cas de la molécule Cl_2 , on peut considérer une masse moyenne 35,5 ou les masses isotopiques. Nous avons choisi de donner les deux masses isotopiques correspondant à l'observation de ces deux isotopes. Les composés chlorés présentent donc également une signature claire : des séries de pics espacés de deux unités de masse dans des proportion 75,8%/24,2% pour un composé monochloré, 57,4%-36,7%-5,9% pour un composé dichloré, et 43,5%-41,7%-13,3% pour un composé trichloré. Je donne ici les masses des deux pics principaux.

sur la source ECR. Le produit se dégrade rapidement virant à une couleur vert pétrole (voir figure 5.14 à droite). En parallèle de ce test, deux nouveaux échantillons synthétisés par Z. Asfari à Strasbourg ont été testés. Le premier a gardé un aspect visqueux après évaporation du chloroforme et n'a pas permis d'obtenir un faisceau. Le second échantillon a été validé sur le spectromètre de masse et a fourni une pression de vapeur saturante satisfaisante. Cependant il a été impossible d'en tirer un faisceau une fois sur la source ECR. Le spectre obtenu sur la source confirme les fuites détectées avec le précédent produit. La chambre MIVOC est trop lourde et le bras de levier impose une contrainte sur les joints qui ne remplissent plus leur rôle. Il est donc décidé de ne plus utiliser la chambre MIVOC et de développer un nouvel adaptateur pour connecter les fioles contenant le composé à la source. Un nouvel adaptateur est conçu et réalisé à l'IPHC. Il est prévu pour être installé directement sur la vanne de tête de source (voir figure 5.15) et facilement manipulable, même en boites à gants. Un protocole d'utilisation est mis en place afin de pouvoir évaporer tout le chloroforme directement dans la bouteille qui, une fois prête, est fixée sur l'adaptateur à vide (VA). Ce nouveau protocole est éprouvé et validé en septembre 2009.



FIGURE $5.13 - Cp_2TiMe_2$ issus de la synthèse : en solution dans du chloroforme ; après évaporation partielle du chloroforme ; Mise en place du composé dans la chambre MIVOC sous atmosphère d'azote ; Produit après test sur la source ECR. / Cp_2TiMe_2 after the synthesis, diluted in chloroform ; After partial evaporation of the chloroform ; Intrduction of the compound in the MIVOC chamber under Nitrogen atmosphere ; Residue of the product after the ECR test.



FIGURE 5.14 – $Cp_2Ti(CH_3)_2$ dilué; Préparation pour la source; Installation dans la chambre MIVOC; Produit oxydé de retour de l'accélérateur. / $Cp_2Ti(CH_3)_2$ diluted; Preparation for the source; Installation in the MIVOC chamber; Oxidized product coming back from the Cyclotron ECR source head.



FIGURE 5.15 – a. Système fixation des fioles sur la vanne. b. Nouvel adaptateur à vide monté sur la vanne micrométrique. c. test sur le spectromètre de masse QMS. / a. Adaptator for the vials on the valve. b. Adaptator mounted on a micrometric valve. c. Test on the QMS mass spectrometer.

Une fois l'étanchéité du nouvel adaptateur validé, une nouvelle série de tests est programmée pour étudier quatre composés organométalliques du titane :

- Cp₂TiMe₂ : synthèse complète à partir de TiCl₄,
- $Cp_2^*TiMe_2$: semi-synthèse à partir de $Cp_2^*TiCl_2$,
- *CpTiMe*₃ : demi-synthèse à partir de *CpTiCl*₃,
- *Cp*^{*}*TiMe*₃ : produit commercial.

Sur les quatre produits, seuls les Cp_2TiMe_2 et Cp^*TiMe_3 donnent une pression de vapeur suffisante. $Cp_2^*TiMe_2$ et $CpTiMe_3$ présentent bien les pics attendus, mais associés à une pression de vapeur trop faible. Ces produits sont donc écartés du domaine d'étude. L'étude des spectres de ce test (lecture de données brutes au format binaire "PFEIFFER", calibration et analyse) a fait l'objet d'un projet informatique et recherche de master 2e année. Les spectres des deux composés MIVOC de titanocène retenus sont représentés sur les figures 5.16 et 5.17. L'analyse des compositions fournie par Jérôme Rubert met en lumière les pics correspondant aux différents produits de décomposition de la molécule initiale. On observe donc des molécules contenant un atome de titane lié à un ou plusieurs cycles aromatiques sans méthyle et des composés méthyles non aromatiques. Le spectre du produit commercial (Cp^*TiMe_3) est clairement plus "pollué" que le spectre du Cp_2TiMe_2 . Il contient de toute évidence une impureté qui, par sa pression de vapeur et par effet d'entrainement peut participer au transport des molécules MIVOC du Cp^*TiMe_3 . Il présente également une pression de vapeur plus forte qui est soit inhérente aux propriétés d'évaporation de l'échantillon soit à celle des impuretés présentes. L'identification de cette impureté présente donc un intérêt de tout premier ordre. Une spectrométrie de masse de type MALDI a été commandée à partir d'un échantillon commercial de Cp^*TiMe_3 de même provenance. Les résultats devraient arriver début octobre 2010.



FIGURE 5.16 – Spectre de masse du $Cp_2Ti(CH_3)_2$. / Mass spectrum of the $Cp_2Ti(CH_3)_2$ compound.

L'échantillon de Cp_2TiMe_2 est testé sur le spectromètre de masse après évaporation du chloroforme afin d'étudier son comprotement dans le temps. La figure 5.18 montre l'évolution temporelle de la vapeur du



FIGURE 5.17 – Spectre de masse du $Cp^*Ti(CH_3)_3$. / Mass spectrum of the $Cp^*Ti(CH_3)_3$ compound.



FIGURE 5.18 – Spectre de masse du Cp_2TiMe_2 a. avant la nuit b. après la nuit et c. évolution temporelle. / Mass spectrum of $Cp_2Ti(CH_3)_3$ a. before the night b. early morning c. time evolution.

produit. On observe la diminution rapide des pics du chloroforme $(CHCl_3)$ induisant l'augmentation progressive du titanocène dès que la pression partielle de $CHCl_3$ diminue. Ceci pose clairement la question de l'intérêt d'utiliser un solvant. Le rôle de protection qu'il remplit pourrait probablement être satisfait par d'autres composés volatils ou non. Ceci représente une voie d'étude en soit permettant de trouver un solvant ou compagnon à ce composé MIVOC le rendant moins sensible à l'air. Une alternative aux solvants conventionnels, est apportée par les liquides ioniques, liquides ayant des pressions de vapeur extrêmement faibles. Le titanocène inséré dans une telle solution doit d'abord migrer à l'intérieur du solvant vers la surface libre avant de pouvoir s'évaporer. Il est ainsi protégé des attaques de l'oxygène et/ou de l'humidité. Le débit de vapeur de titanocène dépend donc du nombre de molécules en surface. Au-delà d'une concentration limite, c'est la pression de vapeur du gaz au dessus de la phase liquide qui dicte le taux d'évaporation. En deçà de cette concentration, le taux d'évaporation dépendra de la concentration en titanocène de la solution. On a donc intérêt à avoir une solution très concentrée et donc à ajouter très peu de liquide ionique. Un essai a été pratiqué sur un échantillon de CP_2TiMe_2 sur le spectromètre de masse. Sur la figure 5.19 représentant cet essai, on peut constater qu'il a été difficile de solubiliser le titanocène dans une faible quantité de liquide ionique (IL). Il faudra probablement ajouter un solvant temporaire pour faire la préparation à l'aide de titanocène en phase liquide. Par ailleurs, on peut également constater la présence de bulles dans le mélange titanocène-IL correspondant à l'évaporation de titanocène au sein même du liquide ionique, ce qui présente une augmentation notable du nombre de molécules de titanocène participant à l'évaporation. Cela démontre en effet que, contrairement à ce qu'on pouvait attendre, l'évaporation des composés MIVOC ne se limite pas à un effet de surface lorsqu'on est à saturation.



FIGURE 5.19 – Test de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ dans du liquide ionique : Produit sec ; Liquide ionique dans le seringue et 3 vues du $Cp_2Ti(CH_3)_2$ du resolubilisé dans du liquide ionique. On constate des éclaboussures dues à des bulles dans le liquide ionique. / Test of $Cp_2Ti(CH_3)_2$ in ionic liquid : Dry product ; Ionic liquid in syringe ; 3 different views of $Cp_2Ti(CH_3)_2$ diluted in ionic liquid. Bubbles appeared in the ionic liquid.

La comparaison des spectres enregistrés pour cet échantillon "avant" insertion de liquide ionique et "après" nous montre que le liquide ionique n'a pas d'impact significatif sur la pression de vapeur du titanocène. On observe une baisse de 25% de l'intensité dans les pics correspondant aux produits de décomposition organiques et aux composés méthyles. La baisse d'intensité peut être estimée en comparant l'intégrale de ces pics dans les deux spectres. Cette diminution est tout à fait acceptable compte tenu de l'intérêt des liquides ioniques pour le titanocène. L'utilisation des liquides ioniques dans le cadre de titanocène représente donc une option extrêmement intéressante. Dans le cadre de produits enrichis en faible quantité, on peut cependant se poser la question de la récupération du titanocène restant une fois que la pression de vapeur n'est plus suffisante. Il est en effet impossible d'évaporer le liquide ionique de fait de sa très faible pression de vapeur. On peut cependant considérer qu'à ce moment, on peut utiliser ce relicat comme base de liquide ionique pour une nouvelle solubilisation qui apportera les quelques molécules de composé MIVOC restantes.



FIGURE 5.20 – Comparaison des spectres de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ pur (rouge) et après insertion de liquide ionique (bleu) / Comparison of the $Cp_2Ti(CH_3)_2$ mass spectrum before the introduction of ionic liquid (red) and after (blue).

Un essai sur la source ECR 1 à 6,4 GHz de ces préparations n'a pas donné de résultat. Un essai sur la seconde source ECR2 à 14 GHz, plus performante, a été demandé, mais a du être réalisé en différé. Un faisceau de 2,8 μ A de ⁴⁸Ti est observé en sortie de source. Il donne lieu à un faisceau de 84 nA (10+) en sortie de cyclotron, ce qui correspond à environ 8 pnA sur cible. Le faisceau produit est peu intense mais prometteur.

5.2.4 Synthèse du composé avec du ⁵⁰Ti

Sur la base du succès des études de composés MIVOC de titanocène, il a été décidé de planifier en décembre 2009 la première utilisation réelle en expérience de $Cp_2Ti(CH_3)_2$. Nous sommes donc passés à la synthèse de $Cp_2^{50}Ti(CH_3)_2$ isotopique. Le ${}^{50}TiCl_4$ est placé sous vide dans un conteneur en inox. Contrairement au TiCl₄ utilisé pour les synthèses test qui se présentait dans une bouteille à pression ambiante et que l'on pouvait extraire simplement avec une seringue en inox, il a fallu développer et fiabiliser tout un système d'évaporation sous vide. Vu le côté délicat de cette opération, il a fallu mettre en place le niveau de garanties nécessaires pour ne pas perdre le produit durant le transfert. Nous avons découvert ce problème inattendu au moment où nous avons voulu faire une synthèse basée sur la première bouteille de titane-50 au cours de l'été 2009. Le montage développé pour l'extraction du $TiCl_4$ est représenté sur la figure 5.21. Il utilise un pompage cryogénique pour transférer le produit du cylindre métallique à un tube en verre. La pompe est protégée par deux pièges plongés dans l'azote liquide. Le $TiCl_4$ est liquide à pression et température ambiantes. Le tube de recueillement du TiCl₄ ést maintenu légèrement au dessus de son point de fusion (-24°C) afin de le liquifier dans le tube de récupération. Le contrôle de la tempérautre est crucial afin d'éviter que le $TiCl_4$ ne gèle pas dans le tube d'arrivée. Après des tests dans différentes configurations, le processus final utilisait un chauffage convectif forcé du cylindre métallique pour accélerer l'extraction du produit. Les tests réalisés ont permis de mesurer un rendement massique d'extraction de 98%. Une fois le processus fiabilisé et testé sur cette première bouteille, nous avons passé la commande de la seconde bouteille, l'ensemble devant permettre de réaliser notre expérience.



FIGURE 5.21 – Montage d'évaporation sous vide du ${}^{50}TiCl_4$. / Setup for vacuum pumping of ${}^{50}TiCl_4$ into a glas flask.

Une fois transférés dans des tubes en verre, les deux échantillons (402,5 mg et 2439 mg) de ${}^{50}TiCl_4$ ont été mélangés lors de la synthèse. A l'issue de cette étape de chimie effectuée par Zouhair Asfari, nous avons obtenu 1817 mg de $Cp_2^{50}Ti(CH_3)_2$ isotopique. Ce produit a été protégé par l'ajout habituel de chloroforme de manière à arriver à une concentration de 0,82 mole/L puis expédié en Finlande pour l'expérience de synthèse du 256 Rf. Le 8 décembre, avant de procéder à l'évaporation du titanocène-50 une préparation de titanocène naturel provenant d'un échantillon déjà validé a été lancée et a donné un résultat tout à fait satisfaisant. Nous



FIGURE 5.22 – Spectre de masse indiquant l'évaporation correcte du $Cp_2^{50}TiMe_2$. Les intensité des pics des molécules contenant du titane permettent d'utiliser le produit sur la source ECR. / Mass spectrum indicating the correct evaporation of $Cp_2^{50}TiMe_2$. The intensities of the peaks of molécules containing titanium allow to use this compound on the ECR ion source.

avons donc procédé à l'évaporation du chloroforme sur 1 ml de titanocène-50. Après un temps d'évaporation standard cet échantillon ne présentait pas la forme d'un dépôt sec, mais contenait toujours du chloroforme. La fiole a cassé au moment du montage sur le support de connexion à la source. Le produit a été replacé sous argon le temps de le re-dissoudre dans du chloroforme pour récupération. Un second échantillon a été préparé. Il présentait le même aspect que le précédent et a été contrôlé à l'aide du spectromètre de masse. La figure 5.22 présente le spectre obtenu qui confirme bien la présence du titanocène-50. Il semble cependant que la forme du composé (dépôt humide chloroformé) bloque la vaporisation du $Cp_2^{50}Ti(CH_3)_2$.

