



**HAL**  
open science

**De la production d'un faisceau isotopique de  $^{50}\text{Ti}$  à la première spectroscopie prompte d'un noyau superlourd, le  $^{256}\text{Rf}$  ( $Z=104$ )**

Jérôme Rubert

► **To cite this version:**

Jérôme Rubert. De la production d'un faisceau isotopique de  $^{50}\text{Ti}$  à la première spectroscopie prompte d'un noyau superlourd, le  $^{256}\text{Rf}$  ( $Z=104$ ). Physique [physics]. Université de Strasbourg, 2013. Français. NNT : 2013STRAE043 . tel-01260960

**HAL Id: tel-01260960**

**<https://theses.hal.science/tel-01260960>**

Submitted on 22 Jan 2016

**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.

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

- 
- 
- 
- 
- 
- 

# Thèse

# Thèse

Discipline : Physique subatomique  
par Jérôme RUBERT

De la production d'un faisceau isotopique  
de  $^{50}\text{Ti}$  à la première spectroscopie prompte  
d'un noyau superlourd, le  $^{256}\text{Rf}$  ( $Z=104$ )

Soutenue publiquement le 24 juin 2013 ■

## Membres du jury ■

<b>Jerzy DUDEK</b> , Professeur, IPHC - Université de Strasbourg	<b>Président</b>
<b>Dieter ACKERMANN</b> , Directeur de Recherche, GSI Darmstadt	<b>Rapporteur</b>
<b>Alain ASTIER</b> , Chargé de Recherche, CSNSM Orsay	<b>Rapporteur</b>
<b>Zouhair ASFARI</b> , Ingénieur de Recherche, IPHC Strasbourg	<b>Examineur</b>
<b>Roderick CLARK</b> , Directeur de Recherche, Lawrence Berkeley Nat. Lab.	<b>Examineur</b>
<b>Benoît GALL</b> , Professeur, IPHC - Université de Strasbourg	<b>Directeur</b>
<b>Olivier DORVAUX</b> , Maître de Conférences, IPHC - Univ. de Strasbourg	<b>Co-directeur</b>



# Table des matières

Liste de figures	9
Liste des tableaux	15
Remerciements	17
Introduction	19
<b>I Contexte</b>	<b>21</b>
<b>1 Les noyaux superlourds</b>	<b>23</b>
1.0 Summary	23
1.1 Généralités	26
1.1.1 Historique	26
1.1.2 L'étude de la carte des nucléides	27
1.2 Les éléments les plus lourds	29
1.2.1 Découverte des éléments les plus lourds	29
1.2.2 Les éléments les plus lourds dans la nature	31
1.2.2.1 Nucléosynthèse des éléments les plus lourds	31
1.2.2.2 Recherche des éléments les plus lourds dans la nature	32
1.3 Définition d'un noyau superlourd	32
1.4 Prédications de l'îlot de stabilité superlourd	36
1.5 Intérêt de l'étude des noyaux transfermia	39
<b>2 Physique des noyaux transfermia</b>	<b>45</b>
2.0 Summary	46
2.1 Réaction de fusion-évaporation	49
2.1.1 Introduction	49
2.1.2 Voies de réactions possibles	50
2.1.3 Désexcitation d'un noyau composé	51
2.1.4 Energies et section efficace	53
2.1.5 Fusions froide et chaude	56
2.2 Les modes de désexcitation des noyaux transfermia	58
2.2.1 Le rayonnement $\gamma$	58
2.2.2 La conversion interne	59
2.3 Les modes de décroissance des noyaux transfermia	62
2.3.1 La décroissance $\alpha$	63
2.3.2 La décroissance $\beta$	63
2.3.3 Fission spontanée	64
2.4 L'étude de la collectivité	65

2.4.1	Déformation d'un noyau . . . . .	65
2.4.2	L'excitation d'un noyau de déformation quadrupolaire . . . . .	66
2.4.3	Rotation collective . . . . .	68
2.4.3.1	Approche vectorielle . . . . .	68
2.4.3.2	Cas statique . . . . .	69
2.4.3.3	Moments d'inertie cinématique et dynamique . . . . .	71
2.4.3.4	Méthode de Harris . . . . .	72
2.5	L'isomérisme de haut- $K$ . . . . .	74
2.5.1	Différents types d'isomérisme . . . . .	74
2.5.2	Etats de quasiparticules . . . . .	76
2.5.3	Les règles de Gallagher . . . . .	76
2.5.4	La notion d'empêchement . . . . .	77
2.5.5	L'isomérisme $K$ dans la région des noyaux superlourds . . . . .	78
2.5.6	Cas des noyaux transfermia . . . . .	79
<b>3</b>	<b>Méthodes expérimentales et instrumentations</b>	<b>81</b>
3.0	Summary . . . . .	81
3.1	Techniques expérimentales . . . . .	85
3.1.1	Spectroscopie retardée . . . . .	86
3.1.2	Spectroscopie prompte . . . . .	89
3.2	Description du dispositif de détection . . . . .	91
3.2.1	Le multidétecteur $\gamma$ JUROGAM II . . . . .	92
3.2.2	Le séparateur à gaz RITU . . . . .	95
3.2.3	Le système de détection au plan focal GREAT . . . . .	99
3.2.3.1	Le compteur proportionnel à multifils MWPC . . . . .	101
3.2.3.2	Le détecteur d'implantation DSSD . . . . .	102
3.2.3.3	Le tunnel de diodes PIN . . . . .	102
3.2.3.4	Le détecteur au germanium de géométrie planeaire . . . . .	103
3.2.3.5	Les détecteurs au germanium de géométrie trèfle . . . . .	103
3.3	Acquisition et traitements des données . . . . .	104
3.3.1	L'électronique d'acquisition . . . . .	104
3.3.2	Méthode d'acquisition des données . . . . .	104
3.3.3	Logiciel d'analyse . . . . .	105
<b>II</b>	<b>Etude spectroscopique du <math>^{256}\text{Rf}</math></b>	<b>107</b>
<b>4</b>	<b>Contexte de l'étude du <math>^{256}\text{Rf}</math></b>	<b>109</b>
4.0	Summary . . . . .	109
4.1	Motivations physiques . . . . .	111
4.2	Etat de l'art du noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	113
4.2.1	Etudes de la décroissance . . . . .	115
4.2.2	Mesures de section efficace de production . . . . .	115
4.2.3	Recherches d'états isomériques . . . . .	116

4.2.3.1	Recherche d'états isomériques au LBNL	116
4.2.3.2	Recherche d'états isomériques au ANL	121
4.3	Développements techniques	123
4.4	Energie, cinématique et conditions expérimentales	125
4.4.1	Chaleurs de réactions	125
4.4.2	Calculs énergétiques	126
4.4.3	Barrière de fission	127
4.4.4	Temps de vol noyau de recul	128
4.4.5	Section efficace et taux de production	129
4.4.6	Comparatif des conditions expérimentales	130
<b>5</b>	<b>Spectroscopie <math>\gamma</math> prompte du <math>^{256}\text{Rf}</math></b>	<b>131</b>
5.0	Summary	132
5.1	Conditions expérimentales	135
5.1.1	Faisceau et cible	135
5.1.2	Réglages de l'instrumentation de détection	136
5.1.2.1	JUROGAM II	138
5.1.2.2	RITU	139
5.1.2.3	GREAT - DSSD	140
5.1.2.4	GREAT - Diodes PIN	140
5.1.2.5	GREAT - Détecteurs au germanium au plan focal	140
5.2	Sélection des noyaux d'intérêt	142
5.3	Caractérisation des noyaux d'intérêt	146
5.3.1	Mesure de la section efficace de production	146
5.3.2	Mesure du temps de demi-vie	147
5.4	Mise en évidence de la bande de rotation	148
5.4.1	Sélection par méthode de Recoil-Fission Tagging	149
5.4.1.1	Première approche	149
5.4.1.2	Utilisation du temps de vol	150
5.4.2	Sélection par méthode de Recoil Tagging	153
5.5	Discussions sur la bande de rotation	155
5.5.1	Effet des sélections sur le temps de vol	155
5.5.2	Effet de la statistique	156
5.5.3	Effet du fold	156
5.5.4	Intensités relatives	159
5.5.5	Intensités absolues	161
5.6	Caractérisation de la bande de rotation	163
5.6.1	Définition des spins des transitions	163
5.6.2	Moments d'inertie	165
5.6.3	Energies des premiers états excités	166
5.7	Interprétation physique	168
5.7.1	Introduction	168
5.7.2	Moments d'inertie cinématiques	170
5.7.3	Moments d'inertie dynamiques	172

<b>6</b>	<b>Spectroscopie retardée du <math>^{256}\text{Rf}</math></b>	<b>175</b>
6.0	Summary . . . . .	176
6.1	Identification des événements isomériques . . . . .	179
6.1.1	Sélections des événements isomériques . . . . .	179
6.1.2	Distribution en énergie . . . . .	180
6.1.3	Distribution de la différence de temps . . . . .	182
6.2	Spectroscopie de rayonnements $\gamma$ associés . . . . .	183
6.2.1	Spectroscopie des rayonnements $\gamma$ retardés - sélection isomérique . . . . .	183
6.2.2	Spectroscopie des rayonnements $\gamma$ retardés - sélection large . . . . .	184
6.2.3	Spectroscopie des rayonnements $\gamma$ prompts associés . . . . .	186
6.3	Mise en évidence et caractérisation des états isomériques . . . . .	188
6.3.1	Cascade d'états isomériques . . . . .	188
6.3.2	Temps de demi-vie . . . . .	190
6.3.3	Rapports isomériques . . . . .	191
6.3.3.1	Effet du temps mort sur la détection . . . . .	191
6.3.3.2	Probabilités de détection . . . . .	193
6.3.3.3	Calculs du peuplement des états - première approche . . . . .	194
6.3.3.4	Calculs du peuplement des états - notion de coupures . . . . .	196
6.3.3.5	Calculs du peuplement des états - seuils en énergie . . . . .	197
6.3.4	Temps de demi-vie équivalent . . . . .	198
6.4	Assignement des états isomériques . . . . .	199
6.4.1	Introduction . . . . .	199
6.4.2	Discussion sur les rayonnements $\gamma$ observés . . . . .	201
6.4.2.1	Discussion sur la transition de 900 keV . . . . .	201
6.4.2.2	Discussion sur la transition de 683 keV . . . . .	202
6.4.2.3	Discussion sur les transitions de basse énergie . . . . .	203
6.4.3	Simulation de spectres d'électrons . . . . .	204
6.4.4	Discussion de l'assignement des isomères (1) & (2) . . . . .	206
6.4.5	Particules individuelles expérimentales . . . . .	211
6.4.6	Approches théoriques . . . . .	215
6.4.6.1	Influence du paramètre $\beta_6$ . . . . .	215
6.4.6.2	Calcul des états de multi-quasiparticules . . . . .	216
6.4.7	Discussion de l'assignement de l'isomère (3) . . . . .	219
6.5	Proposition d'un schéma de niveaux pour le noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	220
<b>III</b>	<b>Production de faisceau</b>	<b>223</b>
<b>7</b>	<b>Production d'un faisceau isotopique intense d'ions de <math>^{50}\text{Ti}</math></b>	<b>225</b>
7.0	Summary . . . . .	226
7.1	Contexte . . . . .	230
7.2	Méthodes principales de production d'un faisceau . . . . .	232
7.2.1	Sputtering . . . . .	232
7.2.2	Penning Ion Gauge . . . . .	233

---

7.2.3	Four à induction . . . . .	233
7.2.4	MIVOC . . . . .	234
7.3	Résumé des résultats antérieurs . . . . .	237
7.4	Etude détaillée du $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ . . . . .	242
7.4.1	Etude de la conservation . . . . .	242
7.4.2	Tests de concentration . . . . .	244
7.4.3	Tests de l'influence du vide . . . . .	245
7.4.3.1	Test du composé sec . . . . .	246
7.4.3.2	Test du composé sous solvant . . . . .	247
7.4.3.3	Test du composé protégé sous liquide ionique . . . . .	248
7.4.4	Etude de l'évolution temporelle sur spectromètre de masse . . . . .	250
7.4.5	Discussion . . . . .	250
7.5	Etude comparative de différents composés organométalliques . . . . .	252
7.5.1	Etude du $\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$ . . . . .	253
7.5.2	Etude du $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ . . . . .	253
7.5.3	Etude complémentaire du $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ . . . . .	256
7.5.4	Etude du $\text{Cp}^*_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ . . . . .	257
7.5.5	Etude du $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$ . . . . .	258
7.5.6	Choix du composé . . . . .	259
7.6	Etude approfondie du $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ . . . . .	260
7.6.1	Synthèse à partir de $\text{TiCl}_4$ . . . . .	260
7.6.2	Tests de sensibilité . . . . .	261
7.6.3	Conditionnement . . . . .	263
7.7	Dispositif de production de faisceau au JYFL . . . . .	264
7.7.1	Cyclotron K130 . . . . .	265
7.7.2	ECRIS1 . . . . .	265
7.7.3	ECRIS2 . . . . .	266
7.8	Faisceaux de titane intense au JYFL . . . . .	267
7.8.1	Faisceau de titane naturel . . . . .	267
7.8.2	Faisceau de titane enrichi . . . . .	269
7.8.2.1	Résultats avec ECRIS1 . . . . .	271
7.8.2.2	Résultats avec ECRIS2 . . . . .	272
	<b>Conclusions et Perspectives</b> . . . . .	<b>275</b>
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	<b>279</b>
	<b>Résumé</b> . . . . .	<b>308</b>





# Table des figures

1.1	Carte des nucléides, classés en fonction de leur nombre de protons et de neutrons. . . . .	28
1.2	Carte des nucléides des noyaux pair-pair connus avec les drip-lines proton et neutron. . . . .	28
1.3	Représentation pédagogique des énergies potentielles de noyaux très lourds permettant d'observer les effets des couches nucléaires sur la stabilité de ces noyaux. . . . .	35
1.4	Comparaison de l'emplacement de l'îlot de stabilité superlourd entre différentes modélisations de type H.F.B., R.M.F. et W.S.. . . . .	38
1.5	Systématique des sections efficaces de production maximales pour chaque isotope observé pour les éléments $Z \geq 96$ . . . . .	41
1.6	Schéma des orbitales des particules individuelles protons pour le noyau de $^{256}\text{Rf}$ en fonction du coefficient de déformation quadrupolaire $\beta_2$ calculé grâce au modèle "Woods-Saxon Universal". . . . .	42
1.7	Schéma des orbitales des particules individuelles neutrons pour le noyau de $^{256}\text{Rf}$ en fonction du coefficient de déformation quadrupolaire $\beta_2$ calculé grâce au modèle "Woods-Saxon Universal". . . . .	43
2.1	Différentes étapes d'une réaction de fusion-évaporation et les mécanismes de réaction en compétition. . . . .	51
2.2	Représentation pédagogique du processus de décroissance d'un noyau composé produit par réaction de fusion-évaporation. . . . .	52
2.3	Schématisation des différentes pertes d'énergie dans une cible dans le cas d'une réaction de fusion-évaporation. . . . .	55
2.4	Fonctions d'excitation des voies 1n et 2n de la réaction de fusion-évaporation entre les noyaux de $^{50}\text{Ti}$ et de $^{208}\text{Pb}$ et entre les noyaux de $^{48}\text{Ti}$ et de $^{208}\text{Pb}$ . . . . .	57
2.5	Coefficient de conversion interne, total et pour les couches K et L, pour les transitions multipolaires E2 de l'élément rutherfordium ( $Z = 104$ ) en fonction de l'énergie de la transition. . . . .	62
2.6	Types de déformations les plus couramment observées dans les noyaux atomiques. . . . .	66
2.7	Rapports d'énergies d'excitation expérimentaux entre les premiers états $4^+$ et $2^+$ pour les noyaux pairs-pairs du plomb au rutherfordium. . . . .	67
2.8	Schéma du moment angulaire nucléaire dans le cas d'un noyau possédant une déformation quadrupolaire selon l'axe de symétrie du noyau. . . . .	69
2.9	Représentations schématiques des trois types d'isomérisme dans le noyau. . . . .	75
2.10	Courbe de tendance du facteur d'empêchement tracé pour plusieurs multipolarité d'après la systématique analysée par K.E.G. Löbner. . . . .	78
2.11	Schéma de niveaux proposé pour le noyau de $^{250}\text{Fm}$ . . . . .	80

3.1	Illustration de la technique de sélection Recoil-Decay Tagging en vue de réaliser la spectroscopie prompt et retardée d'un noyau synthétisé par fusion-évaporation. . . . .	87
3.2	Spectres des rayonnements $\gamma$ prompts de noyaux de $^{246}\text{Fm}$ et de $^{252}\text{No}$ sur lesquels on observe la bande rotation basée sur l'état fondamental. . . . .	90
3.3	Représentation tridimensionnelle du système de détection du Laboratoire de l'Accélérateur de l'Université de Jyväskylä. . . . .	91
3.4	Photographie du multidétecteur à rayonnements $\gamma$ JUROGAM II. . . . .	93
3.5	Schémas du spectromètre JUROGAM II et des cristaux de germanium le composant. . . . .	94
3.6	Photographie du séparateur à gaz RITU. . . . .	96
3.7	Schéma du séparateur à gaz RITU. . . . .	96
3.8	Simulation de l'acceptance angulaire de RITU en fonction de l'épaisseur de la cible pour deux réactions de fusion-évaporation dans la région des noyaux transférables. . . . .	98
3.9	Trajectoire des ions pour un séparateur soumis au champ d'un dipôle magnétique sous vide et rempli de gaz. . . . .	98
3.10	Photographie du polyspectromètre de plan focal GREAT. . . . .	100
3.11	Schéma des différentes parties de GREAT, le polyspectromètre au plan focal de RITU. . . . .	100
3.12	Schéma de principe du compteur proportionnel multifils à gaz MWPC. . . . .	101
4.1	Evolution du temps de demi-vie partiel de fission spontanée des noyaux pairs-pairs connus du californium au seaborgium en fonction du nombre de neutrons. . . . .	112
4.2	Fonction d'excitation des voies $1n$ et $2n$ de la réaction de fusion-évaporation entre le $^{50}\text{Ti}$ et le $^{208}\text{Pb}$ . . . . .	116
4.3	Résultats de la recherche d'un état isomérique dans le noyau de $^{256}\text{Rf}$ réalisée au LBNL (première partie). . . . .	118
4.4	Résultats de la recherche d'un état isomérique dans le noyau de $^{256}\text{Rf}$ réalisée au LBNL (seconde partie). . . . .	119
4.5	Spectres en énergie des bouffées d'électrons obtenus lors de la recherche d'états isomériques dans les isotopes de $^{256}\text{Rf}$ et de $^{257}\text{Rf}$ réalisée au LBNL. . . . .	121
4.6	Résultats de la recherche d'un état isomérique dans le noyau de $^{256}\text{Rf}$ réalisée au ANL. . . . .	122
4.7	Photographie de la carte d'acquisition digitale TNT2D et comparaisons de ces performances avec celles d'une carte analogique. . . . .	125
4.8	Simulations pour la réaction de fusion-évaporation $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{256}\text{Rf}$ des distributions de l'énergie d'excitation et de recul des résidus d'évaporation. . . . .	127
5.1	Matrice de l'énergie des rayonnements $\gamma$ détectés dans la face avant du détecteur planaire contre le numéro du strip touché. . . . .	137
5.2	Courbe de l'efficacité absolue de détection de rayonnement $\gamma$ de JUROGAM II mesurée juste avant la spectroscopie du noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	139

5.3	Spectre en énergie des produits de décroissance du noyau de $^{252}\text{No}$ détectés dans le DSSD identifiés par la méthode de Recoil Tagging. . . . .	141
5.4	Courbe de l'efficacité relative de détection de rayonnement $\gamma$ des détecteurs au germanium au plan focal pour la somme des trois détecteurs trèfles et pour le détecteur planaire. . . . .	142
5.5	Matrices du temps de vol dans GREAT en fonction de l'énergie d'implantation des noyaux de recul mesurés dans la face avant du DSSD avec et sans sélection sur l'énergie de fission. . . . .	144
5.6	Distribution des dépôts d'énergie de fissions spontanées attribuées à la décroissance des noyaux de $^{256}\text{Rf}$ par la méthode de Recoil-Fission Tagging mesurées sur la face avant du détecteur d'implantation DSSD. . . . .	145
5.7	Distribution de la différence de temps entre l'implantation d'un noyau de recul et le détection d'une fission spontanée dans un même pixel du DSSD dans deux représentations différentes. . . . .	148
5.8	Spectre des rayonnements $\gamma$ prompts du noyau de $^{256}\text{Rf}$ obtenu par la méthode "Recoil-Fission Tagging". . . . .	149
5.9	Matrice du temps de vol du RITU en fonction du temps de vol dans GREAT. . . . .	150
5.10	Spectre de rayonnements $\gamma$ prompts du noyau de $^{256}\text{Rf}$ obtenu par la méthode "Recoil-Fission Tagging" avec un nettoyage des coïncidences fortuites par la matrice des temps de vol. . . . .	152
5.11	Spectre des rayonnements $\gamma$ prompts du noyau de $^{256}\text{Rf}$ obtenu par la méthode "Recoil Tagging" nettoyé des coïncidences fortuites par la matrice des temps de vol. . . . .	154
5.12	Histogramme du nombre de rayonnements $\gamma$ corrélés en fonction du temps de vol dans RITU pour quatre sélections différentes. . . . .	155
5.13	Spectres des rayonnements $\gamma$ prompts associés à des paquets de 250 événements de $^{256}\text{Rf}$ rangés dans leur ordre chronologique de détection dans le cas de la sélection Recoil-Fission Tagging . . . . .	157
5.14	Spectres des rayonnements $\gamma$ pour des folds $\gamma$ stricts de 1 à 4 dans JURO-GAM II dans le cas de la sélection Recoil-Fission Tagging. . . . .	158
5.15	Spectre des rayonnements $\gamma$ en coïncidence avec les noyaux sélectionnés par méthode Recoil-Fission Tagging dans trois cas. . . . .	160
5.16	Extrapolation par la méthode Harris du moments d'inertie cinématique expérimental de la bande de rotation basée sur l'état fondamental du $^{256}\text{Rf}$ pour plusieurs hypothèses de spin initial sur la première transition observée. . . . .	164
5.17	Valeur du $\chi^2$ réduit de l'extrapolation du moment d'inertie cinématique expérimental par la méthode de Harris en fonction de l'hypothèse sur la valeur du spin initial de la première transition observée. . . . .	165
5.18	Moments d'inertie cinématique et dynamique expérimentaux extrapolés par la méthode Harris pour la bande de rotation basée sur l'état fondamental du noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	166
5.19	Schémas de niveaux de la bande de rotation basée sur l'état fondamental des noyaux de $^{256}\text{Rf}$ et de $^{254}\text{No}$ . . . . .	169

5.20	Comparaison des moments d'inertie cinématiques et dynamiques des noyaux de $^{250}\text{Fm}$ , de $^{252}\text{No}$ , de $^{254}\text{No}$ et de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	171
6.1	Distribution en énergie des bouffées d'électrons mesurées dans le DSSD pour chaque type de sélection isomérique. . . . .	181
6.2	Distribution des différences de temps entre la détection du recul et des électrons successifs pour les trois types de sélections isomériques. . . . .	182
6.3	Spectre en énergie des rayonnements $\gamma$ détectés dans les détecteurs trèfles du plan focal en coïncidence avec les bouffées d'électrons des événements R-e-F. . . . .	184
6.4	Spectres en énergie des rayonnements $\gamma$ émis dans une fenêtre de 100 $\mu\text{s}$ après l'implantation d'un recul détectés dans les détecteurs trèfles du plan focal dans le cadre de la sélection R-F. . . . .	185
6.5	Spectre en énergie des rayonnements $\gamma$ prompts collectés par JUROGAM II associés avec les noyaux de reculs avec et sans observations de signaux d'électrons. . . . .	187
6.6	Comparaison des distributions en énergie des bouffées d'électrons mesurées dans le DSSD pour les événements R-e-F et R-e-e-F. . . . .	189
6.7	Mesure de la perte due au temps mort grâce à la distribution des différences de temps entre la détection du noyau de recul et de la bouffée d'électrons pour les événements R-e-F. . . . .	192
6.8	Schéma des probabilités conditionnelles de détection des bouffées d'électrons du noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	194
6.9	Simulation de la décroissance des états isomériques du noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	199
6.10	Illustration des deux cheminements de décroissance possibles pouvant expliquer le long temps de vie d'un état isomérique. Dans le cas A, la durée de vie est due à un $\Delta K$ fort alors que dans le cas B, elle est due à une faible énergie de transition $\gamma$ . . . . .	200
6.11	Spectres en énergie simulés de cascade d'électrons de conversion interne dans le cadre de la décroissance de l'état isomérique (1) du noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	206
6.12	Niveaux d'énergie des états particules individuelles expérimentales pour les systématiques $N = 153$ , $N = 151$ et autour du niveau de Fermi $N = 152$ pour le noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	211
6.13	Niveaux d'énergie des états particules individuelles expérimentales protons pour le noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	213
6.14	Schéma des orbitales des particules individuelles protons et neutrons pour le noyau de $^{256}\text{Rf}$ en fonction du coefficient de déformation quadrupolaire $\beta_2$ calculé grâce au modèle "Woods-Saxon Universal". A gauche, le paramètre $\beta_6$ est nul ; à droite, il est laissé libre. Un schéma des possibilités d'états 2-qp de plus basse énergie est ajouté. . . . .	218
6.15	Niveaux d'énergie des états de quasi-particules 2-qp et 4-qp calculés avec le modèle Woods-Saxon Universal. . . . .	218
6.16	Schéma de niveaux tentatif pour le noyau de $^{256}\text{Rf}$ en combinant les résultats obtenus en spectroscopie prompte et retardée. . . . .	220

7.1	Schéma du premier dispositif utilisant la méthode de sputtering utilisé pour la source d'ions ATLAS PII-ECR. . . . .	233
7.2	Photographie de la source ECRIS2 du JYFL lors de la mise en place d'un échantillon au niveau de l'injection. . . . .	235
7.3	Modélisations des quatre molécules organométalliques de titane candidates pour la production d'un faisceau en utilisant la méthode MIVOC. . . . .	239
7.4	Spectre de masse du composé de $Cp^*Ti(CH_3)_3$ commercial et photographie du spectromètre de masse Pfeiffer QME200. . . . .	240
7.5	Spectre de masse du composé de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ enrichi à 92% en $^{50}Ti$ . . . . .	241
7.6	Photographies d'échantillons de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ après un période de conservation de trois mois sous différents solvants. . . . .	243
7.7	Photographies de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ , après trois mois sous diéthyl éther, sous deux valeurs de concentrations distinctes. . . . .	245
7.8	Photographies de l'évolution temporelle de l'aspect physique d'un échantillon de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ sous forme sèche lors d'un pompage sous vide secondaire. . . . .	246
7.9	Evolution temporelle de la pression mesurée d'un échantillon de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ sous forme sèche lors d'un pompage sous vide secondaire. . . . .	247
7.10	Photographies de l'évolution de l'aspect d'un échantillon de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ conservé sous solvant lors d'un pompage sous vide secondaire. . . . .	248
7.11	Photographies de l'évolution de l'aspect d'un échantillon de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ sous liquide ionique lors d'un pompage sous vide secondaire. . . . .	249
7.12	Evolution temporelle de la pression mesurée d'un échantillon de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ sous liquide ionique lors d'un pompage sous vide secondaire . . . . .	249
7.13	Evolution temporelle d'un spectre de masse de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ avant et après ajout de liquide ionique. . . . .	251
7.14	Suivi temporel de l'intensité mesurée pour certaines masses d'un échantillon de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ avant et après ajout de liquide ionique. . . . .	251
7.15	Schéma de l'activation de la liaison intermoléculaire C-H du $Cp_2^*Ti(CH_3)_2$ . . . . .	252
7.16	Photographies d'un échantillon de $Cp^*Ti(CH_3)_3$ placé à l'air libre et sous argon. . . . .	254
7.17	Comparaison entre deux spectres de masse du composé de $Cp^*Ti(CH_3)_3$ : commercial et synthétisé à Strasbourg. . . . .	255
7.18	Evolution temporelle de la pression émise par un échantillon de 300 mg de $Cp^*Ti(CH_3)_3$ . . . . .	255
7.19	Spectre de masse et photographie du composé de $Cp_2^*Ti(CH_3)_2$ . . . . .	257
7.20	Spectre de masse et photographie du composé de $CpTiC_7H_7$ . . . . .	258
7.21	Spectre de Résonance Magnétique Nucléaire réalisé au DSA d'un échantillon de $Cp^*Ti(CH_3)_3$ synthétisé à l'IPHC à partir de $TiCl_4$ . . . . .	261
7.22	Schéma de la ligne de faisceau entre la source ECRIS2 et la salle de détection de RITU. . . . .	264
7.23	Dessin en coupe de la chambre de la source ECRIS2 de fréquence 14.1 GHz. . . . .	266

---

7.24 Evolution de l'intensité du faisceau de $^{48}\text{Ti}^{10+}$ à la sortie d'ECRIS2 et de la pression induite par les atomes de carbone en fonction de l'ouverture de la valve micrométrique. . . . .	268
7.25 Evolution de l'intensité du faisceau de $^{48}\text{Ti}^{10+}$ en fonction de la pression dans ECRIS1. . . . .	270
7.26 Spectre de masse du composé de $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ enrichi à 92% en $^{50}\text{Ti}$ . . . . .	270
7.27 Spectre de ECRIS1 obtenu avec un échantillon de $^{50}\text{Ti}$ . . . . .	271

# Liste des tableaux

1.1	Nombres magiques sphériques prédits par différents modèles théoriques pour le nouveau noyau doublement magique situé au sein de l'îlot de stabilité super-lourd. . . . .	37
2.1	Multipolarité dominante pour une transition par rayonnement $\gamma$ en fonction du changement de spin et de parité. . . . .	59
2.2	Estimations de Weisskopf pour les probabilités de transitions électriques et magnétiques jusqu'à un multipole d'ordre $\lambda = 4$ . . . . .	59
2.3	Energies de liaison des trois premières couches atomiques pour l'élément rutherfordium ( $Z = 104$ ). . . . .	60
3.1	Caractéristiques du séparateur de recul à gaz RITU. . . . .	99
4.1	Tableau récapitulatif des études réalisées sur le noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	114
4.2	Tableau comparatif de caractéristiques des trois dispositifs expérimentaux utilisés pour rechercher des états isomériques dans le noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	130
5.1	Résumé des caractéristiques de l'étude spectroscopique du noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	136
5.2	Liste des photopics observés dans le spectre des rayonnements $\gamma$ prompts et de leur énergie. . . . .	153
5.3	Nombre de noyaux de $^{256}\text{Rf}$ par fold $\gamma$ strict détectés dans JUROGAM II. . . . .	159
5.4	Calcul de l'intensité relative des transitions observées de la bande de rotation basée sur l'état fondamental du noyau de $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	161
5.5	Nombres de rayonnements $\gamma$ prompts émis au plan cible par les 2210 noyaux de $^{256}\text{Rf}$ identifiés, déduits grâce aux corrections sur l'efficacité de détection et le taux de conversion interne, et les intensités absolues calculées correspondantes. . . . .	162
5.6	Calcul et assignement des spins des transitions observées de la bande de rotation basée sur l'état fondamental du $^{256}\text{Rf}$ . . . . .	167
5.7	Liste des isotopes exploités pour la comparaison des moments d'inertie. . . . .	170
5.8	Energies expérimentales et théoriques de l'énergie du premier état excité de la bande de rotation, le paramètre de Harris extrapolé et le calcul théorique du paramètre de déformation quadrupolaire pour cinq noyaux transfermia. . . . .	172
6.1	Comparaison du nombre d'événements observés pour chaque type de sélection utilisée pour ce travail ainsi que pour les expériences similaires réalisées antérieurement. . . . .	180
6.2	Temps de demi-vie mesurés pour les trois états isomériques observés dans le noyau de $^{256}\text{Rf}$ pour ce travail et les expériences similaires antérieures. . . . .	191
6.3	Proportion d'événements non détectés dans le DSSD du fait du temps mort de l'acquisition de 12 $\mu\text{s}$ . . . . .	192



6.4	Comparaison des différents rapports isomériques expérimentaux calculés pour ce travail avec deux hypothèses de découpage des événements et une expérience antérieure. . . . .	197
6.5	Comparaison des facteurs d'empêchement expérimentaux calculés $f_\nu$ aux valeurs $f_\nu^{Lob}$ extraites des systématiques de Löbner pour différentes hypothèses sur l'état initial afin de déduire la valeur de $K^\pi$ de l'état isomérique (1). . .	208
6.6	Comparaison des facteurs d'empêchement expérimentaux calculés $f_\nu$ aux valeurs $f_\nu^{Lob}$ extraites des systématiques de Löbner [Lob68] pour différentes hypothèses sur l'état initial afin de déduire la valeur de $K^\pi$ de l'état isomérique (2). 209	209
7.1	Caractéristiques thermophysiques du titane sous trois formes chimiques. . . .	231
7.2	Caractéristiques des cinq isotopes composant le titane naturel. . . . .	231
7.3	Première liste des composés organométalliques d'intérêt en vue de la production d'un faisceau de titane en utilisant la méthode MIVOC. . . . .	239
7.4	Liste et caractéristiques des différents solvants utilisés lors des tests de conservation. . . . .	242
7.5	Conclusions des tests de conservation sous solvant réalisés sur la molécule de $Cp_2Ti(CH_3)_2$ . . . . .	244
7.6	Conclusions des tests de concentration après trois mois de conservation sous diéthyl éther. . . . .	245
7.7	Tableau résumant les conclusions principales des différents composés organométalliques de titane testés. . . . .	259
7.8	Tableau résumant les observations réalisées après les différents tests de sensibilité effectués sur la molécule de $Cp^*Ti(CH_3)_3$ . . . . .	262
7.9	Distribution en intensité issue des mesures effectuées avec la cage de Faraday en sortie d'ECRIS1 pour un faisceau d'ions de $^{48}Ti$ . . . . .	269
7.10	Tableau résumant les conclusions principales des différents composés organométalliques de titane testés. . . . .	272
7.11	Distribution en intensité issue des mesures effectuées avec la cage de Faraday de ECRIS2 pour un faisceau d'ions de $^{50}Ti$ . . . . .	273

# Remerciements

Je tiens à remercier toutes les personnes que j'ai pu côtoyer durant ces années et qui ont contribué à la réussite de cette thèse de doctorat.

J'aimerais commencer par adresser mes plus sincères remerciements à mes deux directeurs de thèse : Benoît Gall et Olivier Dorvaux. Je ne les remercierais jamais assez pour le temps important qu'ils m'ont consacré, leur patience, leurs conseils, leur sens de la pédagogie ainsi que pour tout le savoir qu'ils m'ont transmis. Le travail de recherche est pour moi avant tout un travail d'équipe et je n'aurais pas atteint de tels résultats sans leur précieuse aide.

Je souhaiterais remercier très particulièrement Zouhair Asfari pour avoir accepté d'être un membre de mon jury, pour toutes les discussions avec lui, mais surtout et avoir réalisé un nombre impressionnant de synthèses de composés chimiques nécessaires à la réussite de cette thèse. Sans son extrême patience et son travail minutieux, il n'y aurait pas eu de faisceau de titane, donc pas d'expérience de thèse et vous n'auriez tout simplement pas ce document devant les yeux. Un titanesque merci à lui !

Je tenais à dire que ce travail s'est réalisé dans la continuité directe de deux thèses de doctorats : celle de Farid Khalfallah et celle de Julien Piot. Grâce à l'apport de leur très précieux "héritage" (©Zouhair), ce projet a été un succès et le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  a enfin livré plusieurs de ses secrets. Cette thèse est en quelque sorte également un peu la leur.

J'adresse mes remerciements à Dieter Ackermann, Alain Astier, Roderick Clark et Jerzy Dudek pour avoir d'accepté de participer à mon jury de thèse. Je les remercie en particulier pour leur lecture attentive et minutieuse de ce document de catégorie "superlourd" ainsi que pour tous les commentaires et les discussions extrêmement intéressants que j'ai pu recevoir.

I also thank all the Gamma-RITU group from JYFL for their welcome and their GREAT work that allowed the  $^{256}\text{Rf}$  spectroscopy to be such a strong success. Among them, I would like to especially thank Paul Greenlees for our successful collaboration on this project and our interesting discussions. My thanks go also to Mikael Sandzelius for its great help during the experiments, and to Panu Rahkilla for its fantastic analysis software, GRAIN, and for answering quickly to many questions and issues.

I will not forget to thanks Raimo Seppälä for all his work on the titanium beam project during so many years. I also address my gratitude to Juha Ärje for giving us his strong experience on the ECR sources, to Matti Nurmi for his wise advices and to the JYFL source group for their work. All my thanks go to the accelerator team who did a very hard work on the beam line during all my thesis experiment, allowing a world premiere.

Je suis très reconnaissant envers Araceli Lopez-Martens et Karl Hauschild pour leur aide et leurs avis de très grande qualité ainsi que pour m'avoir invité à présenter mes travaux à Orsay. Je remercie Antoine Drouart, Maelle Kerveno et Jerzy Dudek pour leur participation au jury de ma soutenance à mi-parcours et pour leurs conseils avisés. I thank also Philippos Papadakis for simply being himself. I would like to express gratitude to Philip Kondev, David Rouvel and Jerzy Dudek for their Woods-Saxon Universal calculations on the  $^{256}\text{Rf}$  which were very useful for this work's interpretation. Je pense aussi à Isabelle Rossini qui m'a accueilli très chaleureusement pour l'encadrement de nombreux travaux pratiques lors de mon monitorat.

J'aimerais évidemment remercier le groupe de Structure Nucléaire du LPSC Grenoble pour me donner l'opportunité de continuer dans le domaine. De plus, je n'oublie évidemment pas de remercier Chewbacca et les machines à café pour leurs soutiens psychologiques majeurs.

Je souhaite remercier de manière large le groupe CAN pour m'avoir accueilli lors de deux stages et de cette thèse ainsi que pour sa bonne ambiance de travail. Au sein de ce groupe, je remercie en particulier Gilbert Duchêne pour m'avoir initié, il y a déjà six ans, au monde de la recherche. C'est peut être grâce à (ou à cause de ?) lui que je me suis lancé dans ce domaine. Je tiens à remercier la direction de l'IPHC pour m'avoir ouvert les portes du laboratoire lors de quatre stages réalisés durant mes études supérieures ainsi que lors de ce doctorat.

Mes remerciements vont également aux différents groupes de l'IPHC qui ont pu m'aider durant cette thèse. Je remercie le groupe LIMAA, et en particulier Zouhair Asfari et Alexandre Lecointre, pour leur accueil et leur aide lors de nos excursions dans le monde de la chimie. J'adresse mes remerciements à Ali Ouadi et Sylvia Georg du groupe de Chimie Nucléaire pour leurs précieux conseils et nous avoir permis de nous étaler sur leurs paillasses. Je remercie l'Atelier de Mécanique du laboratoire pour la réalisation de très belles pièces nécessaires aux développements liés au faisceau de titane.

Je n'oublie pas les doctorants que j'ai pu rencontrer durant ces trois années avec en vrac : Guillaume, Emmanuel, Adam, Didier, Loïc, Khodor, Harold, Cécile, Estelle, David, Hugo, Hélène, Fabien, Alain, Florian, Momo, Romain et ceux que j'oublie.

Je remercie ma famille pour leur soutien et d'être venue à ce machin obscur qu'était ma soutenance de thèse. Je ronronne un grand merci à mes chats ainsi qu'à mon chien pour leur puissant support psychologique quotidien. J'adresse en particulier mes remerciements à ma gentille Mémé pour tout le soutien qu'elle m'a donnée jusqu'à maintenant. Je termine en remerciant ma Maman sans qui, je pense, je n'en serais tout simplement pas arrivé là.

# Introduction

Un siècle après la mise en évidence du noyau atomique par E. Rutherford, la force nucléaire est actuellement bien connue pour les noyaux proches de la stabilité. De nos jours, de nombreux travaux cherchent à mieux appréhender cette force dans des conditions nucléaires extrêmes telles que les noyaux riches en protons ou en neutrons ou, dans le cadre de ce travail de thèse, les noyaux les plus lourds. L'étude de ces derniers, un domaine majeur de la recherche actuelle en physique nucléaire, mène à de multiples questionnements sur la limite de la stabilité, sur l'évolution de la force nucléaire ou encore sur des phénomènes d'ordre astrophysique.

Différents modèles cherchant à paramétrer la force nucléaire sur l'ensemble de la carte des nucléides prédisent l'existence d'un ultime regain de stabilité nucléaire : c'est ce que l'on appelle l'îlot de stabilité superlourd. La course internationale à la synthèse des éléments les plus lourds a mené à compléter la table périodique jusqu'à l'élément  $Z = 118$  sans pour autant parvenir à prouver l'existence de cet îlot, ni préciser sa localisation. Plus accessibles expérimentalement, les noyaux transférmas autour de  $Z = 100-106$  peuvent fournir des informations précieuses dans le cadre de la quête de l'îlot de stabilité à travers l'étude spectroscopique de leur structure fine.

Ma thèse s'inscrit au cœur de cette étude approfondie de la région des noyaux transférmas par spectroscopie. Je l'ai réalisée au sein du groupe Couches et Amas dans les Noyaux à l'Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien. Avec l'aide précieuse de mes directeurs de thèse, le Pr. Benoît Gall et le Dr. Olivier Dorvaux, je me suis lancé dans cette thèse de doctorat centrée autour de l'étude du noyau superlourd de  $^{256}\text{Rf}$ . Ce noyau représentait alors la prochaine étape majeure de la spectroscopie dans la région des transférmas. Prenant la suite de ceux de F. Khalfallah et de J. Piot, ce travail de thèse a permis de réaliser la toute première spectroscopie  $\gamma$  prompt de d'un noyau superlourd ; un record mondial.

Cette thèse est découpée en trois parties distinctes : une discussion sur le contexte de l'étude des noyaux transférmas, la spectroscopie fine du noyau superlourd de  $^{256}\text{Rf}$  et la production d'un faisceau intense d'ions de  $^{50}\text{Ti}$ .

Dans une première partie, le contexte de l'étude des noyaux transférmas est discuté du point de vue d'un expérimentateur. Le premier chapitre de cette thèse introduit la recherche sur les noyaux superlourds dans un cadre historique. La découverte de ces éléments et leur recherche dans la nature sont présentées. Les hypothèses sur l'îlot de stabilité superlourd sont discutées avant de présenter le lien entre ce dernier et la région des noyaux transférmas.

Le chapitre suivant présente plus spécifiquement la région d'intérêt de cette thèse, celle des noyaux transférmas. La réaction de fusion-évaporation, permettant de les synthétiser, est d'abord discutée. Les modes de désexcitations et de décroissances de ces noyaux sont ensuite présentés. Deux grands phénomènes utilisés comme sources d'information dans cette région sont détaillés : la rotation collective et les états isomériques de haut- $K$ .

Je décris ensuite, dans un troisième chapitre, les techniques de sélection de type Recoil-Decay Tagging et le dispositif expérimental que j'ai exploité pour la réalisation de mon expérience de thèse. Situé à l'Université de Jyväskylä en Finlande, le dispositif est composé du multi-détecteur JUROGAM II, du séparateur à gaz RITU et du multidétecteur de plan

focal GREAT. Chacune des parties du dispositif expérimental est présentée et justifie le fait que cette association permet d'obtenir l'un des dispositifs les plus performants pour l'étude en spectroscopie  $\gamma$  prompte des noyaux très lourds.