Malgré la faible pression de vapeur saturante, le produit a été introduit dans la source ECR2 pour extraction du faisceau. Malheureusement du chlore apparait également dans le faisceau et il est impossible de séparer le 50 Ti ${}^{10+}$ du 35 Cl ${}^{7+}$ en raison de leurs rapports A/q identiques. Il faut donc à l'avenir bannir tout produit chloré dans la préparation de titanocène-50 isotopique.

On peut par contre avoir une idée de l'intensité du faisceau à partir de l'état de charge 11+ pour lequel une intensité de 0,5 à 1 μ A est mesurée à la sortie de source. Cela correspond à peu près à 0,3 à 0,7 μ A de ⁵⁰Ti¹⁰⁺ si on se base sur le ratio 10+/11+ du faisceau de juin sur la même source (3/4). Après optimisation du cyclotron sur le ⁵⁰Ti¹¹⁺ on obtient 13 nA en sortie de cyclotron, soit 1,2 pnA. En parallèle au souci lié à la forme physicochimique du composé, nous subissons également l'influence du tube MIVOC qu'il n'a pas été possible de remettre dans sa position de fonctionnement. L'alimentation de la source se fait donc en retrait de

la chambre à plasma. L'échantillon est démonté et pompé toute la nuit sur le spectromètre. Elle est remontée le lendemain et cette fois le tube d'alimentation MIVOC arrive dans sa position nominale. Il n'est toujours pas possible de suivre le ⁵⁰Ti¹⁰⁺ mais le ⁵⁰Ti¹¹⁺ donne maintenant 150 nA en sortie de machine, soit 14 pnA. Cette intensité est toutefois encore insuffisante pour fournir une statistique raisonnable pour étudier le ²⁵⁶Rf.

L'expérience ne peut pas être réalisée avec un faisceau si faible. Il est décidé de passer à la synthèse du ²⁴⁶Fm et de reprendre ce faisceau une fois le produit purifié. En effet, la dernière étape de synthèse conduisant à un produit pur sous forme de cristaux devrait nous permettre de redonner une pression de vapeur suffisante à ce produit. Nous avions effectué cette étape uniquement pour la toute première synthèse étant donné que nous obtenions toujours des produits assez purs pour éviter de subir le rendement de cette dernière étape lorsque cela n'était pas nécessaire. Un essai de cristallisation est réalisé avec le reste de titanocène-naturel et du n-pentane. On obtient bien les cristaux attendus, mais ne disposant pas d'assez de recul sur cette étape il est décidé de faire des essais en titane naturel avant de traiter l'échantillon enrichi.

Les différents essais réalisés pour la production d'un faisceau de titane à partir de composés organométalliques volatils ont permis d'identifier des molécules utilisables et de développer un protocole de synthèse et de préparation du produit. Les succès obtenus avec les molécules Cp_2TiMe_2 et Cp^*TiMe_3 permettent d'envisager la production d'un faisceau de titane enrichi à court terme. Des études sont en cours pour vérifier la résistance de ces molécules, afin fiabiliser le processus, à la fois pour le stockage et la préparation avant le branchement sur la source ECR.

5.2.5 Prévision de consommation

Le titane enrichi est une matériau cher et donc précieux. A partir des données recueillies dans les tests menés par l'équipe de H. Koivisto [89] et des mesures effectuées par nos soins, j'ai simulé la consommation de titane enrichi. Les paramètres des calculs sont résumé dans le tableau 5.7.

| Enrichissement | 92% |
|---|-------|
| Rendement de la réduction du TiO ₂ | 35,2% |
| Rendement de la synthèse du Cp^2TiMe_2 | 49% |

| TABLE 5.7 – Paramètres utilisés pour le calcul des consommations de titane enrichi pour les différentes mé- |
|---|
| thodes de production du faisceau. / Parameters used for the computation of the enriched titanium consump- |
| tion for the beam production methods. |

J'ai calculé la consommation dans le cas d'une intensité de 30 pnA et de 75 pnA sur cible. Les consommations sont calculées en masse de titane métallique (mg/h) et non en masse de molécule complète afin de permettre la comparaison. Les résultats sont résumés dans le tableau 5.8. On peut constater que la méthode MIVOC est bien plus économe en titane, puisqu'elle ne consomme que 10% de la masse nécessaire pour le four à induction.

| Méthode | Consommation de Ti pour 30 pnA (mg/h) | Consommation de Ti pour 75 pnA (mg/h) |
|------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|
| MIVOC | 0,03 | 0,07 |
| Four à induction | 0,32 | 0,79 |

 TABLE 5.8 – Consommation de titane calculée. / Calculated titanium consumption.

Indépendemment de la méthode utilisée, j'ai calculé la production de noyaux de rutherfordium. La pro-

duction de noyaux par fusion-évaporation est obtenue par la formule suivante :

$$N = I\sigma\left(\frac{N_A}{M}\right)\varepsilon = 3.762.10^6 I\sigma\left(\frac{\varepsilon}{A}\right)$$
(5.3)

ou ε est l'épaisseur de la cible en g/cm^2 , I l'intensité du faisceau en pnA, M la masse atomique de la cible en grammes et N_A le Nombre d'Avogadro 6,02.10²³. Les calculs effectués par Farid Kahlfallah dans sa thèse permettent d'obtenir la transmission du séparateur RITU pour le ²⁵⁶Rf en fonction de l'épaisseur de la cible de ²⁰⁸Pb [40]. Pour une cible de 0,2 mg/cm², la transmission de RITU vaut 64% des noyaux produits dans la cible. Pour une cible de 0,5 mg/cm², la transmission tombe à 38%. A partir de ces paramètres, j'ai calculé deux estimations de la production de noyaux de ²⁵⁶Rf pour deux cas :

| Conditions expérimentales | Noyaux de ²⁵⁶ Rf implantés par jour |
|---|--|
| Cible de $0,5 \text{ mg/cm}^2$, 30 pnA | 106 |
| Cible de $0,2 \text{ mg/cm}^2$, 75 pnA | 180 |

L'expérience a obtenu 21 jours de faisceau auprès du PAC du Laboratoire de l'Accélérateur. Nous avons tablé sur une intensité de faisceau de 75 pnA afin de réunir une statistique suffisante.

Chapitre 6

Spectroscopie du noyau ²⁴⁶Fm

6.1 Abstract

The experiment was performed in December 2009 at the Accelerator Laboratory of the University of Jyväskylä using the JUROGAM2 γ ray spectrometer, the gas-filled separator RITU [38, 39] and the multi-spectrometer GREAT [41] at the focal plane. Nuclei of ²⁴⁶Fm were produced through the reaction of an ⁴⁰Ar beam impinging on a ²⁰⁸Pb target at E_{*lab*}=186 MeV (see fig. 6.1 page 130). This beam energy was chosen such that the center-of-target beam energy corresponded to the maximum of the excitation function for the two-neutrons evaporation channel. The fusion-evaporation cross-section of the two-neutrons channel was measured to be approximately 11±1 nb. This extremely low value of the cross-section called for specific technical solutions to perform prompt γ ray spectroscopy.

Technical solutions

In order to overcome the low cross-section, the beam intensity was raised to a maximum of 71 ± 1 pnA (with an average of 41 ± 1 pnA), never achieved before for in-beam prompt γ ray spectroscopy. The target was prevented from melting under the high beam current by the use of the rotating target produced by IPHC Strasbourg and by the cooling effect of the RITU filling gas. The high beam intensity induced γ -ray counting rates of up to 36 kHz in each Clover germanium crystal. The detectors of JUROGAM 2 were instrumented with 28 TNT2D digital acquisition cards [52] in order to treat events from the Compton-suppressed germanium crystals.

Alpha decay study

During the 10 days of beamtime (beam dose = 1.839×10^6 nuclei), 276 α events have been identified as ²⁴⁶Fm decay in the DSSSD of GREAT using time and position correlation (fig. 6.4 page 134). The centroid of the ²⁴⁶Fm α peak is measured at 8244±7 keV. The half-life measured from the recoil- α correlations gives a value of 1.66 ± 0.2 s (fig. 6.6 page 136). Both values agree with the previous measurements shown in table 6.1 129 [97, 98, 99].

Prompt γ ray study

Recoil- α tagging of the prompt γ events detected in JUROGAM 2 allowed a rotational band in ²⁴⁶Fm to be observed for the first time, as seen in fig. 6.7 page 136. However, the use of recoil-decay tagging reduces the number of γ rays observed due to the fact that some α particles escape the DSSSD. Therefore the α -tagged

spectrum is used to unambiguously assign the observed γ -ray lines to ²⁴⁶Fm while the detailed analysis is performed using a wider selection criterion.

All recoiling nuclei pass through a Multi-Wire Proportionnal Counter (MWPC) before they are implanted into the DSSSD with an energy E_{impl} . The MWPC measures the Energy deposition (ΔE) and stops the Time of Flight (ToF) measurement started in the DSSSD. The coincidence of the these three signals can be used to identify and select recoiling nuclei. Based on the position of α -tagged ²⁴⁶Fm events in the Implantation Energy (E_{impl}) vs. Time of Flight (ToF) matrix, the region hosting ²⁴⁶Fm events has been identified and used to define a graphical cut (see fig. 6.9a to 6.9d page 139). This cut is used in this second stage of the analysis to select ²⁴⁶Fm events. The recoil- α correlation is however still used to eliminate the ²¹¹Po events from the selection and limit their contamination in the γ -ray spectrum. This wider selection yields the γ -ray spectrum shown on figure 6.11 page 142.

The transitions first seen as part of a rotational band in fig. 6.7 page 136 are confirmed with better statistics using the wider selection in fig. 6.11 page 142. The transition with an energy of around 418 keV in fig. 6.7 page 136 is tentatively assigned to have an energy of 414.2 keV with the improved statistics.

Fermium level scheme and $\mathfrak{I}^{(2)}$

Based on the measured transition energies, the level scheme of the rotational band built on the ground state of ²⁴⁶Fm shown in fig. 6.13 is suggested. The spins and parities are assigned by similarity with the neighbouring isotopes [21]. The rotational band fits well with the systematic of the Fermium isotopes. The spins of the states observed in the rotationnal band have been assigned using a Harris fit based on the measured transition energies [100] The energies of the 2⁺ and 4⁺ states (in brackets in fig 6.13) have been extrapolated using a Harris fit [101], since the corresponding transitions cannot be seen because of very high conversion coefficients ($\alpha_{2^+\to 0^+} = 504(7)$, $\alpha_{4^+\to 2^+} = 16.57(24)$) [102].

The dynamical moment of inertia of ²⁴⁶Fm has been calculated and compared to the other known eveneven isotopes in the region as shown in 6.14. Below 0.15 MeV, it follows the isotopic trend and above, it seems to exhibit a saturation. However, due to the sensitivity of $\Im^{(2)}$, this effect is probably due to uncertainties in the measurement of the very weak γ -ray transitions at high spin. A higher statistics would be needed to solve that question.

6.2 Etude spectroscopique du ²⁴⁶Fm

Le fermium se situe au niveau d'un possible gap déformé à Z = 100 [103]. Cette caractéristique permet d'étudier le comportement des orbitales neutroniques sans subir l'influence de celles des protons. La synthèse du ²⁴⁶Fm s'est déroulée au Département de Physique de l'Université de Jyväskylä. L'objectif était de mesurer sa décroissance prompte par émission γ [104, 105]. Jusque là seules des mesures en spectroscopie de décroissance avaient été réalisées sur le ²⁴⁶Fm [106, 32, 98, 97]. Par conséquent, il n'existait jusqu'à présent aucun schéma de niveau pour ce noyau et seul son niveau fondamental était connu avec I^{π} = 0⁺ [107]. Les modes de décroissance ainsi que les demi-vies et les rapports d'embranchement mesurés pour le ²⁴⁶Fm dans les travaux précédents sont résumés dans le tableau 6.1.

| mode | Energie (MeV) | $T_{1/2}(s)$ | Rapport d'embranchement (%) | ref. |
|-------------------|-------------------|-----------------|-----------------------------|---------------------|
| α | 8,243±0,005 | $1,54{\pm}0,04$ | 94 | [106] |
| | $8,240{\pm}0,020$ | $0,9{\pm}0,3$ | | [<mark>99</mark>] |
| | | $1,1{\pm}0,2$ | | [32] |
| | $8,24{\pm}0,02$ | $1,2{\pm}0,2$ | | [98] |
| | 8,25±0,03 | 1,6±0,4 | | [97] |
| Fission spontanée | | $1,60{\pm}0,06$ | 0,06±0,01 | [106] |
| | | 15±5 | | [98] |

TABLE 6.1 – Modes de décroissance du ²⁴⁶Fm. / Decay modes for ²⁴⁶Fm.

6.3 Dispositif expérimental et étalonnage

Le ²⁴⁶Fm a été produit par fusion d'ions de ⁴⁰Ar avec une énergie cinétique de 186 MeV (4,65 MeV / nucléon) avec une cible de ²⁰⁸Pb et l'évaporation de deux neutrons. L'énergie de bombardement a été choisie afin que l'énergie cinétique du faisceau parvenu au centre de la cible corresponde au maximum de la fonction d'excitation pour la voie deux neutrons. (La fonction d'excitation présentée sur la figure 6.1 a été mesurée au GSI sur le séparateur SHIP.) Le faisceau était fourni par la source ECRIS 14 GHz [47] à partir de ⁴⁰Ar isotopique accéléré par le cyclotron K130. Au cours de l'expérience, deux cibles de ²⁰⁸Pb ont été utilisées. Elles étaient toutes deux formées de 446 $\mu g/cm^2$ de ²⁰⁸Pb en sandwich entre 10 $\mu g/cm^2$ et 30 $\mu g/cm^2$ de carbone respectivement en aval et en amont. La cible était montée sur un mécanisme rotatif tournant à environ 400 tours par minute afin de limiter linfluence du dépôt d'énergie dû au passage du faisceau [108]. La ligne en amont de la chambre à réaction était maintenue sous vide par pompage différentiel, aucune fenêtre n'étant présente pour contenir l'hélium dans RITU. L'intensité du faisceau de ⁴⁰Ar⁸⁺ a atteint 71 pnA sur cible, soit 4.10¹¹ ions/seconde, avec une valeur moyenne de 40,95 pnA sur l'ensemble de l'expérience [109].

Le spectromètre JUROGAM 2 était disposé autour de la cible afin de mesurer les transitions γ promptes des produits de fusion-évaporation. Le spectromètre était équipé comme décrit au chapitre 3.2.1. Les cristaux de germanium présentaient une résolution en énergie totale de 3,5 keV pour les détecteurs trèfle et de 3,6 keV pour les détecteurs tronconiques à 1408 keV. L'étalonnage en énergie des détecteurs germanium a été fait en utilisant des sources de ¹⁵²Eu et ¹³³Ba de 40 kBq. L'adaptation automatique de l'offset a été réglé à l'aide de deux sources de ⁶⁰Co de 37 kBq dont la distance aux détecteurs germanium variait, de manière à changer le taux de comptage.

Les signaux issus des détecteurs germanium étaient transmis aux cartes d'acquisition TNT2D via un "patch-panel". Les réglages des cartes TNT2D ont été affinés à partir de ceux réalisés en août 2009. Les pôles-zéro et les discriminateurs à fraction constante (CFD) ont été ajustés afin d'améliorer respectivement



FIGURE 6.1 – Fonctions d'excitations pour la production d'isotopes du fermium par réaction d'un faisceau de ⁴⁰Ar sur une cible de ²⁰⁸Pb. Les voies 2n (²⁴⁶Fm) à 4n (²⁴⁴Fm) sont représentées en fonction de l'énergie d'excitation du noyau composé ²⁴⁸Fm^{*}. Les énergies cinétiques correspondantes pour le faisceau sont indiquées pour les points mesurés en MeV/A. L'énergie cinétique utilisée pour la production du ²⁴⁶Fm est indiquée en rouge. Les mesures ont été effectuées sur le séparateur SHIP au GSI [110]. / *Excitation functions for the production of fermium isotopes using the reaction of a* ⁴⁰Ar beam on a ²⁰⁸Pb target. The 2n (²⁴⁶Fm) to 4n (²⁴⁴Fm) channels are displayed with respect to the excitation energy of the compound nucleus ²⁴⁸Fm^{*}. The corresponding beam kinetic energies are indicated in MeV/A for the measured points. The kinetic energy used for the production of ²⁴⁶Fm is indicated in red. These measurements were performed using the SHIP separator at GSI. [110]



FIGURE 6.2 – Spectre α corrélé à des noyaux de recul issus de la réaction ${}^{40}\text{Ar}^{8+}({}^{180}\text{Hf,xn})^{220-x}\text{Th}$. Les pics identifiés en rouge ont été utilisés pour l'étalonnage des pistes des la face arrière du détecteur d'implantation. / Spectrum of recoil-correlated α particles from the reaction ${}^{40}\text{Ar}^{8+}({}^{180}\text{Hf,xn})^{220-x}\text{Th}$. The peaks labeled in red have been used for the calibration of the backside strips of the DSSSD.

la résolution en énergie et le rapport signal sur bruit. L'alignement des fenêtres de déclenchement issues des CFD sur les signaux de veto issus des boucliers anti-diffusion Compton a été intégralement refait. Les cartes TNT2D étaient asservies en temps à la première carte considérée comme maître qui utilisait son horloge interne.

Le séparateur RITU était rempli d'hélium à une pression de 1 mbar. Les réglages des aimants sont calculés à l'avance et lus sur une table en fonction de la masse et de l'énergie cinétique du noyau à sélectionner. Le réglage du dipôle est ensuite afiné afin de maximiser le nombre de noyaux de ²⁴⁶Fm observés sur le détecteur d'implantation. Après réglage fin, le dipôle était réglé à 1.98 Tm.

Au plan focal, le spectromètre GREAT était réglé pour détecter les noyaux de ²⁴⁶Fm et leur décroissance. Les pistes de la face arrière du détecteur d'implantation étaient amplifiées à raison de 32 keV/canal pour détecter l'implantation des noyaux de recul et leur décroissance α . L'étalonnage de la face arrière a été réalisé à l'aide de l'implantation des produits de la réaction ¹⁸⁰Hf(⁴⁰Ar⁸⁺,xn)^{220-x}Th. L'énergie cinétique du faisceau a été maintenue à 186 MeV à l'entrée de la cible afin de simplifier le réglage. Cette énergie permet d'obtenir des isotopes du thorium avec une section efficace suffisante pour l'étalonnage du DSSSD [111]. La prise de données a eu lieu immédiatement après la fin de l'expérience, sur 8 heures, soit la détecteur d'implantation sans coincidence avec un signal dans la chambre à fils. Toutes les décroissances ayant une énergie comprise entre 5 MeV et 10 MeV sont considérées comme des particules α . La sommation de l'énergie d'électrons avec les énergies des particules α n'est pas discriminée dans ce spectre. Le spectre α ainsi obtenu est présenté sur la figure 6.2.



FIGURE 6.3 – Matrice d'identification énergie α en fonction du logarithme du temps de décroissance (log2(Δ t)) pour la réaction ⁴⁰Ar⁸⁺(¹⁸⁰Hf,xn)^{220-x}Th. Le temps de décroissance est calculé en utilisant les valeurs en μ s des temps d'enregistrement de l'implantation du noyau et de la détection de sa particule α dans le détecteur silicium. Le maximum de la distribution en temps de chaque énergie α donne le temps de vie du noyau par la relation $\tau = 2^{\theta_{max}}$ où $\theta = \ln(\Delta t)/\ln(2)$ [34]. / *Identification matrix for the* α *particle energy vs. the decay time as log2*(Δt) *for the calibration reaction* ⁴⁰Ar⁸⁺(¹⁸⁰Hf,xn)^{220-x}Th. The decay time is calculated using the values of the timestamps of the implantation of a recoiling nuclei and the detection of its α decay in μ s. The maximum of the time distribution for each α energy gives the lifetime of the nuclei using the formula $\tau = 2^{\theta_{max}}$ où $\theta = \ln(\Delta t)/\ln(2)$ [34].

Les noyaux implantés sont identifiés par un signal dans le détecteur d'implantation en coincidence avec un signal dans la chambre à fil. L'attribution des décroissances à un noyau peut être faite dans une fenêtre en temps de 100 secondes. La sélection des noyaux de recul produits par fusion-évaporation est faite par une fenêtre sur le temps de vol qui coupe les valeurs extremales (inférieures à 200 u.a. et supérieures à 16000 u.a.). Les pics ont été identifiés grâce à leur énergie et à leur durée de vie sur une matrice représentant l'énergie de cinétique des particules α^1 et le logarithme en base deux du temps de décroissance selon la méthode présentée dans [34]. La figure 6.3 représente la matrice utilisée pour identifier les particules α .

La statistique n'est pas suffisante pour utiliser tous les pics. Seuls les pics légendés en rouge sur la figure 6.2 fournissent un nombre de coups suffisants dans toutes les pistes pour permettre l'étalonnage. Les

¹L'énergie mesurée dans le détecteur silicium lors d'une décroissance α correspond à l'énergie de recul de la particule α uniquement. Pour un ion lourd, à faible énergie cinétique, les interactions avec le milieu solide (ici le cristal de silicium) sont majoritairement des chocs élastiques entre les noyaux. Ces collisions ne produisent pas de paires électron-trou. L'énergie de recul du noyau lors de l'émission d'une particule α ne participe donc pas à la production de charges et n'est pas mesurée dans le détecteur [112]. Lors de l'émission de sa particules α (E_{α} = 8244 keV), le noyau de ²⁴²Cf acquiert une énergie cinétique de 168 keV.

| Cristal A | | | Cristal B | | |
|-----------|---------------|------------------|---------------|------------------|--|
| | Energie (keV) | Résolution (keV) | Energie (keV) | Résolution (keV) | |
| | 5143±1 | 72 ± 1 | 5140±1 | 85±1 | |
| | 5481±1 | 67±1 | 5478±1 | 91±1 | |
| | 5803 ± 1 | 82 ± 1 | 5810±1 | 70 ± 1 | |

TABLE 6.2 – Résolutions en énergie pour la face arrière du détecteur d'implantation obtenues à partir des mesures sur la source d'étalonnage tri-alpha ²³⁹Pu (5156 keV), ²⁴¹Am (5485 keV) et ²⁴⁴Cm (5806 keV) [113]. / Energy resolutions measured for the backside of the implantation detector using the triple- α source [113].

résolutions en énergie pour la face arrière du détecteur d'implantation sont indiquées dans le tableau 6.2. Les deux cristaux des DSSSD sont différenciés car leurs résolutions en énergie sont différentes. Le cristal B (à droite vue depuis la cible) reçoit les ions sélectionnés par le séparateur et donc la majorité des ions arrivant au plan focal. Pour cette raison, le cristal B est plus endommagé que le cristal A, ce qui se traduit par une résolution en énergie dégradée.

Les pistes de la face avant étaient amplifiées à raison de 12 keV/canal pour détecter avec précision les électrons de conversion. Pour le moment la face avant n'est utilisée que pour recueillir l'information de position. L'analyse des évènements enregistrés dans la face avant pourrait permettre de compléter le schéma de niveau avec les transitions de basse énergie, donc fortement converties. Cependant la statistique déjà faible autour de la cible pour les rayons γ n'est pas de bon augure pour cette étude.

6.4 Sélection des noyaux

L'analyse des données de l'expérience a été faite en grande partie avec le logiciel Grain [56]. L'extraction des mesures d'énergies et de demi-vies par interpolation ont été faites sous ROOT.

6.4.1 Identification des décroissances α

La figure 6.4 présente le spectre en énergie des particules α corrélées en temps et en position à un noyau implanté dans le détecteur silicium. La particule α doit être détectée dans le même pixel dans les 6 secondes suivant l'implantation, soit quatre fois la demi-vie du noyau ²⁴⁶Fm. Le pic du ²⁴⁶Fm est bien présent à 8240 keV, mais on constate la présence de contaminants. En parallèle de la réaction de fusion-évaporation étudiée, de nombreuses réactions de transfert prennent place. On trouve donc des noyaux produits par réactions de "stripping" ou de "pick-up" entre le ⁴⁰Ar et le ²⁰⁸Pb.

La matrice 6.5 représente le temps de décroissance en fonction de l'énergie de la particule α . Le temps de décroissance est tracé en utilisant la méthode décrite à la section 6.3. Les valeurs des demi-vies mesurées associées aux décroissances α sont portées dans le tableau 6.3 avec l'identification de leur noyau mère. Le pic observée à 7510,5 keV nest pour le moment pas identifié.

D'autres polluants sont créés dans la cible mais ne sont pas visibles sur la figure 6.4 soit car leur demi-vie est inférieure au temps de vol (jusqu'à 5 μ s dans RITU), soit au contraire supérieure à la fenêtre de coïncidence temporelle (Testée jusqu'à 16 s). Le ²¹²Po et le ²¹¹Bi possèdent des sections efficaces de transfert comparables à celle du ^{211m}Po pour le réaction ²⁰⁸Pb(⁴⁰Ar,xn)^{246-x}Fm [114]. Ces éléments sont probablement produits dans la réaction mais ne sont pas observés dans le spectre des particules α . Les demi-vies indiquées dans le tableau 6.4 expliquent pourquoi ces éléments n'apparaissent pas sur la figure 6.4. Ces éléments sont répertoriés dans le tableau 6.4.