J'aborde dans la seconde partie de ce manuscrit l'étude spectroscopique du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Le noyau d'intérêt a été découvert en 1975 par l'équipe de Y.Ts. Oganessian au JINR à Dubna (Russie). Depuis lors, la décroissance de ce noyau a été étudiée plusieurs fois mais sa structure nucléaire fine restait méconnue. Je commence par un chapitre dans lequel je ferai l'état des connaissances de ce noyau avant ce travail de thèse. Les motivations physiques à cette étude y sont ensuite discutées. Ceci est suivi par une discussion sur les divers développements et calculs qui ont été nécessaires à la réalisation de cette étude.

Mon expérience de thèse a été réalisée en septembre 2011 à l'Université de Jyväskylä. Je décris d'abord le contexte expérimental de l'étude du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  ainsi que la méthode de sélection des événements d'intérêt. Deux études distinctes, chacune présentée dans un chapitre dédié, ont été réalisées sur le noyau superlourd.

Dans un premier temps, je présente l'étude réalisée par spectroscopie prompte. Pour la première fois, un spectre de rayonnements  $\gamma$  d'un noyau superlourd a été observé. Les transitions mises en évidence, qui signent clairement une structure en rotation collective pour le noyau superlourd, sont ensuite présentées et caractérisées. Leur interprétation grâce aux moments d'inertie permet de discuter l'effet de gaps dans la région et, en particulier, le  $Z = 104$ .

Le chapitre suivant est dédié à l'étude de ce noyau par technique de spectroscopie retardée. Elle a été réalisée en vue de mettre en évidence des états isomériques de haut- $K$  dans ce noyau. Plusieurs états de ce type ont été mis en évidence. Leurs temps de vie et rapports d'embranchement ont été calculés. Les rayonnements  $\gamma$  en coïncidence avec les états sont présentés. L'ensemble des observables a été confronté à la simulation et à des approches théoriques. Une proposition d'assignement des états observés est discutée. Les résultats obtenus ont été comparés avec ceux des deux expériences similaires antérieures, qui présentaient des résultats contradictoires. Finalement, ce travail a permis de faire la première proposition d'un schéma de niveaux à composantes prompte et retardée pour un noyau superlourd.

Pluridisciplinaire, le dernier pan de ce mémoire est dédié aux travaux sur un faisceau isotopique de  $^{50}\text{Ti}$ . Nécessaire à la synthèse du noyau superlourd d'intérêt, il a été produit en utilisant la méthode MIVOC. Après une discussion sur la méthode et le contexte, les résultats antérieurs à ma thèse sont présentés. J'ai pu comparer plusieurs composés candidats MIVOC dont les études sont détaillées. Des études plus approfondies des deux molécules les plus prometteuses sont discutées. Après le choix de la molécule qui a été utilisée pour la production du faisceau, les intensités obtenues sur les sources du JYFL sont présentées. Il s'agissait du tout premier faisceau intense isotopique de  $^{50}\text{Ti}$  utilisant la méthode MIVOC.

Après une brève conclusion, je termine ce manuscrit par une discussion des perspectives à court et à plus long termes. De nombreuses nouvelles possibilités s'offrent à la communauté grâce au faisceau isotopique de  $^{50}\text{Ti}$ , aux développements techniques effectués et aux nouveaux dispositifs qui se profilent tel que la modernisation du séparateur VASSILISSA, devenu SHELS, au FLNR ou la mise en place du séparateur  $S^3$  auprès de SPIRAL2.

*All chapters start with a summary in English in order to allow easy access to the content of this thesis manuscript.*

**Première partie**

**Contexte**



# Les noyaux superlourds

## Sommaire

<b>1.0</b>	<b>Summary</b>	<b>23</b>
<b>1.1</b>	<b>Généralités</b>	<b>26</b>
1.1.1	Historique	26
1.1.2	L'étude de la carte des nucléides	27
<b>1.2</b>	<b>Les éléments les plus lourds</b>	<b>29</b>
1.2.1	Découverte des éléments les plus lourds	29
1.2.2	Les éléments les plus lourds dans la nature	31
1.2.2.1	Nucléosynthèse des éléments les plus lourds	31
1.2.2.2	Recherche des éléments les plus lourds dans la nature	32
<b>1.3</b>	<b>Définition d'un noyau superlourd</b>	<b>32</b>
<b>1.4</b>	<b>Prédictions de l'îlot de stabilité superlourd</b>	<b>36</b>
<b>1.5</b>	<b>Intérêt de l'étude des noyaux transfermia</b>	<b>39</b>

## 1.0 Summary

About one hundred years ago the history of nuclear physics began when H. Geiger and E. Marsten, under the supervision of E. Rutherford, provided experimental evidence that the atom contained a highly charged nucleus. With the discovery of a new neutral particle by J. Chadwick, the composition of the nucleus by neutrons and protons was established. Since then, the observed isotopes are classified by their nucleon numbers in the table of nuclides (see Figures 1.1 and 1.2). Currently 288 stable nuclei have been discovered in nature, defining the valley of stability, and around 3000 radioactive nuclei have been synthesized in laboratories. In one century, our knowledge in nuclear physics has made extraordinary progresses. The behaviour of nuclei near the valley of stability is quite well known. In order to have a better knowledge of the nuclear forces, nuclei at the limits of the nuclear chart such as the proton- and neutron-rich and the heaviest elements are intensively studied.

Uranium ( $Z = 92$ ) is the heaviest element existing in large quantities on Earth. Heavier elements were initially synthesized by astrophysics processes. Searches for superheavy elements in nature have been unsuccessful, their lifetime being small as compared to the age of our solar system.

In order to study the heaviest elements it is necessary to produce them artificially mainly by fusion-evaporation reactions. In the 1940's, the syntheses of few new elements in the USA



started the race to the heaviest elements. In time, it led to a competition on the international level between a few main research centers: LNBL (USA), JINR (Russia) and, afterwards, GSI (Germany). In the 1990's, due to many technological breakthroughs, elements up to  $Z = 112$  were synthesized. Through the fusion of actinide targets with  $^{48}\text{Ca}$  atoms new elements up to  $Z = 118$  were produced at the FLNR in Dubna over the last fifteen years. Today, several laboratories are attempting to produce elements with  $Z = 119$  and  $Z = 120$ . The competition, which allowed the discovery of a total of 26 new elements in only 70 years, is not yet over.

The heaviest elements are very often called superheavy elements. Several definitions exist but one threshold value is usually accepted. It is based on the Liquid Drop Model that allows a good approximation of the binding energy in nuclei. The potential energies of several heavy nuclei calculated within this model are presented in Figure 1.3. It shows that the fusion barrier finally disappears for extreme atomic number. However, adding shell effects, a barrier appears meaning that the heaviest nuclei exist only because of these shell effects. One can argue that a nuclear system must survive at least  $10^{-14}$  s to be considered a chemical element. A superheavy element is then defined as an element having a fission barrier leading to lifetime longer than this value. The first one is rutherfordium ( $Z = 104$ ), named after the discoverer of the atomic nucleus. It is also the first transactinides element. The term transfermium is commonly used for elements with  $Z > 100$ .

Nuclei show an increase of stability (see in Figure 1.1) with neutron or proton numbers equal to 2, 8, 20, 28, 50, 82 and 126 (called magic numbers). The heaviest observed doubly magic nucleus is  $^{208}\text{Pb}$ , with 82 protons and 126 neutrons. The first successful explanation of this sequence of numbers was obtained with the Shell Model: it presents neutron and proton orbitals in analogy with those of electrons in atomic physics. In the last 50 years a great deal of effort was made to describe nuclei with quantum theory: it became more and more refined and this progress continues today.

In 1955, J.A. Wheeler proposed the existence of new higher magic numbers, which are supposed to define an area of the nuclear chart with increased stability called the "superheavy island of stability". Several models developed to parameterize the nuclear force predict the existence of the island of stability. However, the latest versions of these still do not agree on the superheavy magic numbers as shown in Table 1.1 and Figure 1.4.

The main objectives of the heavy nuclei study are to investigate the possibility of a superheavy island of stability and to have a better understanding of the nuclear structure in this region. Therefore, two domains are currently intensively studied by the community: the synthesis of the heaviest elements and the spectroscopic study of the transfermium nuclei.

The synthesis of the heaviest elements is difficult due to their extremely low production cross sections, which drop by about one order of magnitude for each unit increase in the atomic number as one can see in Figure 1.5 up to element 110-112. Due to this constraint, only a few atoms can be produced, and experiments to observe them are typically several months long. It is only possible to obtain information about half-lives and decay modes of these isotopes; access to structure information is not currently possible. This domain of study did not allow, at least as of yet, to prove the existence of the island of stability, the only possible hint is the increase of the cross section around  $Z = 114$ .

---

Transfermium nuclei up to nobelium element ( $Z = 102$ ) produced with cross sections high enough to allow the study of their nuclear structure by spectroscopic techniques. The interest in this region can be illustrated by single-particle energy plots shown, for example, in Figures 1.6 and 1.7. For a spherical shape, one can see very large gaps at  $Z = 126$  and  $N = 184$ . Due to the effect of deformation on the orbitals, deformed shell gaps appear in the region of interest around  $Z = 100-104$  and  $N = 152$  and the orbitals closing the superheavy gaps come close to the Fermi surface of the transfermium nuclei. The idea is to study experimentally these nuclei, learn about the position and the nature of these orbitals and deformed shell gaps around their Fermi surface in order to constrain the existing theoretical models. By an iterative process, it is possible to have a better understanding of the nuclear force in this region and to try to encircle the position of the island of stability. Within this framework, the main objective of this thesis was to spectroscopically study the superheavy nucleus  $^{256}\text{Rf}$ .

L'étude des noyaux très lourds et superlourds est actuellement un des sujets majeurs de la recherche en physique nucléaire fondamentale. Cette investigation a pour objectif de mieux appréhender la structure nucléaire dans cet extrême de masse mais également d'essayer de mettre en évidence l'hypothétique ultime îlot de stabilité superlourd.

Ce chapitre a pour objectif d'introduire la notion de noyaux superlourds. Après une introduction générale sur l'étude des noyaux à travers la carte des nucléides, la découverte et la recherche dans la nature des noyaux les plus lourds sont discutées. En se basant sur l'évolution des modèles théoriques, une définition est ensuite donnée au terme "superlourd" puis la notion d'îlot de stabilité superlourd est introduite. Cette introduction se termine par la présentation de l'intérêt de l'étude des noyaux dits transfermia, les nucléides qui m'ont particulièrement intéressé durant cette thèse.

## 1.1 Généralités

Des aspects généraux sur le noyau atomique sont présentés rapidement dans cette section. Dans un premier temps, quelques événements majeurs qui ont mené à sa mise en évidence sont énumérés. Ensuite, la carte des nucléides qui permet de les classer est présentée. La discussion sur les éléments les plus lourds débute dans la section suivante.

### 1.1.1 Historique

La première notion de l'atome a été formulée à l'antiquité par des philosophes grecs. Ils ont imaginé que la matière est constituée de minuscules blocs. Démocrite les a appelés "*atomos*", qui signifie indivisible. On peut considérer que cette première hypothèse constitue le début de l'histoire de la physique atomique et nucléaire. Cependant, il a fallu attendre des siècles avant d'obtenir des explications et des résultats expérimentaux probants dans ce domaine.

Au Moyen-Âge, des alchimistes ont introduit l'idée que les éléments chimiques puissent être séparés ou transmutés. À l'entrée du XIX<sup>ème</sup> siècle, plusieurs découvertes majeures dans le cadre de la composition fine de la matière ont été réalisées. En 1789, le scientifique français A. Lavoisier a découvert la loi de conservation des masses [Lav89]. Il a défini un élément comme une substance basique qui ne peut pas être divisée par un processus chimique. En 1805, J. Dalton a utilisé le concept d'atomes en proposant que chaque élément soit constitué d'atomes de type unique et que ces atomes se joignent pour former des molécules [Dal08]. En 1815, W. Prout a observé que les masses atomiques mesurées sont des multiples de la masse atomique de l'hydrogène [Pro15, Pro16]. Il a émis l'hypothèse que chaque élément est composé d'un nombre précis de ces atomes. Ce fut la première approche de la notion de nucléon.

En 1869 a eu lieu un tournant majeur dans l'histoire des sciences avec la première classification périodique des éléments par D. Mendeleïev [Mend69]. Les éléments y sont rangés en fonction de leurs propriétés chimiques. En 1896, A.H. Becquerel a mis en évidence la radioactivité grâce à un minerai d'uranium [Becq96]. En 1898, J.J. Thomson a découvert l'électron et a suggéré que l'atome possède une structure interne [Tho97, Tho99]. En 1911, il

Il y a environ 100 ans, H. Geiger et E. Marsden, sous la direction de E. Rutherford, ont mis en évidence la présence d'un noyau chargé à l'intérieur de l'atome, et donc des protons [Rut11].

En parallèle du développement de la mécanique quantique, J. Chadwick a découvert le neutron en 1932 [Chad32]. Cette dernière étape a permis d'obtenir la description que l'on a aujourd'hui d'un noyau atomique. Ce dernier est constitué de  $A$  nucléons séparés en deux catégories de particules appelées nucléons :  $Z$  protons de charge électrique positive et  $N$  neutrons de charge électrique neutre tels que  $A = Z + N$ .

### 1.1.2 L'étude de la carte des nucléides

A partir de la mise en évidence de la composition du noyau atomique, les connaissances en physique nucléaire n'ont jamais cessé de s'étendre. Ces avancées se réalisent sur deux plans en parallèles : via l'amélioration des modèles cherchant à conceptualiser la structure nucléaire et également grâce aux nouvelles découvertes expérimentales.

Actuellement, 94 éléments différents ont pu être identifiés dans la nature. Chacun de ces éléments est représenté par un ou plusieurs isotopes, ainsi 288 noyaux différents ont été observés sur Terre [Erl12]. La majorité de ces noyaux sont dits stables car ils ne se transforment pas via une décroissance radioactive. Il existe une vingtaine de noyaux instables observables à l'état naturel car ils possèdent un temps de demi-vie proche de ou supérieur à l'ordre de l'âge du système solaire.

D'autres isotopes ont certainement été produits par nucléosynthèse avant la création de notre système solaire. Cependant, ils sont instables et de temps de demi-vie suffisamment faible pour ne plus être observables à notre époque. En vue de compléter nos connaissances, la structure de ces noyaux instables a été étudiée en les produisant généralement en laboratoire. Au total, plus de 3000 nucléides différents ont été observés par l'Homme [Erl12, Nudat].

Pour classifier ces noyaux, on utilise la carte des nucléides où ils sont organisés en fonction de leur nombre de nucléons  $Z$  et  $N$ . La Figure 1.1 est une version récente de cette carte [Nudat]. Le mode de décroissance principal de chaque noyau est mis en avant par un code couleur. Les nombres magiques neutrons et protons y sont représentés. Cet aspect est discuté plus loin dans cette section.

Cette carte permet d'appréhender la recherche de la stabilité des éléments dans la nature. Les noyaux stables sont représentés en noir. Ils forment ce que l'on appelle la vallée de stabilité, qui parcourt la carte du  $^1\text{H}$  ( $Z = 1$ ) au  $^{208}\text{Pb}$  ( $Z = 82$ ). Il s'agit des noyaux qui constituent la grande majorité de l'environnement qui nous entoure. De part et d'autre de la vallée de la stabilité, les noyaux décroissent par radioactivité  $\beta^+$  (bleu) et  $\beta^-$  (rose). Cette décroissance permet aux isotopes de se rapprocher de la vallée en gagnant de la stabilité. Les noyaux plus lourds peuvent émettre des particules  $\alpha$  (en jaune) ou fissionner spontanément (en vert) afin de devenir plus légers et se rapprocher de la stabilité. Ces modes de décroissance sont présentés dans la Section 2.3. Il existe des cas plus rares de radioactivité neutron (violet) ou proton (orange).

Les noyaux stables et proches de la vallée de la stabilité ont été étudiés pendant des dizaines d'années et sont bien connus. Cependant, les limites de la carte des nucléides sont indéfinies et toujours sous investigation [Erl12]. De part et d'autre de la carte, il existe des *drip lines* (voir leurs tracés sur la Figure 1.2). Il s'agit des limites en terme de protons et de

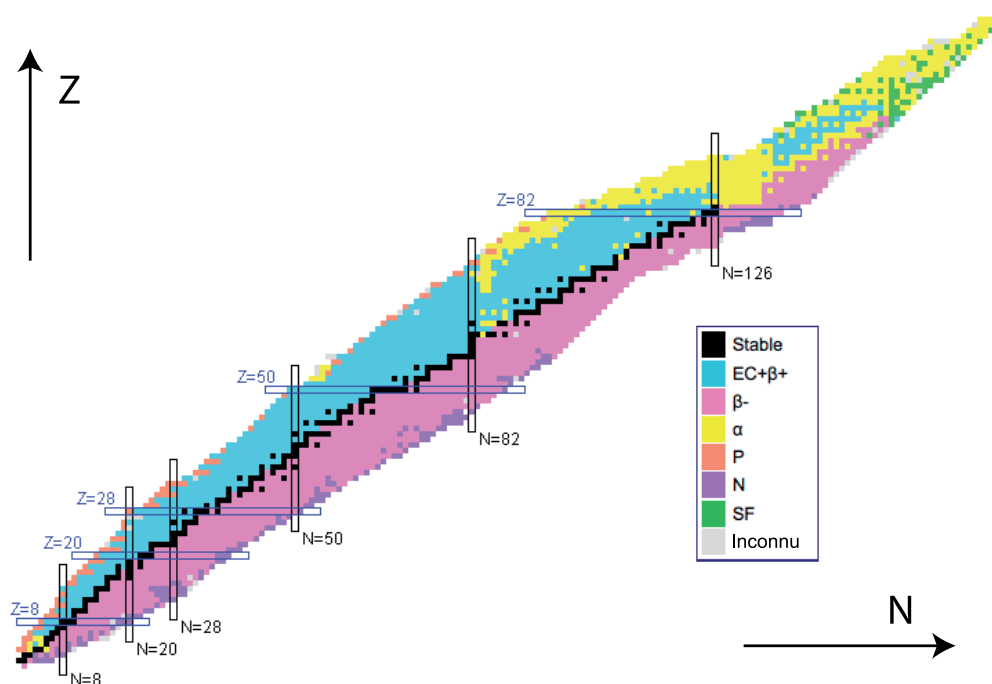


Figure 1.1: Carte des nucléides, classés en fonction de leur nombre de protons et de neutrons. Le code de couleur indique le mode de décroissance principal de chaque noyau. Les nombres magiques protons et neutrons connus sont indiqués (d'après [Nudat]).

*Chart of nuclides, sorted according to their number of protons and neutrons. The colour code indicates the decay mode. Known protons and neutrons magic number are indicated (based on [Nudat]).*

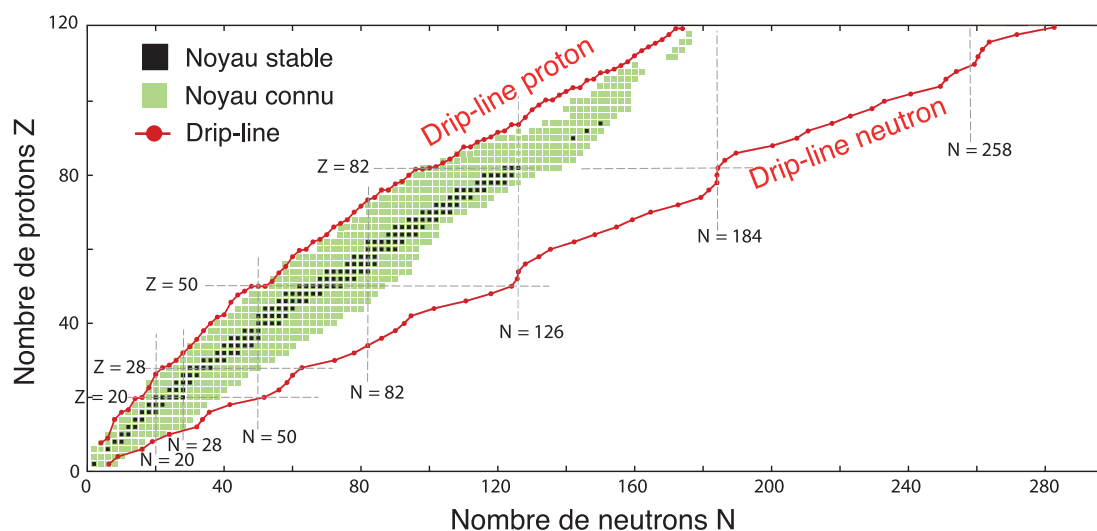


Figure 1.2: Carte des nucléides des noyaux pair-pair connus. Les drip-lines protons et neutrons, limites de la stabilité nucléaires, sont tracées (d'après [Er12]).

*Chart of the known even-even nuclei. The neutron and proton drip-lines, limits of the nuclear stability, are plotted (based on [Er12]).*

neutrons pour laquelle les éléments peuvent être liés et donc exister. La *drip line* proton est aujourd'hui bien établie jusqu'à  $Z = 91$ . Par contre, la *drip line* neutron est seulement connue jusqu'à l'oxygène ( $Z = 8$ ) car la vallée de la stabilité est très éloignée de cette dernière. Pour les plus hautes valeurs de  $Z$  et de  $N$ , il existe une autre limite à la stabilité : celle de la masse. Dans cette région, la répulsion coulombienne peut prévaloir sur la force nucléaire et pousser les noyaux à fissionner. En se basant sur des estimations de ces limites, on s'attend à ce qu'il y ait environ 7000 isotopes liés ayant entre 2 et 120 protons [Erl12].

L'étude de la structure nucléaire aux extrêmes de la carte représente actuellement une partie très importante de la recherche en physique nucléaire fondamentale. Cette thèse s'inscrit dans cette optique avec un intérêt particulier pour les noyaux les plus lourds. La découverte et l'étude de ces derniers sont présentées dans la suite de ce chapitre.

## 1.2 Les éléments les plus lourds

Depuis la présentation de la classification périodique des éléments par D. Mendeleïev en 1869, il ne s'est pas déroulée une décennie sans qu'un nouvel élément chimique n'ait été découvert. Aujourd'hui, tous les éléments ayant un nombre atomique  $Z$  compris entre 1 et 118 ont été soit découverts dans la nature, soit synthétisés par l'Homme.

Pourtant, malgré toutes ces connaissances, de multiples questions restent posées telles que : existe-t-il d'autres noyaux stables, où se termine la classification périodique, comment se comporte la structure nucléaire aux extrêmes de la carte des nucléides ? De plus, cette quête possède un caractère universel et est une grande source d'intérêt pour la communauté scientifique ainsi que pour le grand public.

Dans cette section sont discutées les grandes lignes sur la découverte des éléments les plus lourds lors des 70 dernières années ainsi que sur la synthèse et la recherche de ces éléments dans la nature.

### 1.2.1 Découverte des éléments les plus lourds

L'uranium (de nombre atomique  $Z = 92$ ) est l'élément le plus lourd existant en quantité abondante sur terre dans un état naturel. Pour pouvoir accéder aux éléments plus lourds, il est donc nécessaire de les créer artificiellement. Depuis la découverte des éléments neptunium ( $Z = 93$ ) [McM40] et plutonium ( $Z = 94$ ) en 1940 [Sea46], la synthèse d'éléments de plus en plus lourds a donné lieu à une compétition acharnée sur le plan international entre plusieurs grands laboratoires spécialisés. Les grands axes de cette compétition sont présentés dans cette sous-section.

Les éléments suivants, jusqu'au californium  $Z = 98$ , ont été découverts entre 1940 et 1950 aux Etats-Unis d'Amérique par G. Seaborg et ses collaborateurs par méthode de séparation chimique. Les nouveaux noyaux ont été produits par irradiation intense de noyaux plus légers par des neutrons, des protons, des deutérons ou des particules  $\alpha$ . Ces découvertes ont mené à l'attribution d'un Prix Nobel à G. Seaborg en 1951 et sont présentées dans la Référence [Sea51].

Contrairement aux découvertes précédentes, les synthèses de l'einsteinium ( $Z = 99$ ) et du fermium ( $Z = 100$ ) n'ont pas été effectuées en laboratoire. En 1952, les États-Unis d'Amérique ont fait exploser une bombe thermonucléaire. Après l'explosion, des avions traversent les nuages radioactifs pour récolter des résidus à l'aide de filtres. Leur analyse chimique par A. Ghiorso et ses collaborateurs ont mis en évidence les isotopes de  $^{253}\text{Es}$  et de  $^{255}\text{Fm}$  [Ghi55a]. Ces deux noyaux ont été obtenus à partir du noyau de  $^{238}\text{U}$  après multiples captures neutroniques et une cascade de décroissances  $\beta^-$ .

Le ménélevium ( $Z = 101$ ) n'a pas pu être produit par explosion nucléaire. En effet, le noyau de  $^{255}\text{Fm}$ , qui est le dernier isotope au bout de la chaîne de décroissance bêta, n'est pas émetteur  $\beta$ . Il n'est donc pas possible de synthétiser des noyaux plus lourds que le fermium grâce à une telle réaction nucléaire. L'isotope de  $^{256}\text{Md}$  a été produit via la réaction de fusion-évaporation  $^{253}\text{Es}(\alpha, n)^{256}\text{Md}$  en 1955 [Ghi55b] (ce type de réaction est discuté dans la Section 2.1). Par la suite, les éléments nobelium ( $Z = 102$ ) [Ghi58, Don64] et lawrencium ( $Z = 103$ ) [Ghi61, Don65] ont été synthétisés grâce à des ions lourds accélérés sur des cibles radioactives dans les années 1950-1960.

Pendant les années 1960 et 1970, la compétition aux éléments les plus lourds s'est déroulée pratiquement exclusivement entre le laboratoire de Berkeley (LBNL - États-Unis d'Amérique) et celui de Dubna (JINR - Union Soviétique). L'identification de certains éléments, en particulier le rutherfordium ( $Z = 104$ ), a donné lieu à des querelles pour la primauté de la découverte [Fle64, Ghi69]. Pour éviter par la suite le renouvellement d'une telle situation, l'Union Internationale de Chimie Pure et Appliquée (IUPAC) a décidé de nommer temporairement les éléments nouveaux à partir des racines latines ou grecques des chiffres composant le numéro atomique de l'élément en question (par exemple, ununoctium pour l'élément  $Z = 118$ ). Depuis lors, il s'agit de l'organisation qui juge du statut de découverte pour un élément. Il faut pour cela qu'il ait été observé dans au moins deux laboratoires différents, par des équipes indépendantes et de préférence avec des réactions différentes. L'organisation peut alors proposer au groupe de recherche désigné comme étant les pionniers de nommer un élément. La validité de l'observation de l'élément rutherfordium fut confirmée en 1964 suivi par le dubnium ( $Z = 105$ ) en 1970 [Ghi70] et le seaborgium ( $Z = 106$ ) en 1974 [Ghi74]. Leurs découvertes furent attribuées conjointement aux deux laboratoires en compétition.

A partir de 1980, la mise en service à Darmstadt (Allemagne) d'un accélérateur d'ions lourds au Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) a permis de réaliser un bond important dans la quête de nouveaux éléments (voir [Arm12] pour une revue détaillée de ces travaux). Ainsi le bohrium ( $Z = 107$ ) [Mun81], le meitnerium ( $Z = 109$ ) [Mun82] et le hassium ( $Z = 108$ ) [Mun84] ont été observés respectivement en 1981, 1982 et 1984. Une décennie plus tard, en 1994, le dispositif expérimental a été amélioré ce qui a permis de découvrir, en moins de deux années, trois nouveaux éléments : le darmstadtium ( $Z = 110$ ) [Hof95a], le roentgenium ( $Z = 111$ ) [Hof95b] et le copernicium ( $Z = 112$ ) [Hof96].

Les nouveaux éléments suivants ont été synthétisés au laboratoire JINR de Dubna. Cette réussite a été possible grâce à l'apport de stabilité des noyaux doublement magiques de  $^{48}\text{Ca}$  ( $Z = 20$ ,  $N = 28$ ) qui ont été projetés sur des cibles d'actinides produites par capture neutronique à l'intérieur d'une centrale nucléaire (voir la revue [Oga07] pour plus de détails). Les éléments  $Z = 114$  [Oga99] et  $Z = 116$  [Oga00] ont été produits dès 1999. En 2004,

l'élément impair  $Z = 115$  [Oga04a] a été synthétisé. L'élément le plus lourd produit est actuellement le  $Z = 118$  dont 3 atomes ont été identifiés en 2006 [Oga06]. Le dernier ajout au tableau de Mendeleïev a été réalisé en 2009 avec la mise en évidence de 5 atomes de l'élément  $Z = 117$  [Oga10]. Cet élément a été de nouveau étudié récemment [Oga13a] et a permis de mettre en évidence un nouvel isotope superlourd, le  $^{277}\text{Mt}$ . On note que l'élément  $Z = 113$  a été synthétisé en premier lieu au laboratoire RIKEN (Japon) [Mor04, Mor07].

Récemment l'IUPAC a autorisé la nomination de deux nouveaux éléments : le flerovium ( $Z = 114$ ) et le livermorium ( $Z = 116$ ) [Los12]. Les autres éléments n'ont, pour l'instant, pas encore d'appellation pour manque de statistique ou de confirmation. La récente synthèse d'un nouveau noyau de l'élément  $Z = 113$  à RIKEN [Mor12] a relancé le questionnement à propos de sa nomination.

Près de 150 ans après la proposition de D. Mendeleïev, plusieurs expériences sont prévues à travers le globe pour synthétiser plus d'isotopes d'éléments  $Z \geq 110$ , voire pour atteindre les actuels "Saint-Graal" de la discipline : les éléments  $Z = 119$  et  $Z = 120$  (voir la discussion à propos du futur du domaine dans [Zag13]). Ainsi, 73 ans et 26 nouveaux éléments après la première synthèse d'un noyau transuranium, cette compétition en vue de produire les noyaux les plus lourds a toujours lieu.

## 1.2.2 Les éléments les plus lourds dans la nature

Les éléments les plus lourds connus ont certainement été synthétisés soit par explosion d'une bombe thermonucléaire, soit par fusion entre deux noyaux plus légers. On peut toutefois se questionner sur leur présence à l'état naturel et comment ils ont pu être produits.

### 1.2.2.1 Nucléosynthèse des éléments les plus lourds

Si les éléments les plus lourds existent ou ont existé, ils ont pu être synthétisés par le processus-r [Bur57] lors de l'explosion d'une supernovæ ou quelques centaines de secondes après le Big Bang. Ce processus consiste en une succession de captures neutroniques initiée à partir de noyaux situés vers l'élément fer. Lorsqu'un noyau fissile est produit, les deux fragments légers induits peuvent à leur tour contribuer au processus en capturant des neutrons. Des noyaux stables lourds sont produits lorsque le système refroidit grâce à une succession de désintégrations  $\beta^-$ . Des conditions particulières de densité de neutrons et de température très élevées sont requises. Les paramètres intervenant dans ce processus, comme les valeurs des barrières de fission, des énergies de séparation et des chaleurs de réaction ne sont pas connues expérimentalement pour les noyaux riches en neutrons. Les modélisations théoriques présentent donc, pour l'instant, de grandes incertitudes [Pet12].

D'autres hypothèses pour la nucléosynthèse des éléments les plus lourds ont été proposées : les fusions entre ions lourds après l'explosion d'une supernovæ, la décompression de matière froide d'une étoile à neutrons ou par capture neutronique à l'intérieur d'une étoile à neutrons elle-même.



### 1.2.2.2 Recherche des éléments les plus lourds dans la nature

Si on suppose que des éléments très lourds ont été créés par nucléosynthèse, la question de leur survie se pose. Il y a deux solutions pour qu'ils puissent être observés dans notre système solaire. La première nécessite que leurs temps de vie soient proches de ou supérieurs à l'ordre de grandeur de l'âge du système solaire. La deuxième solution est qu'ils soient plus récents et proviennent de l'extérieur de notre système. La première hypothèse est très peu probable puisque des calculs prédisent des temps de vie pour les noyaux superlourds allant au maximum jusqu'à un ordre de grandeur de la centaine d'années pour les noyaux sphériques (voir par exemple [Smo97]) et du millier à la dizaine de milliers d'années pour les noyaux déformés, ce qui est à comparer aux 4.6 milliards d'années d'âge du système solaire.

Des recherches ont été effectuées sur des échantillons provenant de sources diverses et variées. Des études ont été réalisées sur des échantillons d'origine extraterrestre comme des météorites ou des fragments lunaires ayant pu piéger des éléments d'intérêt. Des sources terrestres comme des échantillons riches en métaux lourds ou des sédiments marins, exposés par le passé aux rayonnements cosmiques, ont également été explorées. Les rayonnements cosmiques, pouvant acheminer des résidus d'explosion de supernovæ, ont été analysés.

Un candidat idéal pour être observé était l'élément  $Z = 108$  (hassium) pour lequel on attend un temps de vie similaire à l'âge du système solaire. Des recherches ont donc été réalisées sur des éléments du groupe chimique 8 (le groupe de l'hassium) principalement dans l'osmium mais sans succès.

Différentes techniques expérimentales ont été exploitées pour cette recherche comme la spectroscopie de masse ou la détection de fission spontanée. Certains travaux ont d'ailleurs plus porté sur les traces laissées par ces éléments dans des matériaux que sur la recherche des éléments eux-mêmes. Ces traces peuvent être dues par exemple à la fission, la décroissance  $\alpha$ , la multiplicité neutron, la richesse en neutrons des fragments ou l'énergie cinétique importante des fragments.

Une quantité importante de recherches dans ce domaine a été réalisé des années 1960 aux années 1980. Plusieurs revues de ces dernières ont été produites [Fle81, Fle85, Herr74]. En conclusion de ces études, aucune évidence formelle de la présence de ces éléments dans la nature n'a été publiée. Actuellement, le  $^{244}\text{Pu}$  ( $Z = 94$ ) demeure le noyau le plus lourd identifié dans la nature [Hof71].

## 1.3 Définition d'un noyau superlourd

Pour dénommer les éléments les plus lourds, on utilise très régulièrement le terme de "superlourd". Donner une définition à cette appellation n'est pas chose aisée. En effet, les définitions fournies par la littérature peuvent être très vagues et très différentes. Elles proviennent soit de critères arbitraires, soit des propriétés nucléaires voire du nombre de protons ou de nucléons.

La classification périodique des éléments de Mendeleïev permet de définir de manière rigoureuse plusieurs classes d'éléments grâce à leurs propriétés chimiques. On peut ainsi définir la série des actinides allant de l'actinium ( $Z = 89$ ) au lawrencium ( $Z = 103$ ) ainsi que la série

des transactinides du rutherfordium ( $Z = 104$ ) à l'élément  $Z = 121$ . Les éléments à partir de  $Z = 122$  sont souvent nommés superactinides. Il est également possible de définir des groupes démarrant à un élément donné tels que les transurania ( $Z \geq 92$ ), les transfermia ( $Z \geq 100$ ), les transnobelia ( $Z \geq 102$ ), etc. Cependant, utiliser une telle classification n'est pas exact en physique nucléaire car les propriétés peuvent évoluer très rapidement le long d'une chaîne isotopique. De plus, des propriétés nucléaires similaires sont observables entre des noyaux de numéro atomique relativement différent.

Des noyaux superlourds peuvent aussi être définis comme les noyaux appartenant strictement à l'hypothétique îlot de stabilité superlourd centré autour d'un nouveau noyau doublement magique (voir la Section 1.4). Cependant, une des définitions de plus en plus admises par la communauté est celle discutant de la stabilité et de l'existence même des noyaux superlourds.

À l'intérieur d'un noyau, les nucléons sont liés entre eux par l'interaction forte dont la portée est très courte (de l'ordre du femtomètre). Cette force est très intense et rend les noyaux remarquablement stables malgré l'action de la force coulombienne qui est répulsive. Cette dernière, de portée infinie, s'exerce uniquement sur les particules chargées électriquement du noyau (les protons) et tend donc à les séparer. L'existence même d'un noyau est donc régie par un équilibre subtil entre la force nucléaire attractive et la force coulombienne répulsive.

Les connaissances limitées de la nature des forces nucléaires ont amené à tenter de comprendre les noyaux par analogie avec des modèles. La première représentation concrète satisfaisante du noyau a été obtenue avec le Modèle de la Goutte Liquide [Wei35]. Il est basé sur une description du noyau sous la forme d'une goutte liquide nucléaire. Ceci est issu de l'observation d'un comportement régulier de l'énergie de liaison par nucléon en fonction de la masse (si l'on excepte les variations aux alentours des nombres magiques qui sont discutés plus loin). La valeur de l'énergie dépend des nombres de nucléons.

Dans cette description, plusieurs termes sont pris en compte : un terme de volume correspondant aux forces de cohésion nucléaire (proportionnel au volume donc au nombre de nucléons  $A$  du noyau - car le rayon du noyau peut être approximé par  $r \approx r_0 \cdot A^{1/3}$  avec  $r_0 \approx 1.3$  fm), un terme d'énergie superficielle (proportionnel à la surface donc à  $A^{2/3}$ ), un terme d'énergie coulombienne répulsive s'exerçant entre les  $Z$  protons du noyau (proportionnel à  $\frac{Z^2}{A^{1/3}}$ ), un terme d'asymétrie car le liquide nucléaire est un mélange entre protons et neutrons (dépendant d'une différence entre le nombre de protons  $Z$  et de neutrons  $N$ ) et un terme d'appariement  $\delta(A, Z)$  dépendant de la parité du nombre de protons et de neutrons. La formule, appelée formule de Bethe-Weizsäcker, permettant de calculer l'énergie de liaison  $B(A, Z)$  est, d'après [Kran88], définie par :

$$B(A, Z) = a_v \cdot A - a_s \cdot A^{2/3} - a_c \cdot \frac{Z \cdot (Z - 1)}{A^{1/3}} - a_a \cdot \frac{(A - 2 \cdot Z)^2}{A} - \delta(A, Z) \quad (1.1)$$

où les coefficients ont été déterminés empiriquement :  $a_v = 15.75$  MeV,  $a_s = 17.8$  MeV,  $a_c = 0.711$  MeV et  $a_a = 23.7$  MeV. Le terme  $\delta(A, Z)$  permet de tenir compte de l'appariement des nucléons, nul pour  $A$  impair, valant  $+f(A)$  pour  $Z$  et  $N$  impairs et  $-f(A)$  pour  $Z$  et  $N$  pairs ; avec  $f(A) = 11.18 \cdot A^{-1/2}$  MeV (valeurs des coefficients provenant de [Roh94]).

Ce modèle permet notamment de comprendre les principales caractéristiques de la fission nucléaire et d'expliquer les valeurs des sections efficaces de capture. En première approximation, il décrit bien l'évolution de l'énergie de liaison nucléaire ; en particulier sa forme en cloche. Toutefois, il ne reproduit pas les oscillations d'origine quantique, ni les états excités nucléaires.

Pour des numéros atomiques élevés, ce modèle montre une limite de la stabilité nucléaire. Cet aspect était déjà discuté par N. Bohr en 1939 [Boh39]. Il prédit des temps de vie plus courts que les observations expérimentales aux alentours de  $Z = 100$ . L'énergie de liaison diminue fortement et passe en-dessous de zéro pour  $Z \approx 104$ . Pour ces noyaux, la répulsion coulombienne est de fait supérieure à celle de l'énergie de surface : ils ne devraient pas survivre pendant un temps fini. Pourtant, ces noyaux sont observés expérimentalement. En fait, ils existent uniquement grâce à des effets de couches nucléaires, d'ordre quantique, qui apportent un surplus de stabilité et créent ainsi un puits de potentiel suffisamment important pour permettre d'obtenir des temps de vie raisonnables.

La Figure 1.3 illustre ce phénomène. Elle présente l'énergie potentielle sans et avec effets de couches ajoutés à la barrière calculée avec le modèle de la Goutte Liquide en fonction de la déformation du noyau (voir la Section 2.4.1). Sans effet de couches (en haut de la figure), un puits de potentiel existe pour les noyaux d'uranium et de californium. Pour les noyaux les plus lourds, à partir de  $Z = 104$ , ce puits devient trop faible pour permettre au noyau de survivre. Le puits est inexistant pour des numéros atomiques plus importants. Avec des effets de couches (en bas de la figure), on observe l'apparition de structures générant un ou plusieurs puits de potentiel permettant la survie des noyaux les plus lourds pendant un temps de vie fini. Il s'agit de barrières de fission. Les éléments les plus lourds ne pourraient donc pas exister sans cet apport quantique.

Il peut être débattu que pour produire un élément chimique, le système nucléaire composite doit survivre plus de  $10^{-14}$  seconde [Harv76]. Ce temps est typique pour la formation d'un noyau composé ou d'une molécule telle que celle d'hydrogène. En fait, il s'agit du temps nécessaire pour que le noyau capture suffisamment d'électrons pour être un atome, neutre électriquement. Ainsi, un noyau superlourd peut être défini comme un noyau pour lequel la barrière macroscopique de fission calculée avec le modèle de la Goutte Liquide originel [Wei35] mène à un temps de vie inférieur à cette limite.

La frontière des noyaux superlourds peut donc, en se basant sur ce raisonnement, être positionnée au numéro atomique  $Z = 104$  [Scha06]. Le premier des noyaux superlourds est donc le rutherfordium. Cette définition est utilisée pour la suite de cette thèse. Toutefois, il faut noter que ce numéro atomique est modèle-dépendant. Il varie typiquement entre  $Z = 100$  et  $Z = 104$  selon le modèle utilisé.

D'un point de vue chimique, la définition de la frontière des noyaux superlourds est également fixée à  $Z = 104$ , le premier des éléments transactinides.

On note que l'on utilise régulièrement l'appellation noyaux "très lourds" conjointement avec celle de superlourds. Elle est généralement attribuée aux éléments plus lourds que l'uranium ( $Z = 92$ ) mais plus légers que le rutherfordium ( $Z = 104$ ). Le terme de "noyaux trans-fermia" est utilisé usuellement pour les éléments à partir ou au-delà du fermium ( $Z = 100$ ), bien qu'on l'utilise rarement au-delà du seaborgium ( $Z = 106$ ).

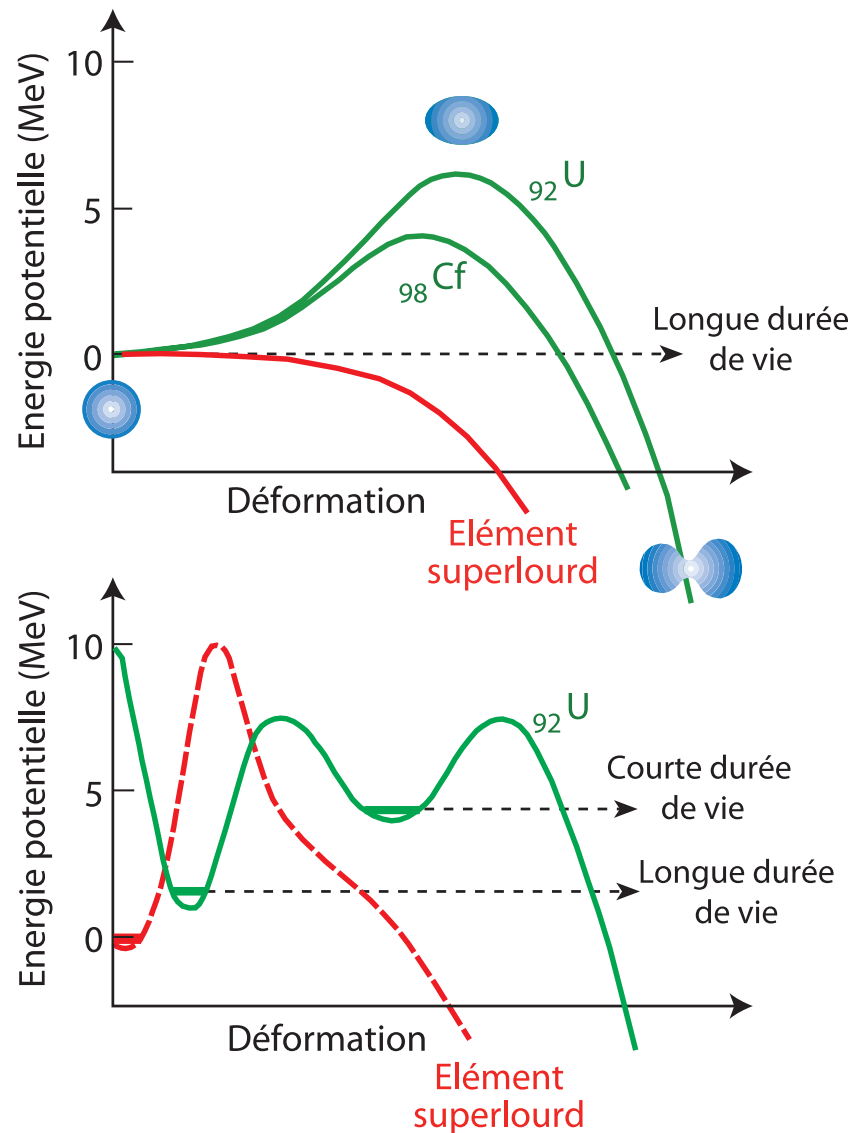


Figure 1.3: Représentation pédagogique des énergies potentielles de noyaux très lourds. Les barrières ne prenant en compte que les effets macroscopiques (Modèle de la Goutte Liquide) sont tracées sur la partie haute. En ajoutant les effets de couches nucléaires (voir la partie basse), des barrières présentant des puits de potentiel sont obtenues. Sans ces derniers, les éléments superlourds (en rouge) ne pourraient pas exister (d'après [Oga04b]).