FIGURE 6.4 – Particules α correlées à un noyau. La zone rosée correspond à la fenêtre en énergie définissant les particules α du ²⁴⁶FM. / *Recoil-correlated* α *particles. The highlighted zone represents the energy* window used to define the α particles belonging to ²⁴⁶Fm.

| Energie (keV) | Demie-vie | Parent |
|---------------|--------------|---------------------------------|
| 7282±5 | 70,4±0,2 ms | 211mPo |
| 7350 ± 5 | 595,4±0,2 ms | ²⁴² Cf (à confirmer) |
| 7450 ± 5 | 513,8±0,2 ms | ²¹¹ Po |
| 7679±5 | 312,5±0,2 ms | ²¹² At |
| 7885 ± 5 | 139,2±0,2 ms | ^{212m} At |
| 8244±5 | 1,6 s | ²⁴⁶ Fm |

TABLE 6.3 – Identification des pics α visibles sur les figures 6.5 et 6.4./ Identification of the α peaks seen in fig. 6.5 et 6.4.

| Parent | Energie (keV) | Demi-vie | Intensité (%) | Référence |
|--------------------|---------------|------------|---------------|-----------|
| ²¹² Po | 8748(12) | 0,3 μs | 100 | [113] |
| ^{212m} Po | 11660 (10) | 45 s | 99,93 | [113] |
| ²¹¹ Bi | 6622,9 (6) | 2,14 m (2) | 83,54 | [113] |

TABLE 6.4 – Contaminants possibles pour la réaction 208 Pb(40 Ar,2n) 246 Fm. / Possible contaminants for the reaction 208 Pb(40 Ar,2n) 246 Fm.



FIGURE 6.5 – Temps de décroissance des noyaux en fonction de l'énergie de la particule α associée pour les noyaux de recul produits par réaction du ⁴⁰Ar sur ²⁰⁸Pb. / *Decay time for recoiling nuclei as a function of the* α -particle energy for nuclei produced through ⁴⁰Ar on ²⁰⁸Pb reaction.

Bien que ces éléments ne soient pas identifiables par marquage α dans les conditions nécessaires à la bonne analyse du ²⁴⁶Fm, il faudra en tenir compte lors de l'étude du spectre γ prompt.

Durant l'expérience, 255 particules α avec une énergie entre 8195 keV et 8295 keV ont été enregistrées. La valeur de l'énergie de la particule α est extraite grâce à une minimisation par une fonction gaussienne en utilisant l'algorithme MINUIT de ROOT. La valeur observée est $E_{\alpha} = (8244 \pm 7)$ keV qui correspond aux valeurs précédemment publiées de (8240 ± 20) keV [32, 99] et (8243 ± 5) keV [106].

Les corrélations entre les produits d'évaporation et les particules α utilisent aussi la fenêtre en énergie précédemment citée. Cette sélection permet d'obtenir le spectre en temps de la décroissance du ²⁴⁶Fm représenté sur la figure 6.6. La valeur de la durée de vie est extraite en utilisant une régression avec une fonction exponentielle. On obtient $T_{1/2} = (1,6\pm0,2)$ s, ce qui est en bon accord avec la valeur de $(1,54\pm0,04)$ s [106].

La sélection par marquage α permet de s'assurer de l'appartenance des rayonnements γ observés en coïncidence. La figure 6.7 présente les rayons- γ mesurés dans JUROGAM 2 en coïncidence avec des noyaux de ²⁴⁶Fm identifiés par marquage α . On constate la présence de transitions régulièrement espacées entre 225 keV et 418 keV qui indiquent la présence d'une bande rotationnelle dans le ²⁴⁶Fm. Cependant le nombre de coups présents dans ce spectre est très réduit (290 coups). Il faut augmenter la statistique en utilisant une autre sélection moins contraignante que le marquage α (cf note page 44).

6.4.2 Sélection cinématique

Le compteur proportionnel fournit l'information de temps de vol et un dépôt d'énergie comme nous l'avons vu dans la section 3.2.1. Couplées à l'énergie d'implantation, ces mesures permettent de sélectionner les produits de réaction implantés dans GREAT. La figure 6.8 présente les trois matrices construites à partir de ces mesures en sélectionnant les coups dans le détecteur d'implantation en corrélation avec un signal dans le



FIGURE 6.6 – Temps de décroissance calculé entre le temps d'implantation d'un noyau identifié comme un ²⁴⁶Fm et l'émission de sa particule α dans le même pixel. / *Decay time calculated between the implantation of a* ²⁴⁶Fm nucleus and the detection of its decay particle in the same pixel.



FIGURE 6.7 – Rayons- γ prompts associés au ²⁴⁶Fm par marquage α . / Prompt γ -rays detected in coincidence with α -tagged ²⁴⁶Fm event.

compteur proportionnel.

Afin d'identifier la région correspondant au ²⁴⁶Fm, on trace ces trois matrices en ne sélectionnant que les noyaux en corrélation avec une particule α ayant une énergie comprise entre 8195 keV et 8295 keV. La région contenant ces noyaux est délimitée par la sélection sur la figure 6.9d. On peut donc sélectionner les noyaux de ²⁴⁶Fm à l'aide d'un contour qui conditionnera un ou plusieurs couples de mesures formées de l'énergie d'implantation, le temps de vol et le dépôt d'énergie.











(c) Perte d'énergie en fonction du temps de vol

FIGURE 6.8 – Matrices de sélection obtenues par corrélation entre l'énergie d'implantation issus du détecteur silicium de GREAT et le temps de vol et la perte d'énergie mesurés dans le compteur proportionnel à gaz. / Selection matrices obtained through the correlation between the implantation energy in the DSSSD and the time of flight and energy loss measured in the MWPC.



(d)

Légende page suivante. / See legend next page.

FIGURE 6.9 – Sélections possibles pour la matrice temps de vol en fonction de l'énergie d'implantation. La zone entourée en rouge représente la région contenant les noyaux de recul d'intérêt. Les spectres de droite présentent les rayons- γ prompts associés à la sélection. (a) Zone totale suceptible d'abriter les noyaux de recul du ²⁴⁶Fm. (b) et (c) Vérification d'une éventuelle corrélation entre la structure de la matrice et la présence de noyaux du ²⁴⁶Fm. (d) Zone contenant les noyaux de ²⁴⁶Fm otbenue par corrélation avec la décroissance α du ²⁴⁶Fm. / Possible selections for the time of flight vs. implantation energy matrix. The red area represents the region containing the recoiling nuclei of interest. The spectra on the right hand side present the prompt γ -rays associated with the nuclei selected. (a) Global area possibly containing the ²⁴⁶Fm nuclei. (b) and (c) Test of the correlation between the structure of the matrix and the presence of ²⁴⁶Fm nuclei. (d) Area containing the ²⁴⁶Fm nuclei identified by recoil- α correlation.



FIGURE 6.10 – Différence en temps entre la détection d'un rayon- γ dans JUROGAM 2 et celle du noyau associé dans GREAT en fonction du temps de vol. La sélection permet d'associer les rayons- γ au noyau en évitant les corrélations fortuites. Il est intéressant de noter que la structure verticale suit la fréquence de fonctionnement du cyclotron (100 MHz) avec une période de 10 ns correspondant à l'arrivée de chaque paquet d'ions ⁴⁰Ar⁸⁺ sur la cible. La corrélation aléatoire avec des signaux non-synchronisés dans le détecteur d'implantation produit cette structure. */ Time difference between the detection of a \gamma-ray in JUROGAM 2 and the detection of the associated nuclei in GREAT. The selection suppresses the random correlations.*

Une fois la région contenant le ²⁴⁶Fm identifiée, il faut optimiser le contour afin de récupérer le plus grand nombre de noyaux possibles tout en maintenant le bruit de fond au plus bas. Les figures 6.9a à 6.9d présentent différents contours appliqués à la matrice E-ToF pour sélectionner les noyaux, associés aux spectres γ -prompt correspondants. Le spectre γ prompt est l'objectif de cette sélection puisque l'on cherche à étudier la désexcitation prompte du ²⁴⁶Fm. Le contour utilisé doit maximiser le rapport signal sur bruit du spectre γ prompt afin de permettre une identification aussi fiable et complète que possible des transitions γ .

Le meilleur résultat est fourni par le contour représenté sur la figure 6.9d. Il est défini simplement à partir de la position des noyaux associés à une particules alpha correspondant à celle du ²⁴⁶Fm. Le spectre γ obtenu à partir de cette sélection est similaire à celui obtenu à partir de la sélection présentée sur la figure 6.9a. J'ai choisi cette sélection-ci car la contrainte sur les noyaux est plus stricte. La sélection provient de la corrélation avec la décroissance α du ²⁴⁶Fm, ce qui assure mieux l'origine des rayons- γ .

La sélection des produits de réaction étant satisfaisante il faut ajuster celle des rayons- γ associés. La figure 6.10 représente la différence en temps entre la détection d'un rayon- γ dans JUROGAM 2 et l'implantation du noyau associé en fonction du temps de vol de ce dernier. Cette matrice permet de visualiser les corrélations entre les noyaux et les rayons- γ prompts. La sélection sur cette matrice a pour objectif d'éviter les corrélation aléatoires.

On utilise ici aussi un contour de sélection pour discriminer les rayons-y. La région qui nous intéresse



FIGURE 6.11 – Spectre γ prompt du ²⁴⁶Fm obtenu par les sélections décrites dans la section 6.4.2. / *Prompt* γ -ray spectrum of ²⁴⁶Fm obtained through the kinematic selection described in section 6.4.2.

se situe plus haut en temps de vol et donc avec un temps plus long entre la désexcitation détectée dans JUROGAM 2 et l'implantation du noyau dans GREAT. Le choix du contour se fait en observant uniquement l'évolution du spectre γ prompt. La zone jaune indiquée sur la figure 6.10 cerne les rayons- γ sélectionnés.

La figure 6.11 présente le spectre γ prompt le plus abouti que j'aie pu obtenir au moment de cette rédaction. Il constitue la base de travail pour la partie suivante.

Les autres détecteurs de GREAT ont enregistré des données complémentaires sur les émissions électromagnétiques accompagnant la décroissance retardée du ²⁴⁶Fm. Etant donné que le but de cette expérience était d'étudier les transitions promptes du ²⁴⁶Fm, je me suis concentré sur celles-ci au détriment de la spectroscopie retardée. Ces données feront l'objet d'une analyse ultérieure.

6.5 Analyse des transitions promptes du ²⁴⁶Fm

Le spectre obtenu par les sélections décrites ci-dessus (figure 6.11) présente les transition γ émises lors de la désexcitation prompte du noyau ²⁴⁶Fm après sa formation par fusion-évaporation.

La figure 6.12 présente un zoom à basse énergie. On y trouve les raies d'émission des rayons-X de divers noyaux présents ou produits dans la cible de ²⁰⁸Pb. On trouve tout d'abord les rayons-X correspondant aux transitions $K_{\alpha 1}$, $K_{\alpha 2}$ et $K_{\beta 1}$ du plomb, respectivement à 74±1 keV, 72±1 keV et 85±1 keV. La couche K du cortège électronique du plomb est excitée par le dépôt d'énergie dû à l'interaction du faisceau avec cible. Cette excitation est ré-émise sour forme de rayons-X dont les plus intenses sont observés dans JUROGAM 2. Malgré le filtrage décrit dans la partie précédente, on observe toujours les rayons-X de produits de transfert, et notamment du bismuth. Le pic à 77±1 keV est assigné à la transition $K_{\alpha 1}$ du bismuth. La transition $K_{\alpha 2}$ est présente à 75±1 keV et la transition $K_{\beta 1}$ à 88±1 keV.

La transition visible à 121 ± 1 keV appartient au fermium et est affectée la désexcitation d'un électron entre les orbitales K et L₃. La transition entre les orbitales K et L₂ est visible à 116 ± 1 keV. Les transitions visibles et attendues dans le spectre γ sont résumées dans le tableau 6.5.

On retrouve sur la figure 6.12 les transitions aperçues sur le spectre de la figure 6.7 attribuées au noyau ²⁴⁶Fm. La statistique de la présente sélection met clairement en lumière une bande rotationelle. En effet, les différences en énergie constantes entre les transitions correspondent bien à ce qui est attendu pour une structure rotationnelle.

Si on compare les énergies de transitions de cette bande rotationnelle avec celles identifiées dans les



FIGURE 6.12 – Spectre γ du ²⁴⁶Fm à basse énergie. Les raies-X du Plomb et du Fermium sont visibles. Les transitions appartenant à la bande rotationnelle sont indiquées avec la tentative d'assignation des spins. *Gamma-ray spectrum of* ²⁴⁶Fm at low energy. The X-ray lines of lead and fermium appear at low energy. The transitions belonging to the rotational band are marked along with their tentative spin assignment.

| Elément | Dénomination Siegbahn | Energie (keV) | Intensité (%) |
|---------|-----------------------|---------------|---------------|
| Pb | $K_{\alpha 1}$ | 74,969 | 46,2 |
| | $K_{\alpha 2}$ | 72,805 | 27,7 |
| | $K_{\beta 1}$ | 84,938 | 10,70 |
| Bi | K _{α1} | 77,107 | 46,2 |
| | $K_{\alpha 2}$ | 74,815 | 27,7 |
| | $K_{\beta 1}$ | 87,349 | 10,70 |
| Fm | Κα1 | 121,48 | 44,2 |
| | $K_{\alpha 2}$ | 115,285 | 28,9 |

TABLE 6.5 – Raies-X observées dans le spectre prompt du ²⁴⁶Fm et leurs intensités respectives [32]. / X-ray lines observed in the prompt spectrum of ²⁴⁶Fm and their respective intensities [32].


FIGURE 6.13 – Systématique des bandes rotationnelles dans les isotopes pair-pair du fermium. Les transistions identifiées dans le ²⁴⁶Fm sont cohérentes avec celles observées dans les isotopes pairs voisins [21]. / Systematics of the rotational bands in even-even Fermium isotopes. The observed transitions in ²⁴⁶Fm are coherent with the neighbouring nuclei [21].

| Energie (keV) | Etat Initial | Etat Final |
|---------------|--------------|------------|
| 168±1 | 6+ | 4+ |
| 225 ± 1 | 8+ | 6^+ |
| 278 ± 1 | 10^{+} | 8^+ |
| 328±1 | 12^{+} | 10^{+} |
| 372 ± 2 | 14^{+} | 12^{+} |
| 414 ± 2 | 16^{+} | 14^{+} |

TABLE 6.6 – Affectation des transitions de la bande rotationnelle du 246 Fm. / Assignment of the transitions in 246 Fm.

autres isotopes pair-pair du fermium (voir figure 6.13) on constate un bon accord avec le comportement des noyaux voisins. On peut donc dans un premier temps affecter les transitions du noyau ²⁴⁶Fm à partir de celles des isotopes voisins.

L'affectation des spin et parité des transitions observées dans l'élément ²⁴⁶Fm sur la base d'une systématique est présentée dans le tableau 6.6. Cependant il existe une méthode bien plus efficace sur la base d'une paramétrisation des bandes de rotation. Cette méthode proposée par Harris [115] a été abondamment utilisée pour les bandes superdéformées pour lesquelles les têtes de bande n'ont pas été observées [101]. Cette méthode et les résultats obtenus sont détaillés dans la section suivante.

6.6 Moment d'inertie dynamique

Les mesures des transitions de la bande rotationnelle observée dans le noyau ²⁴⁶Fm nous permettent de calculer le moment d'inertie du noyau. La figure 6.14 présente le moment d'inertie dynamique du noyau ²⁴⁶Fm comparé aux autre isotopes pair-pair connus du fermium. On peut constater que le comportement de l'élément ²⁴⁶Fm avec la rotation suit celui des isotopes voisins. On observe une croissance régulière induite par l'alignement progressif des paires sous l'effet de la force de Coriolis. La dernière transition de la nouvelle bande semble indiquer une saturation qui arriverait bien tôt par rapport à ce qui est observé dans les isotopes voisins. Il faut cependant noter que le moment d'inertie dynamique $\Im^{(2)}$ est extrêmement sensible et que les barres d'erreur sont importantes du fait de la pauvreté de la statistique. Pour cette raison, la tendance du moment d'inertie dynamique à plus grande fréquence est incertaine. La confirmation ou l'infirmation de cette tendance nécessite de réaliser une nouvelle expérience avec une statistique plus importante.

6.7 Energie d'excitation et spin des premiers états excités

La non-observation des premières transitions de la bande rotationnelle du fait de la forte conversion électronique nous prive d'informations sur le spin et l'énergie des premiers états. Les bandes superdéformées de la région de masse A = 190 présentaient la même problématique pour des raisons différentes. Le problème avait été résolu par la méthode de Harris [115, 101] basée sur la régularité du moment d'inertie $\Im^{(1)}$ des structures rotationnelles. Nous avons choisi d'appliquer la même méthode.

Le moment d'inertie peut être exprimé sous la forme d'un polynôme en ω [115] :

$$\Im = \sum_{i \ge 0} a_i \omega^i \tag{6.1}$$

pour *i* pair. Nous limiterons le développement à l'ordre 2.



FIGURE 6.14 – Moment d'inertie dynamique du ²⁴⁶Fm comparé aux autres isotopes pair-pair connus du fermium. / *Dynamical moment of inertia of* ²⁴⁶Fm compared to the other known even-even Fermium isotopes.

Le moment angulaire I_x est défini à partir du moment d'inertie cinématique à l'équation 1.52 en introduisant la fréquence de rotation (eq. 1.49), ce qui donne

$$\mathfrak{S}^{(1)} = \frac{I - 1/2}{\omega} = \frac{I_x}{\omega} \tag{6.2}$$

L'équation 6.2 est égale à l'intégrale de l'équation 6.5 qui donne la projection I_x du moment angulaire sur l'axe de rotation :

$$I_x = J_0 \omega + J_1 \omega^3 + i \tag{6.3}$$

où *i* est une constante d'intégration qui représente l'alignement des quasiparticules [100]. Le moment d'inertie cinétique $\mathfrak{I}^{(1)}$ est exprimé de la manière suivante en fonction de la fréquence de rotation de la manière suivante :

$$\mathfrak{I}^{(1)} = \frac{I_x}{\omega} = J_0 + J_1 \omega^2 + \frac{i}{\omega} \tag{6.4}$$

Le moment d'inertie dynamique $\mathfrak{I}^{(2)}$ s'écrit :

$$\mathfrak{I}^{(2)} = J_0 + 3J_1\omega^2 = \frac{dI_x}{d\omega} \tag{6.5}$$

Dans le cas qui nous concerne, la bande rotationnelle est basée sur l'état fondamental d'un noyau pairpair. Par conséquent, à fréquence nulle tous les nucléons seront appariés et le terme *i* de l'expansion de Harris 6.3 sera nul.

En utilisant les formules 6.5 et 6.4, les moments d'inertie sont interpolés à partir des énergies des transitions observées.

Les coefficients obtenus sont indiqués dans le tableau 6.7.

| | J_0 | J_1 |
|----------------------|-------|-------|
| $\mathfrak{I}^{(1)}$ | 63,8 | 235,4 |
| $\mathfrak{I}^{(2)}$ | 61,7 | 282,2 |

TABLE 6.7 – Paramètres des interpolations pour les moments d'inertie cinématique $\mathfrak{I}^{(1)}$ et dynamique $\mathfrak{I}^{(2)}$. / Fit parameters for the kinematical $\mathfrak{I}^{(1)}$ and dynamical moments of inertia $\mathfrak{I}^{(2)}$.

A partir de ces coefficients, le moment angulaire associé aux états observés peut être obtenu à l'aide des formules 6.3 et 6.2. Les énergies mesurées pour les transitions électromagnétiques fournissent la fréquence de rotation (eq. 1.48). Le spin calculé pour les transitions γ mesurées est présenté dans le tableau 6.8.

| Energie de la transition (keV) | Spin calculé (ħ) |
|--------------------------------|------------------|
| 167±1 | 5.9917 |
| 224±1 | 8.00886 |
| 278±1 | 10.0157 |
| 327±1 | 11.9848 |
| 372±2 | 13.8814 |
| 414±2 | 15.8039 |

TABLE 6.8 – Spin calculé à partir des transitions promptes observées pour le noyau ²⁴⁶Fm en utilisant la formule 6.4. / Calculated spins from the observed prompt transitions in ²⁴⁶Fm using equation 6.4

Les valeurs du moment angulaire ainsi obtenues confirment les assignations supposées originalement. Le spin de l'état alimenté par la transition de 167,8 keV est de $6\hbar$. On constate un bon accord dans le bas de la bande de rotation. Par contre, les spins calculés plus haut diffèrent de 14 et 16 \hbar signant le début de l'alignement des nucléons sous l'effet de la rotation. La bande rotationnelle observée est donc bien basée sur le niveau fondamental du ²⁴⁶Fm dont les transitions entre les états 16⁺ et 4⁺ sont observés.

La formule 6.3 permet aussi d'extrapoler les énergies des états 2^+ et 4^+ de la bande rotationnelle. En fixant la valeur de I_x on peut remonter à la fréquence correspondante et donc à l'énergie des photons émis au cours des transitions $4^+ \rightarrow 2^+$ et $2^+ \rightarrow 0^+$. Les énergies obtenues par cette méthode sont présentées dans le tableau 6.9.

| Transition | Energie (keV) |
|-----------------------|---------------|
| $4^+ \rightarrow 2^+$ | 108,5 |
| $2^+ \rightarrow 0^+$ | 46,8 |

TABLE 6.9 – Energie des transitions $4^+ \rightarrow 2^+$ et $2^+ \rightarrow 0^+$ extrapolées à partir du moment d'inertie dynamique. *Values of the energies of the* $4^+ \rightarrow 2^+$ *and* $2^+ \rightarrow 0^+$ *transitions extrapolated from the fit of the dynamical moment of inertia.*

Ces deux valeurs sont en accord avec la systématique des isotopes voisins. Elles nous permettent de constuire le schéma de niveau complet de la bande de rotation sur le niveau fondamental de l'élément ²⁴⁶Fm finalisant le travail d'analyse de cette thèse.



FIGURE 6.15 – Schéma de niveau de la bande de rotation construite sur l'état fondamental du ²⁴⁶Fm. / Level scheme of the rotational band built on the ground state of ²⁴⁶Fm.

Conclusion et perspectives

La navigation prend fin, il est temps de mettre pied à terre pour quelques instants. L'analyse de l'expérience sur le noyau ²⁴⁶Fm a permis de mettre en évidence une bande rotationnelle construite sur l'état fondamental jusqu'à un spin de 16 \hbar . Son comportement s'inscrit dans la systématique des isotopes pair-pair du fermium. Le calcul du moment d'inertie dynamique indique une augmentation du même type que pour les isotopes du ^{248,250}Fm et du ^{252,254}No. La décroissance retardée du noyau ²⁴⁶Fm n'a pas été analysée pour le moment. Cependant, étant donné la faible statistique il est peu probable que des états isomèriques soient observés. Il serait pourtant intéressant de refaire cette réaction en profitant de l'expérience acquise et du spectromètre à électrons SAGE. En effet, la mesure des électrons de conversion permettrait de confirmer les extrapolations des énergies des deux premières transitions de la bande rotationnelle et donner ainsi la vraie valeur des énergies d'excitation des états de la bande. Un complément de statistique γ permettrait aussi de voir des états de plus haut spin pour lesquels il n'a pas été possible de statuer quant à une possible modification de la pente de $\Im^{(2)}$. Cette dernière serait positionnée à très basse fréquence dans ce noyau par rapport aux isotopes voisins.

La section efficace du ²⁴⁶Fm étant du même ordre que celle du ²⁵⁶Rf, nous avons pu vérifier que les conditions expérimentales étaient réunies pour réaliser cette expérience tant attendue. Les tests des cartes TNT2D ont permis de fiabiliser et de valider l'utilisation d'une électronique numérique pour la spectroscopie γ prompte. La rapidité de traitement des données et la qualité de la résolution en énergie à haut taux de comptage ont ouvert la voie vers des expériences en faisceau à des intensités inimaginables jusque là. Le spectromètre JUROGAM 2 a ainsi été utilisé avec une intensité de faisceau pouvant atteindre 70 pnA sur cible, soit un taux de comptage de 40 à 50 kHz par cristal de germanium. Ces performances mettent à la portée de la spectroscopie en faisceau des noyaux ayant une section efficace de l'ordre de la dizaine de nanobarns. Par conséquent, les limites actuelles des études spectroscopiques des éléments transfermium ont été quelque peu repoussées.

Le développement du faisceau de titane se poursuit. Les tests réalisés nous ont beaucoup appris à la fois sur la chimie des composés organo-métalliques et sur les différentes techniques accessibles pour produire un faisceau d'ions métalliques. Les conclusions du travail effectué avant et pendant ma thèse vont nous permettre de progresser rapidement pour valider une solution technique. Les molécules organométalliques ont permis d'obtenir un faisceau de titane de 8,4 pnA en sortie du cyclotron. De même l'utilisation de pastilles d'oxyde de titane dans le four à induction a fourni un faisceau de 30 pnA. Ces deux solutions doivent encore être fiabilisées, mais l'issue est proche. L'expérience a été à nouveau soumise au PAC du Laboratoire de l'Accélérateur de l'Université de Jyväskylä.

Le noyau ²⁵⁶Rf marque une étape importante dans la cartographie de la région des noyaux transfermium. Quelles informations va-t'il apporter sur le comportement des orbitales *single particle*? La fermeture de couche à 152 neutrons laisse-t'elle la place à une autre à 162 neutrons au-delà du nobelium ? Que deviennent les gaps déformés qui abritent le fermium et le nobelium autour de A = 250? Les questions ne manquent pas.

Revenons à notre carte. Un point a été ajouté, les contours s'éclaircissent-ils? La spectroscopie des éléments pair-pairs est certes plus aisée que celle des noyaux impairs mais elle est aussi moins généreuse en

informations. Appliquer les modèles aux données de cette région requiert une assignation ferme des spins. Pour cette raison nous avons besoin d'étudier les éléments impairs. Les progrès technologiques récents et à venir permettent de continuer sur cette voie. Le spectromètre SAGE va fournir un complément d'information sur les données spectroscopiques promptes d'ici quelques mois. L'apport d'information, surtout pour les états isomèriques de haut K dans les noyaux impairs, devrait compléter la carte.

D'ici 2012, le séparateur VASSILISSA devrait être prêt à accueillir à nouveau le spectromètre GA-BRIELA. L'amélioration de la transmission permettra de produire des noyaux par réactions très asymétriques sur des cibles d'actinides. Ces réactions produiront des noyaux à haute énergie d'excitation et donc à haut spin. Nous en apprendrons alors plus sur la tenue de la barrière de fission à haute excitation et sur l'existence d'états isomèriques inaccessibles jusqu'alors. L'utilisation de cibles radioactives permettra d'accéder à la région riche en neutrons des noyaux transfermium. Les calculs tendent à placer l'îlot de stabilité dans cette zone, il est important d'aller dans cette direction.