*Pedagogical representation of potential energies for very heavy nuclei. The barriers taking into account only the macroscopic effects are drawn on the top. Adding the nuclear shell effects, one obtains the barriers plotted on the bottom where potential wells appear. Without them, the superheavy elements (in red) could not exist (based on [Oga04b]).*

## 1.4 Prédications de l'îlot de stabilité superlourd

Le modèle de la Goutte Liquide, présenté dans la section précédente, permet de paramétrer les propriétés macroscopiques des noyaux. Cependant, il n'explique pas les observations expérimentales simples telles que l'abondance naturelle des éléments. Cette dernière possède des maxima à certains nombres spécifiques de protons et de neutrons. De tels maxima apparaissent également en mesurant l'énergie de liaison des éléments. Dès les années 1940, des propriétés microscopiques ont été mises en évidence par des mesures de moments magnétiques, de propriétés collectives ou de temps de vie. Cela montre que le noyau doit être considéré comme un système quantique. En effet, les nucléons s'organisent en niveaux quantiques tout comme les électrons autour du noyau.

Les études systématiques ont révélé une stabilité accrue et une sphéricité des noyaux présentant un nombre de neutrons et/ou protons parmi cette liste : 2, 8, 20, 28, 50, 82 et 126. Les noyaux possédant un nombre de protons ou de neutrons de cette liste sont dits "magiques". Ces valeurs sont représentées sur la carte des nucléides (voir la Figure 1.1).

Pour tenter de comprendre ce phénomène, plusieurs modélisations ont été envisagées et testées. La première description microscopique satisfaisante a été obtenue via le Modèle en Couches développé par M. Goepfert-Mayer et J.H.D. Jensen en 1949 [May49, Hax49]. Il est basé sur un potentiel de type oscillateur harmonique auquel sont ajoutés les termes de couplage de moment angulaire et de couplage spin-orbite entre les nucléons. Dans ce modèle, les nucléons occupent des niveaux quantiques nucléaires dans un potentiel moyen créé par la matière nucléaire. Ces niveaux sont souvent caractérisés par la notion d'orbitale qui est définie par une énergie et une fonction d'onde - un raccourci est souvent pris entre les deux notions. L'effet de la contribution du spin-orbite conduit à un décalage dans les niveaux d'énergie neutrons et protons en fonction de leur spin [May50a, May50b].

Ce modèle a permis de mettre en exergue qu'il existe des écarts énergétiques importants entre les niveaux quantiques (dits "gaps") au niveau des nombres magiques, qui confèrent une stabilité supplémentaire aux noyaux concernés. Ce phénomène se manifeste par de l'énergie de liaison additionnelle. Ce modèle reproduit les nombres magiques et leur influence jusqu'au noyau de  $^{208}\text{Pb}$  ( $Z = 82$ ,  $N = 126$ ), le noyau doublement magique (c'est-à-dire magique à la fois en protons et en neutrons) le plus lourd connu à ce jour.

L'idée d'une extension de la carte vers les noyaux plus lourds a été émise pour la première fois par J.A. Wheeler en 1955 [Whe55, Wer58]. Il a proposé un "îlot de stabilité superlourd" centré autour d'un nouveau noyau doublement magique. Les noyaux de cette zone auraient une stabilité relative plus importante que celle des noyaux alentours. On pourrait s'attendre à y observer des noyaux possédant des durées de vie élevées voire étant non-radioactifs. D'après les calculs présentés, l'îlot serait situé autour du noyau de  $^{310}126$  ( $Z = 126$ ,  $N = 184$ ).

Par la suite, plusieurs modèles plus complexes ont été développés pour coupler les approches macroscopiques et microscopiques. La déformation des noyaux y a également été prise en compte (voir la Sous-section 2.4.1). Elle est essentielle pour décrire la stabilité ainsi que les barrières de fission. Actuellement, on distingue deux catégories d'approches dans les modèles théoriques utilisés.

La première approche est celle du champ moyen. Elle suppose que les nucléons sont plongés dans un potentiel spécifique. La forme stable du noyau, pour laquelle l'énergie est

minimisée, est obtenue en variant la forme du potentiel. Les modèles les plus utilisés sont ceux dits de Nilsson [Nil55, Nil69] ou de Woods-Saxon (W.S.) [Woo55, Cwi94, Cwi96].

La forme du potentiel de Woods-Saxon, en fonction de la distance  $r$  par rapport au centre du noyau, est définie par :

$$V(r) = -\frac{V_0}{1 + \exp\left(\frac{\text{dist}(r; \beta; r_0)}{a}\right)} \quad (1.2)$$

où  $V_0$  représente la profondeur du puits de potentiel,  $a$  est la longueur représentant l'épaisseur de la surface du noyau et  $\text{dist}(r; \beta; r_0)$  est la distance d'un point  $r$  à la surface nucléaire définie en fonction de la déformation  $\beta$  avec un volume du noyau constant et un rayon à déformation nul de  $R_0 = r_0 \cdot A^{1/3}$ ;  $r_0 = 1.3$  fm.

Woods-Saxon Universal (W.S.U.) [Dud81] est une version de ce dernier prenant en compte les effets de la déformation du noyau et présentant un seul ensemble de paramètres optimisés dits "universels" qui extrapolent avec succès une grande quantité de données expérimentales. Les résultats calculés par ce modèle sont comparés dans cette thèse avec les résultats expérimentaux obtenus.

La seconde approche est celle des champs moyens auto-consistants. Une interaction effective entre nucléons  $y$  est utilisée. C'est un calcul qui permet de déduire le champ moyen, qui n'est pas fixé au préalable, via un processus itératif qui se stoppe lorsque la convergence est considérée comme atteinte. On peut citer deux modèles exploités dans le domaine des noyaux superlourds : Hartree-Fock-Bogoliubov (H.F.B.) [Dob84, Ben99, Ben03a, Ben03b, Afa11] ou le champ moyen relativiste (soit Relativistic Mean Field, R.M.F.) [Lal97, Kru00, Ben01]. Il existe pour ces modèles un ensemble de "forces" qui ont chacune leurs paramètres propres.

Ces différents modèles prédisent tous l'existence d'un îlot de stabilité superlourd. Cependant, comme on peut le voir sur le Tableau 1.1, ils ne sont pas en accord sur le positionnement du nouveau noyau doublement magique sur la carte des nucléides. Le tableau est complété par les coordonnées calculées à l'aide du Modèle de la Gouttelette Liquide à Portée Finie (Finite Range Droplet Model) [Mol95]. Certaines de ces coordonnées peuvent être observées au centre des puits de potentiel sur les représentations de la Figure 1.4 qui compare plusieurs modèles récents. Plusieurs résultats de ces modèles sont présentés dans la Référence [Ben13].

Modèle	$Z$	$N$	Référence
Nilsson	114	184	[Fir96]
Woods-Saxon	114	184	[Cwi96]
Woods-Saxon Universal	126	184	[Cwi96]
Finite Range Droplet Model	114	178	[Cwi96]
Hartree-Fock-Bogoliubov	126	184	[Ben01]
Realistic Mean Field	120	172	[Ben01]

Tableau 1.1: Nombres magiques sphériques prédits par différents modèles théoriques pour le nouveau noyau doublement magique situé au sein de l'îlot de stabilité superlourd.

*Predicted spherical magic numbers by different theoretical models for the new double-magic nucleus situated at the center of the superheavy island of stability.*

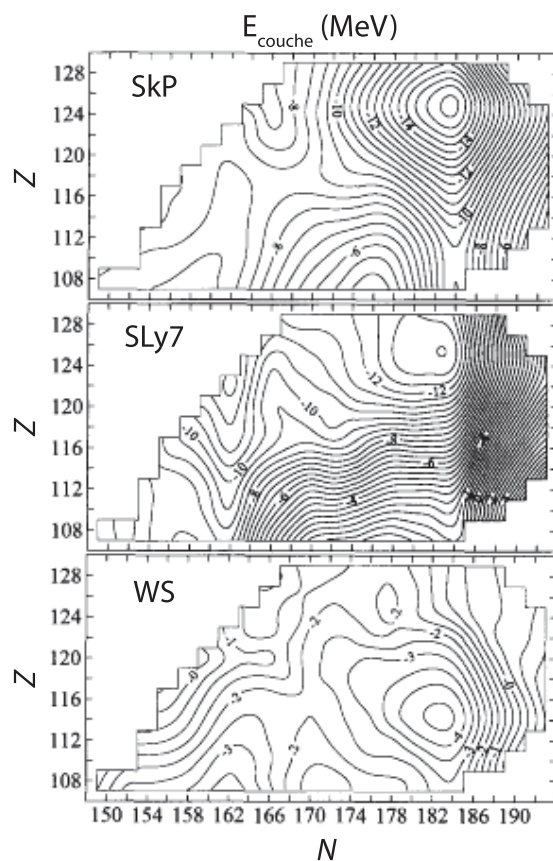
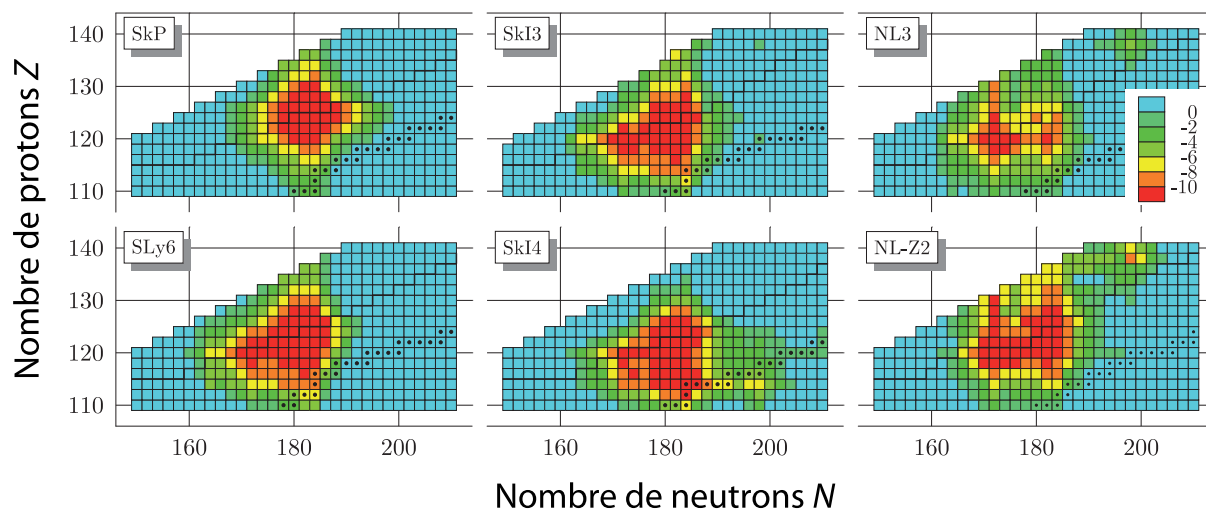


Figure 1.4: Comparaison de l'emplacement de l'îlot de stabilité superlourd entre différentes modélisations de type H.F.B., R.M.F. et W.S. (d'après [Cwi96, Ben01]). On observe clairement un étalement de l'îlot plus ou moins important en fonction du modèle et de la force utilisés.

*Comparison of the superheavy island of stability position for different models: H.F.B., R.M.F. and W.S. (based on [Cwi96, Ben01]). One clearly observes a spreading of the island depending on the used force and model.*

Les désaccords entre les différents modèles sont généralement attribués au traitement et à la nature de l'interaction spin-orbite [Ben01]. De manière plus générale, on peut se demander quel modèle conduit aux bonnes prédictions, et donc plus précisément quelle est la nature de l'interaction nucléaire dans cette région extrême en masse.

Toutefois, les modèles s'accordent sur la nature "molle" de l'îlot de stabilité superlourd sphérique. On ne s'attend pas à un noyau doublement magique au caractère aussi prononcé que pour celui de  $^{16}\text{O}$  ou de  $^{208}\text{Pb}$  qui possèdent un premier état excité haut en énergie. Il faut donc plutôt penser à une région de stabilité renforcée par des effets de couches. On peut difficilement parler de fermeture de couche dans cette configuration. L'appellation d'îlot est donc plutôt appropriée. On peut observer ce phénomène sur la Figure 1.4. La forme de l'îlot dépend également des paramétrisations utilisées dans les différents modèles : SkP, SkI3, SkI6, SLy6 et SLy7 pour Hartree-Fock-Bogoliubov et NL3 et NL-Z2 pour le champ moyen relativiste [Cwi96, Ben01].

Une explication de ce phénomène est proposée dans [Ben01]. D'après des calculs de modèles auto-consistants, l'effet très prononcé des gaps sphériques disparaît au-delà de  $Z = 82$  et de  $Z = 126$ . A la place, de larges zones de stabilité apparaissent pour les masses élevées. Cela est dû à la densité des particules individuelles qui y est plus importante ainsi qu'à l'apparition de nombreuses couches de bas  $J$  autour du niveau de Fermi. On ne s'attend donc pas à observer des gaps superlourds aussi robustes que les gaps du noyau de  $^{208}\text{Pb}$ .

Il est aussi légitime de se questionner sur la validité de ces modèles loin de la stabilité et surtout si l'îlot existe effectivement. Il n'y a actuellement pas de réponse à cette question et cette réponse proviendra sûrement des expériences réalisées dans cette région. Etudier expérimentalement au fur et à mesure les caractéristiques des noyaux accessibles permet d'affiner les modèles voire d'écarter les modèles défaillants. Les ajustements qui en découlent se répercutent sur l'ensemble des prédictions de chaque modèle.

## 1.5 Intérêt de l'étude des noyaux transfermia

Il y a plusieurs objectifs principaux à l'étude des noyaux les plus lourds. Premièrement, il s'agit d'essayer de mieux cerner voire de découvrir l'hypothétique îlot de stabilité superlourd. Cela permettrait en outre de discuter s'il y a une continuation de la périodicité des nombres magiques et peut être d'ouvrir la voie à une nouvelle région à étudier en détails. Deuxièmement, on tente de définir s'il existe une limite à la stabilité nucléaire, et ainsi définir quel est l'élément le plus lourd qu'il est possible d'atteindre. Troisièmement, on cherche à acquérir une meilleure compréhension de la structure nucléaire fine dans un des ses extrêmes, la masse, grâce à des informations spectroscopiques.

Dans ce contexte, deux domaines sont actuellement étudiés intensivement par la communauté : la synthèse des éléments les plus lourds et l'étude spectroscopique des noyaux transfermia.

A l'extrémité de la carte des noyaux, une vingtaine d'isotopes  $Z \geq 110$  ont été synthétisés pour l'instant. Ils n'ont toutefois pas permis de mettre à jour l'évidence de l'îlot. L'étude de cette région pose deux problématiques techniques majeures. Le premier inconvénient est



qu'il est nécessaire de disposer d'un couple cible-projectile adéquat. Actuellement, il est ainsi possible d'accéder uniquement à un nombre restreint de nouveaux isotopes. Ces derniers ne sont pas assez riches en neutrons pour se rapprocher des nombres magiques proposés par les modèles.

Le second problème provient de la chute drastique de la section efficace de production de ces noyaux. Sur la Figure 1.5, la valeur maximale de cette caractéristique est tracée pour chaque isotope connu à partir de  $Z = 96$ . Dans la région de  $Z = 102$  à  $Z = 112$ , elle décroît de pratiquement un ordre de grandeur par numéro atomique pour descendre en-dessous de l'ordre de grandeur du picobarn. Toutefois, elle remonte pour atteindre un maximal local autour de  $Z = 114$ . Elle semble ensuite redescendre. Ce sursaut de section efficace pourrait être dû à l'influence du gap superlourd sphérique autour de  $Z = 114$ , une valeur prédite par certains modèles. Un excès de stabilité serait apporté aux noyaux de cette région par cette couche. Il s'agirait alors d'un premier indice de l'îlot de stabilité superlourd. Cette encourageante information indique qu'il serait intéressant d'essayer d'explorer les noyaux plus riches en neutrons autour de  $Z = 114$  dès que ça serait techniquement possible.

Etant donné les très faibles sections efficaces, plusieurs mois d'expérience sont souvent nécessaires pour synthétiser un élément avec une statistique de quelques noyaux dans cette région. Comme ces éléments sont produits en très faible quantité, les seules informations qu'il est possible d'obtenir avec cette catégorie d'expériences sont le type de décroissance, l'énergie de décroissance et le temps de demi-vie. Il n'est en effet pas possible d'obtenir des informations sur les orbitales individuelles.

Plus bas en masse dans la carte des nucléides, les noyaux transfermia possèdent des sections efficaces de production plus importantes. Ainsi, plusieurs centaines voire milliers de noyaux peuvent être produits en l'espace de quelques jours. Il est possible d'étudier les excitations collectives et individuelles de ces noyaux. Les caractéristiques ainsi que les méthodes d'étude des noyaux transfermia sont détaillées dans les Chapitres 2 et 3.

L'intérêt de la région des éléments transfermia dans la quête des noyaux superlourds peut être expliqué en se basant sur les Figures 1.6 et 1.7. Il s'agit des schémas de niveaux énergétiques des orbitales des particules individuelles respectivement pour les protons et les neutrons en fonction du coefficient de déformation quadrupolaire  $\beta_2$  (voir la Sous-section 2.4.1). J'ai tracé ce diagramme à partir de calculs réalisés par D. Rouvel et J. Dudek [Rou13] grâce au modèle "Woods-Saxon Universal" [Dud81] pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ .

A déformation nulle ( $\beta_2 = 0$ ), c'est-à-dire quand le noyau est considéré comme sphérique, on observe des écarts d'énergie importants. Sur la figure des protons, les gaps  $Z = 82$  et  $Z = 92$  correspondent à ceux des éléments plomb (dernier élément possédant un isotope stable) et uranium (élément possédant des isotopes de très longs temps de demi-vie). Le gap mis en avant en rouge correspond à l'îlot de stabilité superlourd à  $Z = 126$ . Il devrait indiquer la position d'un noyau très stable pour la région.

La déformation du noyau a une influence sur les positions des orbitales nucléaires à une particule. Ainsi, elle entraîne une levée de dégénérescence des orbitales de même moment angulaire  $J$  comme on peut le voir sur la figure. On note que, dans ce type de noyaux déformés, les orbitales de grand moment angulaire  $J$  sont d'autant plus sensibles à la déformation. Ainsi, certaines orbitales appartenant à la couche  $N$  (le nombre quantique principal) se retrouvent

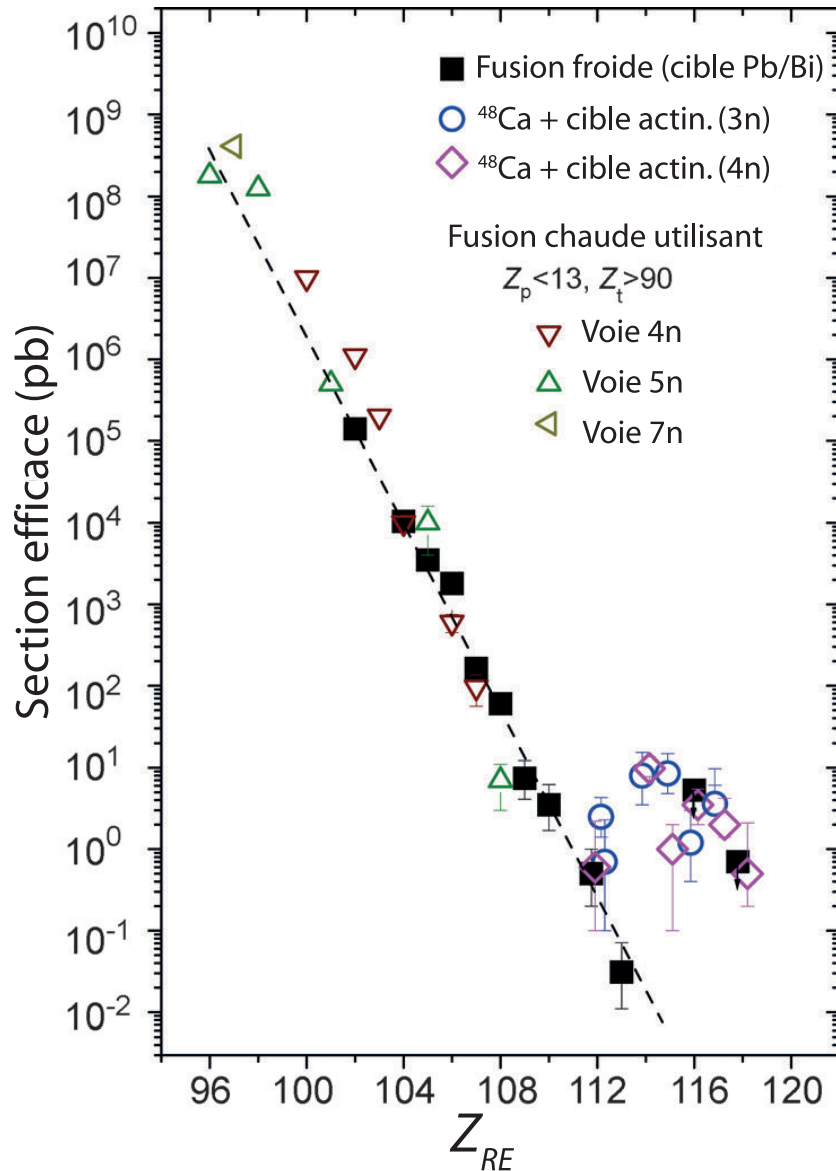


Figure 1.5: Systématique des sections efficaces de production maximales pour chaque isotope observé des éléments  $Z \geq 96$  (d'après [Hes13]).

*Systematics of maximal production cross sections for any observed isotope with atomic number  $Z \geq 96$  (based on [Hes13]).*

localisées en énergie dans une couche correspondante à  $N - 1$  ou  $N - 2$ . C'est pour cela qu'elles sont régulièrement appelées orbitales intruses. De plus, le comportement en rotation des noyaux peut être fortement influencé par la présence de telles orbitales autour de la surface de Fermi. L'éclatement et le déplacement des orbitales de même  $J$  entraînent l'apparition de nouveaux gaps par l'effet de la déformation. Ces gaps sont dits déformés contrairement aux gaps sphériques qui correspondent à une déformation nulle. Tous ces phénomènes sont également observés dans la structure des noyaux superdéformés [Gall99].

Sur la Figure 1.6, on peut observer, en suivant la ligne rouge, que l'orbitale pro-

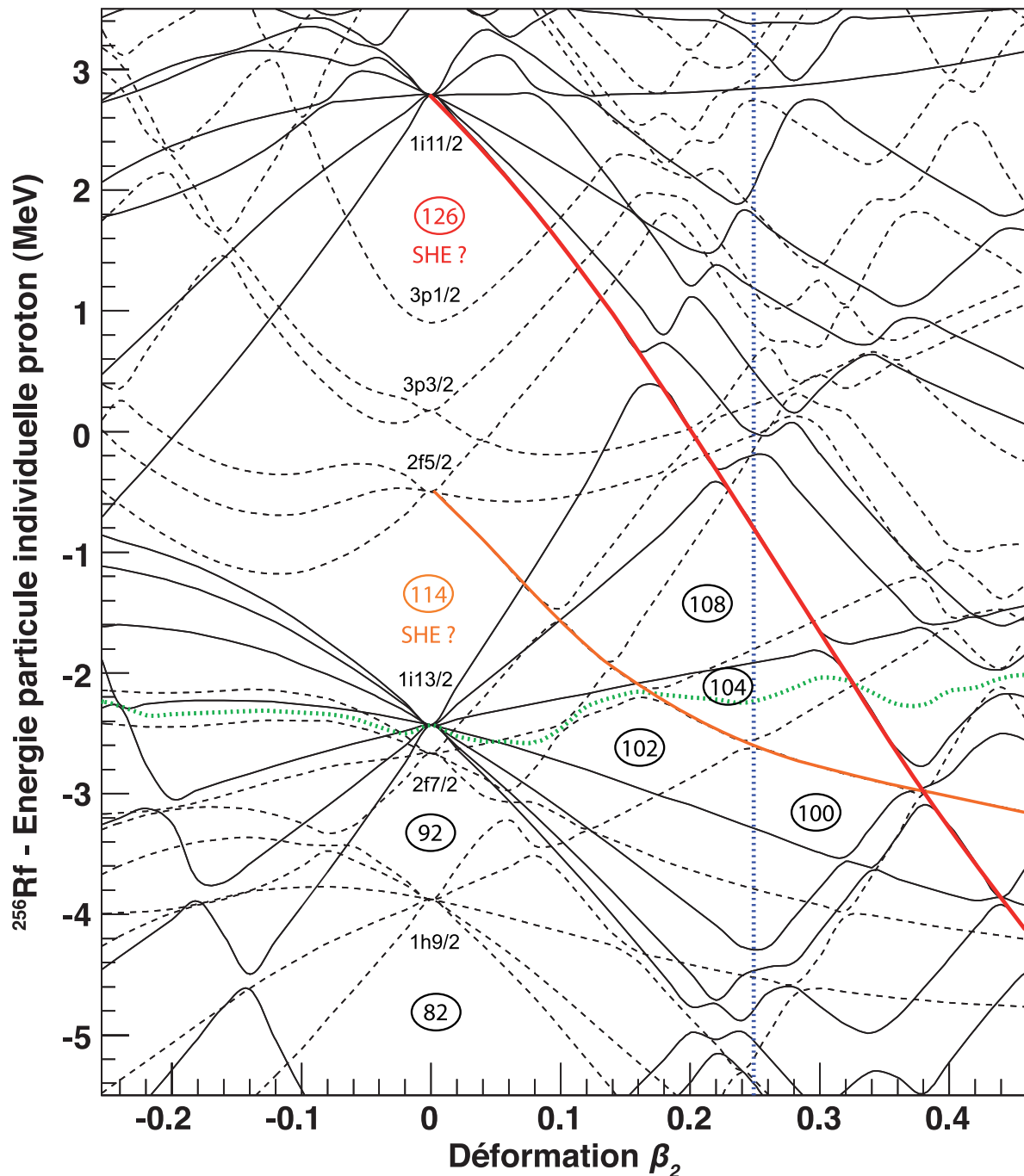


Figure 1.6: Schéma des orbitales des particules individuelles protons pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  en fonction du coefficient de déformation quadrupolaire  $\beta_2$ . Il a été calculé grâce au modèle "Woods-Saxon Universal" [Rou13]. Des gaps candidats superlourds sont situés à  $Z = 114$  et à  $Z = 126$ . Par l'action de la déformation, les orbitales fermant ces gaps sont rapprochées de la surface de Fermi des noyaux transfermia.

*Energy level diagram for the proton single-particles of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus as a function of the quadrupolar deformation coefficient  $\beta_2$ . It was calculated using the "Woods-Saxon Universal" model [Rou13]. Thank to the deformation effect, the orbital closing the gap become close to the Fermi surface of the transfermia nuclei.*

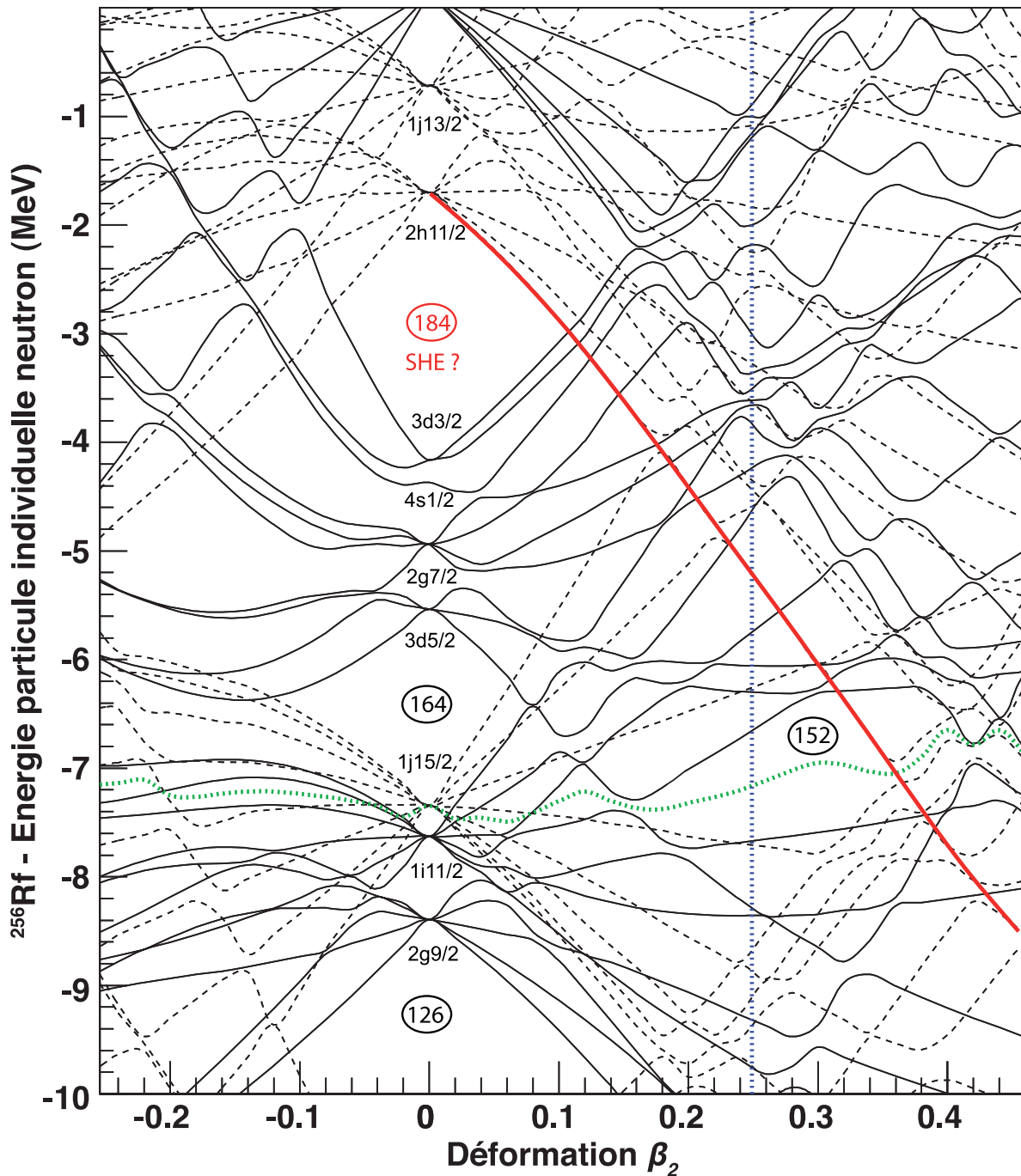


Figure 1.7: Schéma des orbitales des particules individuelles neutrons pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  en fonction du coefficient de déformation quadrupolaire  $\beta_2$ . Il a été calculé grâce au modèle "Woods-Saxon Universal" [Rou13]. Le gap superlourd est situé à  $N = 184$ . Par l'action de la déformation, l'orbitale fermant ce gap est rapprochée de la surface de Fermi des noyaux transfermia.

*Energy level diagram for the neutron single-particles of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus as a function of the quadrupolar deformation coefficient  $\beta_2$ . It was calculated using the "Woods-Saxon Universal" model [Rou13]. The superheavy gap is situated at  $N = 184$ . Thank to the deformation effect, the orbital closing the gap becomes close to the Fermi surface of the transfermia nuclei.*

ton  $\pi 1i_{11/2}[640]1/2^+$ <sup>1</sup> ferme le gap sphérique superlourd à  $Z = 126$  ainsi que des gaps déformés (comme  $Z = 108$  et  $Z = 104$ ). On peut également observer sur la même figure, en suivant la ligne orange, que l'orbitale proton  $\pi 2f_{5/2}[521]1/2^-$  ferme un gap sphérique superlourd à  $Z = 114$  ainsi que des gaps déformés (comme  $Z = 102$  et  $Z = 100$ ). Un de ces deux grands gaps déformés,  $Z = 114$  ou  $Z = 126$ , pourrait être le gap situé au sein de l'îlot de stabilité. Ces deux valeurs sont proposées par plusieurs modèles comme on peut le voir dans le Tableau 1.1.

On observe un comportement similaire pour les neutrons sur la Figure 1.7. Un gap superlourd est situé à  $N = 184$  et est fermé par l'orbitale  $\nu 2h_{11/2}[761]1/2^-$ . Cette dernière ferme le gap déformé  $N = 152$  qui semble particulièrement robuste.

On note que cette discussion sur les orbitales est réalisée pour une fréquence de rotation du noyau nulle. En effet, les niveaux quantiques sont dégénérés avec la rotation et leurs énergies sont ainsi modifiées.

D'autres modèles, comme celui de Hartree-Fock-Bogoliubov, présentent le même comportement en terme d'orbitales. Toutefois, les orbitales et les nombres de nucléons définissant les gaps superlourds ne sont pas forcément identiques en fonction du modèle.

Ainsi, en plus de l'îlot de stabilité sphérique, les modèles théoriques prédisent une région où les noyaux sont stabilisés par la déformation. Ce phénomène modifie l'ordre énergétique des orbitales et leur espacement ce qui crée de nouveaux gaps déformés, vers  $\beta_2 = 0.2-0.3$  autour de  $Z \approx 100-102$  et  $N \approx 152$ , c'est-à-dire au plein cœur de la zone des noyaux transférmiia. On observe justement la prédiction de gaps  $Z = 100-102-104$  sur la figure des protons. Un gap important à  $N = 152$  est observable sur le tracé des orbitales neutrons.

L'idée est donc de déterminer la position, l'ordre et la nature de ces orbitales qui sont actuellement accessibles expérimentalement en étudiant les noyaux transférmiia. Il est de ce fait possible d'étudier la structure des particules individuelles, l'appariement, la forme nucléaire et les modes d'excitations de ces noyaux. Ces aspects sont discutés dans le Chapitre 2. Ces informations peuvent ensuite être utilisées pour contraindre et tester les modèles actuels, ceux mêmes qui prédisent l'îlot de stabilité. Ils sont ensuite affinés au fur et à mesure des résultats expérimentaux obtenus. Certains modèles ou forces peuvent ainsi être exclus. Par itération, le placement et la morphologie du gap superlourd peuvent être mieux cernés, ce qui permet de se rapprocher de l'éventuel îlot de stabilité.

Des preuves expérimentales de la présence des gaps déformés ont déjà été mis en évidence; en particulier, au niveau des gaps  $Z \approx 100$  et  $N \approx 152$ . L'objectif central de cette thèse était l'étude du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  en vue d'apporter de nouvelles informations importantes pour la compréhension de la structure nucléaire dans cet extrême de masse grâce à une meilleure connaissance du placement des orbitales individuelles et des gaps déformés dans cette région. Grâce à la première étude spectroscopique prompt et retardée simultanée d'un noyau superlourd, l'influence des gaps  $Z \approx 104$  et  $N \approx 152$  a pu être étudiée et est discutée dans cette thèse.

---

1. La notation utilisée consiste en l'association de celle valable dans le cas sphérique et de celle asymptotique de Nilsson qui est valable pour les très hautes déformations. Aucune de ces notations n'est correcte à la déformation du noyau étudiée mais elles permettent rapidement de situer l'orbitale discutée.

# Physique des noyaux transfermia

---

## Sommaire

---

<b>2.0</b>	<b>Summary</b>	<b>46</b>
<b>2.1</b>	<b>Réaction de fusion-évaporation</b>	<b>49</b>
2.1.1	Introduction	49
2.1.2	Voies de réactions possibles	50
2.1.3	Déexcitation d'un noyau composé	51
2.1.4	Energies et section efficace	53
2.1.5	Fusions froide et chaude	56
<b>2.2</b>	<b>Les modes de déexcitation des noyaux transfermia</b>	<b>58</b>
2.2.1	Le rayonnement $\gamma$	58
2.2.2	La conversion interne	59
<b>2.3</b>	<b>Les modes de décroissance des noyaux transfermia</b>	<b>62</b>
2.3.1	La décroissance $\alpha$	63
2.3.2	La décroissance $\beta$	63
2.3.3	Fission spontanée	64
<b>2.4</b>	<b>L'étude de la collectivité</b>	<b>65</b>
2.4.1	Déformation d'un noyau	65
2.4.2	L'excitation d'un noyau de déformation quadrupolaire	66
2.4.3	Rotation collective	68
2.4.3.1	Approche vectorielle	68
2.4.3.2	Cas statique	69
2.4.3.3	Moments d'inertie cinématique et dynamique	71
2.4.3.4	Méthode de Harris	72
<b>2.5</b>	<b>L'isomérisme de haut-<math>K</math></b>	<b>74</b>
2.5.1	Différents types d'isomérisme	74
2.5.2	Etats de quasiparticules	76
2.5.3	Les règles de Gallagher	76
2.5.4	La notion d'empêchement	77
2.5.5	L'isomérisme $K$ dans la région des noyaux superlourds	78
2.5.6	Cas des noyaux transfermia	79

---

## 2.0 Summary

Nuclear structure studies of several transfermium nuclei by means of  $\gamma$ -ray spectroscopy are possible thanks to the enhanced stability brought by deformed shell gaps in the vicinity of nobelium nuclei. Such studies can give access to knowledge on the nuclear force through precise information on single-particle orbitals around Fermi surface and also on the position of the hypothetical superheavy island of stability through theoretical models. Several observables underlying structures of rotational bands or high- $K$  isomers can be explored in this region.

The heaviest nuclei, including the transfermium nuclei, do not have sufficiently long life-time to exist on Earth. Therefore, they have to be synthesized in laboratories to be studied. These nuclei can be produced through fusion-evaporation reactions (see Figure 2.1); during this process an excited heavy compound nucleus is created by the fusion of a target and a projectile. For this reaction, the impact parameter and the kinetic energy of the projectile are very important parameters. Only the latter can be controlled and is chosen to be slightly under the Coulomb barrier in order to limit the impact of fission that may follow the fusion process. Indeed, out of all the possible exit channels, the major limitation of our channel of interest is fission, which has a cross section several orders of magnitude higher than that for fusion-evaporation.

The compound nucleus is produced at quite high excitation energy. Its de-excitation process is illustrated in Figure 2.2. The nucleus first undergoes decay through the emission of light particles. Transfermium nuclei typically emit a few neutrons, depending on the available excitation energy. When it is not possible to emit any more neutrons, the evaporation residues deexcite via electromagnetic radiation, namely statistical  $\gamma$ -rays followed by one or more cascades of discrete transitions. Study of the latter gives access to valuable information on the nuclear structure.

Several studies are necessary to optimize production of the nuclei of interest. For instance, excitation function measurements (determination of optimal beam kinetic energies) and determination of optimal target thickness usually precede an experiment (see Figure 2.3). The evaporation residue kinematics is also very important. Optimal beam kinetic energies are determined through measurement of the excitation functions. The region of transfermium nuclei is particularly interesting since some of them can be produced using doubly magic nuclei such as  $^{208}\text{Pb}$  or  $^{48}\text{Ca}$ . The magicity enforces stability to the reaction, leading to enhanced cross sections around the nucleus  $^{254}\text{No}$ . For example, the effect of the  $^{50}\text{Ti}$  neutron magicity can be shown in Figure 2.4.

There are two kinds of electromagnetic deexcitation in the transfermium region which are in competition:  $\gamma$ -ray and conversion electron. The first consists of the emission of a photon. This emission process obeys several conservation and selection rules and, depending on spins and parities of quantum states connected by a transition, can be electric or magnetic in character (see Table 2.1). Transition probability estimations were proposed by V. Weisskopf (see Table 2.2) and are usually used for comparison with experimental values.

During the electron conversion process, the transition energy is directly transferred to an electron of the atom. The charged particle is then emitted with an energy corresponding to the difference between the nuclear decay energy and the electron binding energy. The latter is related to the shell from which electron originates. Values for rutherfordium are given in

Table 2.3. The probability of this phenomenon depends on the transition type and increases with the depth of the nuclear shell and decreases with the transition energy. It also strongly increases with the atomic number, meaning that the conversion factors are quite high for the transfermium nuclei. Conversion factors for rutherfordium are plotted in Figure 2.5.

Radioactive decays are used as a probe to reveal information on the nuclear structure. In the transfermium region, one can observe nuclei that decay by  $\alpha$ -particles,  $\beta^+$ -particles and/or spontaneous fission. These decays are a powerful tool for selection of nuclei of interest. It is especially efficient for the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus where the fission decay branch is almost to 100%. Thanks to the energy sharing between fission fragments going in opposite directions of the 200 MeV released, selection efficiency is close to 100%.

Different nuclear shapes are present and observed in nature (see Figure 2.6). The transfermium nuclei studied with spectroscopy techniques, are typically produced in a deformed state. The energy ratios of  $4_1^+$  state to  $2_1^+$  state in the region (see Figure 2.7) show that the nuclei of interest are typically in a prolate shape in their ground-states. This enables collective rotation around an axis perpendicular to symmetry axis of the nucleus with a clear experimental signature of these rotational bands: spectra with regularly spaced electromagnetic transitions.

Thanks to the superfluidity brought by nuclear pairing correlations, the nucleus does not behave as a rigid body. Its inertia varies with the spin value. In order to study this evolution with respect to the rotational frequency, one can plot and study kinematic and dynamical moments of inertia. The corresponding formalism is detailed in this chapter.

We show, using the example of  $^{256}\text{Rf}$ , how to get information on the collective behaviour and the underlying nuclear structure such as absence of a deformed shell gaps and observation of alignment process. For this, we used the Harris method, commonly used to parameterize rotational bands and reproduce experimental moments of inertia. The method is based on a development of rotational energy in terms of powers of the rotational frequency. It also permits the extrapolation of the band in order to include unobserved low-lying transition energies. This method is commonly used for the transfermium region and was applied to the  $^{256}\text{Rf}$  rotational band analysis (see Chapter 5).

Another source of information in the transfermium region are the high- $K$  isomers, one of the existing types of isomerism in nuclei (see Figure 2.9). The quantum value  $K$  is the projection of the total angular momentum on a deformed nucleus symmetry axis (as illustrated in Figure 2.8). When the deformation axis is a good quantum axis, orbitals with a large value of  $K$  are strongly coupled to the nuclear deformation. Their alignment on the rotation axis induced by increasing the rotational frequency, implies the transfer of a large amount of angular momentum. On the other hand, decay from the corresponding rotational bandhead to the ground-state band is strongly hindered due to the large  $\Delta K$ . This generates high- $K$  isomers with quite large lifetimes.