A plus long terme le LINAC de SPIRAL 2 apportera des faisceaux stables de haute intensité sur un polyspectromètre dédié à la spectroscopie des noyaux très lourds et superlourds, placé au plan focal du super séparateur spectromètre S^3 . Il sera alors possible d'étudier la majeure partie des noyaux transfermium en spectroscopie retardée. Le gain de statistique apporté par des faisceaux intenses permettra de faire un bond dans la caractérisation des orbitales mises en jeu et leurs effets dans la région des noyaux transfermium. Le pouvoir séparateur et la transmission de S^3 en font un outil idéal pour la spectroscopie des noyaux transfermium et au-delà. L'expérience acquise grâce au spectromètres GABRIELA et GREAT permettent de concevoir un détecteur à la pointe des techniques actuelles qui répondra aux besoins de la Physique dans cette région de la charte des noyaux. Dès la fin de ma thèse, je vais embarquer dans cette nouvelle aventure en espérant contribuer à définir un peu mieux les contours de la carte de la mer des noyaux transfermium.

Ce voyage s'achève, un autre commence. Je suis heureux d'avoir navigué en votre compagnie. Nous nous retrouverons probablement à l'occasion d'une escale ou au gré de nos navigations.

Bon vent.

Bibliographie

- [1] C. Theisen. Des noyaux lourds aux super lourds. In CNRS/IN2P3, editor, *Les noyaux exotiques : Un autre regard sur la structure nucléaire*, pages 190–243. CNRS/IN2P3, 2002.
- [2] A. Ghiorso, M. Nurmia, J. Harris, K. Eskola, and P. Eskola. Positive identification of two alphaparticle-emitting isotopes of element 104. *Phys. Rev. Lett.*, 22(24) :1317–1320, Jun 1969.
- [3] K.S. Krane. Introductory Nuclear Physics, chapter 5, pages 116–158. Wiley, 1988.
- [4] Sven Gösta Nilsson, Chin Fu Tsang, Adam Sobiczewski, Zdzislaw Szymański, Slawomir Wycech, Christer Gustafson, Inger-Lena Lamm, Peter Möller, and Björn Nilsson. On the nuclear structure and stability of heavy and superheavy elements. *Nuclear Physics A*, 131(1):1 – 66, 1969.
- [5] A.N. Andreyev, M. Huyse, P. Van Duppen, L. Weissman, D. Ackerman, J. Gerl, F.P. Heßberger, S.Hofmann, A. Kleinböhl, G. Münzenberg, S. Reshitko, C. Schegel, H. Schaffner, P. Cagarda, M. Matos, Š. Šaro, A. Keenan, C. Moore, C.D. O'Leary, R.D. Page, M. Taylor, H. Kettunen, M. Leino, A. Lavrentiev, R. Wyss, and K. Heyde. A triplet of differently shaped spin-zero states in the atomic nucleus ¹⁸⁶Pb. *Nature*, 405 :430–433, mai 2000.
- [6] B.J.-P. Gall. Super et hyper déformation du noyau atomique : du discret au continu. Annales de *Physique*, 24(6), 1999.
- [7] M. Bender, W. Nazarewicz, and P.-G. Reinhard. Shell stabilization of super- and hyperheavy nuclei without magic gaps. *Phys. Lett. B*, 515 :42–48, août 2001.
- [8] J. Bartel, M.B. Johnson, M. Singham, and W. Stocker. Microscopic coupled-channel description of pion inelastic scattering from rotational nuclei. *PRC*, 49(5) :2592, Mai 1994.
- [9] S.G. Nilsson and I. Ragnarsson. *Shapes and Shells in Nuclear Structure*, chapter 8, pages 112–118. Cambridge University Press, 1995.
- [10] J. Dudek. Communication privée.
- [11] B.J.P. Gall, I. Deloncle, M.-G. Porquet, F. Hannachi, M. Aïche, F. Azaiez, G. Bastin, C.W. Beausang, R. Béraud, C. Bourgeois, R.M. Clark, R. Duffait, J. Duprat, K. Hauschild, H. Hübel, M.J. Joyce, M. Kaci, A. Korichi, Y. Le Coz, M. Meyer, et al. The yrast superdeformed band in ¹⁹⁴Pb. differences with ¹⁹²Hg. *Phys. Lett. B*, 345(2):124–130, février 1995.
- [12] M.-G. Porquet. Noyaux et modèles, Notes de cours. DEA Champs, Particules, matière, Université Paris VI-VII-XI, CSNSM bât. 104-108, 91405 Orsay campus.
- [13] S. Eeckhaudt, P. Greenlees, N. Amzal, J. Bastin, E. Bouchez, P. Butler, A. Chatillon, K. Eskola, J. Gerl, T. Grahn, A. Görgen, R. Herzberg, F. Heßberger, A. Hürstel, P. Ikin, G. Jones, P. Jones, R. Julin,

S. Juutinen, H. Kettunen, T. Khoo, W. Korten, P. Kuusiniemi, Y. Le Coz, M. Leino, A. Leppänen, P. Nieminen, J. Pakarinen, J. Perkowski, A. Pritchard, P. Reiter, P. Rahkila, C. Scholey, Ch. Theisen, J. Uusitalo, K. Van de Vel, and J. Wilson. Evidence for non-yrast states in ²⁵⁴No. *Eur. Phys. J. A*, 26 :227–232, 2005. 10.1140/epja/i2005-10163-6.

- [14] F.S. Stephens. Properties of nuclei at high spins. Phys. Scr., T5 :5-9, octobre 1983.
- [15] S. Cwiok, J. Dobaczewski, P.-H. Heenen, P. Magierski, and W. Nazarewicz. Shell structure of the superheavy elements. *Nucl. Phys. A*, 611(2-3):211–246, décembre 1996.
- [16] J.A. Wheeler. Proceedings of the international conference on peaceful uses of the atomic energy. volume 2, page 155. United Nations, 1955.
- [17] F.G. Werner and J.A. Wheeler. Superheavy nuclei. Phys. Rev., 109(1):126, janvier 1958.
- [18] Ch. Theisen, A. Lopez-Martens, and Ch. Bonnelle. Internal conversion and summing effects in heavynuclei spectroscopy. *Nucl. Inst. and Meth. in Nucl. Phys. Res. A*, 589 :230–242, février 2008.
- [19] K.S. Krane. Introductory Nuclear Physics, chapter 10, page 341. Wiley, 1988.
- [20] P. Papadakis, R.-D. Herzberg, J. Pakarinen, P.A. Butler, P.J. Coleman-Smith, J.R. Cresswell, P.T. Greenlees, P. Jones, R. Julin, I.H. Lazarus, S.C. Letts, R.D. Page, E. Parr, P. Peura, V.F.E. Pucknell, P. Rahkila, D.A. Seddon, J. Simpson, J. Sorri, J. Thornhill, and D. Wells. Towards combining in-beam γ-ray and conversion electron spectroscopy. In A. Blazhev, J. Jolie, N. Warr, and A. Zilges, editors, *Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics*, 13th International Symposium, page 14, Oxford Street, Liverpool, L69 7ZE, U.K., 2009. Department of Physics, University of Liverpool, AIP Proceedings.
- [21] R.-D. Herzberg and P.T. Greenlees. In beam and decay spectroscopy of transfermium nuclei. *Prog. in Part. and Nucl. Phys.*, 61 :674, 2007.
- [22] P. Walker and G. Dracoulis. Energy traps in atomic nuclei. Nature, 399:35, mai 1999.
- [23] G.D. Jones. Detection of long-lived isomers in super-heavy elements. *Nucl. Inst. and Meth. in Nucl. Phys. Res. A*, 488 :471–472, février 2002.
- [24] E. S. Paul, P. J. Woods, T. Davinson, R. D. Page, P. J. Sellin, C. W. Beausang, R. M. Clark, R. A. Cunningham, S. A. Forbes, D. B. Fossan, A. Gizon, J. Gizon, K. Hauschild, I. M. Hibbert, A. N. James, D. R. LaFosse, I. Lazarus, H. Schnare, J. Simpson, R. Wadsworth, and M. P. Waring. Inbeam γ -ray spectroscopy above ¹⁰⁰Sn using the new technique of recoil decay tagging. *Phys. Rev. C*, 51(1):78–87, Jan 1995.
- [25] K.-H. Schmidt, R.S. Simon, J.-G. Keller, F.P. Heßberger, G. Münzenberg, B. Quint, H.-G. Clerc, W. Schwab, U. Gollerthan, and C.-C. Sahm. Gamma-spectroscopic investigations in the radiative fusion reaction ⁹⁰Zr + ⁹⁰Zr. *Phys. Lett. B*, 168(1-2):39 – 42, 1986.
- [26] A.V. Belozerov, M.L. Chelnokov, V.I. Chepigin, T.P. Drobina, V.A. Gorshkov, A.P. Kabachenko, O.N. Malyshev, I.M. Merkin, Yu.Ts. Oganessian, A.G. Popeko, R.N. Sagaidak, A.I. Svirikhin, A.V. Yeremin, G. Berek, I. Brida, and Š. Šàro. Spontaneous-fission decay properties and production cross-sections for the neutron-deficient nobelium isotopes formed in the ^{44,48}Ca + ^{204,206,208}Pb reactions. *The European Physical Journal A Hadrons and Nuclei*, 16 :447–456, 2003. 10.1140/epja/i2002-10109-6.

- [27] A.V. Yeremin. Communication Privée.
- [28] Y. Ts. Oganessian. Heaviest nuclei from ⁴⁸Ca-induced reactions. JPG, 34 :R165–R242, mars 2007.
- [29] A. Ghiorso, S. G. Thompson, G. H. Higgins, G. T. Seaborg, M. H. Studier, P. R. Fields, S. M. Fried, H. Diamond, J. F. Mech, G. L. Pyle, J. R. Huizenga, A. Hirsch, W. M. Manning, C. I. Browne, H. L. Smith, and R. W. Spence. New elements einsteinium and fermium, atomic numbers 99 and 100. *Phys. Rev.*, 99(3) :1048–1049, Aug 1955.
- [30] Yu. Ts. Oganessian, F. Sh. Abdullin, P. D. Bailey, D. E. Benker, M. E. Bennett, S. N. Dmitriev, J. G. Ezold, J. H. Hamilton, R. A. Henderson, M. G. Itkis, Yu. V. Lobanov, A. N. Mezentsev, K. J. Moody, S. L. Nelson, A. N. Polyakov, C. E. Porter, A. V. Ramayya, F. D. Riley, J. B. Roberto, M. A. Ryabinin, K. P. Rykaczewski, R. N. Sagaidak, D. A. Shaughnessy, I. V. Shirokovsky, M. A. Stoyer, V. G. Subbo-tin, R. Sudowe, A. M. Sukhov, Yu. S. Tsyganov, V. K. Utyonkov, A. A. Voinov, G. K. Vostokin, and P. A. Wilk. Synthesis of a new element with atomic number Z=117. *Phys. Rev. Lett.*, 104(14):142502, Apr 2010.
- [31] R.D. Evans. The atomic nucleus, chapter 1, page 23. Mc Graw-Hill, 1955.
- [32] R.B. Firestone, V.S. Shirley, C.M. Baglin, S.Y.F. Chu, and J. Zipkin. *Table of Isotopes*, 8th ed., vol. II. John Wiley and Sons, Inc., New York, 8 edition, 1996.
- [33] R.-D. Herzberg, P.T. Greenlees, P.A. Butler, G.D. Jones, M. Venhart, I.G. Darby, S. Eeckhaudt, K. Eskola, T. Grahn, C. Gray-Jones, F.P. Heßberger, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, W. Korten, M. Leino, A.-P. Leppänen, S. Moon, M. Nyman, R.D. Page, J. Pakarinen, A. Pritchard, P. Rahkila, J. Sarën, C. Scholey, A. Steer, Y. Sun, Ch. Theisen, and J. Uusitalo. Nuclear isomers in superheavy elements as stepping stones towards the island of stability. *Nature*, 442(7105) :896–899, 2006. cited By (since 1996) 48.
- [34] A. Lopez-Martens, K. Hauschild, A. Yeremin, O. Dorvaux, A. Belozerov, Ch. Briançon, M. Chelnokov, V. Chepigin, D. Curien, P. Désesquelles, B. Gall, V. Gorshkov, M. Guttormsen, F. Hanappe, A. Kabachenko, F. Khalfallah, A. Korichi, A. Larsen, O. Malyshev, A. Minkova, Yu. Oganessian, A. Popeko, M. Rousseau, N. Rowley, R. Sagaidak, S. Sharo, A. Shutov, S. Siem, L. Stuttgé, A. Svirikhin, N. Syed, and Ch. Theisen. Isomeric states in ²⁵³No. *Eur. Phys. J. A*, 32 :245–250, 2007. 10.1140/epja/i2007-10391-8.
- [35] M. Leino and F.P. Heßberger. The nuclear structure of heavy-actinide and transactinide nuclei. Annu. Rev. Nucl. Part. Sci., 54 :175–215, 2004.
- [36] P.A. Butler, P.M. Jones, K.J. Cann, J.F.C. Cocks, G.D. Jones, R. Julin, and W.H. Trzaska. Electron spectroscopy using a multi-detector array. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, 381:433, July 1996.
- [37] B.J.-P. Gall. Calculs de différentes configurations de JUROGAM 2. Communication privée.
- [38] M. Leino, J. Äystö, T. Enqvist, P. Heikkinen, A. Jokinen, M. Nurmia A. Ostrowski, W.H. Trzaska, J. Uusitalo, K. Eskola, P. Armbruster, and V. Ninov. Gas-filled recoil separator for studies of heavy elements. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B*, 99:653–656, 1995.
- [39] J. Uusitalo, P. Jones, P. Greenlees, P. Rahkila, M. Leino, A. N. Andreyev, P. A. Butler, T. Enqvist, K. Eskola, T. Grahn, R. D. Herzberg, F. Hessberger, R. Julin, S. Juutinen, A. Keenan, H. Kettunen, P. Kuusiniemi, A-P. Leppäen, P. Nieminen, R. Page, J. Pakarinen, and C. Scholey. In-beam spectroscopy using the JYFL gas-filled magnetic recoil separator RITU. *Nuclear Instruments and Methods*

in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms, 204 :638 – 643, 2003. 14th International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to their Applications.

- [40] F. Kahlafalah. Spectroscopie des éléments très lourds en vue de l'étude des éléments superlourds. PhD thesis, Université de Strasbourg, IPHC/DRS UMR7178, 23 rue du Loess, 67037 Strasbourg, 2007.
- [41] R.D. Page, A.N. Andreyev, D.E. Appelbe, P.A. Butler, S.J. Freeman, P.T. Greenlees, R.-D. Herzberg, D.G. Jenkins, G.D. Jones, P. Jones, D.T. Joss, R. Julin, H. Kettunen, M. Leino, P. Rahkila, P.H. Regan, J. Simson, J. Uusitalo, S.M. Vincent, and R. Wadsworth. The GREAT spectrometer. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B*, 204 :634–637, 2003.
- [42] A.V. Yeremin, A.N. Andreyev, D.D. Bogdanov, G.M. Ter-Akopian, V.I. Chepigin, V.A. Gorshkov, A.P. Kabachenko, O.N. Malyshev, A.G. Popeko, R.N. Sagaidak, S. Sharo, E.N. Voronkov, A.V. Taranenko, and A.Yu. Lavrentjev. The kinematic separator VASSILISSA performance and experimental results. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 350(3), 1994.
- [43] K. Hauschild, A. Lopez-Martens, Ch. Briançon, P. Désequlles, S. Garcia-Santamaria, A. Korichi, J. Robin, O. Dorvaux, J. Piot, D. Curien, B. Gall, F. Khalfallah, A. Kouaja, M. Rousseau, L. Stuttgé, N. Rowley, A.V. Yeremin, A.V. Belozerov, M.L. chelonokv, V.I. Chepigin, V.A. Gorshkov, A.V. Isaev, I.V. Izosimov, A.P. Kabachenko, D.E. Katrasev, A.N. Kutznetzov, O.N. Malyshev, A.G. Popeko, R.N. Sagaidak, A.V. Shutov, E.A. Sokol, A.I. Svirikin, T. Wilborg-Hagen, M. Guttormsen, A.C. Larsen, H.T. Nyhus, S. Siem, N.U.H. Syed, F. Hanappe, V. Bouchat, P. Jones, R. Borcea, G. Drafta, D. Pantelica, F. Rotaru, N. Scintee, V. Zamfir, A. Görgen, Ch. Theisen, A. Minkova, T. Kutsarova, Ch. Stodel, S. Mullins, E. Lieder, S. Antalic, Š. Šàro, and M. Venhart. Spectroscopy of transfermium nuclei using the GABRIELA setup at the focal plane of the VASSILISSA recoil separator. In JINR, editor, *International Symposium on exotic nuclei*, FLNR, Dubna, 2009. FLNR, American Institute of Physics.
- [44] K. Hauschild, A.V. Yeremin, O. Dorvaux, A. Lopez-Martens, A.V. Belozerov, CH. Briançon, M.L. Chelnokov, V.I. Chepigin, S.A. Garcia-Santamiria, V.A. Gorshkov F. Hanappe, A.P. Kabachenko andA. Korichi, O.N. Malyshev, Yu. Ts. Oganessian, A.G. Popeko, N. rowley, A.V. Shutov, L. Stuttgé, and A.I. Svirikhin. GABRIELA : A new detector array for γ-ray and conversion electron spectroscopy of transfermium elements. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, 560 :388–394, February 2006.
- [45] A.V. Isaev, V.I. Chepigin, M.L. Chelnokov, A.N. Kuznetzov, O.N. Malyshev, A.G. Popeko, A.I. Svirikhin, A.V. Yeremin, K. Hauschild, A. Lopez-Martens, and O. Dorvaux. The use of double sided silicon detector at the focal plane of VASSILISSA separator for registration of conversion electrons. In Yu. E. Penionzhkevich and S.M. Lukyanov, editors, *International Symposium on Exotic Nuclei*, page 535, Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, 141980 Dubna, Russia, 2009. JINR, AIP Proceedings.
- [46] M.Lamberti. Simulations pour le plan focal de S³. Rapport de stage M1, 2010.
- [47] H. Koivisto, P. Heikkinen, V. Hänninen, A. Lassila, H. leinonen, V. Nieminen, J. Pakarinen, K. Ranttila, J. Ärje, and E. Liukkonen. The first results with the new jyfl 14 ghz ecr ion source. *Nucl. Inst.* and Meth. in Nucl. Phys. Res. B, 174:379–384, Novembre 2001.
- [48] H.A. Koivisto, E. Liukkonen, M. Moisio, V. Nieminen, and P.A. Suominen. The modifications of the JYFL 6.4 GHz ECR ion source. *Nukleonika*, 48(Suppl. 2):S81–S84, 2003.

- [49] D.Seddon. 3D rendering.
- [50] Korten W. In-beam spectroscopy of exotic nuclei using Recoil-Decay Tagging. Nucl. Phys. A, 654 :677, 1999.
- [51] G. F. Knoll. Radiation Detection and Measurement, chapter 12, page 437. Wiley, 2000.
- [52] L. Arnold, R. Baumann, E. Chambit, M. Filliger, C. Fuchs, C. Kieber, D. Klein, P. Medina, C. Parisel, M. Richer, C. Santos, and C. Weber. TNT digital pulse processor. *IEEE Trans. on Nucl. Sci.*, 53(3):723, Juin 2006.
- [53] H. Kettunen. *Spectroscopy of Heavy Nuclei beyond the Proton Drip Line*. PhD thesis, University of Jyväskylä, P.O. Box 35 (YFL) FI-40014 University of Jyväskylä, Finland, 2003.
- [54] N. Bohr. Velocity-range relation for fission fragments. *Physical Review*, 59:270, Février 1941.
- [55] R.D. Page et al. Technical report. Technical report, Nuclear Physics Group, Daresbury.
- [56] P. Rahkila. Grain a Java data analysis system for Total Data Readout. *Nucl. Inst. and Meth. in Nucl. Phys. Res. A*, 595 :637–642, 2008.
- [57] A.V. Yeremin, D.D. Bogdanov, V.I. Chepigin, V.A. Gorshkov, A.P. Kabachenko, O.N. Malyshev, A.G. Popeko, R.N. Sagaidak, G.M. Ter-Akopian, and A.Yu. Lavrentjev. The electrostatic separator VAS-SILISSA performance and experimental results. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B*, 126(1-4) :329 333, 1997. International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to Their Applications.
- [58] O. N. Malyshev, M. L. Chelnokov, V. I. Chepigin, V. A. Gorshkov, S. Hofmann, A. P. Kabachenko, M. Keters, A. Yu. Lavrentev, A. G. Popeko, J. Rohach, R. N. Sagaidak, S. Sharo, and A. V. Yeremin. Modernization of the detector system at the recoil separator VASSILISSA. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, 440(1):86 – 94, 2000.
- [59] O. N. Malyshev, A. V. Yeremin, A. G. Popeko, A. V. Belozerov, M. L. Chelnokov, V. I. Chepigin, V. A. Gorshkov, S. Hofmann, M. G. Itkis, A. P. Kabachenko, Yu. Ts. Oganessian, R. N. Sagaidak, S. S·ro, A. V. Shutov, and A. I. Svirikhin. In-beam separation and mass determination of superheavy nuclei. part ii. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, 516(2-3) :529 538, 2004.
- [60] A.G. Popeko, O.N. Malyshev, R.N. Sagaidak, and A.V. Yeremin. Monte Carlo simulation of ion trajectories in the kinematic recoil separator VASSILISSA. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 126(1-4) :294 – 296, 1997. International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to Their Applications.
- [61] A. G. Popeko, O. N. Malyshev, A. V. Yeremin, and S. Hofmann. Monte-Carlo optimization of the transmission of recoil separators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 427(1-2):166 – 169, 1999.
- [62] Trine Van Hagen. Report on the analysis of the decay of the long lived isomer in ²⁵³No (2009 GA-BRIELA campaign). Technical report, University of Oslo, 2009.
- [63] K Hauschild, A. Lopez-Martens, O. Dorvaux, J. Piot, D. Curien, B. Gall, A.V. Yeremin, M.L. Chelnokov, V.I. Chepigin, A.V. Isaev, I.N. Izosimov, A.P. Kabachenko, D.E. Katrasev, A.N. Kuznetsov, O.N. Malyshev, A.G. Popeko, E.A. Sokol, A.I. Svirikhin, T. Wiborg-Hagen, H.T Nyhus, S. Siem,

G. Drafta, D. Pantelica, N. Scintee, A. Görgen, T. Kutsarova, S. Mullins, and Š. Šaro. Spectroscopy of transfermium nuclei using the GABRIELA setup at the focal plane of the VASSILISSA recoils separator. In AIP Conference series, editor, *Tours symposium on Nuclear and Astrophysics VII*, Kobe, 2009. Department of Physics, Konan University, AIP.

- [64] A.N. Andreyev and V.V. Basherov, D.D. Bogdanov, V.I. Chepigin, A.P. Kabachenko, O.N. Malyshev, J. Rohàč, Š. Šàro, A.V. Taranenko, G.M. Ter-Akopian, and A.V Yeremin. Large area high-efficiency time-of-flight system for detection of low energy heavy evaporation residues at the electrostatic separator VASSILISSA. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, 364 :342–348, March 1995.
- [65] A. Yeremin, O. Malyshev, A. Popeko, A. Lopez-Martens, K. Hauschild, O. Dorvaux, Š. Šàro, and D. Pantelika. Development of the experimental setup dedicated for alpha, gamma and electron spectroscopy of heavy nuclei at FLNR JINR. In YU. E. Penionzhkevich and S.M. Lukyanov, editors, *International Symposium on Exotic Nuclei*, page 525, 14980 Dubna, Russia, 2009. FLNR, JINR, AIP Proceedings.
- [66] V.T. Jordanov and G.F. Knoll. Digital synthesis of pulse shapes in real time for high resolution radiation spectroscopy. *Nucl. Inst. and Meth. in Nucl. Phys. Res. A*, 345 :337–345, Janvier 1994.
- [67] C.A. Dritsa. Evaluation des performances d'un carte d'électronique numérique de nouvelle génération. Master's thesis, Université Louis Pasteur/CNRS-IReS, 23 rue du Loess, 67037 Strasbourg, 2005.
- [68] M. Richer and C. Santos. Tnt2 digital pulse processor functionnalities and tuc control software. Manuel, IPCH, 23 rue du Loess, 67037 Strasbourg, 2007.
- [69] M. Richer. TNT USB Controler, http://www.iphc.cnrs.fr/-tuc-.html. Site Web IPHC.
- [70] M. Richer. DTUC, http://www.iphc.cnrs.fr/-dtuc-.html. Site Web IPHC.
- [71] I.H. Lazarus, D.E. Appelbe, P.A. Butler, P.J. Coleman-Smith, J.R. Cresswell, S.J. Freeman, R.-D. Herzberg, I. Hibbert, D.T. Toss, S.C. Letts, R.D. Page, V.F.E. Pucknell, P.H. Regan, J. Sampson, J. Simpson, J. Tornhill, and R. Wadsworth. The GREAT triggerless total data readout method. *IEEE Trans. on Nucl. Sci.*, 48(3):567, juin 2001.
- [72] Q.T.Doan, D.Curien, O.Stezowski, J.Dudek, K.Mazurek, A.Gozdz, J.Piot, G.Duchene, B.Gall, H.Molique, M.Richet, P.Medina, D.Guinet, N.Redon, Ch.Schmitt, P.Jones, P.Peura, S.Ketelhut, M.Nyman, U.Jakobsson, P.T.Greenlees, R.Julin, S.Juutinen, P.Rahkila, A.Maj, K.Zuber, P.Bednarczyk, N.Schunck, J.Dobaczewski, A.Astier, I.Deloncle, D.Verney, G.de Angelis, and J.Gerl. Search for fingerprints of tetrahedral symetry in ¹⁵⁶Gd. Acta Phys. Pol. B, 40(3) :725, 2009.
- [73] J. Piot et al. To be published.
- [74] Xilinx. Virtex II FPGA website. URL.
- [75] B.J.-P. Gall et al. TNT2 : a step in signal processing. In JYFL MidWinter Workshop, 2005.
- [76] H.B. Jeppesen, I. Dragojevic, R.M. Clark, K.E. Gregorich, M.N. Ali, J.M. Allmond, C.W. Beausang, D.L. Bleuel, M. Cromaz, M.A. Delepanque, P.A. Ellison, P. Fallon, M.A. Garcia, J.M. Gates, J.P. Greene, S. Gros, I.Y. Lee, H.L. Liu, A.O. Machiavelli, S.L. Nelson, H. Nitsche, J.R. Pavan, L. Stavetra, F.S. Stephens, M. Wiedeking, R. Wyss, and F.R. Xu. Multi-quasiparticle states in ²⁵⁶Rf. *Phys. Rev. C*, 79:031303, 2009.