The study of these high- $K$  states by spectroscopy techniques provides powerful information about the nuclear structure. Due to their large lifetimes, they can be well isolated from others radiation. Since their configurations are quite pure, determination of the  $K$  value of bandhead allows clear identification of underlying orbitals. The study of high- $K$  states provides strong arguments concerning the evolution of the single-particle levels in these nuclei.



It is possible to quantify the forbiddenness of an isomeric transition using the hindrance factor. It allows estimation of possible values of  $K$  and eventually allows a comparison of them with the known systematics. Based on the Löbner systematics presented in Figure 2.10, one can obtain a strong hint on a few possible values of  $K$ .

High- $K$  isomers are present in the transfermium region because the presence of a deformed shell gap (as the  $N = 152$  one). For instance, Figure 2.11 illustrates the observed states in the  $^{250}\text{Fm}$  nucleus. These states were intensively investigated over the last few years. Some cases such as the  $^{254}\text{No}$  and  $^{256}\text{Rf}$  have resulted in vigorous debates about the orbital attributions. Investigations of such states in the  $^{256}\text{Rf}$  are presented in Chapter 6 along with a corresponding interpretation.

Depuis la première étude spectroscopique  $\gamma$  prompt de  $^{254}\text{No}$  en 1998 [Rei99], les isotopes des éléments transfermia ( $Z \geq 100$ ) sont étudiés en détails par spectroscopie fine par la communauté de physique nucléaire. Ils sont particulièrement intéressants car ils donnent accès à des informations permettant de contraindre les modèles prédisant la structure nucléaire et ainsi d'avoir une meilleure idée du comportement et du placement sur la carte des nucléides de l'hypothétique îlot de stabilité superlourd (voir la Section 1.5).

Ce chapitre décrit les phénomènes typiquement observés dans ces noyaux ainsi que les méthodes expérimentales exploitées pour les étudier. La réaction de fusion-évaporation utilisée pour synthétiser ces isotopes est d'abord introduite. Par la suite, les différents modes de désexcitation et de décroissance de ces noyaux sont présentés avant de discuter des études de la collectivité des nucléons, en particulier la rotation collective. L'isomérisme de haut- $K$ , grande source d'informations dans la région, est ensuite introduit. Les techniques et les dispositifs expérimentaux utilisés pour accéder à ces types d'informations sont présentés dans le Chapitre 3.

## 2.1 Réaction de fusion-évaporation

### 2.1.1 Introduction

D'après les recherches réalisées jusqu'à maintenant, les éléments les plus lourds des actinides semblent ne pas posséder d'isotopes ayant un temps de vie suffisamment élevée pour être présents en quantité importante sur Terre (voir la Sous-section 1.2.2). Tout du moins, aucun signe de leur présence n'a été trouvé pour l'instant. Il est possible de synthétiser des noyaux lourds par irradiation neutronique dans une centrale nucléaire. Toutefois, seuls les éléments allant jusqu'au californium ( $Z = 98$ ) peuvent être produits en quantité suffisante pour pouvoir produire des cibles. Ainsi, pour pouvoir étudier les isotopes plus lourds, ayant généralement des temps de vie de l'ordre de la seconde voire moins, il est nécessaire de les synthétiser en laboratoire et de les étudier très rapidement après leur production sur place. La synthèse peut être réalisée par réaction de fusion-évaporation, la technique principalement exploitée actuellement. Elle a été proposée par N. Bohr en 1936 [Boh36]. Une grande partie du contenu de cette section proviennent des Références [Lac02, Lep05, Hen12, Dec12].

Cette réaction consiste à fusionner deux noyaux pour en former un plus lourd en projetant un faisceau de noyaux projectiles  $A$  sur une cible composée de noyaux  $B$ . La première difficulté qui s'impose est l'obtention des noyaux du couple cible-projectile qui doivent bien être disponibles dans la nature en quantité suffisante ou bien produits artificiellement. Certains noyaux lourds ne sont donc pas accessibles à cause de la non-disponibilité de noyaux cibles et/ou projectiles adéquats. La seconde difficulté de ce type de réaction est qu'elle présente des sections efficaces de production faibles, spécialement dans la région des noyaux superlourds, à cause des diverses voies de réaction possibles qui sont discutées ci-après.

Il existe plusieurs catégories de réactions de fusion-évaporations : projeter des ions légers sur une cible d'atomes lourds, les réactions en cinématique inversée (c'est-à-dire avec une cible de noyaux légers et un faisceau d'ions lourds) et les réactions symétriques utilisant deux noyaux de masses proches. La première catégorie est celle utilisée lors de la majorité

des expériences actuelles dans la région d'intérêt. En effet, elle propose un meilleur taux de production que les autres car les intensités de faisceau des ions légers sont actuellement plus importantes. De plus, elle est plus adaptée aux observables recherchées car elle permet d'atteindre des moments angulaires plus importants. Cette catégorie de réaction est discutée dans cette section.

La réaction de fusion-évaporation est une réaction séquentielle en plusieurs étapes, formulées par l'Equation 2.1. Elle est composée de quatre étapes [Zag04]. Premièrement, un noyau projectile A et un noyau cible B entrent en contact, c'est la phase dite de capture. Ce phénomène est très rapide car le projectile a besoin de l'ordre de  $10^{-21}$  seconde pour traverser la cible à une énergie de 4-5 MeV par nucléon [Bert04]. Ensuite, les deux noyaux fusionnent pour former un noyau composé NC très excité. Il va ensuite décroître par émission d'une ou plusieurs particules légères (principalement des neutrons n) pour former le noyau d'intérêt, appelé résidu d'évaporation RE. Ce dernier hérite du mouvement de recul du centre de masse, c'est pour cela qu'il est également nommé noyau de recul. Il va ensuite se désexciter en émettant des transitions électromagnétiques, généralement sous forme de rayonnements  $\gamma$  ou d'électrons de conversion (voir la Section 2.2).



## 2.1.2 Voies de réactions possibles

Lors du processus de réaction, l'ensemble des nucléons du couple cible-projectile peut passer par plusieurs configurations et emprunter plusieurs voies de sortie. En effet, elles sont toutes en compétition. La production d'un résidu d'évaporation n'est qu'une parmi elles. La voie qu'emprunte un couple cible-projectile dépend de la voie d'entrée de la réaction, du paramètre d'impact et de l'énergie cinétique du noyau projectile. La Figure 2.1 illustre les voies majoritaires possibles.

Lorsque le paramètre d'impact est plus grand que la somme des rayons du couple cible-projectile et si l'énergie est élevée par rapport à la barrière coulombienne, les deux noyaux se frôlent en échangeant de l'énergie. La réaction est dite quasi-élastique. Les deux noyaux s'éloignent l'un de l'autre en conservant leurs nucléons.

Si le paramètre d'impact est de l'ordre de la somme des rayons des deux noyaux, le système entre dans une phase dite dinucléaire. Dans ce cadre, une réaction de transfert peut se dérouler durant laquelle l'un des noyaux récupère plusieurs nucléons de l'autre. Cette dernière possibilité est la source de noyaux appelés produits de transfert, de masse proche de celle de la cible ou du projectile.

Si l'énergie de la réaction est élevée, une réaction de quasi-fission s'amorce. Elle mène à l'éjection de respectivement deux ou plusieurs fragments de tailles différentes de celles des noyaux d'origine. Ce processus dure environ  $10^{-20}$  seconde [Bert04].

Lorsque le paramètre d'impact est faible par rapport aux rayons nucléaires du couple cible-projectile, le système peut entrer dans une phase dinucléaire. Si l'énergie de la réaction est proche de la barrière coulombienne (voir la discussion ci-après), le système passe d'une phase dinucléaire à une phase dite mononucléaire où les nucléons des deux noyaux vont former un seul ensemble. Cela donne naissance à un noyau composé.

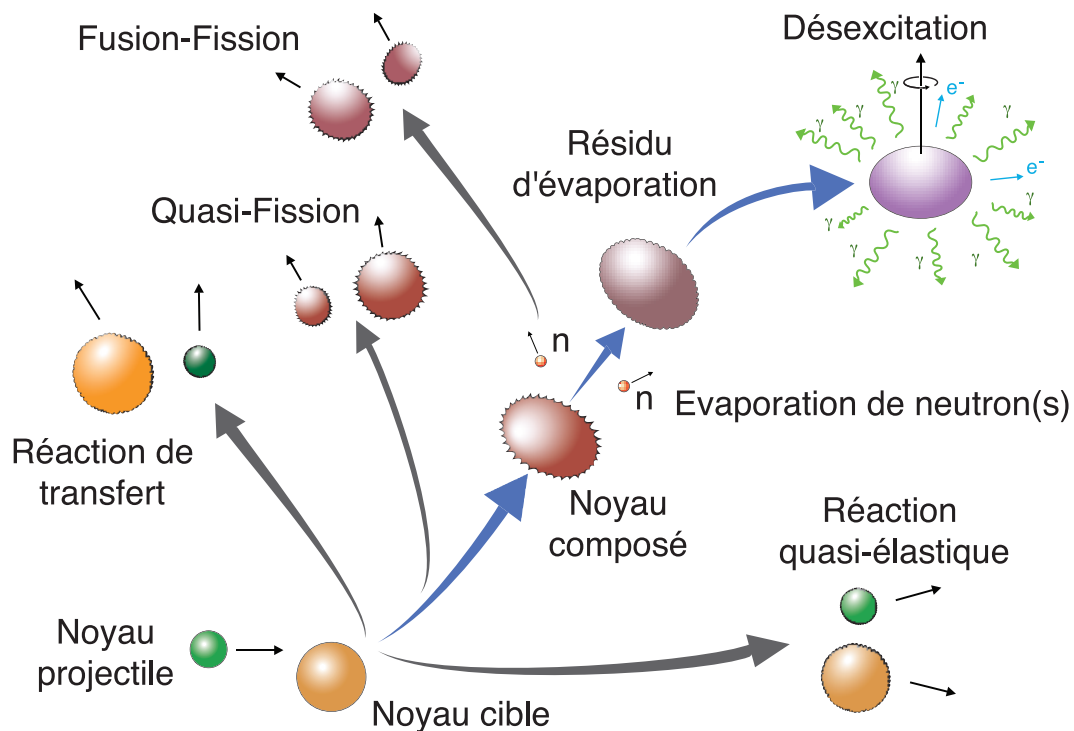


Figure 2.1: Différentes étapes d'une réaction de fusion-évaporation et les mécanismes de réaction en compétition.

*Different steps of a fusion-evaporation reaction and the reaction mechanisms in competition.*

Suite à la formation d'un noyau composé, la voie la plus probable dans la région des noyaux transfermia est la fission du noyau. Si le noyau a une énergie cinétique trop forte ou un moment angulaire trop important, il risque de se séparer en deux fragments de plus petites tailles. C'est ce qui est appelé la fusion-fission. Ce processus dure environ  $10^{-19}$  seconde [Bert04].

La réaction qui nous intéresse est l'évaporation de particules par le noyau composé qui donne le résidu d'évaporation. Elle se déroule si le noyau composé s'est formé, qu'il possède une énergie d'excitation relativement faible et qu'il ne fissionne pas.

La section efficace de production d'un résidu d'évaporation est dépendante de celles de fusion et des différents autres processus possibles. Elle est proportionnelle aux produits des probabilités de capture, de formation du noyau composé et de l'évaporation des neutrons. La probabilité de chaque étape est faible à cause de la forte compétition avec les autres processus. La fusion-évaporation est donc une voie de réaction très minoritaire, surtout pour les noyaux lourds.

### 2.1.3 Désexcitation d'un noyau composé

La désexcitation d'un noyau composé se réalise en plusieurs étapes. Elles sont schématisées sur un schéma de l'énergie d'excitation du noyau en fonction de son moment angulaire (voir la Figure 2.2).

Premièrement, des particules légères sont évaporées séquentiellement (en noir sur la

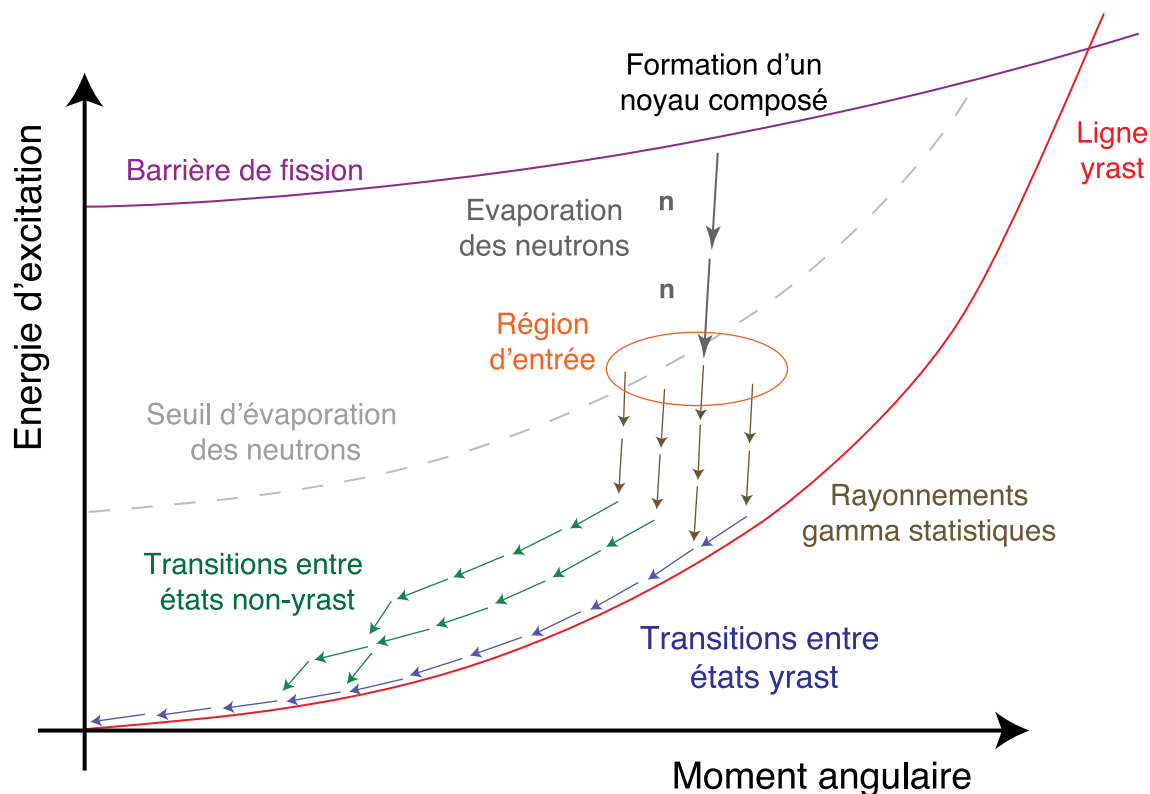


Figure 2.2: Représentation pédagogique du processus de désexcitation d'un noyau composé produit par réaction de fusion-évaporation.

*Pedagogical representation of the deexcitation process diagram for a compound nucleus produced by fusion-evaporation reaction.*

figure). Comme les neutrons ne sont pas sensibles à la force électromagnétique, leur évaporation est très fortement favorisée par rapport à celle de particules  $\alpha$ , de deutons ou de protons. A chaque évaporation, l'énergie d'excitation du noyau composé est réduite de l'énergie de séparation  $S_n$  et de l'énergie cinétique du neutron évaporé  $E_{evap}$ . (typiquement de 6 à 10 MeV). Le moment angulaire emporté est très faible. L'évaporation du ou des neutrons dure environ de  $10^{-19}$  à  $10^{-16}$  seconde.

Lorsque l'énergie d'excitation du noyau est inférieure à celle du seuil d'évaporation neutronique, la décroissance par émission de neutron est impossible. A ce stade, le résidu d'évaporation est formé. La désexcitation est ensuite réalisée, partant d'une région d'entrée relativement large (en orange sur la figure), par des émissions de rayonnements  $\gamma$  statistiques (en brun). Il s'agit principalement de transitions collectives de multipolarité E1 (voir la Section 2.2) qui emportent très peu de moment angulaire. La densité de niveaux dans cette zone étant très importante, il n'est pas possible d'effectuer de mesures cohérentes de leurs énergies individuelles.

Suite aux rayonnements statistiques, des rayonnements  $\gamma$  d'énergie discrète (en bleu et en vert sur la figure) sont émis, typiquement des transitions  $\gamma$  de multipolarité E2 en cascade, jusqu'à ce que l'énergie d'excitation du noyau soit nulle. Il peut exister plusieurs cascades de transitions interconnectées entre elles. Ce sont ces rayonnements qui sont étudiés en spectro-

scopie prompte ou retardée (voir la Section 3.1). L'émission de ces rayonnements dure environ de  $10^{-16}$  à  $10^{-9}$  seconde. On note qu'il est possible que le processus de désexcitation d'un noyau soit rallongé par le passage par un état excité de long temps de vie (comme un état isomérique, voir la Section 2.5).

Il a été proposé que l'état excité d'énergie la plus basse pour un moment angulaire donné soit appelé état "yrast" [Gro67]. La ligne yrast est définie comme la ligne passant par chacun de ces états. Les rayonnements d'énergie discrète se situent près de cette ligne. On en distingue deux catégories : les transitions entre des états yrast situées sur la ligne du même nom (en bleu) et les transitions entre des états non-yrast d'énergie d'excitation plus importante (en vert). Ces dernières peuvent être liées à un isomère de haut- $K$  (voir la Section 2.5) et être émises avec un délai correspondant au temps de vie de ce dernier. Après désexcitation, si le noyau synthétisé est instable, il se désintègre par radioactivité  $\alpha$ ,  $\beta$  ou par fission spontanée (voir la Section 2.3).

Le seuil d'évaporation neutron (représenté par des traits pointillés sur la Figure 2.2) est approximativement égal à la somme de l'énergie d'excitation yrast et de l'énergie de séparation  $S_n$  pour un moment angulaire donné. Si un noyau est produit avec une énergie supérieure à celle de la barrière de fission (en mauve), il fissionnera. On observe sur la figure que la ligne yrast coupe la barrière de fission à haut moment angulaire. Ce croisement limite ainsi le moment angulaire maximal d'un noyau au moment de la synthèse. Il existe donc une zone, définie sur la figure par la ligne yrast et la barrière de fission, qui autorise la désexcitation du résidu d'évaporation.

Une étude poussée de la barrière de fission ainsi que de la multiplicité et l'énergie des rayonnements  $\gamma$  émis par calorimétrie dans le noyau de  $^{254}\text{No}$  ( $Z = 102$ ) est présentée dans [Hen12]. La région d'entrée et une barrière de fission de 6.2 MeV ont pu être extraites des analyses. D'autres travaux seront sans doute menés dans cette direction dans les prochaines années pour mieux appréhender cette problématique dans la région. Ce type de mesure permet de fournir un test des différents modèles prédisant la hauteur de la barrière afin de les contraindre.

### 2.1.4 Energies et section efficace

Lors d'une réaction de fusion-évaporation, deux notions primordiales sont à prendre en compte : les sections efficaces et les énergies mises en jeu. Dans le centre de masse, l'énergie d'excitation  $E_{NC}^*$  d'un noyau composé à sa production est la somme de l'énergie cinétique totale du système projectile-cible dans le référentiel du centre de masse  $T_{CM}$  et la chaleur de la réaction  $Q_{NC}$  de la formation du noyau composé :

$$E_{NC}^* = Q_{NC} + T_{CM} \quad (2.2)$$

où la chaleur de réaction  $Q_{NC}$  est définie comme la différence d'énergie de liaison, ou de masse des noyaux, avant et après la formation du noyau composé :

$$Q_{NC} = (m_A + m_B - m_{NC}) \cdot c^2 \quad (2.3)$$

Ce bilan est fortement négatif pour les réactions de fusion-évaporation dans la région des noyaux transfermia. Si la cible et/ou le projectile sont magiques, la chaleur de réaction est

encore plus négative ce qui entraîne une baisse de l'énergie d'excitation du noyau composé. De ce fait, peu de neutrons sont évaporés lors de la désexcitation. Cela mène à l'accroissement de la probabilité de survie du noyau composé à la fission, et donc à une plus grande section efficace de fusion-évaporation.

Dans le cadre de la réaction  $^{208}\text{Pb}(^{48}\text{Ca}, 2n)^{254}\text{No}$ , pour laquelle les noyaux cible et projectile sont tous les deux doublement magiques, la section efficace de production atteint  $3 \mu\text{b}$ , le maximum pour la région [Rei99]. De fait, c'est le cas le plus étudié des noyaux transfermia. Grâce aux apports de la magie de la cible et/ou du projectile, la région de la carte des nucléides autour du  $^{254}\text{No}$  est accessible pour des expériences de spectroscopie prompt (voir la Sous-section 3.1.2). Toutefois, comme la section efficace diminue progressivement et relativement rapidement en s'éloignant de cet isotope, cette région est relativement restreinte.

Pour maximiser la section efficace de production du résidu d'évaporation, il est nécessaire d'optimiser l'énergie d'excitation du noyau composé au moment de sa production. Dans ce but, l'énergie cinétique du noyau projectile doit être ajustée pour être comprise dans une petite fenêtre qui doit permettre au noyau projectile de franchir la barrière coulombienne au contact du noyau cible mais également de ne pas apporter un surplus trop important d'énergie qui pourrait favoriser la fission. Pour franchir la barrière coulombienne, les noyaux projectiles sont accélérés à des énergies typiques d'environ 4-5 MeV par nucléon (soit quelques pourcents de la vitesse de la lumière).

La valeur de la barrière de Coulomb peut être estimée par plusieurs moyens. En première approximation, on la calcule avec la formule originelle du même nom. Cependant, la formule de R. Bass, plus précise surtout pour les noyaux lourds, est généralement utilisée [Bas74, Bas77]. Ce dernier est un modèle classique basé sur une version du modèle de la goutte liquide qui décrit les potentiels des noyaux projectile et cible considérés sphériques. Cette barrière tient en compte du phénomène de friction de la matière nucléaire et de l'énergie nécessaire pour réorganiser les nucléons dans le noyau lors de la réaction. Elle est appliquée au cas du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  dans la Section 4.4.

Pour maximiser la production de noyaux d'intérêt, on s'arrange pour que l'énergie cinétique optimale  $E_{opt.}$  soit atteinte approximativement au milieu d'une cible d'épaisseur  $e$ . Les ions du faisceau perdent en moyenne une énergie  $E_{perte}$  en traversant la moitié de la cible. On cherche donc à ce que l'énergie des ions du faisceau  $E_{fais.}$  soit telle que  $E_{fais.} = E_{opt.} + E_{perte}$ . Cette optimisation est illustrée sur la Figure 2.3. Après la réaction de fusion-évaporation, l'énergie de recul du noyau composé  $E_{CN}$  va être réduite de la perte d'énergie dans la cible  $\Delta E_{CN}$ . Lors des préparations d'expérience, il faut veiller à ce que l'énergie cinétique du noyau de recul en sortie de cible  $E_{CN} - \Delta E_{CN}$  soit suffisante pour atteindre le détecteur d'implantation. L'épaisseur de la cible est également un paramètre primordial à prendre en compte. En fonction de celle-ci, le taux de production de noyaux et leur straggling angulaire va varier. Des travaux effectués pour trouver le meilleur compromis entre ces différents effets sont présentés dans [Kha07].

Des mesures de section efficace sont généralement réalisées pour plusieurs énergies cinétiques du noyau projectile. Elles permettent de tracer des fonctions d'excitations telles que celles présentées sur la Figure 2.4. De cette façon, une valeur de la section efficace optimale est définie pour chaque voie d'évaporation de neutron et est exploitée lors des expériences

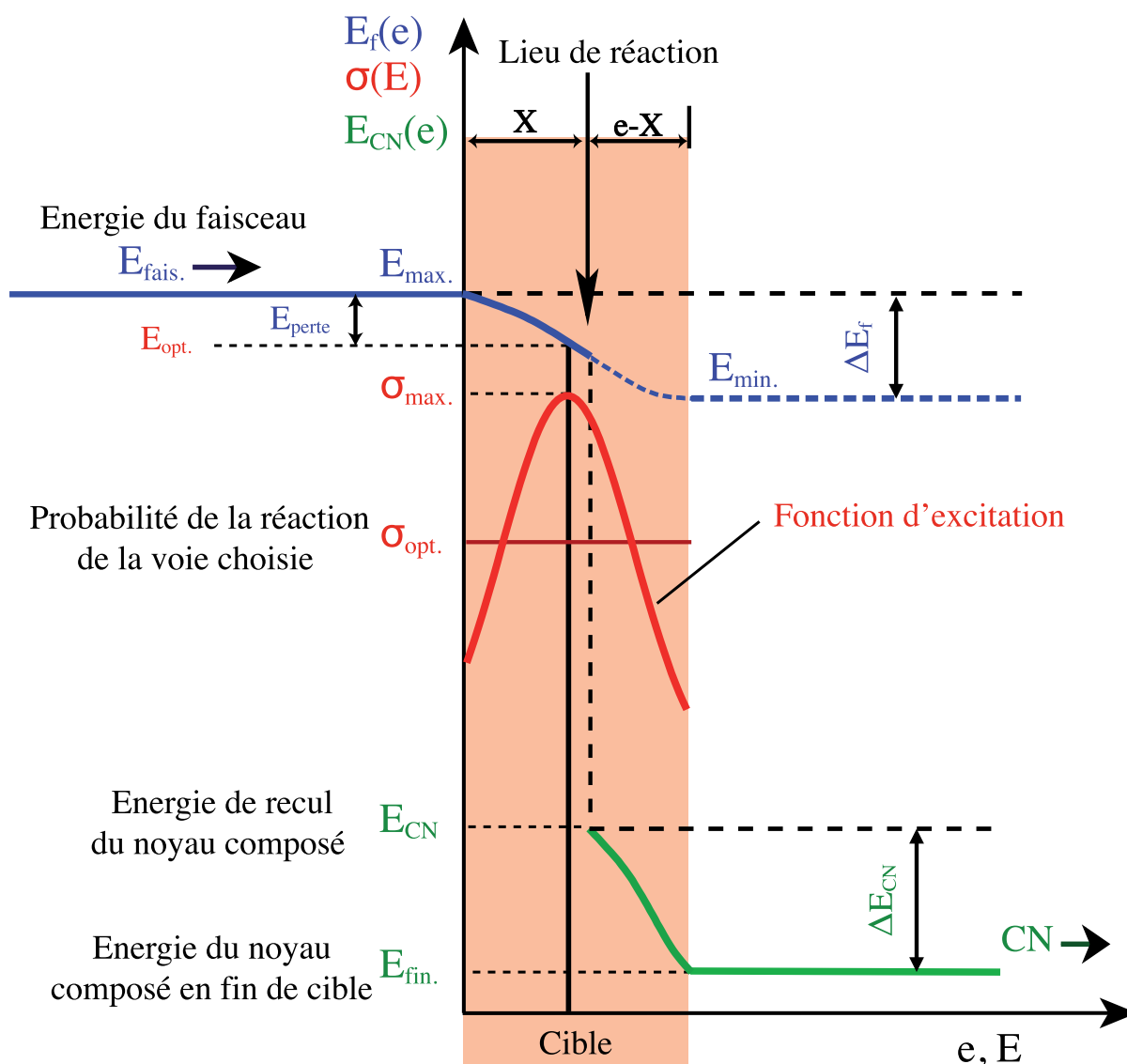


Figure 2.3: Schématisation des pertes d'énergie dans une cible d'épaisseur notée  $e$  dans le cas d'une réaction de fusion-évaporation : variation de l'énergie cinétique du faisceau entre deux limites notées  $E_{min}$  et  $E_{max}$  en fonction de l'épaisseur de la cible (courbe en bleu), positionnement de la fonction d'excitation dépendant de l'énergie optimale de réaction notée  $E_{opt.}$  (courbe en rouge) et perte d'énergie du noyau composé formé au sein de la cible (courbe en vert) (d'après [Kha07]).

*Diagram of the energy losses inside a target of a thickness  $e$  in the case of a fusion-evaporation reaction : variation of the beam kinetic energy between two limits  $E_{min}$  and  $E_{max}$  as a function of the target thickness (in blue), positioning of the excitation function depending on the optimal energy of the reaction  $E_{opt.}$  (in red) and energy loss of the compound nucleus formed inside the target (in green) (based on [Kha07]).*



ultérieures sur ce noyau.

### 2.1.5 Fusions froide et chaude

Les réactions de fusion-évaporation sont souvent classées comme “froide” ou “chaude” en fonction du couple cible-projectile utilisée [Hof04].

Lors d’une fusion “froide”, le système est formé avec une faible énergie d’excitation (de l’ordre de 10 à 20 MeV). Cette dernière est induite par l’utilisation de la magie ou de la quasi-magie (simple ou double) de la cible et/ou du projectile. Ainsi, la valeur de la chaleur de réaction est négative et de grande valeur absolue grâce à l’apport d’une grande énergie de liaison. Ce type de fusion présente peu d’émissions neutroniques. La réaction entre les noyaux de  $^{48}\text{Ca}$  et de  $^{208}\text{Pb}$  en est un exemple.

Pour illustrer l’impact de la magie lors d’une fusion froide, les fonctions d’excitation des voies  $1n$  et  $2n$  (respectivement un et deux neutrons évaporés) pour la réaction de fusion-évaporation  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, xn)^{256-x}\text{Rf}$  (voir la Figure 2.4.A) et  $^{208}\text{Pb}(^{48}\text{Ti}, xn)^{256-x}\text{Rf}$  (voir la Figure 2.4.B) peuvent être discutées. On observe que les sections efficaces dans le cas du  $^{50}\text{Ti}$  sont plus importantes que dans celui du  $^{48}\text{Ti}$ . Cette baisse significative illustre clairement l’influence du nombre magique  $N = 28$  sur la probabilité de synthétiser un noyau d’intérêt lorsqu’on utilise des noyaux projectiles de  $^{50}\text{Ti}$ , dont on ne bénéficie pas avec ceux de  $^{48}\text{Ti}$ . De manière analogue, la section efficace de la réaction  $^{208}\text{Pb}(^{51}\text{V}, 2n)^{257}\text{Db}$  est inférieure à celle de la réaction  $^{209}\text{Bi}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{257}\text{Db}$  [Gat08] grâce à la magie du noyau de  $^{50}\text{Ti}$ .

Lors de la fusion dite “chaude”, la chaleur de réaction prélève moins d’énergie. Ainsi, le système formé par la fusion est d’énergie d’excitation plus importante : de l’ordre de 25 à 50 MeV. Typiquement, des cibles plus lourdes (souvent radioactives) et des projectiles légers sont utilisés. Les noyaux produits sont relativement instables et évaporent un nombre plus conséquent de neutrons (4 à 6 généralement). La fusion entre les noyaux de  $^{18}\text{O}$  et de  $^{238}\text{U}$  en est un exemple.

Le choix de la catégorie de fusion est à effectuer par le ou la scientifique en fonction de l’instrumentation utilisée et du noyau d’intérêt. Chacune des deux catégories permet de produire certains isotopes. Typiquement, la fusion chaude permet de produire des noyaux plus riches en neutrons. Ces deux catégories sont donc complémentaires l’une avec l’autre. Toutefois, certains noyaux lourds peuvent être formés par une réaction froide et une réaction chaude. Dans ces cas, les réactions froides possèdent généralement les sections efficaces les plus importantes. Par exemple, le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  a une section efficace de 15.7 nb par fusion froide et 7 nb par fusion chaude (voir la Section 4.2).

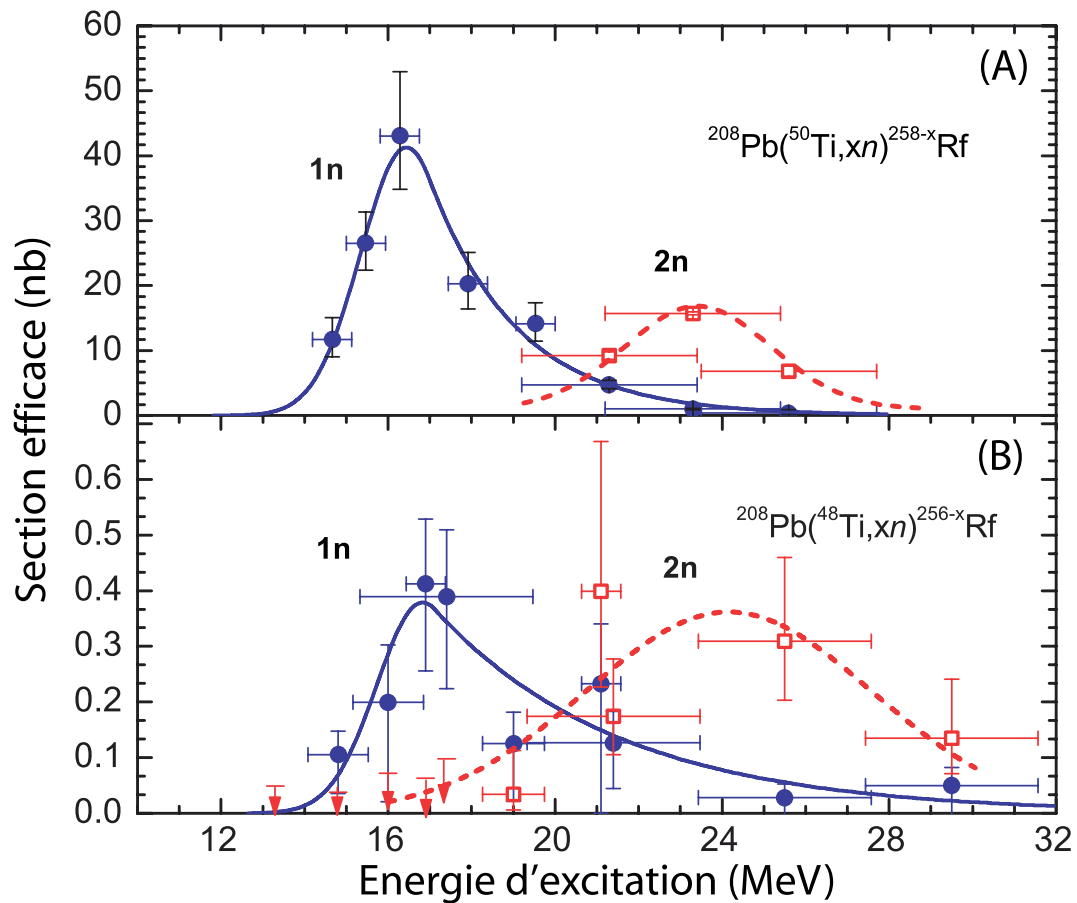


Figure 2.4: Fonction d'excitation des voies 1n et 2n de la réaction de fusion-évaporation : (A) : entre les noyaux de  $^{50}\text{Ti}$  et de  $^{208}\text{Pb}$  et (B) : entre les noyaux de  $^{48}\text{Ti}$  et de  $^{208}\text{Pb}$  (d'après [Drag08]).

*Excitation functions of the 1n and 2n exit channels for the fusion-evaporation reaction: (A): between the  $^{50}\text{Ti}$  and  $^{208}\text{Pb}$  nuclei and (B): between the  $^{48}\text{Ti}$  and the  $^{208}\text{Pb}$  nuclei (based on [Drag08]).*

## 2.2 Les modes de désexcitation des noyaux transférmentia

Les noyaux transférmentia synthétisés par réaction de fusion-évaporation possèdent généralement une énergie d'excitation importante au moment de leur production. Après la phase d'évaporation neutronique, cette énergie est évacuée par plusieurs transitions électromagnétiques pouvant être émises promptement, ou à la suite d'une décroissance d'un état isomérique, sous forme de rayonnements  $\gamma$ . Dans cette région de masse, ce type de transitions sont très sensibles au phénomène de conversion interne qui engendre l'émission d'électrons. Ces deux types de désexcitation sont discutés dans cette section.

### 2.2.1 Le rayonnement $\gamma$

Un noyau dans un état excité peut émettre une partie ou l'intégralité de son énergie d'excitation via l'interaction électromagnétique. Ce processus ne change pas la charge électrique du noyau émetteur. Cependant, il réduit son énergie d'excitation et peut changer son spin et sa parité. Un photon dit rayonnement  $\gamma$  d'une énergie  $E_\gamma = E_i - E_f$  est émis en passant d'un état excité de spin initial  $I_i$  de parité  $\pi_i$  à un état final de spin  $I_f$  de parité  $\pi_f$ . On note son moment angulaire  $\vec{L}$  et sa parité  $\pi_\gamma$ . Les deux règles de conservation suivantes doivent être respectées :

$$\pi_f \cdot \pi_\gamma \cdot \pi_i = 1 \quad \text{et} \quad \vec{L} = \vec{I}_i + \vec{I}_f \quad (2.4)$$

La transition peut être soit électrique (notée E), soit magnétique (notée M) en fonction de son moment angulaire et des deux règles de sélection exprimées ci-dessous.

La première règle de sélection concerne la multipolarité  $\lambda$  de la transition dont les valeurs quantiques possibles sont encadrées par :

$$|I_i - I_f| \leq \lambda \leq |I_i + I_f| \quad (\lambda \neq 0) \quad (2.5)$$

La seconde règle de sélection concerne la parité des transitions électriques  $\pi^{E\lambda}$  et des transitions magnétiques  $\pi^{M\lambda}$  qui sont régies par :

$$\pi_f^{E\lambda} = (-1)^\lambda \cdot \pi_i^{E\lambda} \quad (2.6)$$

$$\pi_f^{M\lambda} = (-1)^{\lambda+1} \cdot \pi_i^{M\lambda} \quad (2.7)$$

Si les spins des états initiaux et finaux sont connus, il est possible de prédire quel type de rayonnement est émis avec la plus grande probabilité (voir le Tableau 2.1). Par exemple, les rayonnements E2 et M2 dominent pour une différence de spin de  $|\Delta I| = 2$ . Si la parité reste inchangée, le rayonnement est de type E2 et si elle change, il est de type M2. Toutefois, les transitions électromagnétiques ne sont pas toujours pures et peuvent être composées d'un mélange de différentes multipolarités.

Les probabilités théoriques totales de transition  $\gamma$  ont été estimées par V. Weisskopf pour les transitions de particules individuelles [Kran88]. Ces valeurs servent de comparaison avec les probabilités observées expérimentalement (à condition de corriger ces derniers de la conversion interne). Les formules de Weisskopf sont données, jusqu'à une multipolarité d'ordre

$\Delta I$	0	1	2	3	4
$\pi_f = -\pi_i$	E1	E1	M2	E3	M4
$\pi_f = \pi_i$	M1	M1	E2	M3	E4

Tableau 2.1: Multipolarité dominante pour une transition par rayonnement  $\gamma$  en fonction du changement de spin  $\Delta I$  et de parité  $\pi$ .

*Dominant multipolarity for a  $\gamma$  transition as a function of the spin change  $\Delta I$  and the parity  $\pi$  changes.*

Multipolarité	$\lambda^W$ ( $s^{-1}$ )
E1	$1.023 \cdot 10^{14} \cdot E_\gamma^3 \cdot A^{2/3}$
E2	$7.265 \cdot 10^7 \cdot E_\gamma^5 \cdot A^{4/3}$
E3	$3.385 \cdot 10^1 \cdot E_\gamma^7 \cdot A^2$
E4	$1.065 \cdot 10^{-5} \cdot E_\gamma^9 \cdot A^{8/3}$
M1	$3.184 \cdot 10^{13} \cdot E_\gamma^3$
M2	$2.262 \cdot 10^7 \cdot E_\gamma^5 \cdot A^{2/3}$
M3	$1.054 \cdot 10^1 \cdot E_\gamma^7 \cdot A^{4/3}$
M4	$3.316 \cdot 10^{-6} \cdot E_\gamma^9 \cdot A^2$

Tableau 2.2: Estimation des probabilités de Weisskopf  $\lambda^W$  pour les transitions électriques et magnétiques jusqu'à l'ordre multipolaire  $\lambda = 4$ . Les énergies  $E_\gamma$  doivent être exprimées en MeV [Kran88].

*Weisskopf probabilities estimations  $\lambda^W$  for the electric and magnetic transitions up to the multipolar order  $\lambda = 4$ . Energies  $E_\gamma$  have to be expressed in MeV [Kran88].*

$\lambda = 4$ , dans le Tableau 2.2. Ces probabilités décroissent d'environ 4 à 5 ordres de grandeur pour chaque ordre de multipolarité. Pour un ordre multipolaire donné, les probabilités des transitions électriques sont plus fortes que celles des transitions magnétiques.

On note que les estimations de Weisskopf sont réservées aux transitions de particules individuelles et non aux transitions collectives. Ces dernières, comme les décroissances d'une bande de rotation par transition E2, peuvent être émises beaucoup plus rapidement.

### 2.2.2 La conversion interne

La conversion interne est un processus de décroissance électromagnétique qui entre fortement en compétition avec l'émission de rayonnements  $\gamma$ . Dans celui-ci, l'énergie d'une transition électromagnétique peut être transférée directement à un électron interne de l'atome ce qui entraîne son émission.

Contrairement à la décroissance  $\beta$ , l'électron émis lors d'une conversion interne n'est pas créé durant le processus. La conversion interne est un processus à seuil : l'énergie nécessaire doit être supérieure à celle de l'énergie de liaison de l'électron  $B_i$ . L'énergie cinétique de l'électron de conversion  $E_{e^-}$  est égale à la différence entre l'énergie de la transition  $E_\gamma$  et

Couche	K	L1	L2	L3	M1	M2	M3	M4	M5
$B_i$ (keV)	156.9	30.96	30.00	22.86	8.17	7.72	6.06	5.35	5.04

Tableau 2.3: Energies de liaison  $B_i$  pour les électrons des trois premières couches atomiques de l'élément rutherfordium ( $Z = 104$ ) (calculées avec [Kib08, Bricc]).

*Binding energies  $B_i$  for electrons of the first three atomic layers of the rutherfordium element ( $Z = 104$ ) (calculated with [Kib08, Bricc]).*

l'énergie de liaison  $B_i$  de la couche atomique concernée :

$$E_{e^-} = E_\gamma - B_i \quad (2.8)$$

La valeur de  $B_i$  dépend de la couche électronique d'origine de l'électron de conversion. Cela signifie, que contrairement au continuum des décroissances  $\beta$ , un spectre de conversion interne présente pour chaque transition un ensemble de pics discrets correspondant aux contributions des différentes couches électromagnétiques du noyau émetteur. Ce sont majoritairement les électrons des couches internes K (orbitale  $1s_{1/2}$ ), L (orbitales  $2s_{1/2}$ ,  $2p_{1/2}$  et  $2p_{3/2}$ ) ou M (orbitales  $3s_{1/2}$ ,  $3p$  et  $3d$ ) qui sont concernées par ce processus. Les énergies de liaisons de ces trois couches sont listées dans le Tableau 2.3 pour l'élément rutherfordium ( $Z = 104$ ).

Une transition a une probabilité totale de décroissance  $\lambda_{tot}$ . Etant donné qu'il existe une compétition entre les deux processus de désexcitation, elle est définie comme la somme des probabilités d'émission par un rayonnement  $\gamma$  notée  $\lambda_\gamma$  et par un électron de conversion interne notée  $\lambda_e$  tel que :

$$\lambda_{tot} = \lambda_\gamma + \lambda_e = \lambda_\gamma \cdot (1 + \alpha) \quad (2.9)$$

où  $\alpha$  est le coefficient de conversion interne total défini tel que :

$$\alpha = \frac{\lambda_e}{\lambda_\gamma} \quad (2.10)$$

Le coefficient  $\alpha$  (souvent noté  $\alpha_{tot}$ ) est la somme des coefficients partiels  $\alpha_i$ , où  $i$  représente la couche atomique de départ de l'électron de conversion, tel que :

$$\alpha = \sum_i \alpha_i = \alpha_K + \alpha_{L1} + \alpha_{L2} + \alpha_{L3} + \alpha_{M1} + \dots \quad (2.11)$$

Il a été montré dans [Kran88] que le coefficient  $\alpha$  peut être approximé, pour les transitions multipolaires électriques, par la formule suivante :

$$\alpha(E\lambda) \approx \frac{Z^3}{n^3} \cdot \frac{\lambda}{\lambda + 1} \cdot \left( \frac{e^2}{4 \cdot \pi \cdot \varepsilon_0 \cdot \hbar \cdot c} \right)^4 \cdot \left( \frac{2 \cdot m_e \cdot c^2}{E_\gamma} \right)^{\lambda+5/2} \quad (2.12)$$

et pour les transitions multipolaires magnétiques par :

$$\alpha(M\lambda) \approx \frac{Z^3}{n^3} \cdot \left( \frac{e^2}{4 \cdot \pi \cdot \varepsilon_0 \cdot \hbar \cdot c} \right)^4 \cdot \left( \frac{2 \cdot m_e \cdot c^2}{E_\gamma} \right)^{\lambda+3/2} \quad (2.13)$$

où  $n$  est le numéro de la couche atomique d'origine de l'électron émis,  $E_\gamma$  est l'énergie de la transition électromagnétique et  $m_e$  est la masse de l'électron au repos.

On note que, généralement, le coefficient de conversion est plus élevé pour les transitions magnétiques qu'électriques pour une énergie donnée. A partir des Equations 2.12 et 2.13, on peut retenir plusieurs caractéristiques sur l'occurrence des électrons de conversion interne :

- ◇ Elle s'accroît avec l'ordre multipolaire  $\lambda$ .
- ◇ Elle décroît pour des couches atomiques  $n$  plus élevées.
- ◇ Elle décroît avec l'augmentation de l'énergie de la transition  $E_\gamma$ .
- ◇ Elle s'accroît rapidement avec l'augmentation du numéro atomique  $Z$ .

Cette dernière caractéristique démontre que ce coefficient est d'autant plus important dans la zone des noyaux transfermia, de  $Z$  très élevé [The08]. On observe ainsi un très fort taux de conversion interne pour les transitions de basse énergie de ces noyaux. Ainsi, les rayonnements  $\gamma$  de moins de 100 keV, comme généralement les deux premières transitions de la bande de rotation basée sur l'état fondamental, sont presque toujours convertis. L'utilisation de spectromètres à électrons, tel que le détecteur SAGE, est nécessaire pour les observer.

Pour une cascade de plusieurs transitions électromagnétiques dans un noyau transfermium, par exemple une bande de rotation, il est très probable que plusieurs électrons de conversion interne soient émis dans un très court laps de temps. On appelle ce phénomène une "bouffée d'électrons" (ou douches d'électrons). Si le noyau en question est implanté dans un détecteur classique de silicium, l'énergie des électrons détectés de la bouffée sera sommée. Plus l'énergie est élevée, plus la probabilité de passer le seuil de détection est importante. Ce phénomène a été utilisé pour identifier des états isomériques comme présenté dans le Chapitre 6.

Les coefficients  $\alpha_i$  exploités dans cette thèse sont calculés à l'aide du logiciel dédié Brlcc [Kib08] qui est accessible sur internet [Bricc]. Les courbes des coefficients  $\alpha$ ,  $\alpha_L$  et  $\alpha_K$  sont tracées sur la Figure 2.5 pour des transitions de multipolarité E2. La plage d'énergie est typiquement celle des transitions de bandes de rotation des noyaux transfermia. Pour cet élément, la conversion interne est dominante jusqu'à une énergie d'environ 235 keV et son influence est significative jusqu'à 400 keV. On note que, plus l'énergie de la transition est proche de celle d'une énergie de liaison  $B_i$ , plus le coefficient de conversion est important. Ce phénomène peut s'observer sur la figure vers une énergie de 20-30 keV.

La place vacante laissée par une conversion interne est rapidement remplie par un électron provenant d'une des orbitales d'une couche atomique plus élevée, ce que l'on appelle le réarrangement du nuage atomique. L'énergie relâchée lors du réarrangement peut être émise par trois processus distincts.

Un rayonnement X (un photon) caractéristique peut être émis à une énergie correspondant à la différence entre les énergies de liaison des couches atomiques. Ce dernier peut être exploité pour identifier l'occurrence de conversion interne ou l'élément du noyau lors de l'étude d'un spectre de rayonnements  $\gamma$ .

Le deuxième processus est l'émission d'un électron Auger. L'énergie relâchée lors du réarrangement est transférée à un électron provenant d'une couche moins profonde qui s'échappe du noyau. Deux places vacantes sont laissées après ce processus contrairement à l'émission

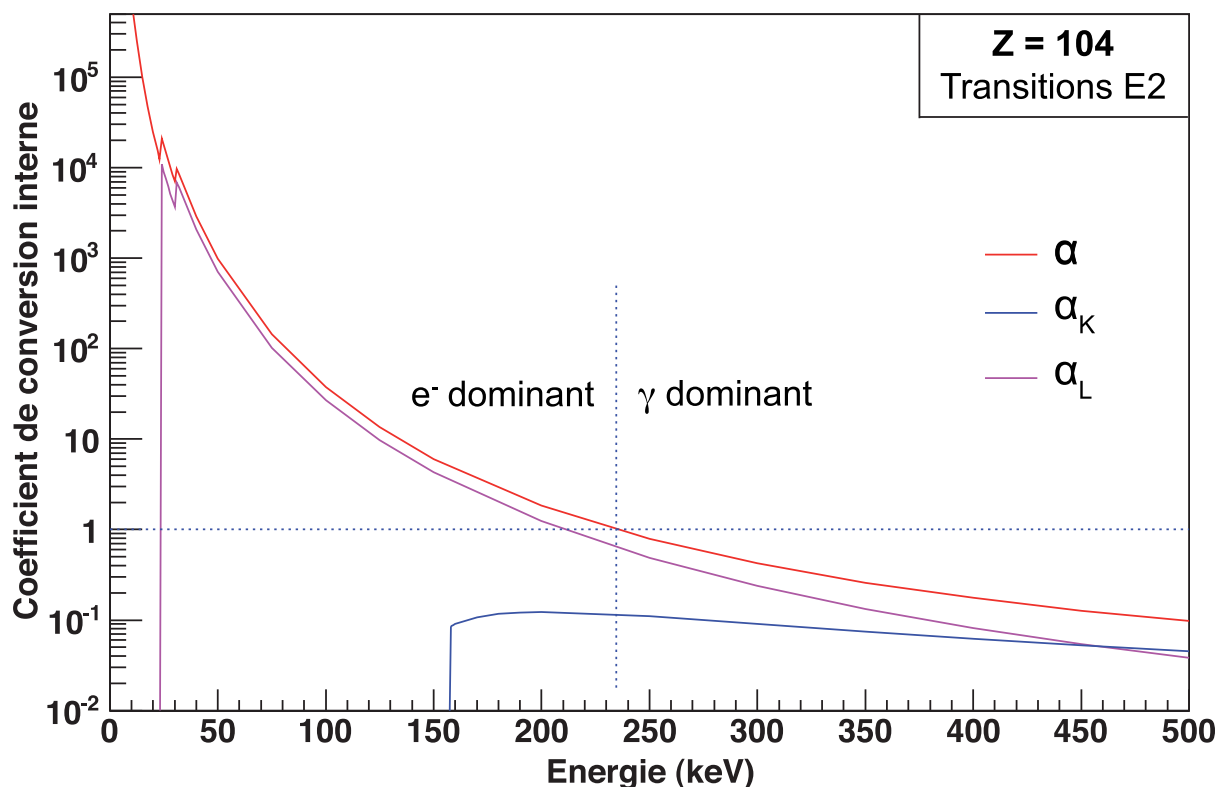


Figure 2.5: Coefficient de conversion interne pour les transitions multipolaires E2 pour le rutherfordium ( $Z = 104$ ) en fonction de l'énergie de la transition. La courbe de conversion totale ainsi que les courbes concernant les deux couches K et L sont présentées. Une ligne en pointillés est tracée à la valeur unitaire pour pointer la transition, à environ 235 keV, entre un régime de conversion interne majoritaire à celui de rayonnement  $\gamma$  majoritaire. Ces graphiques ont été tracés à partir des valeurs obtenues en utilisant le logiciel Brlcc [Bricc, Kib08].

*Internal conversion coefficients of the E2 multipolar transitions for the rutherfordium element ( $Z = 104$ ) as a function of the transition energy. The total conversion curve as well as the curves for both K and L layers are presented. A dotted line is drawn at the unitary value to point the transition, at approximately 235 keV, between the range with a majority of internal conversions and the one with a majority of  $\gamma$ -ray transitions. Values were obtained using the software Brlcc [Bricc, Kib08].*

du rayonnement X qui en laisse une seule.

Le dernier processus est un cas particulier d'une transition Auger : la transition dite de Coster-Krönig apparaît lorsque la place vacante est remplie par un électron de la même couche atomique que celle de la place vacante.

## 2.3 Les modes de décroissance des noyaux transférmiia

Les décroissances radioactives peuvent être utilisées comme une sonde pour révéler des informations sur la structure nucléaire. Dans la région des noyaux transférmiia, on observe des

décroissances par émission de particules  $\alpha$  et  $\beta$  ainsi que par fission spontanée. Les propriétés de ces différents modes sont passées en revue dans cette section. Le noyau étudié durant cette thèse, le  $^{256}\text{Rf}$ , décroît majoritairement par fission spontanée. Ce mode est donc plus détaillé que les deux autres.

### 2.3.1 La décroissance $\alpha$

Lors d'une décroissance  $\alpha$ , le noyau-père  ${}^A_Z\text{X}_N$  émet un ion doublement magique de  ${}^4\text{He}^{2+}$  ( $Z = 2$ ,  $N = 2$ ) pour former le noyau-fils  ${}^{A-4}_{Z-2}\text{X}_{N-2}$ . La particule  $\alpha$  a un spin-parité de  $0^+$ , possède un moment angulaire  $l$  (tel que  $|I_i - I_f| \leq l \leq |I_i + I_f|$ ) et une énergie discrète  $E_\alpha$ . Cette dernière est caractéristique d'un isotope donné et aide à l'identification des noyaux produits. Les énergies typiques de ces décroissances sont comprises entre 5 et 12 MeV.

Un nombre important d'éléments lourds, principalement à partir de  $A \approx 150$ , peut décroître en émettant une particule  $\alpha$ . Pour  $A \approx 250$ , la particule  $\alpha$  emporte plus de 98% de la chaleur de réaction  $Q$ . Plus particulièrement, un grand nombre de noyaux transfermia décroissent par émission d'une particule  $\alpha$  dans leur état fondamental. En effet, après leur création par fusion-évaporation, ces noyaux sont instables et situés du côté riche en proton de la vallée de stabilité. Ils se rapprochent ainsi de la ligne de la stabilité grâce à l'émission d'une particule  $\alpha$ .

Une des propriétés principales de cette décroissance est que, d'un état initial donné, elle peut rejoindre différents états finaux du noyau fils. De manière similaire, la décroissance peut provenir de différents états initiaux dans le noyau père. Cette propriété est connue comme la structure fine de la décroissance  $\alpha$ . La mesure des intensités des différentes voies de décroissance donne accès à des informations sur le spin et la parité des noyaux père et fils. En effet, ces deux caractéristiques de l'état final d'une décroissance sont particulièrement dépendantes de celles de l'état initial. La fragmentation de la décroissance à partir d'états excités donne accès à des informations sur la structure nucléaire dans les noyaux impairs. Actuellement, il s'agit du type de décroissance le plus utilisé pour identifier les noyaux transfermia.

### 2.3.2 La décroissance $\beta$

La décroissance par émission d'une particule  $\beta$  est un processus d'interaction faible. Il existe trois différentes voies de décroissance  $\beta$  : la décroissance  $\beta^+$  où un proton est converti en neutron, la décroissance  $\beta^-$  où un neutron est converti en proton et la capture électronique  $\varepsilon$  dans laquelle un proton est converti en neutron par la capture d'un électron du cortège électronique de l'atome.

Dans un noyau, cette décroissance modifie les valeurs de  $Z$  et de  $N$  d'une unité en conservant le nombre de masse  $A$  : c'est une réaction dite isobarique. Dans le processus de décroissance, un électron ou un positron ainsi qu'un antineutrino ou un neutrino sont créés. Les émissions de ces deux particules induisent que l'on observe un spectre d'électron continu car l'énergie totale est partagée entre elles. L'énergie maximale mesurée correspond environ à l'énergie de la décroissance.

La décroissance  $\beta$  est la plus couramment observée parmi les nucléides connus. La décroissance  $\beta^-$  apparaît dans les noyaux riches en neutrons tandis que la décroissance  $\beta^+$  et



la capture électronique  $\varepsilon$  apparaissent dans les noyaux riches en protons. Cela permet aux noyaux de décroître selon une chaîne isobarique et de gagner en stabilité en se rapprochant de la vallée de la stabilité.

Au sein de l'ensemble des noyaux transfermia atteignables actuellement par réaction de fusion-évaporation, on observe exclusivement des décroissances  $\beta^+$ . En effet, à cause des contraintes du choix du couple cible-projectile, les isotopes créés sont plutôt riches en protons. Ce type de décroissance n'est actuellement pas utilisé pour identifier les noyaux transfermia contrairement à la décroissance  $\alpha$  et à la fission spontanée. En effet, l'énergie mesurée peut être aisément confondue avec celles d'autres noyaux ou du bruit de fond. Ainsi, plus le rapport d'embranchement  $\beta$  est important, plus la part de noyaux non identifiés est élevée.

L'élément possédant actuellement le plus d'isotopes connus sensibles à cette décroissance dans la région des transfermia est le ménélevium ( $Z = 101$ ). Le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  n'est pas sensible à ce type de décroissance qui ne sera pas exploité expérimentalement dans cette thèse.

### 2.3.3 Fission spontanée

La fission nucléaire consiste en la division d'un noyau en deux fragments plus légers [Mei39]. Il faut, généralement, apporter de l'énergie au système pour la déclencher. Cependant, les éléments très lourds existent principalement à cause des effets de couches et leur barrière de fission est donc relativement basse. La fission spontanée est ainsi possible et il s'agit d'un mode de décroissance très compétitif. Elle a été découverte par deux scientifiques soviétiques, G.N. Flerov et K.A. Petrzhak, en 1940 [Fle40].

L'existence de ce processus pour des noyaux lourds peut être expliquée en discutant de l'énergie de liaison par nucléon. Un noyau lourd, comme le noyau de  $^{235}\text{U}$ , a une énergie de liaison de  $7.59 \text{ MeV}\cdot\text{nuc}^{-1}$ . Par exemple, si le noyau se divise en deux fragments égaux  $A \approx 120$ , leur énergie de liaison serait d'environ  $8.5 \text{ MeV}\cdot\text{nuc}^{-1}$ . Les noyaux fils sont ainsi plus stables que le noyau initial.

Ce type de décroissance est uniquement observé pour des noyaux ayant un nombre de masse  $A \geq 230$ , le premier étant celui de  $^{230}\text{Th}$ . On observe plusieurs cas dans la région des transfermia et, en particulier, dans la série isotopique du rutherfordium ( $Z = 104$ ).

Plus de 800 fragments différents, très riches en neutrons, peuvent être formés lors de ce processus. Pour les actinides, du thorium à l'einsteinium, le noyau se désintègre en deux fragments asymétriques, un léger et un lourd. Le rapport entre les deux masses est environ de 1.4. Lors d'une fission spontanée, un nombre de neutrons caractéristique à chaque noyau est évaporé. Un exemple connu de ce nombre est 2.43 neutrons pour le noyau de  $^{235}\text{U}$ . Il a été mesuré récemment dans plusieurs noyaux transfermia : 3.3 neutrons pour l'isotope de  $^{244}\text{Fm}$  et 4.06 pour celui de  $^{252}\text{No}$  [Svi12]. D'après la systématique, cette valeur augmente en fonction du numéro atomique  $Z$ .

Lors de ce processus, un col est formé entre deux fragments par la répulsion coulombienne jusqu'à sa disparition. Les fragments se partagent l'énergie en fonction de leur rapport de masses. Les distributions en énergie correspondantes sont donc larges. L'angle entre les deux fragments est déterminé par la conservation de l'impulsion : ils sont donc émis à  $180^\circ$  l'un de l'autre dans le centre de masse. Dans de très rares cas, trois ou quatre fragments

peuvent être émis. Ce sont des réactions dites respectivement ternaires et quaternaires.

L'énergie totale relâchée lors d'une fission est bien plus grande que n'importe quelle autre forme de décroissance radioactive : elle est de l'ordre de 200 MeV. Les neutrons évaporés et autres particules rejetées emportent seulement quelques MeV. Un modèle simple, connu comme la systématique de Viola, a été proposé dans [Vio85] pour paramétrer l'énergie cinétique totale relâchée (typiquement appelée TKE). Il est basé sur la modélisation de la répulsion coulombienne entre deux sphéroïdes prolates. L'énergie, exprimée en MeV, est paramétrée par la formule suivante qui dépend linéairement du paramètre de Coulomb :

$$E_{FS}(^AX_Z) = 0.1189 \cdot \frac{Z^2}{A^{1/3}} + 7.3 \quad (2.14)$$

Le noyau étudié dans cette thèse, l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ , fissionne majoritairement. D'après ce modèle, l'énergie cinétique libérée est donc de  $E_{FS}(^{256}\text{Rf}) = 209.8$  MeV. Cette valeur est comparée avec celle obtenue lors de mon expérience de thèse dans le Chapitre 5.

## 2.4 L'étude de la collectivité

Les noyaux transfermia sont synthétisés dans un état déformé. Leur forme non-sphérique autorise des mouvements collectifs des nucléons tels que la rotation. Cette dernière permet la formation de bandes de rotation dont l'origine et le formalisme utilisé pour leur étude sont présentés dans cette section.

### 2.4.1 Déformation d'un noyau

Les noyaux ayant un nombre de nucléons proche des fermetures de couches magiques sont considérés comme sphériques. En s'éloignant de ces fermetures, des noyaux peuvent être déformés dans leur état fondamental. Pour décrire les noyaux, la surface nucléaire est en général paramétrisée à l'aide d'harmoniques sphériques ou par développement multipolaire. Dans le référentiel du laboratoire, la surface du noyau peut être décrite par la dépendance angulaire du rayon  $R(\theta, \phi)$  qui pointe la surface à partir de l'origine [Gal99]. Ce rayon est défini par :

$$R(\theta, \phi) = R_0 \cdot c(\alpha) \cdot \left( 1 + \sum_{\lambda=0}^{\lambda_{max}} \sum_{\mu=-\lambda}^{+\lambda} \alpha_{\lambda\mu} \cdot Y_{\lambda\mu}^*(\theta, \phi) \right) \quad (2.15)$$

où  $R_0$  est le rayon d'un noyau sphérique de même volume,  $\theta$  et  $\phi$  sont les angles polaires,  $\lambda$  exprime la multipolarité,  $\mu$  est l'ordre de la déformation,  $Y_{\lambda\mu}^*$  sont les harmoniques sphériques et  $\alpha_{\lambda\mu}$  sont les coefficients de déformation.  $c(\alpha)$  est une variable dépendant de la déformation qui permet de conserver un volume constant par rapport au volume de la sphère.

Le terme monopolaire ( $\lambda = 0$ ) correspond à une sphère. Le dipôle ( $\lambda = 1$ ) ne correspond pas à une forme nucléaire mais au déplacement d'une sphère par translation. La déformation d'ordre le plus bas est de ce fait le quadrapôle ( $\lambda = 2$ ). Les ordres suivants correspondent à l'octupôle ( $\lambda = 3$ ) et à l'hexadécapôle ( $\lambda = 4$ ). Ces différentes formes que peut prendre le noyau atomique sont schématisées sur la Figure 2.6.

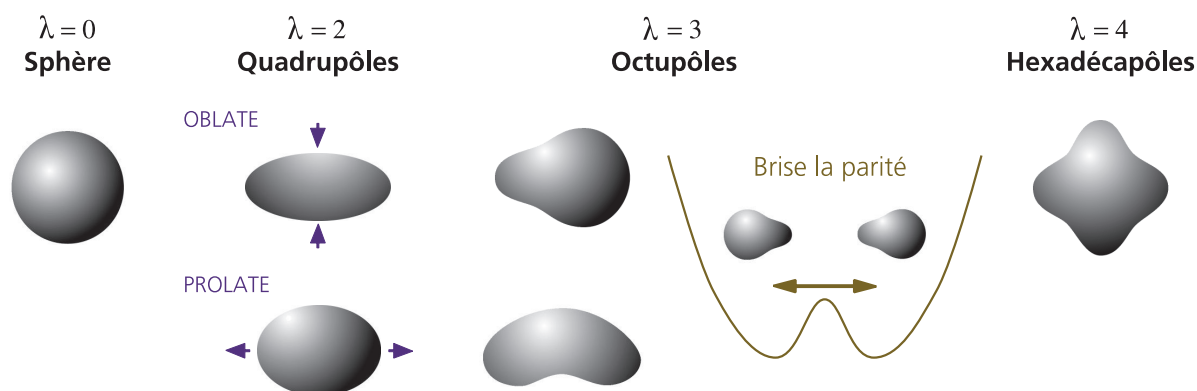


Figure 2.6: Types de déformations les plus couramment observées dans les noyaux atomiques [Gall99].

*Most commonly observed shapes of atomic nuclei [Gall99].*

Les noyaux transférmiia accessibles par les méthodes de spectroscopie actuelles sont reconnus comme des noyaux déformés principalement de manière quadripolaire, c'est-à-dire ayant une forme d'ellipsoïde. On observe une structure de ce type au-dessus de tous les états fondamentaux connus de la région.

La description de ces noyaux très lourds nécessite la prise en compte de termes multipolaires très élevés. Ainsi, une contribution hexadécapolaire  $\beta_6$ , d'amplitude relativement faible, permet de compenser le col qui apparaît dans les descriptions de la surface des noyaux dans les modèles si on ne déforme que selon  $\beta_2$ . Outre les considérations plutôt techniques, les études spectroscopiques de certains noyaux comme ceux de  $^{250}\text{Fm}$  (voir la Figure 2.11) et de  $^{252}\text{No}$  ont mis en évidence une structure excitée octupolaire ( $\lambda = 3$ ). Il ne s'agit pas de déformation octupolaire stable, mais plutôt de la manifestation d'une certaine mollesse du potentiel selon ce degré de liberté permettant l'apparition de vibrations octupolaires.

Pour le reste de la discussion, on ne considèrera que l'ordre de déformation  $\lambda = 2$ . Dans ce cadre, les coefficients  $\alpha_{\lambda\mu}$  peuvent être réécrits  $\alpha_{20} = \beta_2 \cdot \cos \gamma$  et  $\alpha_{22} = \alpha_{2-2} = \beta_2 \cdot \sin \gamma$  ce qui introduit le paramètre de déformation quadripolaire  $\beta_2$  ainsi que l'angle de déviation  $\gamma$  par rapport à l'axe de symétrie du noyau.

On considère uniquement les noyaux présentant une forme quadripolaire dans un cas de symétrie axiale ( $\gamma = 0$ ). On obtient donc une simplification des coefficients telle que  $\alpha_{20} = \beta_2$  et  $\alpha_{22} = 0$ .

Pour une valeur nulle du paramètre de déformation  $\beta_2$ , le noyau est sphérique. Si  $\beta_2 < 0$ , le noyau est dit oblate (la forme d'un disque) et si  $\beta_2 > 0$ , le noyau est dit prolata (la forme d'un ballon de rugby). La Figure 2.8 représente un noyau prolata qui est uniquement déformé selon l'axe  $Z$ .

## 2.4.2 L'excitation d'un noyau de déformation quadripolaire

Le spectre de rayonnements  $\gamma$  de noyaux sphériques ou déformations quadripolaires peut contenir des transitions provenant de trois sources différentes :

- ◇ des excitations de particules individuelles. Elles sont principalement observées pour des noyaux de symétrie sphérique, généralement proches des couches fermées.
- ◇ des excitations collectives de type vibrationnelles. Elles sont dominantes par rapport à la rotation pour les noyaux possédant peu de nucléons de valence en-dehors du cœur sphérique.
- ◇ des excitations collectives de type rotationnelles. Un spectre purement rotationnel est observé pour des noyaux éloignés des couches fermées.

Le rapport des énergies d'excitation des premiers états  $4^+$  et  $2^+$ ,  $R_{42} = E(4_1^+)/E(2_1^+)$ , est un bon indicateur du type d'excitation prédominant. Il est proche de l'unité pour les noyaux dont les couches sont fermées car la force d'appariement abaisse l'état  $0^+$  et regroupe les premiers états excités les uns des autres. Ce rapport est d'environ 2 pour les noyaux purement vibrationnels car l'état  $2_1^+$  correspond à l'excitation d'un seul phonon et le  $4_1^+$  à celle de deux phonons. Pour des excitations purement rotationnelles, le rapport est de 3.33 car l'énergie de rotation est proportionnelle à  $I(I + 1)$ ,  $I$  étant le spin de l'état. Dans le cas d'un mélange des modes vibrationnels et rotationnels,  $R_{42}$  peut être compris entre ces deux valeurs extrêmes.

Ce rapport est illustré sur la Figure 2.7 pour les isotopes pairs-pairs entre le plomb et le rutherfordium pour lesquels les transitions sont connues. Il s'agit d'une figure de la Référence [Kete10] mise à jour avec une dizaine de résultats récents et notamment le rapport du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ , présenté dans le Chapitre 5. On observe distinctement les noyaux magiques sur les gaps sphériques  $Z = 82$  et  $N = 126$ , des noyaux vibrationnels proches de ces couches fermées et des noyaux rotationnels pour les plus hautes masses. Une transition nette entre ces deux régimes s'observe vers  $N = 134-136$ . Avec des rapports mesurés  $R_{42}$  proches de 3.33,

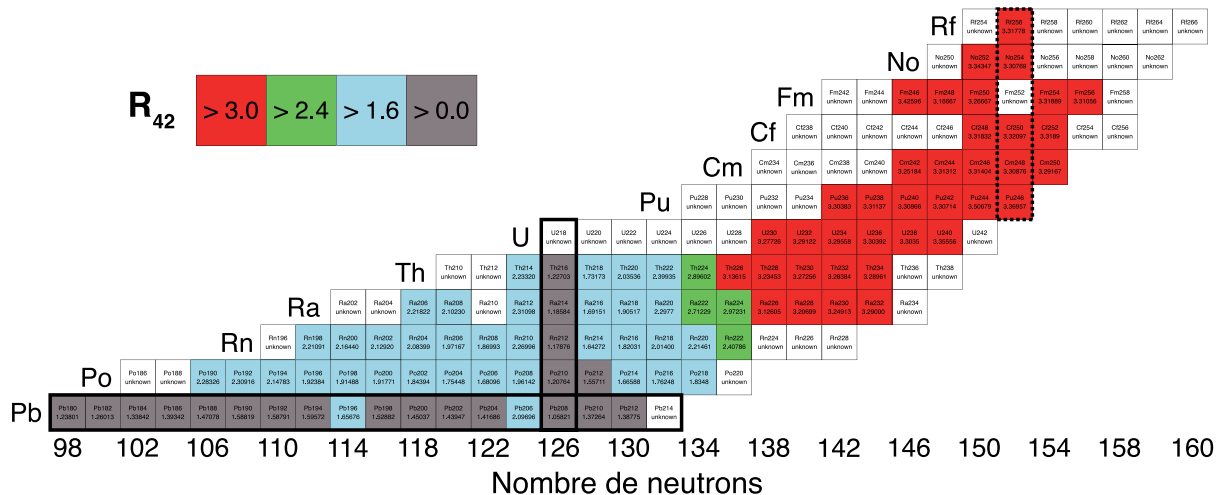


Figure 2.7: Rapports d'énergies d'excitation expérimentaux  $R_{42}$  entre les premiers états  $4^+$  et  $2^+$  pour les noyaux pairs-pairs du plomb ( $Z = 82$ ) au rutherfordium ( $Z = 104$ ). Les cases sont laissées blanches si les données ne sont pas connues expérimentalement. Version mise à jour de la figure présentée dans [Kete10].

*Experimental energy ratios  $R_{42}$  between the first  $4^+$  and  $2^+$  states for even-even nuclei from lead ( $Z = 82$ ) to rutherfordium ( $Z = 104$ ). Boxes are in white if the experimental value is not known. Updated version of the figure presented in [Kete10].*

les noyaux transfermia semblent, d'après la systématique, être purement rotationnels (tout du moins s'ils sont dans un état lié à leur état fondamental).

La vibration collective d'un noyau est causée par des déformations, périodiques en fonction du temps, de la surface nucléaire autour d'une position d'équilibre. Ce phénomène amène plusieurs états de basse énergie dans le noyau. Toutefois, ce mode collectif ne sera pas discuté plus en détails étant donné que les noyaux transfermia, et donc celui de  $^{256}\text{Rf}$ , sont rotationnels. La prochaine sous-section décrit en détails la rotation collective du noyau.

### 2.4.3 Rotation collective

La discussion de cette sous-section, allant jusqu'à la présentation des moments d'inertie, est basée sur les Références [Boh55, Boh81, DeV83, Ste83, Dud92].

#### 2.4.3.1 Approche vectorielle

Les différentes orientations d'un noyau sphérique ne peuvent pas être distinguées par la mécanique quantique. Dans ce cadre, sa rotation n'est pas possible. La Figure 2.8 représente un noyau prolate, uniquement déformé selon l'axe  $Z$ . Dans ce cas de symétrie axiale, il existe un ensemble d'axes de rotation possibles, tous perpendiculaires à l'axe de symétrie. Le noyau tourne autour de l'axe  $X$  à une fréquence de rotation angulaire  $\omega$ . Le moment angulaire de rotation  $\vec{R}$  est généré par le mouvement collectif des nucléons autour de l'axe  $X$ .

Un moment angulaire additionnel  $\vec{J}$  peut être généré par la somme de contributions individuelles des moments angulaires des nucléons de valence. Chaque nucléon a un moment angulaire propre qui est la somme de son moment orbital et de son spin.

Le moment angulaire total  $\vec{I}$  est donc donné par la somme de ces deux contributions :

$$\vec{I} = \vec{J} + \vec{R} \quad (2.16)$$

Le couplage des moments angulaires est présenté schématiquement sur la Figure 2.8. La projection du moment angulaire d'un nucléon de valence sur l'axe de symétrie est appelée  $\Omega_i$ . S'il y a  $N$  nucléons de valence, la projection de  $\vec{J}$  est donc la somme de ces projections telle que  $\Omega = \sum_{i=1}^N \Omega_i$ . Le nombre quantique  $K$  est la projection du moment angulaire total  $\vec{I}$  sur l'axe de symétrie. Or, dans le cas de symétrie axiale,  $\vec{R}$  est perpendiculaire à cet axe ce qui implique que sa projection sur l'axe de déformation est nulle et que :

$$K = \Omega = \sum_{i=1}^N \Omega_i \quad (2.17)$$

Si un noyau pair-pair est dans son état fondamental, les nucléons de valence sont regroupés par paires tel que  $\vec{J} = \vec{0}$  et donc  $\vec{I} = \vec{R}$ . De ce fait, la projection  $K$  est nulle. Pour certaines valeurs de  $K$  différentes de 0, on parle états isomériques de haut  $K$  si des temps de demi-vie importants sont observés. Ces états sont discutés en détails dans la Section 2.5.

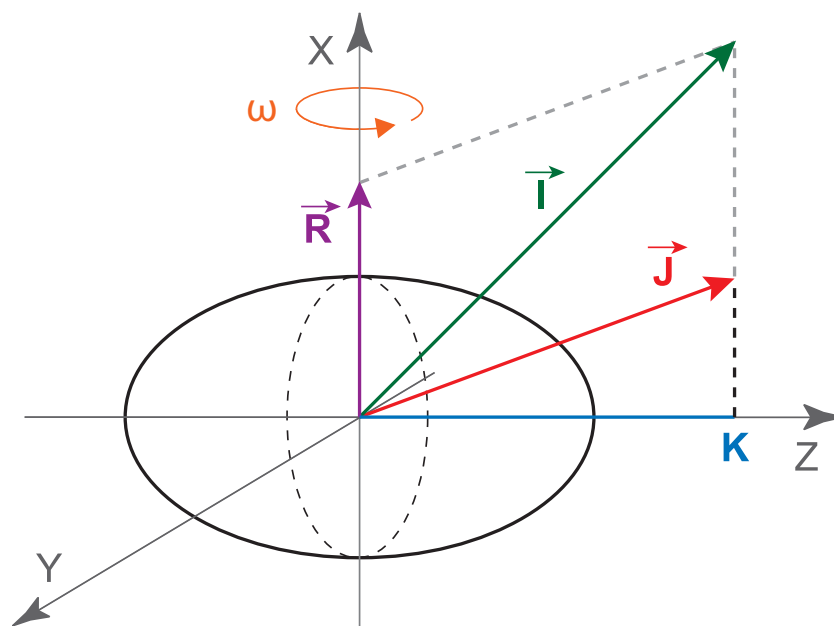


Figure 2.8: Schéma du moment angulaire nucléaire dans le cas d'un noyau possédant une déformation quadrupolaire selon l'axe de symétrie  $Z$  du noyau.  $\omega$  est la fréquence de rotation du noyau autour de son axe de rotation  $X$ . Le moment angulaire intrinsèque est noté  $\vec{J}$ , le moment angulaire rotationnel  $\vec{R}$  et le moment angulaire total  $\vec{I}$ . Le nombre quantique  $K$  est défini comme la projection du moment angulaire total sur l'axe de symétrie.

*Scheme of the nuclear angular momentum in a deformed case. The nucleus has a prolate shape according to the symmetry axis  $Z$ .  $\omega$  is the nucleus rotation frequency around its rotation axis  $X$ . The total angular momentum  $\vec{I}$  is the sum of the intrinsic angular momentum noted  $\vec{J}$  and the rotational angular momentum noted  $\vec{R}$ . The quantum number  $K$  is defined as the projection of  $\vec{I}$  on the symmetry axis.*

### 2.4.3.2 Cas statique

La description de la rotation d'un noyau introduit la notion de moment d'inertie et de fréquence. L'énergie collective de rotation peut être déterminée grâce à une analogie avec la rotation classique d'un corps rigide qui est définie par :

$$E_{rot}^* = \frac{I^2}{2 \cdot \mathcal{J}} = \frac{1}{2} \cdot \mathcal{J} \cdot \omega^2 \quad (2.18)$$

où  $\mathcal{J}$  est le moment d'inertie,  $\omega$  est la fréquence de rotation et on peut exprimer  $I$ , le moment angulaire total du noyau, tel que  $I = \mathcal{J} \cdot \omega$ , exprimé en unité de  $\hbar$ .

Ainsi, en exploitant l'Equation 2.18, la fréquence de rotation peut être définie par :

$$\omega = \frac{I}{\mathcal{J}} = \frac{dE}{dI} \quad (2.19)$$

On note toutefois que  $\omega$  n'est pas une observable quantique proprement définie.

Par analogie, on peut réécrire l'Equation 2.18 dans le cas de la mécanique quantique :

$$\hat{H}_{rot} = \frac{\hat{I}^2}{2 \cdot \mathcal{J}} \quad (2.20)$$

On peut démontrer que le moment angulaire total  $\hat{I}$  peut être lié avec la composante du moment angulaire, notée  $\hat{I}_x$ , selon l'axe de rotation  $X$ . On considère la configuration présentée sur la Figure 2.8. On peut décomposer  $\hat{I}$  en trois contributions spatiales selon les axes  $X$ ,  $Y$  et  $Z$  :  $\hat{I}_x$ ,  $\hat{I}_y$  et  $\hat{I}_z$ . Comme la déformation est axiale, le moment d'inertie  $\mathcal{J}$  peut également être décomposé en plusieurs contributions :

$$\hat{H}_{rot} = \frac{\hat{I}_x^2}{2 \cdot \mathcal{J}_x} + \frac{\hat{I}_y^2}{2 \cdot \mathcal{J}_y} + \frac{\hat{I}_z^2}{2 \cdot \mathcal{J}_z} \quad (2.21)$$

Par raison de symétrie, la rotation collective est interdite par la mécanique quantique autour de l'axe de déformation  $Z$ . La contribution selon cet axe est donc nulle. Par choix de référentiel, le noyau tourne uniquement autour de l'axe  $X$  ce qui induit que la contribution selon l'axe  $Y$  est également nulle. Ainsi, une seule contribution spatiale sur trois est non nulle dans ce cas tel que :

$$\hat{H}_{rot} = \frac{\hat{I}_x^2}{2 \cdot \mathcal{J}_x} \quad (2.22)$$

Dans le cas d'une rotation importante, l'axe  $X$  est donc un bon axe quantique.

En utilisant le théorème de Pythagore dans le plan  $Oxz$  de la Figure 2.8, on obtient l'égalité :

$$\hat{I}^2 = \hat{I}_x^2 + \hat{I}_z^2 \quad \Leftrightarrow \quad \hat{I}_x = \sqrt{\hat{I}^2 - \hat{I}_z^2} \quad (2.23)$$

Comme  $\hat{I}^2$  et  $\hat{I}_x$  commutent avec  $\hat{H}_{rot}$ , on peut passer aux valeurs propres des opérateurs de l'équation ci-dessus. On obtient ainsi :

$$I_x = \sqrt{I \cdot (I + 1) - K^2} \quad (2.24)$$

Dans le cas d'une bande de rotation basée sur l'état fondamental d'un noyau pair-pair, le nombre quantique  $K$  est nul. On peut ainsi écrire, en utilisant une identité remarquable, la formule suivante :

$$I_x = \sqrt{I \cdot (I + 1)} = \sqrt{\left(I + \frac{1}{2}\right)^2 - \frac{1}{4}} \quad (2.25)$$

Pour une valeur de  $I$  suffisamment grande, on peut négliger le terme  $1/4$  en utilisant l'approximation de Wentzel–Kramers–Brillouin pour ainsi obtenir l'équation suivante :

$$I_x \approx \sqrt{\left(I + \frac{1}{2}\right)^2} = I + \frac{1}{2} \quad (2.26)$$

Cette approximation est fréquemment exploitée par les expérimentateurs. Dans le cadre de cette thèse, elle est notamment utilisée dans le Chapitre 5.

Grâce aux Equations 2.22 et 2.24 et pour une valeur de  $K$  nulle, on peut montrer que le mouvement rotationnel du noyau mène à une séquence d'états dont les énergies  $E^*$  dépendent du spin  $I$  tel que :

$$E^*(I) = \frac{I \cdot (I + 1)}{2 \cdot \mathcal{J}^{(0)}} \quad (2.27)$$

où  $\mathcal{J}^{(0)}$  est le moment d'inertie statique.

Dans le cas d'une bande de rotation bâtie sur l'état fondamental d'un noyau pair-pair,

seules les valeurs paires de spin sont autorisées. En partant de l'équation précédente, on peut définir l'énergie  $E_\gamma$  de la transition entre deux états excités, séparés d'un écart de spin  $\Delta I = 2$ , par :

$$E_\gamma(I \rightarrow I - 2) = E^*(I) - E^*(I - 2) = \frac{\hbar^2}{2 \cdot \mathcal{J}^{(0)}} \cdot (4 \cdot I - 2) \quad (2.28)$$

On en déduit alors la différence d'énergie  $\Delta E_\gamma$  entre deux transitions  $\gamma$  successives qui est :

$$\Delta E_\gamma(I) = E_\gamma(I) - E_\gamma(I - 2) = \frac{4 \cdot \hbar^2}{\mathcal{J}^{(0)}} \quad (2.29)$$

Cette différence est constante si le moment d'inertie est constant.

Expérimentalement, on observe typiquement des spectres de transitions  $\gamma$  régulièrement espacées que l'on appelle des bandes de rotation. Ces structures peuvent être construites sur l'état fondamental ( $K = 0$ ) ou sur un état excité ( $K \neq 0$ ). Les spectres des Figures 3.2 et 5.10 en sont deux exemples. Sur ces spectres, on observe une diminution lente de la différence d'énergie  $\Delta E_\gamma$  en fonction du spin ce qui indique un effet de la rotation et donc une modification progressive du moment d'inertie.

Pour expliquer ce phénomène, il faut signaler que le noyau n'est pas un corps rigide et que les moments d'inertie mesurés à bas spin sont inférieurs (de 30% à 50%) à ceux des corps rigides [Boh55]. Ce phénomène est dû à l'appariement des nucléons qui introduit un comportement de type superfluide. Lorsque le noyau tourne, le moment d'inertie peut évoluer en fonction du spin et peut devenir différent de  $\mathcal{J}^{(0)}$ . Cette variation est discutée ci-après.

### 2.4.3.3 Moments d'inertie cinématique et dynamique

L'analogie de la définition de la fréquence de rotation dans le cadre de la mécanique quantique est donnée par :

$$\omega(I) = \frac{1}{\hbar} \cdot \frac{dE^*(I)}{dI} \quad (2.30)$$

On se place ici dans le cas d'une succession de transitions électromagnétiques de type E2 d'énergie au-dessus de l'état fondamental ( $K = 0$ ). Une transition entre deux états excités d'énergie  $E^*(I)$  et  $E^*(I-2)$  présente une énergie  $E_\gamma(I \rightarrow I-2)$  et un écart de spin  $\Delta I = 2 \cdot \hbar$ . Ainsi, on obtient l'égalité suivante à partir de l'Equation 2.30 :

$$\omega(I) \approx \frac{E_\gamma(I \rightarrow I - 2)}{2 \cdot \hbar} \quad (2.31)$$

Le spectre des énergies rotationnelles peut être discuté grâce à deux moments d'inertie dépendant du spin. Ils sont reliés aux dérivées du premier et deuxième ordre de l'énergie d'excitation en fonction de  $I_x$  et tous les deux exprimés en  $\hbar^2 \cdot \text{MeV}^{-1}$ .

La première dérivée est le moment d'inertie cinématique  $\mathcal{J}^{(1)}$  qui est défini par :

$$\mathcal{J}^{(1)} = \hbar \cdot I \cdot \left( \frac{dE^*(I)}{dI} \right)^{-1} = \hbar \cdot \frac{I}{\omega} \quad (2.32)$$

Le moment d'inertie cinématique peut être relié à l'énergie de la transition  $E_\gamma$  grâce à l'Equation 2.28. En combinant les Equations 2.31 et 2.32, on obtient la formule suivante :

$$\mathcal{J}^{(1)} = \frac{2 \cdot \hbar^2}{E_\gamma(I \rightarrow I - 2)} \cdot I \quad (2.33)$$



qui est équivalente à :

$$\mathcal{J}^{(1)} = \frac{\hbar}{\omega(I \rightarrow I - 2)} \cdot I \quad (2.34)$$

La dérivée du second ordre est le moment d'inertie dynamique  $\mathcal{J}^{(2)}$  qui est défini par :

$$\mathcal{J}^{(2)} = \hbar \cdot \left( \frac{d^2 E^*(I)}{dI^2} \right)^{-1} = \hbar \cdot \frac{dI}{d\omega} \quad (2.35)$$

Ce moment d'inertie peut être relié à la différence d'énergie entre deux transitions consécutives d'une bande rotation en combinant les Equations 2.31 et 2.35 :

$$\mathcal{J}^{(2)} = \frac{4 \cdot \hbar^2}{E_\gamma(I + 2 \rightarrow I) - E_\gamma(I \rightarrow I - 2)} = \frac{4 \cdot \hbar^2}{\Delta E_\gamma(I)} \quad (2.36)$$

ce qui équivaut à :

$$\mathcal{J}^{(2)} = \frac{2 \cdot \hbar}{\omega(I + 2 \rightarrow I) - \omega(I \rightarrow I - 2)} = \frac{2 \cdot \hbar}{\Delta\omega(I)} \quad (2.37)$$

Si le moment d'inertie cinématique était constant, l'écart entre deux transitions  $\gamma$  d'une bande rotation serait constant en fonction du spin. Expérimentalement, on constate généralement que cet écart varie légèrement avec la fréquence de rotation. De même, le moment d'inertie dynamique n'est pas constant en fonction du spin.