- [77] A.P. Robinson. To be published.
- [78] I. Dragojevic, K.E. Gregorich, Ch. E. Düllmann, M.A. Garcia, J.M. Gates, S.L. Nelson, L. Stavestra, R. Sudowe, and H. Nitsche. Influence of projectile neutron numberr in the ²⁰⁸Pb(⁴⁸Ti,n)²⁵⁵Rf and ²⁰⁸Pb(⁵⁰Ti,n)²⁵⁷Rf reactions. *Phys. Rev. C*, 78 :024605, 2008.
- [79] R. Lang, J. Bossler, R. Iannucci, and K. Tinschert. Development of a new high temperature oven for ECRis. Technical report, Gesellschaft f
 ür Schwerionenforschung mbH, 1900.
- [80] H. Koivisto, J. Ärje, and M. Nurmia. Metal ion beams from an ECR ion source using volatile compounds. *Nucl. Inst. and Meth. in Nucl. Phys. Res. B*, 94(3):291–296, Novembre 1994.
- [81] M. Farley, P. Rose, and G. Ryding. *The Physics and Technology of Ion Sources*, chapter 8, page 133. Wiley-VCH, 2004.
- [82] H.J. Maier. Preparation of rolled Ti foils starting with TiO₂. *Nucl. Inst. and Meth*, 167 :167–170, 1979.
- [83] G. Wilkinson and J.M. Birmingham. Bis-cyclopentadienyl compounds of Ti, Zr, V, Nb and Ta. Journal of the American Chemical Society, 76(17) :4281–4284, 1954. cited By (since 1996) 138.
- [84] P.T. Greenlees, D. Ackermann, L.-L. Andersson, P. A. Butler, D. M. Cox, D. Curien, P. Chowdhury, F. Dechery, O. Dorvaux, A. Drouart, G. Duchêne, B.J.-P. Gall, T. Grahn, K. Hauschild, G. Henning, A. Herzan, R.-D. Herzberg, F. P. Heßberger, U. Jakobsson, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, F. Khalfallah, T. L. Khoo, F. G. Kondev, W. Korten, M. Leino, A. Lopez-Martens, R. Lozeva, J. Ljungvall, P. Nieminen and P. Papadakis, E. Parr, P. Peura, M. Piiparinen, J. Piot, P. Rahkila, P. Reiter, S. Rinta-Antila, M. Rousseau, J. Rubert, P. Ruotsalainen, M. Sandzelius, J. Sarèn, C. Scholey, B. Sulignano, J. Sorri, Ch. Theisen, and J. Uusitalo. Proposal JR83.
- [85] F. P. Heßberger, G. Münzenberg, S. Hofmann, W. Reisdorf, K.H. Schmidt, H.J. Schött, P. Armbruster, R. Hingmann, B. Thuma, and D. Vermeulen. Study of evaporation residues produced in reactions of ^{207,208}Pb with ⁵⁰Ti. Z. Phys. A, 321 :317, 1985.
- [86] F.P. Heßberger, S. Hofmann, V. Ninov, P. Armbruster, H. FLoger, G. Münzenberg, H.J. Schött, A.G. Popeko, A.V. Yeremin, A.N. Andreyev, and Š. Šàro. Spontaneous fission and alpha-decay properties of neutron deficient isotopoes ^{257–253}104 and ²⁵⁸106. Z. Phys. A, 359 :415, 1997.
- [87] Yu.Ts. Oganessian, A.G. Demin, A.S. Iljinov, S.P. Tretyakova, A.A. Pleve, Yu.E. Penionzhkevich, M.P. Ivanov, and Yu.P. Tretyakov. Experiments on the synthesis of neutron-deficient kurchatovium isotopes in reactions induced by ⁵⁰Ti ions. *Nucl. Phys. A*, 239(1):157 – 171, 1975.
- [88] D. Wutte, S. Abbott, M.A. Leitner, and C.M. Lyneis. High intensity metal ion beam production with ECR ion sources at the lawrence berkeley national laboratory. *Rev. Sci. Instrum*, 73:521, 2002.
- [89] H. Koivisto, J. Ärje, R. Seppälä, and M. Nurmia. Production of titanium ion beams in an ECR ion source. *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B*, 187 :111, 2002.
- [90] J. Ishikawa. The Physics and technology of ion sources, chapter 14, page 291. Wiley, 2004.
- [91] The Radiochemistry Society. Atomic weights and atomic compositions for the elements. http://www.radiochemistry.org/periodictable/weights.html.
- [92] David R. Lide, editor. CRC Handbook of Chemistry and Physics. CRC Press Inc., 90 edition, 2009.

- [93] K.J. Ross and B. Sonntag. High temperature metal atom beam sources. *Review of Scientific Instru*ments, 66(9) :4409, Septembre 1995.
- [94] D. Leitner and C. Lyneis. *The Physics and Technology of Ion Sources*, chapter 11, page 203. Wiley VCH., 2004.
- [95] H. Koivisto. Communication privée.
- [96] F.D. Richardson and J.H.E. Jeffes. Jour. Iron Steel. Inst., 160:261, 1948.
- [97] G.N. Flerov, S.M Polikanov, V.L. Mikheev, V.I. Ilyushchenko, M.B. Miller, and V.A. Shchegolev. Synthesis of isotopes of fermium with mass number 247 and 246. *Atomic Energy*, 22(5):342, Novembre 1967.
- [98] N. Nurmia, T. Sikkeland, R. Silva, and A. Ghiorso. Spontaneous fission of light fermium isotopes : New nuclides ²⁴⁴Fm and ²⁴⁵Fm. *Phys. Lett. B*, 26(2) :78–80, décembre 1967.
- [99] G. Münzenberg, S. Hofmann, W. Faust, F.P. Heßberger, W. Reisdorf, K.-H. Schmidt, T. Kitahara, and P. Armbruster. The new isotopes ²⁴⁷Md, ²⁴³Fm, ²³⁹Cf and investigation of the evaporation residues from fusion of ²⁰⁶Pb, ²⁰⁸Pb and ²⁰⁹Bi with ⁴⁰Ar. *Zeit. für Phys. A*, 302 :7–14, 1981.
- [100] S. Siem, P. Reiter, T. L. Khoo, T. Lauritsen, P.-H Heenen, M. P. Carpenter, I. Ahmad, H. Amro, I. J. Calderin, T. Døssing, T. Duguet, S. M. Fischer, U. Garg, D. Gassmann, G. Hackman, F. Hannachi, K. Hauschild, R. V. F. Janssens, B. Kharraja, A. Korichi, I-Y. Lee, A. Lopez-Martens, A. O. Macchia-velli, E. F. Moore, D. Nisius, and C. Schück. Excitation energies and spins of the yrast superdeformed band in ¹⁹¹Hg. Phys. Rev. C, 70(1) :014303, Jul 2004.
- [101] J. A. Becker, E. A. Henry, A. Kuhnert, T. F. Wang, S. W. Yates, R. M. Diamond, F. S. Stephens, J. E. Draper, W. Korten, M. A. Deleplanque, A. O. Macchiavelli, F. Azaiez, W. H. Kelly, J. A. Cizewski, and M. J. Brinkman. Level spin for superdeformed nuclei near A=194. *Phys. Rev. C*, 46(3):889–903, Sep 1992.
- [102] T. Kibédi, T.W. Burrows, M.B. Trzhaskovskaya, P.M. Davidson, and C.W. Nestor Jr. Evaluation of theoretical conversion coefficients using bricc. *Nucl. Inst. and Meth. in Nucl. Phys. Res. A*, 589 :202– 229, mars 2008.
- [103] R.R. Chasman, I. Ahmad, A.M. Firedman, and J.R. Erskine. Survey of single-particle states in the mass region A>228. *RMP*, 49(4):833–891, octobre 1977.
- [104] J. Piot, B.J-P. Gall, O. Dorvaux, P.T. Greenlees, L.L. Andersson, D.M. Cox, F. Dechery, K. Hauschild, G. Henning, R.-D. Herzberg, F. Heßberger, U. Jakobsson, R. Julin, J. Ljungvall, P. Jones, S. Ketelhut, T.-L. Khoo, M. Leino, A. Lopez-Martens, P. Papadakis, E. Parr, P. Peura, P. Rahkila, P. Ruotsalainen, M. Sandzelius, J. Sarén, C. Scholey, D. Sewernyniak, J. Sorri, B. Sulignano, C. Theisen, and J. Uusitalo. Investigation of ²⁴⁶Fm : in-beam spectroscopy at the limits. In AIP Proceedings, editor, *FINUSTAR 3*, 2010.
- [105] J. Piot et al. To be published.
- [106] M. Venhart, F.P. Heßberger, S. Hofman, D. Ackermann, S. Antalic, C. Gray-Jones, P.T. Greenlees, S. Heinz, R.-D. Herzberg, S. Ketelhut, B. Kindler, I. Kojouharov, M. Leino, B. Lommel, R. Mann, P. Papadakis, D. Rostron, D. Rudolf, Š. Šaro, and B. Sulignano. Decay studies of ²⁴⁶Fm at ship. février 2009.

- [107] A. Artna-Cohen. Nuclear data sheets for A = 246. NDS, 84(DS980018) :901–938, Juillet 1998.
- [108] F. Bouleaux. Spectroscopie de noyaux transuraniens : sur la trace des orbitales quantiques des noyaux super-lourds. Master's thesis, IReS/Université Louis Pasteur, Strasbourg, 2003.
- [109] J. Rubert. Communication privée.
- [110] F.P. Heßberger. Communication privée.
- [111] H.-G. Clerc, J.G. Keller, C.-C. Sahm, K.-H. Schmidt, H. Schulte, and D. Vermeulen. Fusion-fission and neutron-evaporation-residue cross-sections in ⁴⁰Ar- and ⁵⁰Ti-induced fusion reactions. *Nucl. Phys. A*, 419 :571–588, décembre 1984.
- [112] G.F. Knoll. Radiation Detection and Measurement, chapter 11, page 393. Wiley, 1999.
- [113] Nat. Nucl. Data Cent. Nudat. http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/chartNuc.jsp.
- [114] J.M. Nitschke, R.E. Leber, N.J. Nurmia, and A. Ghiorso. Observations in the reaction of two magic nuclei : ²⁰⁸Pb and ⁴⁸Ca. *Nucl. Phys. A*, 313(2) :236–250, 1979.
- [115] S.M. Harris. Higher order corrections to the cranking model. *Phys. Rev.*, 138(3B) :B509, décembre 1965.

Résumé

La région des noyaux transfermium (Z = 100 à 104) est la dernière région de la charte nucléaire accessible en spectroscopie. Elle donne ainsi les ultimes points d'ancrage pour les modèles. Elle se situe en outre sur les chaînes de décroisance α des noyaux superlourds.

Cette région se situe à la limite des capacité de mesures spectroscopiques actuelles. Elle demande donc des développements technologiques pour passer ces limites.

Ma thèse porte sur différents aspects de la spectroscopie des noyaux de la région transfermium. J'ai participé au développement des cartes d'acquisition numériques TNT2D pour détecteurs germanium. J'ai validé leur utilisation sur le spectromètre γ JUROGAM et quantifié le gain apporté par rapport à un système d'acquisition analogique. Ces tests entraient dans la préparation de l'expérience visant l'étude spectroscopique prompte du noyau ²⁵⁶Rf. Cela m'a également amené à travailler au développement d'un faisceau de ⁵⁰Ti isotopique. Dans cette optique, j'ai étudié et testé l'utilisation de composés organométalliques du titane compatible avec la technique MIVOC. J'ai en parallèle étudié l'utilisation de pastilles de titane métallique ou de dioxyde de titane au moyen d'un four à induction nouvellement développé à l'Université de Jyväskylä. Ces développements nous permettront prochainement d'effectuer l'étude en spectroscopie prompte du ²⁵⁶Rf.

En parallèle à ces développements, j'ai eu la chance d'étudier en spectroscopie prompte le noyau ²⁴⁶Fm à l'Université de Jyväskylä. Les mesures ont permis de mettre en évidence la bande rotationnelle basée sur le niveau fondamental du ²⁴⁶Fm. Cette bande a été observée jusqu'au niveau 16⁺ et présente un comportement assez similaire aux isotopes pair-pairs voisins hormis le haut de la bande pour lequel une statistique plus forte serait nécessaire pour conclure.

Abstract

The region of transfermium nuclei (Z = 100 to 104) is the last region of the nuclides chart to be accessible to spectroscopic measurements. It therefore provides the ultimate anchor points for nuclear models. This region also lies on the path of the α -decay chains of the super-heavy elements.

This region represents the limit of today's spectroscopic capabilities. It therefore requires technological developments in order to overcome these limits.

My thesis focuses on various aspects of the spectroscopy of transfermium nuclei. I took part in the development of the TNT2D digital acquisition cards for germanium detectors. I validated their use on the γ -ray spectrometer JUROGAM during an in-beam experiment and demonstrated the gain compared to an analogue acquisition system. These tests were part of the developments needed to secure a study of the prompt spectroscopy of ²⁵⁶Rf. The preparation of this experiment also lead me to work on the development of a ⁵⁰Ti beam. For that purpose, I studied and tested the use of titanium organo-metallic compounds compatible with the MIVOC technique. In parallel, I studied the use of metallic and oxyde titanium pellets with an inductive oven newly developed at the University of Jyväskylä.

In addition to these developments, I had the opportunity to study the in-beam prompt spectroscopy of 246Fm at the University of Jyväskylä. The measurements yielded a rotationnal band built on the ground state of 246Fm. This band has been observed up to the level 16^+ and shows a behaviour quite similar to the neighbouring even-even isotopes, except for the top of the band for which a wider statistics is necessary in order to conclude.