En combinant les Equations 2.32 et 2.35, on peut lier les deux moments d'inertie avec la relation suivante :

$$\mathcal{J}^{(2)} = \hbar \cdot \frac{dI}{d\omega} = \frac{\hbar}{\hbar} \cdot \frac{d}{d\omega} (\omega \cdot \mathcal{J}^{(1)}) = \mathcal{J}^{(1)} + \omega \cdot \frac{d\mathcal{J}^{(1)}}{d\omega} \quad (2.38)$$

Cette dernière relation montre bien que dans le cas d'un rotateur rigide, les moments d'inertie cinématique et dynamique sont égaux.

Les moments d'inertie sont deux variables très sensibles qui permettent d'avoir une indication précise sur les comportements collectifs du noyau, ainsi que 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. Sa non-linéarité est un signe fort de la déviation d'un comportement de type rotateur rigide. Les grands avantages du moment d'inertie dynamique tiennent du fait qu'il est, contrairement au moment d'inertie cinématique, indépendant du spin et qu'il est accessible expérimentalement et théoriquement. C'est un instrument très puissant qui permet de réaliser l'interface entre les deux. Il est utilisé régulièrement depuis des dizaines d'années comme, par exemple, pour les noyaux de masse moyenne [Mar69] ou pour les noyaux superdéformés [Beck92].

#### 2.4.3.4 Méthode de Harris

Une approche complémentaire pour améliorer notre compréhension des structures de rotation a été proposée par S.M. Harris [Harr64, Harr65]. Elle exploite un développement de

l'énergie d'excitation des états rotationnels en termes de puissances paires de la fréquence de rotation  $\omega$  tel que :

$$E(\omega) = A \cdot \omega^2 + B \cdot \omega^4 + C \cdot \omega^6 + \dots \quad (2.39)$$

Le moment d'inertie peut également être exprimé sous la forme d'un développement en puissances de la fréquence de rotation  $\omega$  :

$$\mathcal{J} = \sum_{i \geq 0} \mathcal{J}_i \cdot \omega^{2i} \quad (2.40)$$

Ce développement permet d'extraire avec succès de précieuses informations des données expérimentales ; même avec une approximation à seulement deux paramètres, nommés ici  $\mathcal{J}_0$  (d'ordre 0) et  $\mathcal{J}_1$  (d'ordre 2), à laquelle S.M. Harris s'est restreint dans ses calculs. Dans le cadre de cette thèse, nous nous limiterons donc à un développement à cet ordre. Le moment d'inertie cinématique  $\mathcal{J}_{Har.}^{(1)}$  obtenu par la méthode de Harris est donc exprimé par :

$$\mathcal{J}_{Har.}^{(1)}(\omega) = \mathcal{J}_0 + \mathcal{J}_1 \cdot \omega^2 \quad \left( = \hbar \cdot \frac{I}{\omega} \right) \quad (2.41)$$

Le moment d'inertie dynamique  $\mathcal{J}_{Har.}^{(2)}$ , dans le cadre de la méthode de Harris, peut être obtenu en insérant le membre de droite de l'Equation 2.41 dans le troisième membre de l'Equation 2.38 :

$$\mathcal{J}_{Har.}^{(2)}(\omega) = \mathcal{J}_0 + 3 \cdot \mathcal{J}_1 \cdot \omega^2 \quad \left( = \hbar \cdot \frac{dI}{d\omega} \right) \quad (2.42)$$

Les paramètres  $\mathcal{J}_i$  sont caractéristiques d'une bande rotation. Ils sont donc identiques lors de l'utilisation des équations présentées. La méthode de Harris est régulièrement utilisée pour étudier les bandes de rotation. Typiquement, on extrapole les valeurs expérimentales du moment d'inertie avec la paramétrisation de Harris pour ainsi caractériser la bande de rotation (valeurs des paramètres  $\mathcal{J}_i$  et du spin des états). Cette méthode est utilisée sur la bande de rotation de l'état fondamental du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  dans le Chapitre 5.

La méthode de Harris est particulièrement intéressante dans la région des transférmas car elle donne accès aux valeurs de spins des transitions. Ainsi, une fois les valeurs de  $\mathcal{J}_0$  et de  $\mathcal{J}_1$  déterminées, il est possible de remonter aux énergies des transitions de basse énergie, non observées à cause de la conversion interne, grâce à l'Equation 2.43 qui est obtenue en intégrant l'Equation 2.42.

$$I(\omega) = \mathcal{J}_0 \cdot \omega + \mathcal{J}_1 \cdot \omega^3 + C \quad (2.43)$$

où  $C$  est la constante d'intégration. Pour une fréquence de rotation nulle, le spin doit être nul. Ainsi, cette constante doit être nulle.

Pour passer de l'expression de  $I$  à celle de la composante du moment angulaire sur l'axe de rotation  $I_x$ , il faut ajouter la constante  $\frac{1}{2}$  qui provient de l'Equation 2.26.

$$I_x(\omega) = \mathcal{J}_0 \cdot \omega + \mathcal{J}_1 \cdot \omega^3 + \frac{1}{2} \quad (2.44)$$

Expérimentalement, il est observé que le moment d'inertie change au fur et à mesure de l'alignement des quasiparticules. Pour exprimer cet effet, il faut ajouter le moment angulaire aligné  $i(\omega)$  qui est exprimé en unité de  $\hbar$  et qui représente cet alignement. Pour les bandes de

rotation basées sur l'état fondamental des noyaux pairs-pairs, cette valeur est nulle à fréquence nulle. Elle est modifiée lors de la transition d'une bande à une autre.

$$I_x(\omega) = \mathcal{J}_0 \cdot \omega + \mathcal{J}_1 \cdot \omega^3 + \frac{1}{2} + i(\omega) \quad (2.45)$$

Les énergies des transitions extrapolées avec cette équation ont été validées a posteriori pour certains noyaux transférmiia par des mesures des énergies des transitions par spectroscopie électron.

## 2.5 L'isomérisme de haut- $K$

Les états métastables des noyaux atomiques sont appelés isomères, par analogie avec les isomères chimiques. Plusieurs modes de décroissance sont observés dans ces états : électromagnétique, par émission d'une particule  $\alpha$  ou par fission dans le cas des isomères de fission. Il n'y a pas de définition stricte de valeurs minimales ni pour le temps de demi-vie d'un tel état, ni pour son énergie d'excitation. Cette dernière peut néanmoins atteindre plusieurs MeV. Toutefois, on considère de manière qualitative que le temps de demi-vie d'un état isomérique doit être plus long que celui de la plupart des autres états excités non isomériques qui est de l'ordre de la picoseconde.

Une catégorie d'isomères est particulièrement intéressante dans la région des noyaux transférmiia : les isomères de haut- $K$ . En effet, elle est liée à la présence d'orbitales particulières au voisinage de la surface de Fermi qui induisent une forte interdiction de transitions  $\gamma$ . De fait, leur identification est une information très précieuse pour la structure nucléaire.

### 2.5.1 Différents types d'isomérisme

Les états isomériques peuvent être classifiés par catégorie, non pas en fonction de leur temps de vie, mais selon la raison physique expliquant leur existence. Typiquement, le premier minimum énergétique d'un noyau correspond à l'état fondamental. Les états isomériques apparaissent lorsqu'il existe un ou plusieurs minima secondaires pour certaines valeurs d'élongation du noyau, de spin, de séniorité ou de projection de spin sur l'axe de symétrie du noyau [Wal99, Drac13]. Trois de ces différentes catégories sont schématisées sur la Figure 2.9.

Les isomères de formes apparaissent lorsqu'il existe un second minimum à large déformation (voir la Figure 2.9.A). Si la différence de forme est importante entre les deux minima, un grand nombre de nucléons a besoin d'être réarrangé. Ainsi, la transition est empêchée ce qui mène à une longue durée de vie. En effet, si la déformation est modifiée, les orbitales le sont également (comme on peut le voir sur les Figures 1.6 et 1.7) ce qui explique ces empêchements. Ces isomères décroissent en général par émission de rayonnements  $\gamma$ .

Il existe une deuxième catégorie d'isomérisation de forme, dite "de fission", définie par une conformation particulière des noyaux ayant une forme oblate ou prolata selon les cas, avec des rapports entre diamètre et axe de symétrie importants. À la différence des isomères excités, les isomères de fission peuvent se désexciter autrement qu'à travers un rayonnement  $\gamma$  : la déformation excessive du noyau peut en effet aboutir à sa fission (voir la Figure 2.9.A).

Les isomères de spin (dits "spin traps") apparaissent lorsque la décroissance d'un état de basse énergie requiert un changement important de spin (voir la Figure 2.9.B). Cela implique l'émission d'un rayonnement de haute multipolarité pour respecter les règles de sélection des transitions électromagnétiques. La probabilité très faible de ces transitions mène à des temps de vie très longs ce qui produit ces états isomériques. Ils sont souvent observés au voisinage des fermetures de couches, où l'ordonnement des particules individuelles rend les schémas de niveaux complexes.

Les isomères de séniorité apparaissent entre des états de même séniorité (voir les Références [Van11, Drac13]). La séniorité, introduite dans [Rac43], réfère au nombre de nucléons qui ne sont pas en paire couplée avec un moment angulaire nul  $J = 0$ . Les états fondamentaux des noyaux pair-pairs proches de couches intermédiaires ont typiquement  $\nu \approx 0$  tandis que les états yrast avec un moment angulaire  $J = 2, 4, 6, \dots$  ont  $\nu \approx 2$ . Généralement, les états ayant une faible séniorité apparaissent à basse énergie. Ce type d'isomérisme est attendu pour des noyaux proches de couches intermédiaires car les transitions E2 entre états  $\nu = 2$  sont de petites énergies ce qui entraîne un empêchement élevé, et donc un temps de vie important.

Les isomères de haut- $K$  (dits parfois " $K$ -traps") sont un type spécifique d'isomère de spin (voir la Figure 2.9.C). Leur existence ne dépend pas uniquement du changement de valeur absolue du vecteur de spin mais aussi de son orientation. Ce phénomène n'apparaît que dans les noyaux déformés possédant une symétrie axiale. Ces isomères sont particulièrement présents dans les régions autour des noyaux de  $^{180}\text{Hf}$  (pour les orbitales neutrons) et de  $^{252}\text{No}$  (pour les même orbitales mais en protons).

Le nombre quantique  $K$  représente la projection du moment angulaire total sur l'axe de

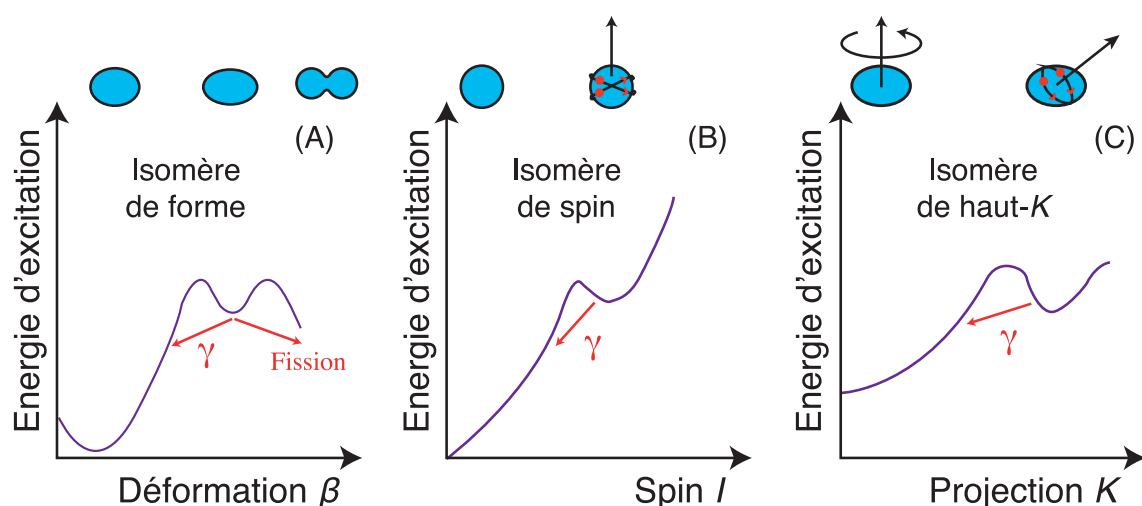


Figure 2.9: Energie d'excitation en fonction de plusieurs variables du noyau. Les minima d'énergie secondaires sont responsables des différents types d'isomères (A) : isomères de forme, (B) : isomères de spin et (C) : isomères de haut- $K$ . Pour chaque cas, les formes et les vecteurs spins correspondants du noyau sont illustrées (d'après [Wal99]).

*Excitation energy as a function of various nuclear variables. The secondary energy minima are responsible for different kinds of isomers (A): shape isomers, (B): spin isomers and (C): high- $K$  isomers. In each case, the relevant nuclear shapes are illustrated (based on [Wal99]).*

symétrie du noyau (voir la Figure 2.8). Un état ayant une valeur de  $K$  élevée est fortement couplé à la déformation du noyau. Si un état de haut- $K$  doit décroître vers un état de  $K$  significativement différent, alors la transition doit changer la direction du moment angulaire relatif à l'axe de symétrie. Ceci peut se faire au travers du moment angulaire porté par le photon ; mais pour  $\Delta K > \lambda$ , on a une interdiction quantique. La transition ne peut alors se faire qu'au travers d'impuretés de la fonction d'onde. Ainsi, cela donne lieu à un temps de vie très long. Il est important de noter que  $K$  est un bon nombre quantique pour les noyaux déformés axialement à condition que la fréquence de rotation du noyau soit nulle ou faible.

### 2.5.2 Etats de quasiparticules

Les états isomériques de haut- $K$  correspondent à l'excitation d'un ou plusieurs nucléons. Ils sont expliqués par des excitations de quasiparticules pour lesquelles on utilise la notion de particule et de trou. Dans le cas d'un seul nucléon excité dans un noyau pair-pair, on appelle l'état excité un état à deux quasiparticules (notée 2-qp). En effet, le nucléon excité laisse une place vacante (un trou) et remplit un état plus excité (une particule). Il peut exister plusieurs états 2-qp par noyau en fonction des possibilités de couplage des orbitales. Des états avec des excitations de plus d'un nucléon peuvent exister tels que 4-qp (2 nucléons), 6-qp (3 nucléons) et ainsi de suite. Chaque contribution à deux quasiparticules peut être soit neutron, soit proton selon les couplages possibles. Ce sont uniquement les orbitales au voisinage de la surface de Fermi du noyau qui sont concernées. On note que certaines d'entre elles ont été amenées à ce voisinage par la déformation (voir la Sous-section 1.5).

Dans les noyaux pairs-impairs, l'état fondamental correspond à un état à une quasiparticule (noté 1-qp) car le noyau possède un nucléon célibataire et aucun trou. Les isomères dans ces noyaux correspondent donc à des excitations d'un nombre impair de quasi-particules (3-qp, 5-qp, ...).

Pour chaque schéma d'excitation de quasi-particules, il y a une valeur de  $K$  correspondante. Les valeurs de  $K$  des états à 2-qp sont obtenues par couplage de deux moments angulaires des états de quasiparticules concernés sachant que l'axe quantique est déjà fixé. Le nombre quantique  $K$  est égal à la projection des moments angulaires intrinsèques  $\Omega$  pour les noyaux à symétrie axiale. Pour une excitation à deux quasiparticules, les deux particules individuelles couplent leur spin parallèlement ou antiparallèlement donnant un projection de spin total  $\Omega = |\Omega_1 \pm \Omega_2|$ .

### 2.5.3 Les règles de Gallagher

C.J. Gallagher a proposé que cette dégénérescence d'ordre 2 soit brisée par les interactions résiduelles dépendantes du spin et que le couplage favorisé soit celui pour lequel la somme des projections des spins intrinsèques des particules individuelles soit nulle [Gal58, Gal62]. D'après ces règles, qui ne sont valides qu'à haute déformation, il n'existe que deux possibilités de couplage. Dans le cas favorisé, les deux projections  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  se couplent en suivant les deux règles suivantes, dites de Gallagher, exprimées par :

$$\Omega = |\Omega_1 - \Omega_2| \quad \text{si les spins des deux nucléons sont parallèles.} \quad (2.46)$$

$$\Omega = \Omega_1 + \Omega_2 \quad \text{si les spins des deux nucléons sont antiparallèles.} \quad (2.47)$$

où  $\Omega_i$  est la projection du moment angulaire total  $j_i$  de la particule individuelle  $i$ . Il s'agit de la somme des projections du moment angulaire intrinsèque  $\Lambda_i$  et du spin  $s_i$  (valant  $\pm 1/2$ ) correspondant tel que  $\Omega_i = \Lambda_i + s_i$

Ainsi, si la différence entre les valeurs de  $\Omega_1$  et de  $\Omega_2$  est importante, deux états de haut- $K$  de long temps de vie sont obtenus. Au contraire, si la différence est faible, on obtient typiquement un état de haut- $K$  de long temps de vie et un état de bas- $K$  de très faible temps de vie. Dans le cas où les deux valeurs de projection sont très faibles, aucun état de long temps de vie ne peut être obtenu.

### 2.5.4 La notion d'empêchement

Les règles de sélection électromagnétiques requièrent que la multipolarité  $\lambda$  d'un rayonnement soit supérieure à la différence  $\Delta K$  de projection sur l'axe de déformation entre l'état initial et final. Les grands  $\Delta K$  nécessitent des grands  $\lambda$  et tous les cas  $\lambda < \Delta K$  sont interdits. En réalité, ces transitions  $K$  sont plutôt empêchées qu'interdites du fait de contributions de  $\Delta K$  plus faibles dans les fonctions d'onde. Cette interdiction donne lieu à des durées de vie qui peuvent être importantes [Lob68].

Pour des états de haut- $K$ , des valeurs telles que  $\Delta K = 8$  peuvent facilement être atteintes. Les états isomériques  $K$  présentent donc des temps de demi-vie pouvant aller de quelques dizaines de microsecondes à plusieurs années.

Le degré d'interdiction  $K$ , noté  $\nu$ , d'une transition donnée, exprimant la probabilité d'une décroissance, est défini par :

$$\nu = |\Delta K| - \lambda \quad (2.48)$$

En se basant sur cette expression, il est clair que les transitions de grande multipolarité réduisent le degré d'interdiction  $K$ . Empiriquement, chaque degré d'interdiction supplémentaire augmente le temps de vie de l'état d'environ un facteur 100 [Rus61] !

On note  $F_W$  le facteur d'empêchement défini par :

$$F_W = \frac{T_{1/2}^\gamma}{T_{1/2}^W} \quad (2.49)$$

où  $T_{1/2}^W$  est l'estimation du temps de demi-vie théorique de Weisskopf (les formules correspondantes sont données dans la Sous-section 2.2.1) et  $T_{1/2}^\gamma$  est le temps de demi-vie partiel du rayonnement  $\gamma$ . Pour ce dernier, il est essentiel de tenir compte de l'incidence de la conversion interne surtout pour les transitions de basse énergie. Ce rapport permet de comparer les temps de demi-vie observés par rapport à ceux de Weisskopf

Une étude systématique des probabilités des transitions dans le cadre de valeurs de  $K$  interdites a été réalisée dans [Lob68]. Les valeurs du facteur d'empêchement  $F_W$  pour des transitions magnétiques et électriques ont été étudiées en fonction de  $|\Delta K|$ . Le résultat est représenté sur la Figure 2.10. Cette courbe peut être utilisée pour tester différentes valeurs de  $|\Delta K|$  pour une transition inconnue en la comparant avec la systématique. On observe

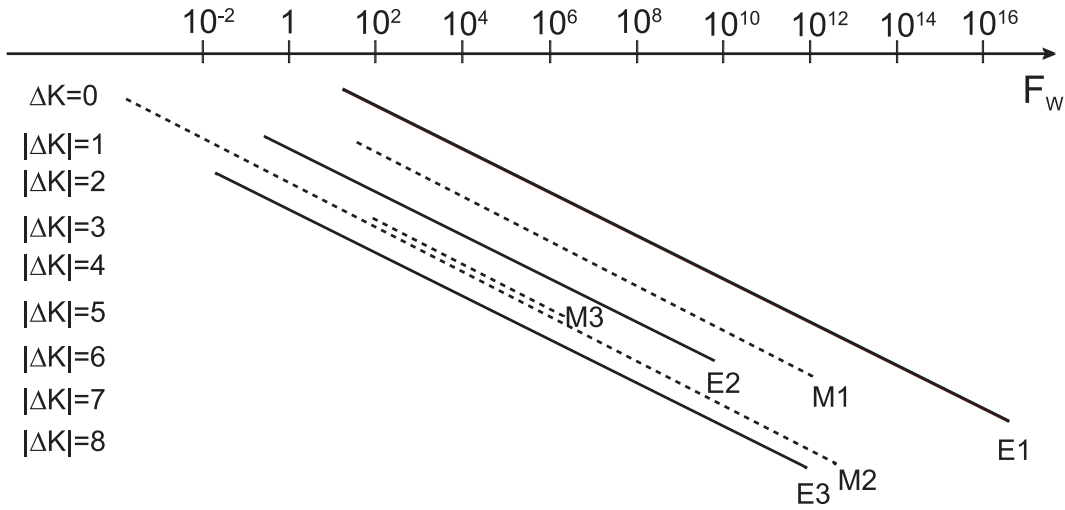


Figure 2.10: Courbe de tendance du facteur d'empêchement  $F_W$  tracé pour plusieurs multipolarités d'après la systématique analysée par K.E.G. Löbner (d'après [Lob68]).

*Trend curve of the hindrance factor  $F_W$  for several multipolarities based on the systematics analysed by K.E.G. Löbner (based on [Lob68]).*

que ces valeurs suivent une tendance logarithmique. Une loi empirique simple a été proposée dans [Rus61] :

$$\log(F_W) = 2 \cdot (|\Delta K| - L) = 2 \cdot \nu \quad (2.50)$$

Cette équation montre que pour chaque unité supplémentaire de  $\Delta K$ , l'empêchement est augmenté approximativement d'un facteur 100.

On définit également l'empêchement par degré d'interdiction  $f_\nu$  (ou également appelé l'empêchement réduit) par :

$$f_\nu = F_W^{1/\nu} = \left( \frac{T_{1/2}^\gamma}{T_{1/2}^W} \right)^{1/\nu} \quad (2.51)$$

Cette valeur est régulièrement exploitée pour comparer les transitions isomériques différentes dans une région donnée de la carte des noyaux. Deux valeurs de  $f_\nu$  ne peuvent être comparées que pour un type de transition électromagnétique et une valeur de  $\Delta K$  donnés. Il n'y a pas lieu de donner une valeur générale de  $f_\nu$ . Lorsqu'une transition isomérique est inconnue, le calcul du  $f_\nu$  permet d'estimer les valeurs possibles du  $\Delta K$  de celle-ci en le comparant avec la systématique de la région.

### 2.5.5 L'isomérisme $K$ dans la région des noyaux superlourds

Dans la région des noyaux superlourds où les effets de couches contribuent de manière dominante à la stabilité nucléaire, des différences subtiles de configuration peuvent avoir de grands effets sur les temps de vie. Ainsi, il est possible qu'un état isomérique d'un tel noyau ait un temps de demi-vie plus long que celui de l'état fondamental, comme par exemple le noyau de  $^{270}\text{Ds}$  (respectivement 6.0 ms et 100  $\mu\text{s}$ ).

L'intérêt des isomères dans la région est fermement ancré sur le fait que l'isomérisme

pointe généralement vers des informations structurelles sur les niveaux nucléaires. De plus, les isomères possèdent des configurations relativement pures ce qui est un avantage très puissant lorsque l'on cherche à tracer l'évolution des niveaux de particules individuelles à travers les chaînes isotopiques. Etant donnée que la valeur de  $K$  est fixe, on peut déterminer les orbitales intervenant dans cet état. Elles sont distinctes de celles impliquées dans le cadre des états construits sur le niveau fondamental.

L'isomérisme de haut- $K$  est très présent dans les noyaux très lourds et superlourds à cause de leur masse importante. En effet, plus le nombre de nucléons est élevé, plus la présence de projections élevées d'orbitales de haut- $J$  est importante aux alentours de la surface de Fermi. Ainsi, il est très probable de former des états de haut- $K$ , d'autant plus avec les orbitales neutrons.

### 2.5.6 Cas des noyaux transfermia

Les états isomériques de haut- $K$  sont très intéressants pour l'étude spectroscopique car ils disposent généralement d'un temps de vie plus grande que le temps de vol typique d'un noyau de recul dans un séparateur. Ainsi, il est possible de les isoler et de les étudier dans le plan focal à l'écart du bruit de fond impliqué par une forte intensité du faisceau.

Les isomères peuvent être étudiés par spectroscopie prompt et retardée (voir la Section 3.1) et ainsi fournir des informations sur la structure excitée du noyau. L'étude des états construits au-dessus des isomères  $K$  par spectroscopie prompt permet d'observer généralement des bandes de rotation. Des rayonnements  $\gamma$  de plusieurs centaines de keV, qui relient des bandes de  $K$  différentes, sont quant à eux observables par spectroscopie retardée. Cette dernière permet également d'étudier les états excités situés énergétiquement en-dessous des états isomériques.

L'étude des états isomériques est actuellement un domaine très riche qui permet, en particulier, de mieux appréhender la structure nucléaire dans la région des noyaux transfermia où ils sont très présents. En effet, ces derniers semblent être déformés prolates et possèdent ainsi une symétrie axiale. La présence d'un important gap déformé neutron  $N = 152$  contribue très fortement à la présence de ces états.

Les premiers isomères dans cette zone de la carte des nucléides ont été observés au début des années 1970 par l'équipe de A. Ghiorso [Ghi73]. Cependant, il a fallu attendre la mise au point vers la fin des années 1990 des techniques modernes de type "Recoil-Decay Tagging" (voir la Section 3.1) pour les étudier plus en détails. Depuis, plusieurs isomères ont été observés et étudiés dans la région.

Pour discuter de ces états, on prend l'exemple du noyau de  $^{250}\text{Fm}$  dont le schéma de niveaux correspondant constitue la Figure 2.11. Les résultats discutés proviennent de la Référence [Gre08]. Le temps de demi-vie du noyau a été mesuré à 1.92 s et l'énergie de sa décroissance par rayonnement  $\gamma$  de type E1 vers la bande de rotation basée sur l'état fondamental à 682.3 keV. En se basant sur les prédictions théoriques, cet état a été considéré comme étant peut-être un isomère 2-qp neutron de configuration  $9/2^- [734] \otimes 7/2^+ [624]$ . D'après les règles de Gallagher, il s'agit d'un état  $K^\pi = 8^-$ . Comme cette transition permet de passer d'un état  $K = 8$  à  $K = 0$  (état fondamental) et que la multipolarité de la transition est  $\lambda = 1$ , l'interdiction est de  $\nu = 7$ . En utilisant l'Equation 2.51 pour le cas d'une transition de



type E1, cela correspond à  $f_\nu = 167$ . Cette valeur semble être cohérente avec celle attendue. En effet, les valeurs de  $f_\nu$  sont de l'ordre de 150-220 pour les isotones  $N = 150$  étudiés :  $^{244}\text{Pu}$  [Cho10],  $^{246}\text{Cm}$  [Shi09],  $^{250}\text{Fm}$  [Gre08] et  $^{252}\text{No}$  [Sul12, Rob08]. Elles correspondent toutes à des transitions de type E1 et à  $\Delta K = 8$ ; le degré d'interdiction  $\nu$  est donc identique. Des valeurs de  $f_\nu$  différentes sont observées dans d'autres noyaux : par exemple, de l'ordre de 20 à 50 pour celui de  $^{257}\text{Rf}$  [Qia09].

L'attribution de la valeur de  $K$  à un état isomérique observé est souvent sujet à discussion dans la communauté. Les cas des noyaux de  $^{254}\text{No}$  [Herz06, Tan06] et de  $^{256}\text{Rf}$  (voir la Sous-section 4.2.3 et le Chapitre 6) en sont de bons exemples.

La région d'intérêt est discutée et comparée à des modèles théoriques dans [Xu04]. Une revue assez complète des états isomériques observés dans les éléments du plomb ( $Z = 82$ ) jusqu'au darmstadtium ( $Z = 110$ ) est présentée dans [Herz11].

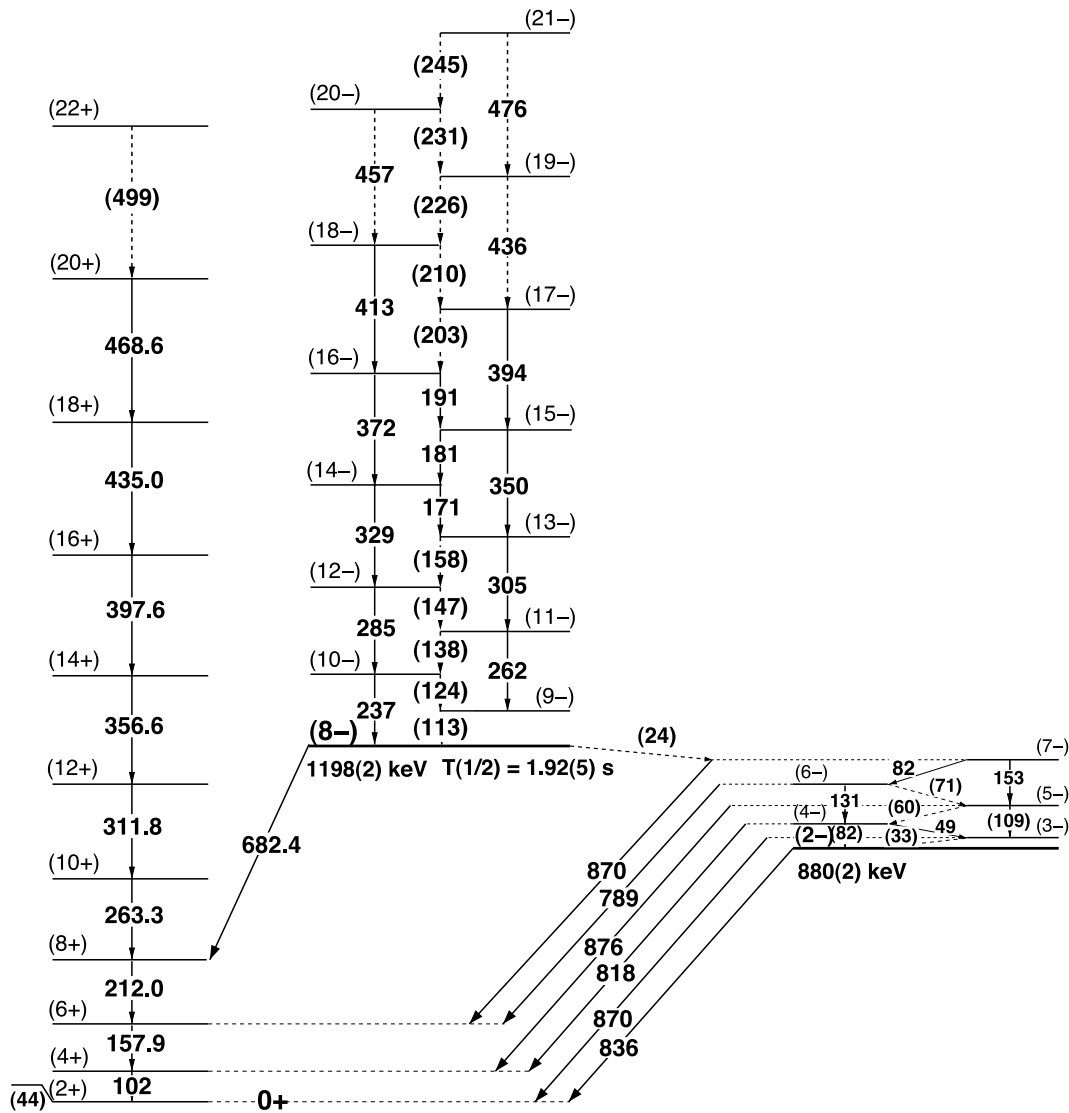


Figure 2.11: Schéma de niveaux du noyau de  $^{250}\text{Fm}$  [Gre13].

*Proposed level scheme of the  $^{250}\text{Fm}$  nucleus [Gre13].*

# Méthodes expérimentales et instrumentations

## Sommaire

<b>3.0</b>	<b>Summary</b>	<b>81</b>
<b>3.1</b>	<b>Techniques expérimentales</b>	<b>85</b>
3.1.1	Spectroscopie retardée	86
3.1.2	Spectroscopie prompte	89
<b>3.2</b>	<b>Description du dispositif de détection</b>	<b>91</b>
3.2.1	Le multidétecteur $\gamma$ JUROGAM II	92
3.2.2	Le séparateur à gaz RITU	95
3.2.3	Le système de détection au plan focal GREAT	99
3.2.3.1	Le compteur proportionnel à multifils MWPC	101
3.2.3.2	Le détecteur d'implantation DSSD	102
3.2.3.3	Le tunnel de diodes PIN	102
3.2.3.4	Le détecteur au germanium de géométrie plane	103
3.2.3.5	Les détecteurs au germanium de géométrie trèfle	103
<b>3.3</b>	<b>Acquisition et traitements des données</b>	<b>104</b>
3.3.1	L'électronique d'acquisition	104
3.3.2	Méthode d'acquisition des données	104
3.3.3	Logiciel d'analyse	105

## 3.0 Summary

The cross sections of the fusion-evaporation reactions for the transfermium nuclei studied range from several nanobarns to a few microbarns. The total cross section of the competing reaction mechanisms is several orders of magnitude higher. These other processes produce a large background from which experimental signals of the nuclei of interest must be extracted. One method to achieve this is to use recoil separators. The emissions from the deexcitation of excited nuclei can be studied using two complementary methods: prompt spectroscopy at the target position and delayed spectroscopy at the separator focal plane. These two techniques are illustrated in Figure 3.1.

Delayed spectroscopy is based on the identification of a nucleus through its decay signature. Corresponding radiations are measured with detectors placed at the focal plane of the

separator. In order to identify recoiling nuclei, their Time-of-Flight and energy deposition in a given material, are measured. The identification is completed by the measurement of the position of the implantation and the corresponding deposited energy. Furthermore, the detection of a decay signal (if it is known) at the same position within a defined time window allows the nuclei of interest to be discriminated from other nuclei. This method is called “Recoil-Decay Tagging” and enables accurate selections with low statistics. In the region of interest, this technique is used with three types of decays:  $\alpha$ -emission (“Recoil-Alpha Tagging”), spontaneous fission (“Recoil-Fission Tagging”) and the sum-energy detection of electron showers (“Recoil-Isomer Tagging”).

Since the recoil nucleus is implanted shallowly in the focal plane detector, the  $\alpha$ -particles may escape (when emitted backwards) and hence the detection efficiency of these particles in the implantation detector is around 50%. In the case of low statistics, it is possible to rely only on implantation signals. This method, called “Recoil Tagging”, allows the observation of more events, but has a lower selectivity than that for the “Recoil-Decay Tagging”.

Detectors are placed around an implantation detector in order to measure emission of  $\gamma$ -rays, X-rays and conversion electrons. They allow, among other things, the study of the deexcitation of states fed by isomeric states. It also permits the study of the decay of excited states of daughter nuclei fed by radioactive decay of implanted nuclei.

Prompt spectroscopy is performed with a  $\gamma$ -ray detector array or/and an electron spectrometer positioned around the target. These devices are used in association with the focal plane detection setup, which allows the identification of the nuclei of interest through a tagging method. Measuring the Time-of-Flight of the recoil nucleus, one can associate prompt emissions with corresponding delayed coincidence.

The selection power can be improved using the Recoil-Alpha Tagging or also the Recoil-Fission Tagging methods depending of the nucleus decay characteristics. The first one is commonly used for transfermium nuclei. The second one was tested with the  $^{252}\text{No}$  prompt spectroscopy study (see Figure 3.2.A) and then used for  $^{256}\text{Rf}$  as presented in Chapter 5.

Comparatively to the Recoil-Tagging selection, those methods give much cleaner selection, but have much less statistics. Spectra obtained with the two methods, that can be complementary, are presented for  $^{246}\text{Fm}$  in Figures 3.2.B and 3.2.C.

The Accelerator Laboratory of the University of Jyväskylä hosts one of the world's best detection setups for studying the transfermium nuclei using the Recoil-Decay Tagging method (see Figure 3.3). It was used for the prompt and delayed spectroscopy studies of  $^{256}\text{Rf}$ . It is composed of three different parts: JUROGAM II, RITU and GREAT.

The JUROGAM II array is composed of 39 Compton-suppressed High Purity germanium detectors placed around the target position (see Figures 3.4 and 3.5). There are two different types of crystal geometries: 24 clover detectors are in two rings around  $90^\circ$  with respect to the beam direction and 15 “Phase 1” tapered detectors are mounted at backward angles. Coming from the former EUROGAM array, the detectors are managed by the GAMMAPOOL collaboration. The full array covers 30.27% of  $4\pi$  with a measured absolute efficiency of 5.2% at 1.33 MeV. The detectors are instrumented using Lyrtech VHS-ADC digital acquisition cards. It allows the experimental setup to sustain high counting rates with a good energy resolution.

The gas-filled separator RITU (Recoil Ion Transport Unit) is designed for the study

of heavy ions by means of decay tagging. It is composed of one magnetic dipole (D) and three quadrupoles (Q) in a QDQQ arrangement (see Figures 3.6 and 3.7). This separator is optimized for the best possible transmission of recoiling nuclei produced in fusion-evaporation reactions. The first quadrupole focuses the recoiling nuclei vertically in order to fit the acceptance of the magnetic dipole. The latter separates the evaporation residues from transfer products, target-like or fission products. The two remaining quadrupoles focus the recoiling nuclei spot on the focal plane. The transmission of RITU depends on the target thickness and the asymmetry of the reaction and ranges from 2% for light projectiles (like O or Ne) to 40% for heavier ones (like Ca or Ti) (see Figure 3.8). The volume of RITU is filled by gas (usually by helium). This reduces the ion charge distribution thanks to charge exchange effects. The recoiling nuclei follow a trajectory centred on the average charge of the ion (see Figure 3.9) and are transported to the focal plane. This leads to better transmission of evaporation residues. Characteristics of RITU are listed in Table 3.1.

The recoiling nuclei transported through RITU are implanted into the spectrometer GREAT which is placed at the focal plane of RITU (see Figures 3.10 and 3.11). This detection system is composed of several detectors used for delayed spectroscopy.

First, a MultiWire Proportional Chamber (MWPC) (see Figure 3.12) measures the recoiling nuclei energy loss and allows the measurement of a Time-of-Flight. It is filled with isobutane and closed by Mylar windows. At the center of the chamber, the anode, covered by a Mylar foil, measures the energy loss. Two position-sensitive wire planes in X and Y coordinates record the position of the evaporation residue with a 1 mm-precision.

The nuclei are then implanted in a Double-sided Silicon Strip Detector (DSSD) composed of two juxtaposed 300  $\mu\text{m}$  thick crystals with active areas of  $60 \times 40 \text{ mm}^2$ . Vertical and horizontal strips form 4800 pixels of  $1 \text{ mm}^2$ . It is possible to set the amplification gains of both sides depending on the nuclei of interest and their characteristics.

A tunnel of diodes is placed upstream from the DSSD to detect the conversion electrons and  $\alpha$ -particles escaping from the implantation spot. This is composed of 28  $28 \times 28 \text{ mm}^2$  PIN diodes of a thickness of 500  $\mu\text{m}$ . The geometrical efficiency is estimated to be about 30% at 500 keV.

In order to study delayed  $\gamma$ -ray decay from isomeric states or daughter nuclei decays, four germanium detectors are placed around the focal plane. A planar detector is situated behind the DSSD. Its active area is  $120 \times 60 \text{ mm}^2$  and it has a thickness of 15 mm. It is designed to measure X-rays and low energy  $\gamma$ -rays as well as high energy  $\beta$ -particles. Three clover detectors (two EUROGAM and one VEGA type) surround the DSSD to detect higher energy  $\gamma$ -rays with an absolute efficiency of about 2% at 1.33 MeV.

The data acquisition system is triggerless and based on the Total Data Readout method (TDR) which records all (or a filtered part of) the singles events. Afterwards, the correlated events are reconstructed offline from the single events. This setup avoids loss of information due to a shared dead-time or non-accurate settings. A very stable 100 MHz frequency clock, called the Metronome, distributes a time reference to every detector. Each single events is saved with a 10 ns precision-timestamp, a measured energy and a detector identifier.

The data analysis was made online and then offline with the Java-based dedicated software GRAIN. It allows handling raw data output by the TDR system. The correlated events

are reconstructed with single events contained in a time window around a signal in the DSSD and a delayed coincidence window for prompt  $\gamma$ -rays. The data analysis software ROOT was used during this thesis for plots and for many specific fits, calculations or analyses.

Ce chapitre a pour objectif de décrire la partie technique qui était nécessaire à la réalisation et à l'analyse de l'étude spectroscopique du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Les méthodes expérimentales de spectroscopies retardée et prompte sont d'abord discutées. Le dispositif de détection des événements physiques du JYFL ainsi que le système d'acquisition et d'analyse des données utilisés sont ensuite décrits.

## 3.1 Techniques expérimentales

Les sections efficaces de production par réaction de fusion-évaporation des noyaux transférables vont du microbarn à la dizaine de picobarns. La fission immédiate du noyau composé, la quasi-fission, est la réaction la plus probable. Sa section efficace est généralement de 4 à 6 ordres de grandeur plus importante que celle de fusion-évaporation. Les réactions de transfert qui ont lieu dans la cible possèdent elles aussi des sections efficaces de 4 à 5 ordres de grandeur supérieures à la réaction d'intérêt. De plus, le nombre d'ions projectiles n'interagissant pas avec la cible est conséquent. Les événements d'intérêt sont donc complètement noyés par tout ce bruit ambiant (voir la Section 2.1 pour plus de détails).

Avec une telle contrainte, il n'est pas possible de discriminer les rayonnements d'intérêt du bruit de fond en ne conservant que les événements ayant un fold minimal (nombre de rayonnements détectés par un multi-détecteur dans une courte fenêtre de temps). Cette technique peut être exploitée uniquement pour des réactions possédant des sections efficaces relativement élevées (au minimum quelques dizaines de microbarns). De ce fait, il est indispensable d'utiliser un séparateur de noyaux de recul pour discriminer les noyaux d'intérêt transférables des produits de transfert, des noyaux cibles et projectiles. La sélectivité importante des séparateurs permet d'assurer l'origine des rayonnements émis. Le facteur de suppression des ions du faisceau est typiquement supérieur à  $10^{10}$ .

Un noyau peut être étudié via deux types de spectroscopie complémentaires qui permettent de mesurer les énergies de ses rayonnements. La spectroscopie prompte consiste en la mesure des rayonnements émis au niveau de la cible tandis que la spectroscopie retardée permet une mesure en aval de la cible, généralement après l'arrêt du noyau au plan focal du séparateur. Des détails sur ces deux types d'études sont donnés dans cette section. Le principe de ces deux méthodes est schématisé sur la Figure 3.1.

Les études réalisées dans la région des noyaux transférables grâce à ces techniques ont donné lieu à une quantité importante de résultats physiques depuis une quinzaine d'années. Plusieurs publications synthétiques les passent en revue [Lei04, Herz08, Herz11, Gre13].

Actuellement, seuls quelques laboratoires au monde possèdent un séparateur permettant de réaliser de telles études sur des noyaux très lourds et superlourds :

- ◇ BGS (Berkeley Gas-filled Separator), séparateur à gaz utilisé pour la synthèse et la chimie des éléments superlourds [Nin98, Fol04], au LBNL (Berkeley, Etats-Unis d'Amérique).
- ◇ DGFRS (Dubna Gas-Filled Recoil Separator), séparateur à gaz pour la synthèse de noyaux lourds en réaction cinématique directe [Tsy99, Sub02], et VASSILISSA, pour la synthèse de noyaux superlourds par réaction de fusion-évaporation en cinématique directe [Yer89, Yer97, Mal00] qui a récemment été modernisé grâce à l'ANR SHELS (Separator for Heavy Element Spectroscopy), au FLNR (Dubna, Russie).

- ◇ FMA (Fragment Mass Analyzer), séparateur à vide électromagnétique de recul pour la production d'ions moyen-lourds par réactions de fusion-évaporation en cinématique symétrique ou inverse [Dav89, Bac96], au ANL (Argonne, Etats-Unis d'Amérique).
- ◇ GARIS et GARIS 2, séparateur de reculs à gaz pour la synthèse et la chimie des éléments superlourds [Mor92, Mor10], à RIKEN (Wako, Japon)
- ◇ RITU (Recoil Ion Transport Unit), séparateur à gaz spectroscopie prompt de résidus lourds pour l'étude de la structure des noyaux très lourds et proches de la drip line proton par des réactions du fusion-évaporation [Lei95, Kett01, Uus03], au JYFL (Jyväskylä, Finlande).
- ◇ SHANS (Spectrometer for Heavy Atom and Nuclear Structure), séparateur à gaz récemment construit pour la synthèse de noyaux superlourds [Zha13b], au IMP (Lanzhou, Chine).
- ◇ TASCA (TransActinide Separator and Chemistry Apparatus), séparateur à gaz pour la synthèse d'éléments lourds pour les expériences utilisant un *gas catcher* [Gor10], et SHIP, séparateur à vide utilisant un filtre de vitesse pour l'étude de noyaux lourds et superlourds produits par réactions de fusion-évaporation [Mun79, Mun87], au GSI (Darmstadt, Allemagne).
- ◇ VAMOS (VARIABLE MOde Spectrometer), séparateur d'ions lourds et superlourds [Sav03] avec un mode gaz actuellement en développement [Schm10], au GANIL (Caen, France).

Le dispositif expérimental de l'Université de Jyväskylä basé sur RITU, permettant de réaliser les deux types de spectroscopie, est décrit en détails dans la Section 3.2. J'ai utilisé ces deux techniques lors de mon expérience de thèse pour identifier les noyaux de  $^{256}\text{Rf}$ , pour en réaliser la spectroscopie prompt (voir le Chapitre 5) et pour y rechercher des états isomériques de haut- $K$  (voir le Chapitre 6).

### 3.1.1 Spectroscopie retardée

La spectroscopie retardée se base sur l'identification et l'étude d'un noyau par ses émissions de particules lors de sa décroissance. Elle se réalise grâce à des détecteurs placés au niveau du plan focal d'un séparateur. L'identification des noyaux de recul sélectionnés par le séparateur requiert plusieurs informations. Par exemple, le dépôt d'énergie dans un matériel adéquat (comme un gaz) et le temps de vol (généralement nommé signal ToF pour Time-of-Flight, voir la Figure 3.1) des noyaux sont mesurés. Ces deux grandeurs sont dépendantes du noyau et permettent donc de l'identifier. Toutefois, la précision de ces mesures est généralement de mauvaise qualité. De plus, la présence de produits de transfert ou de noyaux quasi-cibles au plan focal vient gêner cette identification.

Pour affiner la sélection, on utilise un détecteur d'implantation placé au plan focal du séparateur. Typiquement composé de silicium, il permet une mesure de l'énergie et de la position bidimensionnelle grâce à une segmentation verticale et horizontale d'une implantation. Un noyau peut être identifié sans ambiguïté si une émission correspondante au type (habituellement par émission de particule  $\alpha$  ou par fission spontanée) et à l'énergie caractéristique de décroissance est détectée à la position d'implantation à l'intérieur d'une

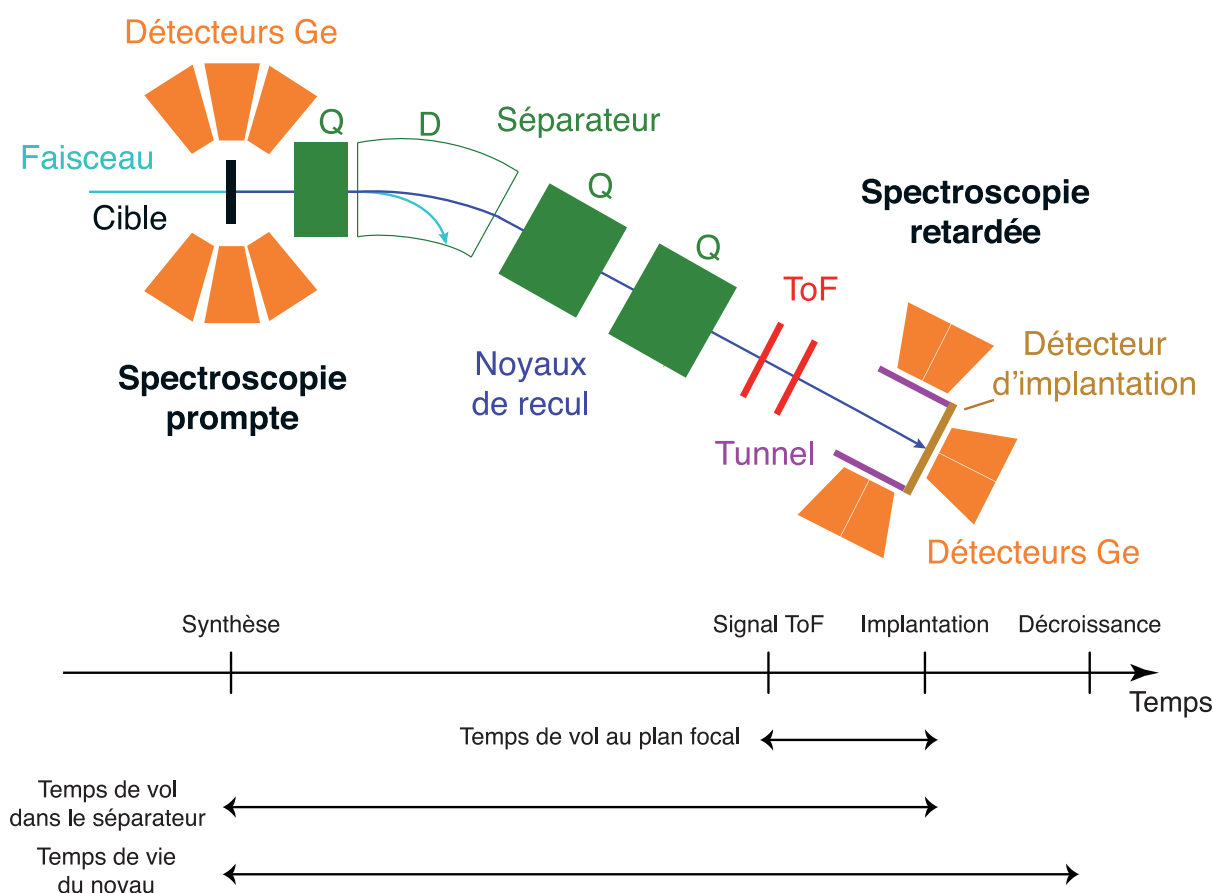


Figure 3.1: Illustration de la technique de sélection Recoil-Decay Tagging en vue de réaliser la spectroscopie prompte et retardée d'un noyau synthétisé par fusion-évaporation. Les intervalles de temps nécessaires à l'analyse d'une expérience sont indiqués en-dessous.

*Illustration of the Recoil-Decay Tagging selection technique. It allows to realize prompt and delayed spectroscopies of nuclei synthesized by fusion-evaporation reaction. The time intervals used during the analysis are indicated at the bottom ("Time-of-Flight at the focal plane", "Time-of-Flight in the separator" and "Lifetime of the nucleus").*

fenêtre temporelle liée au temps de vie du dit isotope. Cette méthode d'identification est appelée "Recoil-Decay Tagging" [Schm86, Pau95].

Pour exploiter cette technique, il faut impérativement que la décroissance utilisée soit déjà connue. Par exemple, l'identification de nouveaux éléments superlourds requiert une condition supplémentaire telle que la détection d'une cascade de particules  $\alpha$ , correspondante à une chaîne de décroissance, arrivant sur des noyaux connus. Le temps de vie d'un noyau peut être mesuré grâce à la différence de temps entre la création du noyau et sa décroissance dans le détecteur d'implantation.

Cette méthode d'identification possède cependant un inconvénient important dans le cas de la décroissance par émission de particules  $\alpha$  (que l'on peut aussi nommer "Recoil-Alpha Tagging"). Les noyaux de recul s'implantent généralement à une épaisseur faible de l'ordre de 1 à 10  $\mu\text{m}$  de silicium selon leur énergie cinétique. Les ions d'hélium émis ont une énergie



cinétique suffisante pour parcourir quelques dizaines de micromètres dans du silicium et donc s'échapper du détecteur d'implantation sans déposer toute leur énergie dans celui-ci. Les particules ont ainsi environ une chance sur deux de s'échapper du détecteur, leur efficacité de détection est donc approximativement de 50%. Pour ne pas subir les répercussions de cette perte, il est possible, lors d'une étude de rayonnements électromagnétiques associés à un isotope, de ne pas poser de condition sur la détection de la décroissance  $\alpha$  mais seulement sur le noyau de recul. Ainsi, un plus grand nombre de rayonnements est accessible avec, toutefois, une perte de précision et un bruit de fond plus important. Dans ce cas, la méthode de sélection est appelée "Recoil Tagging".

Le méthode Recoil-Decay Tagging offre la possibilité d'étudier la structure des noyaux à partir de leur décroissance  $\alpha$ . La mesure des intensités des différentes voies de décroissance donne accès à des informations sur le spin et la parité des noyaux père et fils. En effet, ces deux caractéristiques de l'état final d'une décroissance sont particulièrement dépendantes de celles de l'état initial. La fragmentation de la décroissance à partir d'états excités donne accès à des informations sur la structure nucléaire dans les noyaux impairs.

Il est également possible d'utiliser la méthode Recoil-Decay Tagging pour un noyau décroissant par fission spontanée. On peut alors nommer cette méthode "Recoil-Fission Tagging". Elle a déjà été utilisée lors de l'identification d'une partie des isotopes de  $^{252}\text{No}$  lors de différentes expériences [Herz01, Lep05, Sul07a, Sul12].

Des états isomériques peuvent être identifiés au travers de la méthode de type Recoil-Decay Tagging. En effet, lorsqu'un noyau est implanté dans le détecteur au silicium, il est possible qu'il soit toujours dans un état isomérique. Lorsque cet état décroît, un certain nombre d'électrons de conversion interne sont émis ce qui donne un signal observable. Ce signal marque de façon claire la décroissance de l'isomère. Cette méthode a été initialement proposée dans [Jon02].

Des détecteurs au germanium sont habituellement placés autour du détecteur d'implantation pour mesurer les rayonnements X et  $\gamma$ . On peut ainsi observer la désexcitation du noyau identifié à travers les rayonnements détectés dans un intervalle de temps défini à partir du temps d'implantation ou de décroissance. Le noyau de recul a été produit dans la cible quelques microsecondes avant son implantation. Les rayonnements  $\gamma$  émis au plan focal ne peuvent donc correspondre qu'à une désexcitation passant par des états de long temps de vie tels que les états isomériques de haut- $K$ . Ils ne peuvent toutefois être observés que si le temps de vie de l'état isomérique est supérieur à celui du temps de vol. Les rayonnements détectés donnent de précieuses informations sur les structures métastables et, plus spécialement, sur la valeur de la projection  $K$  de l'état isomérique.

Un tunnel en silicium peut être placé en amont du détecteur d'implantation. Il offre la possibilité de détecter les électrons de conversion, associés aux noyaux de recul, qui s'échappent par la face avant du détecteur d'implantation. Il permet aussi de détecter les particules  $\alpha$  s'échappant du détecteur d'implantation et qui n'y ont pas déposé toute leur énergie. Après une correction des pertes d'énergie dans les zones mortes, les énergies de ces particules peuvent être obtenues. On peut également se servir du tunnel pour invalider (veto) les rayonnements associés à certaines particules sortant du détecteur d'implantation.

### 3.1.2 Spectroscopie prompte

La spectroscopie prompte permet de mesurer les rayonnements émis lors de la désexcitation prompte du noyau d'intérêt immédiatement après sa création dans la cible. Un ensemble de détecteurs de rayonnements  $\gamma$  comme JUROGAM II (voir la Section 3.2.1), un spectromètre à électrons comme SACRED [But96, Kan04] ou une combinaison novatrice des deux telle que le propose le spectromètre SAGE [Pap09, Pap10, Pap11, Pap12] est placé autour de la cible.

Les noyaux d'intérêt produits sont identifiés au plan focal avec la sélection de type Recoil-Decay Tagging comme présentée dans la sous-section précédente. Cependant, les rayonnements dans le plan cible proviennent de multiples sources : l'excitation des noyaux cibles, les quasi-cibles, les produits de transfert, les produits de fission et les noyaux d'intérêt. Ainsi, des centaines de milliers de rayonnements peuvent être émis chaque seconde. Pour affiner de manière forte cette sélection, le temps de vol dans le séparateur du résidu d'évaporation, noté  $\Delta t$ , est utilisé. En effet, les rayonnements détectés au niveau de la cible au temps  $t = t_{imp.} - \Delta t$  sont associés rétroactivement au noyau implanté à un temps  $t_{imp.}$  (voir la Figure 3.1). On note que le temps de vol d'un noyau de recul, de l'ordre de la microseconde, est très long devant le temps de désexcitation des transitions émises promptement qui est typiquement de l'ordre de la femtoseconde.

La spectroscopie prompte est également possible en sélectionnant les résidus d'évaporation par Recoil-Fission Tagging. Cette technique a déjà été utilisée pour obtenir environ 30% de la statistique de la bande de rotation basée sur l'état fondamental et de deux bandes couplés au-dessus d'un état isomérique pour l'isotope de  $^{252}\text{No}$ . Des études sur cet isotope sont présentées dans les Références [Herz01, Lep05, Sul07a, Sul12].

Pour m'entraîner à utiliser cette technique avant mon expérience de thèse, j'ai développé des codes pour tester cette méthode sur cet isotope. Les données exploitées proviennent de l'expérience dont les résultats sont publiés dans [Sul12]. J'ai ainsi obtenu la Figure 3.2.A qui présente la bande de rotation au-dessus de l'état fondamental du noyau de  $^{252}\text{No}$  jusqu'à un spin de  $20 \hbar$ .

La sélection des rayonnements peut être effectuée soit uniquement avec le noyau implanté (Recoil Tagging) ou avec sa décroissance (Recoil-Decay Tagging). Ce choix dépend de la précision recherchée, du bruit de fond et de la statistique disponible. Il est possible d'utiliser ces deux méthodes de manière complémentaire en attribuant certaines transitions avec la seconde et en obtenant plus de statistique avec la première. Cette méthode a été utilisée avec succès, par exemple, pour la spectroscopie prompte du noyau de  $^{246}\text{Fm}$  [Pio10]. Cette astuce est illustrée par la Figure 3.2.B et 3.2.C pour laquelle les spectres résultant des deux types de sélection sont comparés.

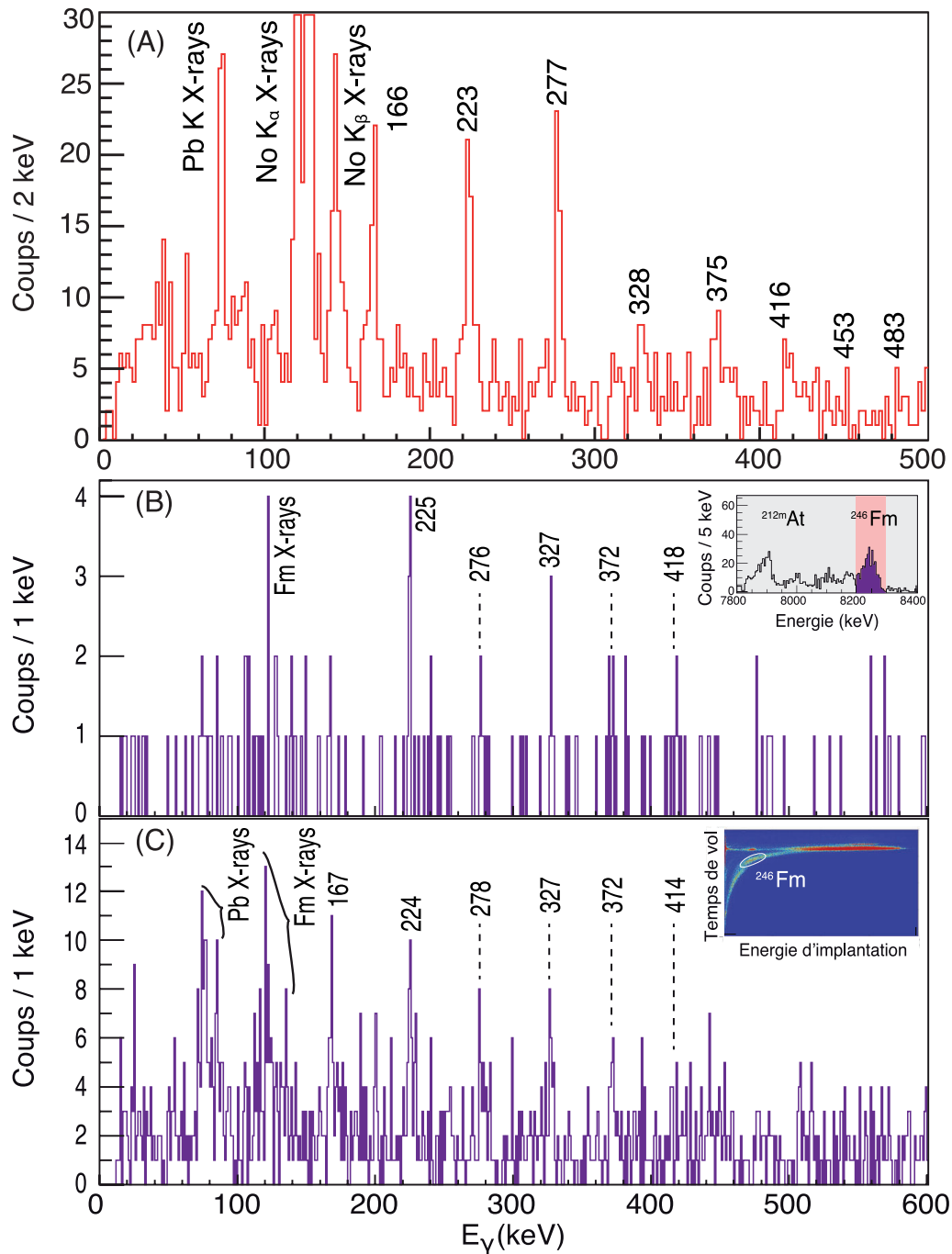


Figure 3.2: Spectres des rayonnements  $\gamma$  prompts de noyaux transfermia sur lesquels on observe la bande rotation basée sur l'état fondamental (A) : pour le noyau de  $^{252}\text{No}$  avec une sélection Recoil-Fission Tagging (Les données proviennent de l'expérience présentée dans [Sul12]) (B) : obtenu avec le noyau de  $^{246}\text{Fm}$  avec une sélection par Recoil-Alpha Tagging et (C) : par Recoil Tagging (d'après [Pio12a]).

*Prompt  $\gamma$ -ray spectra of transfermium nuclei. They show evidence of the ground-state based rotational band (A): for the  $^{252}\text{No}$  nucleus using a Recoil-Fission Tagging selection (The data comes from the experiment presented in [Sul12]). (B): for the  $^{246}\text{Fm}$  nucleus using a Recoil-Alpha Tagging selection and (C): using a Recoil Tagging selection (based on [Pio12a]).*

## 3.2 Description du dispositif de détection

Le Département de Physique de l'Université de Jyväskylä (Jyväskylän Yliopisto Fysiikan Laitos, JYFL), Finlande, dispose d'un système de détection complet pour l'étude de la structure nucléaire aux limites de la carte des noyaux. Il est, en outre, optimisé pour étudier la spectroscopie prompt de rayonnements  $\gamma$  des noyaux transfermia sur la base des méthodes dites Recoil Tagging ou Recoil-Decay Tagging (discuté dans la Section 3.1).

Antérieurement à l'expérience qui est présentée dans cette thèse, les noyaux transfermia étudiés en spectroscopie  $\gamma$  prompt avec ce dispositif étaient ceux de  $^{246,248,250}\text{Fm}$  ( $Z = 100$ ) [Pio11, Pio12a, Kete10, Gre08],  $^{251}\text{Md}$  ( $Z = 101$ ) [Chat05, Chat07],  $^{252,253,254}\text{No}$  ( $Z = 102$ ) [Herz01, Herz09, Lei99] et  $^{255}\text{Lr}$  ( $Z = 103$ ) [Kete09]. L'objectif majeur de cette thèse était d'aller plus haut en masse avec l'étude d'un isotope d'un élément superlourd : celui de  $^{256}\text{Rf}$  ( $Z = 104$ ). Cette analyse est présentée dans le Chapitre 5.

L'instrumentation utilisée était composée de trois parties distinctes : le multidétecteur de rayonnements  $\gamma$  JUROGAM II situé autour du plan cible, le séparateur à gaz RITU et le système de détection au plan focal GREAT. Une fois mis en série, ils constituent un des systèmes les plus performants au monde pour l'étude en spectroscopie  $\gamma$  prompt des noyaux

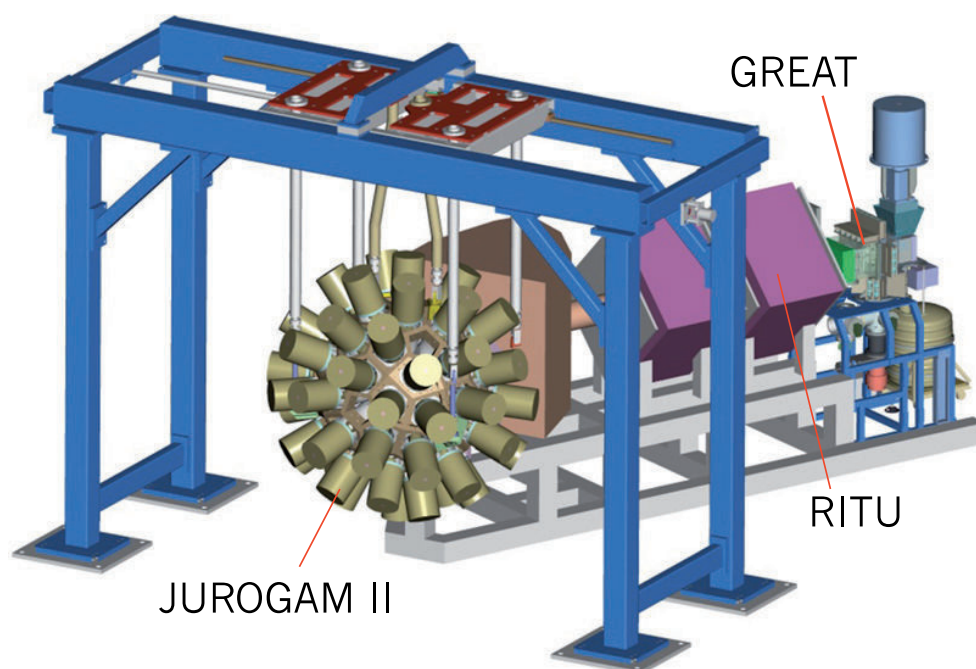


Figure 3.3: Représentation tridimensionnelle du système de détection du Laboratoire de l'Accélérateur de l'Université de Jyväskylä. Il est composé, de gauche à droite, du multidétecteur à rayonnements  $\gamma$  JUROGAM II, du séparateur de recul à gaz RITU et du système de détection au plan focal GREAT (d'après [Sed05]).

*Three-dimensional representation of the detection setup of the Accelerator Laboratory of the University of Jyväskylä. It consists, from left to right, of the  $\gamma$ -ray detection array JUROGAM II, the gas-filled recoil separator RITU and the focal plane spectrometer GREAT (based on [Sed05]).*

transfermia. Ces trois instruments sont décrits dans cette section. Une représentation tridimensionnelle de cet ensemble est présentée sur la Figure 3.3. Les réglages fins de l'instrumentation dans le cadre de mon expérience de thèse sont présentés en détails dans la Sous-section 5.1.2.

Il est possible de compléter ce système de détection avec le spectromètre à électrons SAGE [Pap09, Pap10, Pap11, Pap12] et d'ajouter ainsi la possibilité d'une spectroscopie prompte d'électrons de conversion. Durant ma thèse, j'ai pu me familiariser avec ce détecteur lors d'autres expériences ayant pour objectif l'étude des noyaux de  $^{251}\text{Md}$  [The10, Dec12] et de  $^{255}\text{Lr}$  [San10]. La production du faisceau d'ions de  $^{50}\text{Ti}$  utilisé pour réaliser mon expérience de thèse, ainsi que le dispositif correspondant, est décrite dans la Partie III.

### 3.2.1 Le multidétecteur $\gamma$ JUROGAM II

Le multidétecteur JUROGAM II est un spectromètre de rayonnements  $\gamma$  (voir aussi la Figure 3.4). Il est l'amélioration et la suite logique des spectromètres JUROSPHERE [Kor99] et JUROGAM premier du nom. JUROGAM II est placé autour de la cible pour pouvoir détecter les transitions émises promptement par les résidus d'évaporation juste après leur création. Il est composé de 39 détecteurs au germanium de haute pureté, divisés en deux catégories : 15 unités de géométrie tronconique [Bea92] (souvent appelés "Phase 1") et 24 unités de géométrie trèfle [Duc99] (ou plus communément appelés Clover). Les deux types de détecteurs sont schématisés sur la Figure 3.5. Ils constituent un total de 111 cristaux au germanium, provenant du multidétecteur européen EUROGAM 2, actuellement géré par la collaboration européenne GAMMAPOOL.

Ces détecteurs sont répartis géométriquement en plusieurs couronnes positionnées à une distance de 23 cm du point cible de la façon suivante (de droite à gauche sur la Figure 3.5.C) :

- ◇ Deux anneaux de 12 détecteurs trèfle orientés respectivement à  $75.5^\circ$  et à  $104.5^\circ$  par rapport à la direction du faisceau.
- ◇ Dix détecteurs tronconiques sont disposés à l'arrière autour de la ligne de faisceau à  $133.57^\circ$ .
- ◇ Cinq détecteurs tronconiques sont placés sur un ultime anneau à  $157.6^\circ$ . Ces derniers peuvent être retirés pour insérer le spectromètre à électrons SAGE.

La couverture angulaire de ces 39 détecteurs a été estimée à 30.27% de  $4\pi$  [Pio10]. Leur grande efficacité de détection absolue totale, mesurée à 5.2% à 1.33 MeV lors de mon expérience de thèse (voir la Sous-section 5.1.2), donne accès à de très faibles sections efficaces. En parallèle, la grande granularité de JUROGAM II permet de faire face soit aux fortes multiplicités en offrant la possibilité d'étudier les coïncidences entre les rayonnements  $\gamma$ , soit à un très haut taux de comptage qui se répartit sur l'ensemble des détecteurs. Tous les cristaux sont maintenus à très basse température grâce à un doigt froid de cuivre baignant dans un réservoir d'azote liquide. Une couche d'une épaisseur de 1 mm de cuivre est placée sur l'avant de tous les détecteurs pour absorber la contribution des rayonnements X provenant des produits de fission et de la cible. Ils ne limitent pas la plage de mesure étant donné que les rayonnements issus des noyaux transfermia à ces énergies sont fortement convertis en électrons. La plage énergétique accessible s'étend de 40 keV à quelques MeV, cependant JUROGAM II est particulièrement performant sur une plage de 100 keV à 2 MeV.

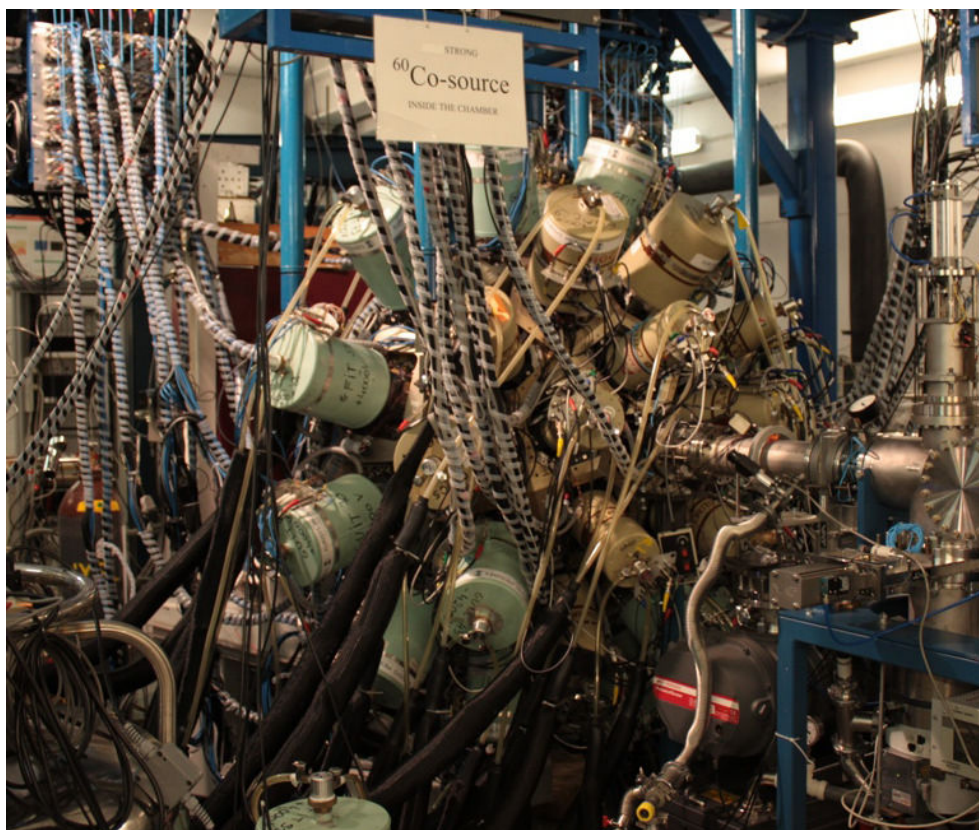


Figure 3.4: Photographie du multidétecteur à rayonnements  $\gamma$  JUROGAM II dans une configuration à 15 détecteurs tronconiques et 24 détecteurs trèfle. Le faisceau arrive par la droite [Pio10].

*Photography of the  $\gamma$ -ray multidetector JUROGAM II composed by 15 tapered detectors and 24 clover detectors. The beam comes from the right [Pio10].*

Les différentes réactions étudiées avec ce multidétecteur peuvent être de section efficace très faible. Pour réduire l'influence des coïncidences de type pic-fond, il est primordial de réduire le bruit de fond généré par la diffusion Compton. C'est pour cela qu'un système anti-Compton au germanate de bismuth (BGO) [No194] entoure chaque détecteur germanium (tronconiques et trèfles). Si un rayonnement est détecté dans un cristal de BGO en même temps que dans un cristal de germanium, l'événement n'est pas pris en compte par le système de veto. Les échappements par diffusion Compton avérés sont, de ce fait, éliminés. On note que les cristaux de BGO sont collimatés par des éléments de tungstène ( $Z = 74$ ) pour ne pas être exposés aux rayonnements électromagnétiques en provenance directe de la cible.

La cible au centre de JUROGAM II possède un mécanisme de rotation. Il a été développé et installé en 2003 par l'IReS Strasbourg dans l'optique de réaliser la spectroscopie prompte du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  [Kha07]. La section efficace de production étant en effet très faible, il était nécessaire, pour pouvoir réaliser l'expérience dans une durée d'environ deux semaines, d'utiliser une intensité de faisceau plus élevée. Cette dernière entraîne une contrainte thermique importante sur la cible. Il était donc nécessaire qu'elle soit en rotation pour mieux répartir la chaleur induite et ainsi éviter les risques de fonte de la cible. La ligne en amont de la chambre

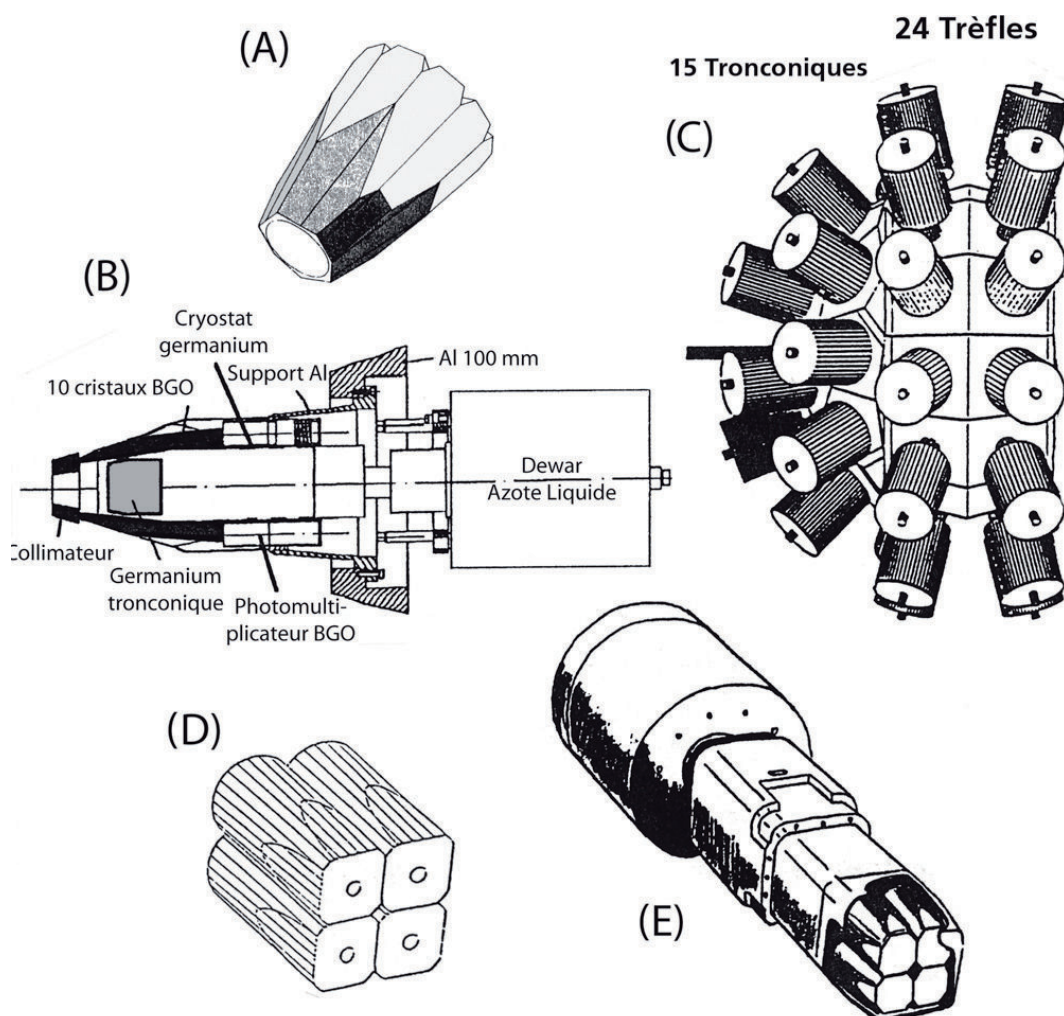


Figure 3.5: Schémas du spectromètre JUROGAM II, qui utilise la structure de l'ancien spectromètre EUROGAM2, et des cristaux de germanium le composant (d'après [Gall99]). (A) : Enceinte BGO pour un détecteur germanium de géométrie tronconique. (B) : Coupe d'un détecteur germanium de géométrie tronconique inséré dans son enceinte anti-diffusion Compton. (C) : Vue latérale de la structure générale du spectromètre. (D) : Regroupement de quatre cristaux de germanium formant un détecteur de géométrie trèfle. (E) : Vue extérieure d'un détecteur germanium de géométrie trèfle dans son enceinte.

*Diagrams of the  $\gamma$ -ray spectrometer JUROGAM II, which uses the structure of the former spectrometer EUROGAM2, and of its germanium crystals (based on [Gall99]). (A): BGO shields for a tapered germanium detector. (B): Cross section of a tapered germanium detector inserted into its surrounding anti-Compton shell. (C): Side view of the general structure of the spectrometer. (D): Group of four germanium crystals composing a clover detector. (E): External view of a clover germanium detector within its surrounding shell.*

à réaction est maintenue sous vide par pompage différentiel. Aucune fenêtre n'est donc présente pour contenir l'hélium qui remplit la chambre à réaction à une pression de 0.6 mbar. L'absence de fenêtre permet une meilleure transmission des ions du faisceau. Le gaz noble améliore le refroidissement de la cible grâce à la transmission de chaleur vers ses molécules. On peut estimer que cet instrument est nécessaire pour des intensités dépassant 25 pA, ce qui la rend indispensable pour des expériences à sections efficaces inférieures à 100 nb.

En résumé, JUROGAM II possède une grande efficacité de détection, une couverture angulaire importante, une bonne résolution énergétique, une granularité conséquente et un bon rapport pic sur total grâce aux cristaux de BGO. Cet ensemble de caractéristiques lui permet donc d'être l'un des dispositifs les plus efficaces au monde pour la spectroscopie prompte des noyaux très lourds et superlourds.

### 3.2.2 Le séparateur à gaz RITU

Le second maillon de ce dispositif de détection est le spectromètre de recul RITU pour Recoil Ion Transport Unit (voir les Figures 3.6 et 3.7). Il s'agit d'un séparateur à gaz à basse pression de 4.8 m de long conçu pour l'étude des ions lourds par identification de leur décroissance [Lei95, Kett01, Uus03, Lep05]. Il est optimisé en particulier pour la sélection des noyaux lourds formés par réaction de fusion-évaporation. Son champ magnétique permet de les séparer des noyaux projectiles, des noyaux cibles, des produits de transfert ou des produits de fission. Il est composé, dans le sens des noyaux de recul, d'un quadripôle vertical (Q1), d'un dipôle magnétique (D), d'un autre quadripôle vertical (Q2) puis d'un quadripôle horizontal (Q3) (voir la Figure 3.7). Le premier quadripôle, Q1, définit en grande partie l'acceptance du séparateur. Le dipôle D assure la fonction de séparation grâce à l'action de la force de Lorentz. Les quadripôles Q2 et Q3 permettent de focaliser les noyaux de recul sur le plan focal afin de limiter sa dispersion et, de ce fait, son étalement spatial.

Au niveau du dipôle, la déflexion est de 25° pour un rayon de courbure de 1.85 m. Vu de la cible, le séparateur a une ouverture rectangulaire verticale de  $\pm 80$  mrad et horizontale de  $\pm 30$  mrad, ce qui correspond à un angle solide de 10 msr. La rigidité maximale acceptée par le séparateur est de 2.2 T·m. La résolution en masse de RITU est de  $A/\Delta A = 100$ . D'une manière générale, la transmission d'un séparateur dépend également de l'épaisseur de la cible ainsi que du type de réaction. En effet, l'acceptance, en fonction de l'épaisseur de la cible, diminue plus rapidement pour les réactions plus asymétriques. Pour RITU, elle varie de 2% pour les réactions utilisant des noyaux projectiles légers (N, O, Ne) jusqu'à 40% pour des noyaux projectiles lourds (Ca, Ti, Cr). Cette différence notable peut s'observer sur les simulations présentées dans [Kha07] (voir la Figure 3.8).

Contrairement à un séparateur à gaz, un séparateur à vide va différencier les états de charge d'un noyau (voir le schéma de la Figure 3.9.A). En effet, un noyau de recul s'implante à une position au niveau du plan focal qui est dépendante du rapport entre sa masse  $A$  et son état de charge  $q$ .

La rigidité magnétique d'un ion de masse  $m$  et de vitesse  $v$  perpendiculairement à un champ magnétique homogène de norme  $B$  dans le vide est donnée par :

$$B \cdot \rho = \frac{m \cdot v}{q} \quad (3.1)$$



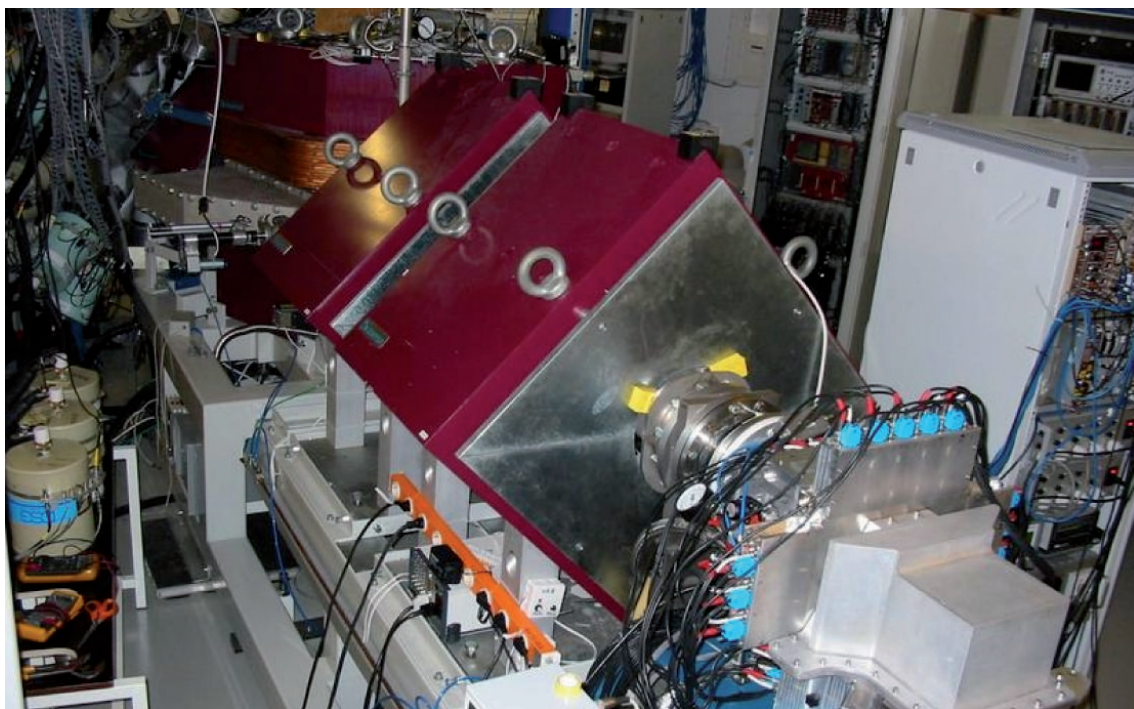


Figure 3.6: Photographie du séparateur à gaz RITU.  
 Photography of the gas-filled recoil separator RITU.

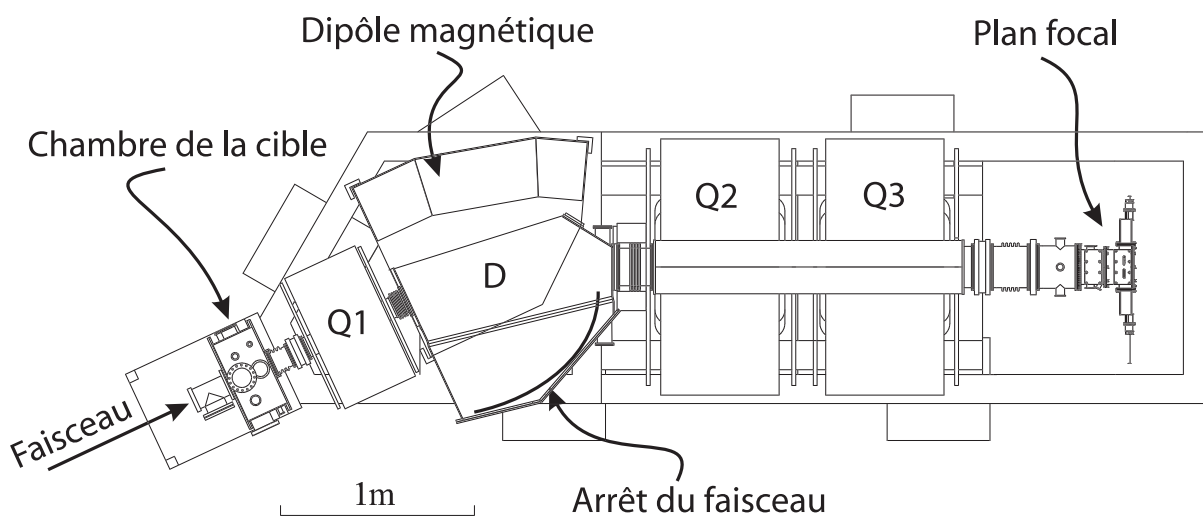


Figure 3.7: Schéma du séparateur à gaz RITU composé d'un dipôle magnétique et de trois quadripôles (d'après [Kett03]).

Diagram of the gas-filled recoil separator RITU composed of one magnetic dipole and three quadrupoles (based on [Kett03]).

où  $\rho$  décrit le rayon de la trajectoire de la particule (1.85 m pour RITU) et  $q$  est la charge électrique de l'ion.

La valeur de la charge d'un noyau résulte des interactions dans la cible et est donc représentée par une distribution en charge dont la largeur peut être plus ou moins importante. Il peut donc être difficile voire impossible de transporter tous les états de charge jusqu'au plan focal. En effet, les noyaux lourds peuvent présenter plus d'une dizaine d'états de charge différents.

Pour s'affranchir de ce problème crucial dans le cadre des études à basse statistique, il est possible d'utiliser un gaz dans certains séparateurs. Le premier séparateur à gaz fut SASSY, développé au LBNL [Ghi88]. Une revue de cette technologie est présentée dans la Référence [Lei03]. La chambre de RITU est ainsi remplie d'un gaz à basse pression (généralement de l'hélium), ventilé à flux constant pour limiter la présence d'impuretés. Lorsqu'un ion se déplace dans un gaz dilué, son état de charge évolue le long de son parcours dans le séparateur. Les chocs entre l'ion et les molécules de gaz provoquent des captures et pertes d'électrons conduisant la distribution d'états de charge à se regrouper autour d'un état de charge moyen  $\langle q \rangle$ . Il s'avère alors que, dans un dipôle magnétique, la trajectoire d'un ion est proche de celle d'un ion de charge  $\langle q \rangle$ .

D'après la description théorique de l'atome de Bohr [Boh41], tous les électrons se déplaçant à une vitesse orbitale inférieure à la vitesse de Bohr  $v_0$ , qui est liée à la vitesse de la lumière dans le vide  $c$  par  $v_0 = c/137 = 2.19 \cdot 10^6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , sont arrachés lors d'une collision. Le modèle de l'atome de Thomas-Fermi permet de calculer que le nombre moyen d'électrons arrachés  $\langle q \rangle$  dépend de l'élément de l'ion d'intérêt  $Z$  et de sa vitesse  $v$  :

$$\langle q \rangle \approx \frac{v}{v_0} \cdot Z^{1/3} \quad (3.2)$$

Ce modèle estime une valeur de 12.6 électrons arrachés en moyenne pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Dans un gaz donné, la rigidité magnétique d'un ion est, en utilisant l'équation précédente, de :

$$B \cdot \rho = \frac{m \cdot v}{\langle q \rangle} = \frac{m \cdot v}{v/v_0 \cdot Z^{1/3}} \quad (3.3)$$

$$\Leftrightarrow B \cdot \rho \approx 0.0227 \cdot \frac{A}{Z^{1/3}} \text{ [en T}\cdot\text{m]} \quad (3.4)$$

Dans un spectromètre à gaz, la rigidité magnétique est donc indépendante de la vitesse et de l'état de charge. On règle le dipôle de RITU de manière à placer le centroïde de la distribution d'états de charge sur le détecteur d'implantation. Cette technique est schématisée sur la Figure 3.9.B. Ce type de spectromètre possède une efficacité supérieure à celle d'un spectromètre sous vide. Cependant, il faut prendre en compte certains inconvénients comme la dispersion des trajectoires et également la plus faible résolution en masse comparé à un séparateur à vide ( $A/\Delta A = 100$  au lieu de 300).

La perte d'énergie des noyaux de recul dans le gaz peut également être problématique. En effet, la traversée du séparateur RITU rempli à 0.6 mbar d'hélium fait rencontrer autant d'atomes que celle d'une cible de  $12 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Ce phénomène est fortement accentué par la traversée d'un détecteur tel que le MWPC. Ainsi, les noyaux très lourds et superlourds qui sont créés avec une énergie cinétique relativement faible peuvent être stoppés durant le trajet

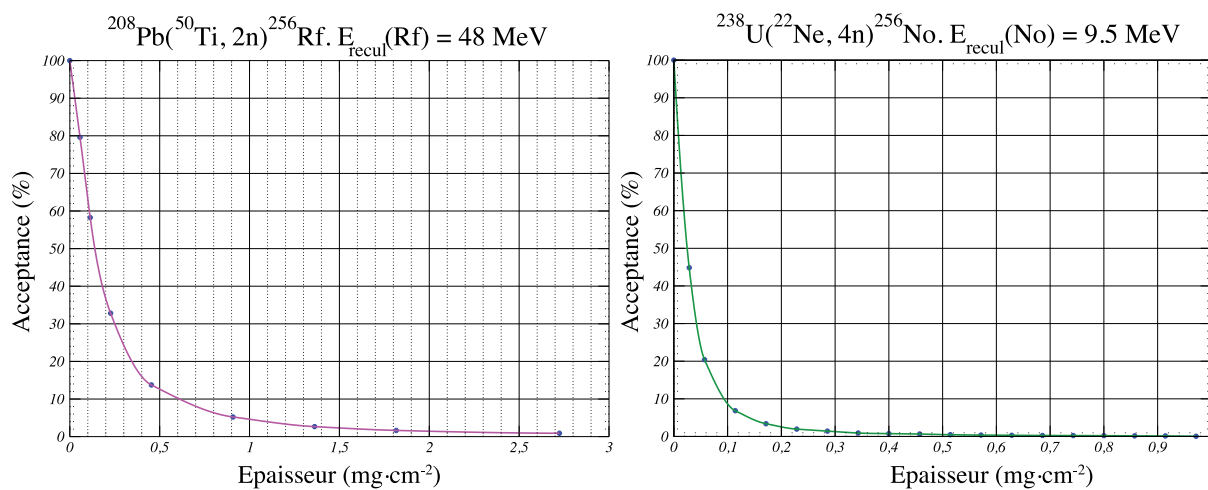


Figure 3.8: Simulation de l'acceptance angulaire de RITU en fonction de l'épaisseur de la cible pour deux réactions de fusion-évaporation dans la région des noyaux transfermia. L'acceptance diminue plus rapidement pour les réactions asymétriques car les noyaux de reculs sont plus lents (d'après [Kha07]).

*Simulation of the angular acceptance of RITU as a function of the target thickness for two fusion-evaporation reactions in the transfermium nuclei region. The acceptance decreases faster for asymmetric reactions due to their slower recoils (based on [Kha07]).*

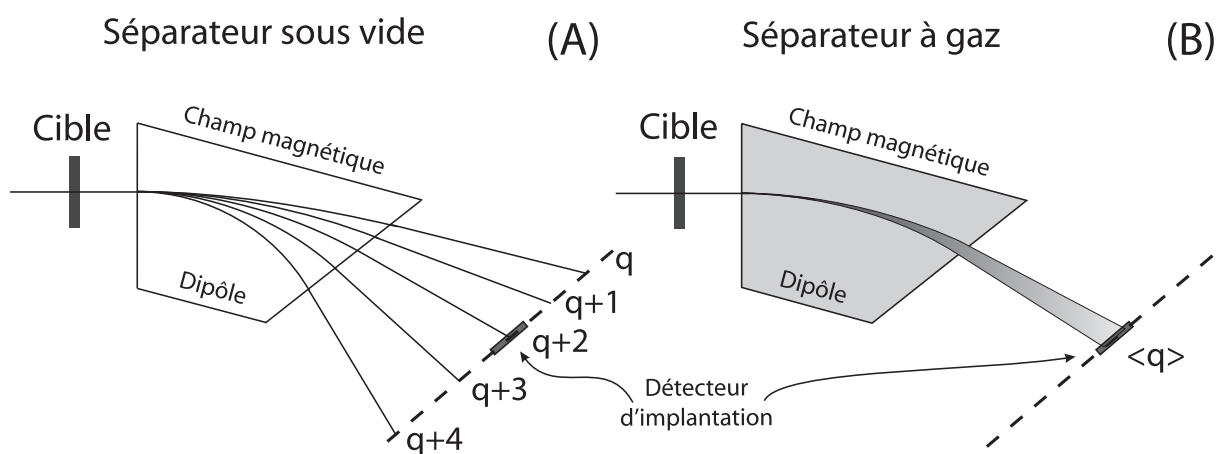


Figure 3.9: Trajectoire des ions soumis au champ d'un dipôle magnétique pour (A) : un séparateur sous vide et (B) : un séparateur rempli de gaz tel que RITU. Dans le premier cas de figure, les ions d'un même élément présentent des trajectoires différentes selon leur état de charge. Au contraire, lorsque le séparateur est rempli de gaz, leurs trajectoires sont regroupées dans un état de charge moyen  $\langle q \rangle$  (d'après [Kett03]).

*Trajectory of ions on the field of a magnetic dipole for (A): a vacuum separator and (B): a gas-filled separator like RITU. In the first case, ions of the same element present different trajectories according to their charge state. On the contrary, when the separator is filled with gas, their trajectories are gathered around an average charge state  $\langle q \rangle$  (based on [Kett03]).*

entre la cible et le plan focal. Par exemple, la réaction de fusion chaude  $^{238}\text{U}(^{22}\text{Ne}, 4n)^{256}\text{No}$  a été testée lors d'une expérience utilisant le séparateur RITU. Aucun résidu d'évaporation n'a été observé par le système de détection au plan focal GREAT. D'après les simulations effectuées en parallèle, ils ont été certainement arrêtés par les molécules de gaz [Kha07].

RITU possède une transmission totale d'environ 30-40% pour les réactions de fusion-évaporation froides permettant la synthèse de noyaux transfermia. Cette valeur optimale est obtenue grâce à un gaz d'hélium d'une pression d'environ 0.6 mbar [Eec06]. Un résumé des caractéristiques de RITU est donné dans le Tableau 3.1.

Configuration magnétique	$Q_V D Q_H Q_V$
Longueur totale	4.8 m
Rigidité magnétique maximale	2.2 T·m
Angle de déviation	25°
Rayon de courbure $\rho$	1.85 m
Acceptance angulaire	10 msr
Acceptance horizontale	$\pm 80$ mrad
Acceptance verticale	$\pm 30$ mrad
Dispersion	10 mm par % du $B \cdot \rho$

Tableau 3.1: Caractéristiques du séparateur de recul à gaz RITU [Lei95].

*Characteristics of the gas-filled recoil separator RITU [Lei95].*

### 3.2.3 Le système de détection au plan focal GREAT

Le système de détection au plan focal du séparateur à gaz RITU est le polydécteur GREAT, pour Gamma Recoil Electron Alpha Tagging [Pag03, And04] (voir une photographie et un schéma sur les Figure 3.10 et 3.11). Comme son nom l'indique, il est très polyvalent puisqu'il permet de mesurer les différentes émissions issues des noyaux de recul transportés de la cible au plan focal. Ainsi, il peut détecter les protons, particules  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ , les produits de fissions spontanée, les électrons de conversion et les rayonnements X.

On peut décomposer GREAT en cinq éléments distincts, qui sont décrits dans cette section, dans le sens du mouvement des noyaux de recul :

- ◇ Un compteur proportionnel à fils (MWPC).
- ◇ Un tunnel composé de diodes de silicium.
- ◇ Un détecteur d'implantation au silicium (DSSD).
- ◇ Un détecteur au germanium de géométrie planaire.
- ◇ Un ou plusieurs détecteurs au germanium de géométrie trèfle.

Ce système de détection possède les avantages d'être hautement segmenté, de bonne résolution énergétique et très efficace. Il joue également un rôle très important pour l'identification des résidus d'évaporation. L'utilisation simultanée de cet ensemble permet d'obtenir de très bons résultats en sélectionnant uniquement les noyaux répondant à certains critères d'énergie, de temps de vie et de temps de vol.

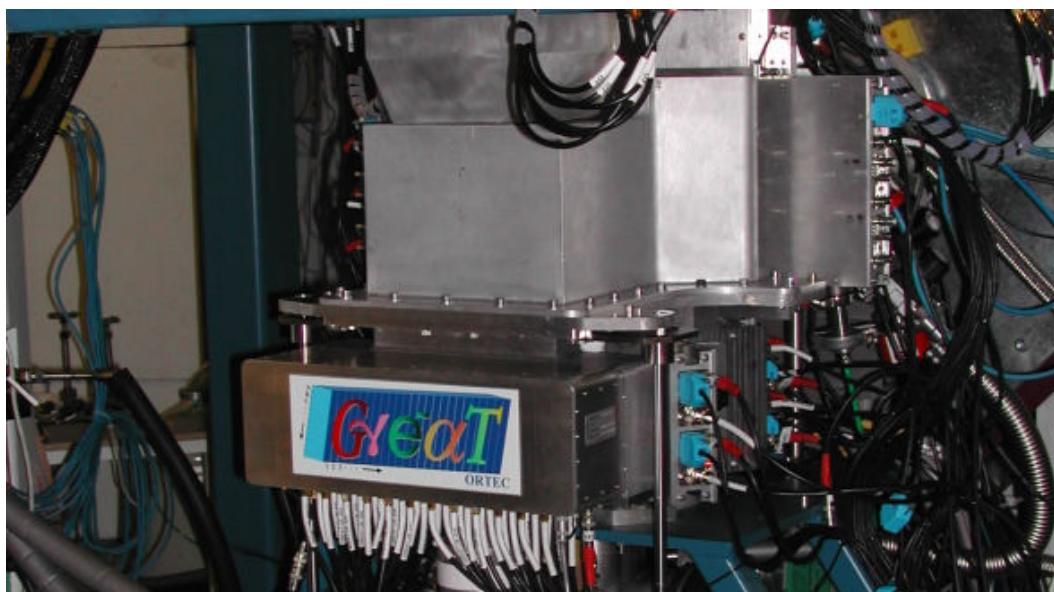


Figure 3.10: Photographie du polyspectromètre de plan focal GREAT.

*Photography of the focal plane spectrometer GREAT.*

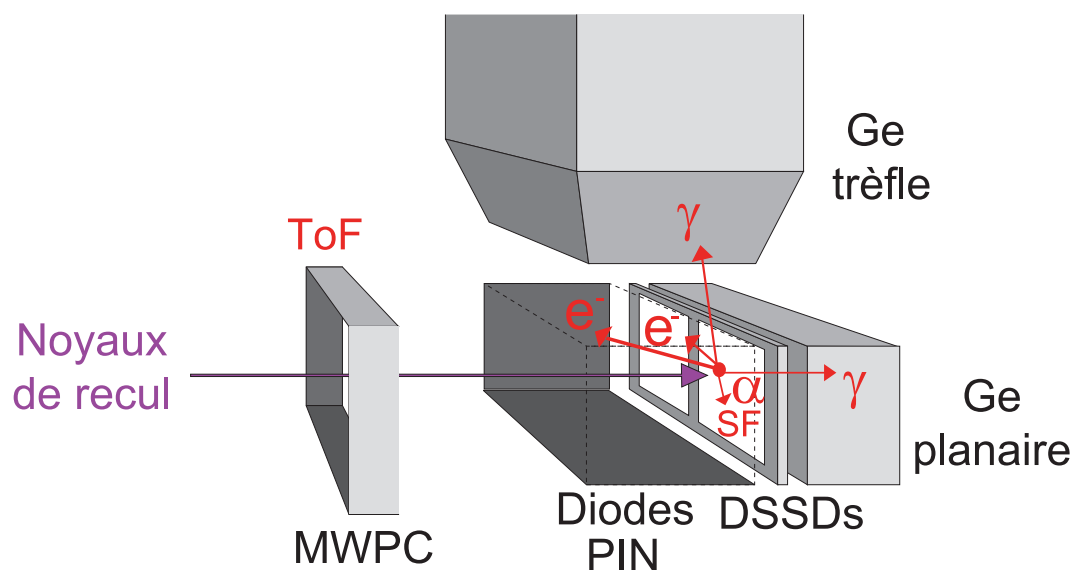


Figure 3.11: Schéma des différentes parties de GREAT, le polyspectromètre au plan focal de RITU (d'après [Eec06]). Les informations pouvant être mesurées sont indiquées en rouge. On note que la structure mécanique de GREAT permet accueillir jusqu'à quatre détecteurs trèfle autour des DSSDs.

*Diagram of the various parts of the focal plane spectrometer GREAT (based on [Eec06]). The information that can be measured is indicated in red. The mechanical structure of GREAT can hold up to four clover detectors around the DSSDs.*

### 3.2.3.1 Le compteur proportionnel à multifils MWPC

Le compteur proportionnel à multifils (MultiWire Proportionnal Counter, MWPC) est placé à l'entrée de GREAT, juste à la sortie de RITU (voir la Figure 3.12). Sa principale fonction est de permettre de distinguer les noyaux de recul, faisceaux et autres produits de réaction le traversant. Ces derniers y génèrent des signaux de perte d'énergie, de temps et de position.

Le compteur possède une ouverture de 131 mm en largeur sur 50 mm en hauteur. Il comprend un plan de fils horizontaux et un plan de fils verticaux parallèles à une anode en Mylar aluminisée de  $240 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  en son centre, ainsi que deux feuilles minces de Mylar de  $120 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  à son entrée et à sa sortie. Ces dernières permettent d'isoler le compteur de l'hélium contenu dans RITU et du vide exercé à l'intérieur de GREAT. En effet, le MWPC est rempli d'isobutane à une pression de quelques millibars.

Le passage d'un noyau de recul crée des paires électron/ion le long de sa trajectoire à l'intérieur du compteur. Grâce aux champs électriques régnant de part et d'autre de l'anode, les ions sont transportés vers l'anode tandis que les électrons sont transportés vers la cathode correspondante à l'extrémité du détecteur.

La position du noyau est obtenue par une mesure résistive dans les deux plans de fils avec un pas de 1 mm. La résolution spatiale est donc de l'ordre du millimètre ce qui est semblable à celle du détecteur d'implantation DSSD. L'énergie totale mesurée donne le dépôt d'énergie caractéristique du noyau, généralement noté  $\Delta E$ , qui est proportionnel à l'énergie totale déposée par le noyau de recul.

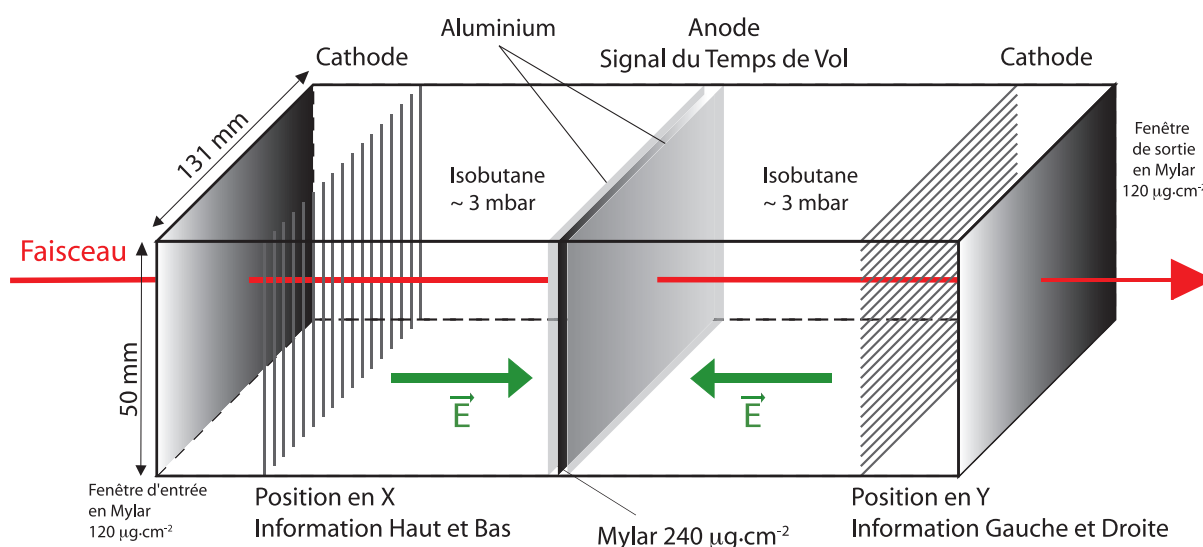


Figure 3.12: Schéma de principe du compteur proportionnel multifils à gaz MWPC (d'après [Pio10]). Il permet d'obtenir un signal utilisé pour la mesure du temps de vol et d'un dépôt d'énergie caractéristiques des noyaux le traversant.

*Scheme of the gas MultiWire Proportional Counter MWPC (based on [Pio10]). It allows to obtain a signal for the Time-of-Flight measurement and the energy loss values from nuclei that go through.*

Le signal déclenché au passage du noyau de recul par l'anode, mesuré au temps  $T_{MWPC}$ , est employé pour la mesure du temps de vol effectuée entre le compteur proportionnel à gaz et le détecteur d'implantation. Il est retardé d'une constante jusqu'à l'arrivée d'un signal en provenance du détecteur d'implantation à un temps  $T_{DSSD}$ . Ce dernier donne la valeur du temps de vol  $T_{oF}$  (pour Time-of-Flight) entre les deux détecteurs qui est définie par  $T_{oF} = T_{MWPC} - T_{DSSD}$ . Cette différence de temps est convertie en énergie grâce à un Time Amplifier Converter (TAC) de 14 bits. Plus ce temps est important, plus la vitesse du noyau de recul est faible.

En combinant les mesures de perte d'énergie et de temps de vol avec l'énergie mesurée dans le détecteur d'implantation DSSD, on peut réaliser une discrimination propre entre les noyaux de recul d'intérêt, les particules diffusées du faisceau et les produits de transfert. Cette partie est très importante pour optimiser l'efficacité de corrélation entre les produits de décroissance et le noyau implanté. Ce compteur permet également de distinguer les signaux de noyaux de recul et des produits de décroissance dans le DSSD, ces derniers ne laissant pas de signal dans le MWPC.

### 3.2.3.2 Le détecteur d'implantation DSSD

Le Double-sided Silicon Strip Detector (DSSD) est le détecteur central de GREAT. Il permet l'identification des noyaux d'intérêt, transmis par le séparateur RITU, qui s'implantent en son sein. Il est composé de deux cristaux de silicium, séparés d'une distance de 4 mm, d'une surface active de  $60 \times 40 \text{ mm}^2$  et d'une épaisseur de  $300 \mu\text{m}$ . Ces derniers possèdent chacun deux faces segmentées : une face avant segmentée en 40 strips horizontaux (nommée face Y) et d'une face arrière segmentée en 60 strips verticaux (nommée face X). Cela permet d'obtenir un quadrillage de 4800 pixels de  $1 \text{ mm}^2$  ce qui offre une localisation géométrique de l'implantation dans le plan. Les deux cristaux sont placés côte à côte sur un bloc de PCB creux par lequel le système de refroidissement passe et ramène la température à  $-20 \text{ }^\circ\text{C}$ . Cette précaution est nécessaire pour réduire les courants de fuite qui affectent la résolution en énergie.

On note que l'amplification de chaque face peut être modifiée en fonction du type de particules que l'on cherche à détecter (particules  $\alpha$ , électrons de conversion, produits de fission, ...). Lors de mon expérience de thèse, la face avant a été amplifiée pour détecter les fragments de fission spontanée et la face arrière pour détecter les électrons de conversion interne du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  (voir la Sous-section 5.1.2). On estime l'efficacité de détection à environ 100% pour les noyaux de recul contre 55% pour les particules  $\alpha$ . Ce dernier chiffre s'explique par le fait que les noyaux de recul s'implantent à une très faible profondeur (de 1 à  $10 \mu\text{m}$ ) dans le silicium. Etant donné que les particules  $\alpha$  sont émises de façon isotropique, il y a environ une chance sur deux qu'elles s'échappent du DSSD en ne laissant qu'un dépôt d'énergie minimale dans le silicium.

### 3.2.3.3 Le tunnel de diodes PIN

Pour les mêmes raisons que les particules  $\alpha$ , les électrons de conversion émis par le noyau implanté peuvent s'échapper du DSSD. C'est dans l'optique de les détecter qu'un tunnel de

diodes est placé en amont du détecteur d'implantation. Il est composé de 28 photodiodes PIN (au silicium) d'une surface active de 28 mm sur 28 mm pour une épaisseur de 500  $\mu\text{m}$ . Les photodiodes ont une résolution en énergie d'environ 5 keV (à 500 keV) et une efficacité géométrique totale d'environ 30% pour les électrons. L'efficacité de détection d'un signal d'une cascade d'électrons (voir la Sous-section 2.2.2) est cependant plus importante car elle dépend du nombre d'électrons émis et de leur énergie. Elle peut ainsi dépasser la valeur de l'efficacité géométrique qui est d'environ 50%.

Les photodiodes sont refroidies à une température de  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$  pour la même raison que le DSSD. Ces détecteurs peuvent également servir de veto pour invalider les particules  $\alpha$  s'échappant du DSSD. Il serait possible de récupérer l'énergie d'une particule  $\alpha$  en sommant les énergies déposées dans le DSSD et les diodes. Cependant, les pertes d'énergie dans les zones mortes des différents détecteurs dégradent significativement la résolution en énergie. Les diodes n'ont pas été mises en place pour mon expérience de thèse.

#### 3.2.3.4 Le détecteur au germanium de géométrie planaire

Un détecteur au germanium de géométrie planaire est situé en aval du DSSD, à environ 10 mm de ce dernier. Il s'agit d'un cristal rectangulaire ayant une aire active de  $120 \times 60\text{ mm}^2$  et une épaisseur de 15 mm. Il possède une fenêtre d'entrée mince au béryllium et est logé dans son propre cryostat refroidi à l'azote liquide. De manière analogue aux cristaux du DSSD, il est segmenté sur deux faces : 24 strips horizontaux pour 12 strips verticaux tous d'une largeur de 5 mm. Ce découpage permet d'obtenir des informations spatiales qui peuvent être corrélées avec celles données par le DSSD. Ce détecteur a pour objectif de détecter les rayonnements X et  $\gamma$  de faible énergie, principalement en-dessous de 200 keV. De plus, il peut aussi enregistrer les électrons de haute énergie qui auraient traversé le DSSD.

#### 3.2.3.5 Les détecteurs au germanium de géométrie trèfle

Un ou plusieurs détecteurs de géométrie trèfle (ou Clover) peuvent être placés autour du détecteur d'implantation, hors de la chambre à vide de GREAT. Il est possible d'en placer jusqu'à quatre en fonction de l'expérience en cours. Trois détecteurs ont été placés durant mon expérience de thèse. Les deux détecteurs placés latéralement étaient composés de quatre cristaux de 105 mm de long pour un diamètre de 70 mm avant taille. Les premiers 300 mm de chaque cristal sont fuselés avec un angle de  $15^{\circ}$  sur les deux faces extérieures. Cela provient de la géométrie d'EUROGAM pour laquelle ils ont été conçus [Jon95]. Le dernier détecteur, placé au-dessus du DSSD, était un détecteur trèfle segmenté VEGA [Sai02]. Il est composé de quatre cristaux de 14 cm de longueur et 7 cm de diamètre. Chacun de ces cristaux est segmenté radialement en quatre quarts. Cette segmentation n'a pas été exploitée lors de l'expérience. Il est dénommé "superclover" pour son volume de germanium plus important que les autres détecteurs trèfle.

Du fait de leur volume et de leur géométrie, ces détecteurs trèfle ont une meilleure efficacité pour un intervalle d'énergie plus élevé (de 200 keV à 2 MeV) que le détecteur planaire lui-même plus efficace à basse énergie. Associé à ce dernier, ils permettent de détecter de manière efficace les rayonnements  $\gamma$  dans le plan focal.



### 3.3 Acquisition et traitements des données

L'instrumentation décrite dans la section précédente possède une forte granularité. Elle nécessite de ce fait un total de près de 400 voies d'électronique. La région des noyaux trans-fermia est caractérisée par une diminution rapide de la section efficace de fusion-évaporation. Il est donc nécessaire d'utiliser des faisceaux de plus en plus intenses pour compenser cette baisse. Elles induisent un flot de données considérable, particulièrement dans les détecteurs au niveau du plan cible. De lourds développements technologiques ont été nécessaires pour pouvoir gérer et analyser efficacement ce flux de manière structurée et efficace. Le système d'acquisition et de traitement de données qui en découle va être décrit dans cette section.

#### 3.3.1 L'électronique d'acquisition

Les cartes électroniques analogiques, utilisées usuellement pour l'acquisition, possèdent des temps morts importants, pouvant aller jusqu'à plusieurs dizaines de microsecondes pour des taux de comptage par cristal supérieurs à 10 kHz. Pour pouvoir étudier en spectroscopie  $\gamma$  prompt des noyaux avec des sections efficaces inférieures à 100 nb, des développements de cartes électroniques d'acquisition digitales ont été nécessaires.

Les cartes digitales TNT2D ont été développées à l'IPHC [Arn06] afin de pouvoir fonctionner à haut taux de comptage, tout en préservant une bonne résolution en énergie (voir la Figure 4.7). Pouvant gérer chacune quatre détecteurs simultanément, elles sont basées sur un échantillonnage du signal du préamplificateur à 100 MHz avec un flash ADC de 14 bits. Ces cartes présentent une meilleure linéarité, un seuil de détection plus bas et donc une meilleure efficacité de détection que les cartes analogiques antérieures [Pio10]. Elles peuvent gérer un taux de comptage maximal d'environ 70 kHz par cristal de germanium ce qui correspond à une intensité de faisceau allant jusqu'à 80 pnA. Elles ont été validées comme système d'acquisition et exploitées de 2007 à 2010, associées à JUROGAM puis JUROGAM II [Pio13].

Les cartes digitales Lyrtech Industries VHS-ADC ont été achetées par l'Université de Liverpool pour résoudre la même problématique [Lyr10]. Ces dernières peuvent supporter un taux de comptage maximal d'environ 50 kHz par cristal de germanium ce qui correspond à une intensité de faisceau allant jusqu'à 40-50 pnA. Elles permettent également d'échantillonner le signal à 100 MHz grâce à un ADC de 14 bits. Ces cartes possèdent 16 canaux ce qui leur permettent d'instrumenter autant de voies de détection, et de minimiser le nombre de cartes électroniques nécessaires. Elles sont associées à tous les cristaux de JUROGAM II depuis 2010. Ce sont donc les cartes qui ont été utilisées pour la spectroscopie prompte du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . L'instrumentation de plan focal a conservé des cartes analogiques étant donné que les taux de comptage y sont relativement bas grâce à l'efficacité de sélection du séparateur RITU. Cependant, leur non-linéarité à basse énergie a depuis conduit à leur remplacement par des cartes digitales Lyrtech au printemps 2012.

#### 3.3.2 Méthode d'acquisition des données

La méthode Recoil-Decay Tagging est une méthode très efficace pour la spectroscopie de noyaux rares (voir la Section 3.1). Elle exploite une coïncidence retardée entre le plan cible

et le plan focal dont la mise en œuvre “traditionnelle” implique temps mort commun et difficulté de réglages pour des faibles sections efficaces. C’est pour contourner ce problème que la méthode Total Data Readout (TDR) a été choisie [Laz01]. Elle ne présente pas de prérequis de coïncidence : tous les événements sont enregistrés. Cette méthode est donc dite “triggerless”. Par la suite, la reconstruction des événements est réalisée par corrélation temporelle à partir des données enregistrées.

De fait, ce système nécessite une identification et un marquage temporel des données enregistrées afin de pouvoir extraire les informations nécessaires durant l’analyse. Une horloge ultrastable d’une fréquence de 100 MHz (le métronome) fournit une référence temporelle absolue à l’ensemble du système. Trois informations sont ainsi enregistrées pour chaque rayonnement : l’énergie fournie par l’ADC, un identifiant de détecteur et une information temporelle, dite “timestamp”, précise à la dizaine de nanosecondes. Elles constituent ce que l’on peut appeler un “événement de base”. Seul le signal du ToF n’est pas construit directement à partir du métronome mais à partir d’une différence de temps convertie par le Time Amplifier Converter (TAC).

Ainsi, les séquences de décroissances radioactives peuvent être reconstruites par des suites de signaux. Avec cette méthode, on évite de paralyser les détecteurs et de perdre des signaux importants à cause d’un temps mort commun. Il est possible d’enregistrer tous les signaux mais également de filtrer les données sur les bases de critères spécifiés au préalable par l’utilisateur. Cette option permet de réduire le flot de données à ce qui est nécessaire pour l’analyse. La méthode TDR a pu être mise en place grâce à l’augmentation rapide de la puissance des systèmes informatiques étant donné qu’une grande capacité de stockage et de traitement de données est requise.

### 3.3.3 Logiciel d’analyse

Un événement corrélé est constitué des différentes traces laissées dans les détecteurs par un événement physique. Il est généré par plusieurs “événements de base” contenus dans une fenêtre temporelle autour d’un signal déclencheur dont les caractéristiques sont définies par l’utilisateur. Ce déclencheur peut être par exemple l’implantation d’un noyau de recul.

L’analyse des données a été réalisée en utilisant le programme GRAIN [Rah08]. Il s’agit d’un logiciel basé sur le langage Java qui permet de gérer à volonté les données brutes ou pré-filtrées produites par le système TDR de l’Université de Jyväskylä. Il a été exploité, à la fois, pour l’analyse des données “online” (durant l’expérience) pour vérifier le bon déroulement de l’expérience et obtenir des résultats préliminaires puis “offline” (post-expérience) pour obtenir, après plusieurs itérations et affinements des sélections, les résultats définitifs.

GRAIN crée des événements à partir des données, qui peuvent être corrélés et analysés à l’aide de codes dédiés modifiés et adaptés par les expérimentateurs. Des histogrammes et des matrices peuvent être tracés et visualisés via l’interface graphique incluse au code. La fenêtre temporelle est définie par l’utilisateur grâce à deux valeurs à définir en dizaine de nanosecondes : une durée et un délai temporel par rapport au signal déclencheur. Les données se voient attribuées un type de détecteur en fonction du canal de l’ADC et sont associées à un événement. Les signaux de veto BGO ou d’empilement (lorsqu’un détecteur est affecté par plusieurs événements dans un court laps de temps) peuvent être exploités.

GRAIN permet également de générer des fichiers ASCII des histogrammes ou des matrices. Les figures présentées dans cette thèse ont été tracées, à partir de ces fichiers, en utilisant le logiciel d'analyse de données ROOT [Bru97]. Durant cette thèse, j'ai développé plusieurs codes spécifiques, utilisés avec ce logiciel, qui m'ont permis d'obtenir des résultats présentés dans les prochains chapitres de ce manuscrit.

## Deuxième partie

### Etude spectroscopique du $^{256}\text{Rf}$



# Contexte de l'étude du $^{256}\text{Rf}$

## Sommaire

<b>4.0</b>	<b>Summary</b>	<b>109</b>
<b>4.1</b>	<b>Motivations physiques</b>	<b>111</b>
<b>4.2</b>	<b>Etat de l'art du noyau de <math>^{256}\text{Rf}</math></b>	<b>113</b>
4.2.1	Etudes de la décroissance	115
4.2.2	Mesures de section efficace de production	115
4.2.3	Recherches d'états isomériques	116
4.2.3.1	Recherche d'états isomériques au LBNL	116
4.2.3.2	Recherche d'états isomériques au ANL	121
<b>4.3</b>	<b>Développements techniques</b>	<b>123</b>
<b>4.4</b>	<b>Energie, cinématique et conditions expérimentales</b>	<b>125</b>
4.4.1	Chaleurs de réactions	125
4.4.2	Calculs énergétiques	126
4.4.3	Barrière de fission	127
4.4.4	Temps de vol noyau de recul	128
4.4.5	Section efficace et taux de production	129
4.4.6	Comparatif des conditions expérimentales	130

## 4.0 Summary

The prompt spectroscopy of  $^{256}\text{Rf}$  was a major step in the study of the transfermium region for several reasons. This isotope is located at the  $N = 152$  deformed shell gap where one can observe an important decrease in the fission barrier between nobelium and rutherfordium (see Figure 4.1). It was also the first time a superheavy element was studied using both prompt and delayed spectroscopy simultaneously. It therefore allowed complementary information on the high- $K$  isomeric states to be obtained which was required to address the disagreement in both observations and interpretation of the work performed at LBNL and at ANL.

Before my thesis, only the ground-state and evidence of isomeric state(s) were known about  $^{256}\text{Rf}$ . This isotope was discovered in 1975 by Y.Ts. Oganessian and collaborators at FLNR Dubna. Since then, several experiments were performed to study this isotope by delayed spectroscopy. A full list, and the corresponding measured cross sections and ground-state half-lives, is given in Table 4.1.

The isotope of interest decays mostly by spontaneous fission ( $>99.5\%$ ) and by  $\alpha$ -particle decay with a  $b_\alpha = 0.32 \pm 0.17\%$  branching ratio. The systematics show a half-life just below 7 ms. The fusion-evaporation reaction with the highest known cross section to produce this nucleus is  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)$  with a projectile kinetic energy of 239 MeV. The most precise measurement of the reaction cross section is  $15.7 \pm 0.2$  nb (see the corresponding excitation function in Figure 4.2).

Two experiments were performed in order to study high- $K$  isomeric states in this nucleus before this work. The first one was performed at LBNL (see Figures 4.3 and 4.4) where 5 400 nuclei of interest were observed. Events with 1, 2 or 3 electron showers were observed between the implantation and the decay by spontaneous fission of the nuclei of interest. The results were interpreted as three isomeric states in cascade. By ascending energy, their half-lives were measured at 25, 17 and 27  $\mu\text{s}$ . They were assigned as a  $K = 6-7$  neutron 2-qp, a  $K = 10-12$  neutron 2-qp and a non-specified 4-qp isomeric states. A 900 keV  $\gamma$ -ray transition was observed in coincidence with the electron signals. Combining all these results, a levels scheme was proposed.

The second experiment was performed at the ANL (see Figure 4.6) where 783 nuclei of interest were identified. Evidence of few isomeric events was observed. It was described as a low-populated isomer with a 17  $\mu\text{s}$  half-life. This disagreement between both the LBNL and ANL experimental results could come from the acquisition dead-time difference. These results will be compared with my thesis experiment in the Chapter 6.

Several developments were needed to study  $^{256}\text{Rf}$  and especially to perform the prompt  $\gamma$ -ray spectroscopy at JYFL. The IPHC was strongly involved in all these developments through three successive PhD theses (F. Khalfallah, J. Piot and this work).

An intense isotopic titanium beam was required. This specific development is detailed in Chapter 7. To sustain a high beam intensity ( $>25$  pA) a rotating target system was developed at the IPHC and installed at JYFL during the thesis work of F. Khalfallah. It has allowed the use of beam intensities up to 70 pA. An important optimisation of the target thickness was also done through simulation work on the fusion-evaporation kinematic reaction. The simulations showed that the experiment was possible at JYFL and that the optimal target thickness, given with respect to available and sustainable beam intensity, should be relatively thin (several hundreds of  $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ ).

The prompt  $\gamma$ -ray detection efficiency at JYFL was regularly improved with the implementation of new arrays. The current array is JUROGAM II which has an absolute efficiency of 5.2% at 1.33 MeV. This array was fully instrumented by digital acquisition cards. The development of the TNT2D cards at the IPHC during the thesis of J. Piot [Pio10] opened access to significantly higher counting rates in the germanium detectors. These cards also resulted in better linearity and low energy threshold compared to the former analogue electronics (see Figure 4.7). Finally, the Lyrtech VHS-ADC digital cards, developed at the University of Liverpool, were used for the  $^{256}\text{Rf}$  experiment.

The estimated fission barrier, recoil Time-of-Flight, and the expected number of produced nuclei are presented at the end of the chapter. These calculations were done before the experiment to ensure its feasibility and to optimize the settings. One can note that the energy calculations are in agreement with those presented by F. Khalfallah (see Figure 4.8).

La région des noyaux transfermia est très riche en informations spectroscopiques permettant d'obtenir des indices précieux sur le placement et les caractéristiques de l'hypothétique îlot de stabilité superlourd (voir le Chapitre 1). La région située autour du noyau de  $^{254}\text{No}$  ( $Z = 102$ ) a été étudiée en détails depuis la première spectroscopie prompte de ce noyau en 1999 (voir le Chapitre 2). La prochaine étape majeure dans cette exploration consistait à réaliser la spectroscopie prompte de l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$  ( $Z = 104$ ). Cela représentait la première étude de ce type à la frontière des noyaux superlourds. En vue de mieux comprendre la structure dans cette région, l'étude de ce noyau avait pour objectif d'obtenir les premières informations sur le gap proton  $Z = 104$  et également sur la systématique du gap neutron  $N = 152$ . Cette incursion était d'ailleurs très attendue par différentes équipes à travers le globe depuis plusieurs années.

Dans ce chapitre, les motivations scientifiques à cette étude sont d'abord données, les informations obtenues sur ce noyau avant mon expérience de thèse sont récapitulées, puis les développements techniques nécessaires à sa réalisation sont discutés. Finalement, les calculs effectués préalablement à l'expérience sont présentés.

## 4.1 Motivations physiques

Pour bien situer l'enjeu de la spectroscopie prompte du  $^{256}\text{Rf}$ , il faut tout d'abord discuter de son positionnement en terme de nombres de nucléons. Ainsi, la Figure 4.1 permet de le situer vis-à-vis de ces voisins dans la région qui nous intéresse. Elle représente l'évolution du temps de demi-vie partiel de fission spontanée des noyaux pairs-pairs et pairs-impairs connus des éléments du californium ( $Z = 98$ ) au seaborgium ( $Z = 106$ ) en fonction de nombre de neutrons. On note l'échelle logarithmique temporelle qui couvre plus d'une vingtaine d'ordres de grandeur.

Les systématiques des demi-vies partielles des noyaux pairs-pairs des familles des fermia et des nobelia présentent une forme de cloche ayant un maximum au gap déformé neutron  $N = 152$  (le maximum étant à  $N = 150$  pour la famille des califorgia). Ce gap neutron est relativement large et est connu dans cette région de masse pour stabiliser des structures déformées rotationnelles autour du  $^{254}\text{No}$  ( $Z = 102$ ,  $N = 152$ ). En s'éloignant de ce gap, le temps de demi-vie décroît rapidement. C'est une indication claire de son rôle important sur la stabilité de ces noyaux face à la fission dans la région.

Toutefois, la famille des rutherfordia présente une tendance différente des noyaux plus légers avec un épaulement à  $N = 152$ . En augmentant le nombre de neutrons, le temps de demi-vie augmente comme si l'influence d'un gap neutron plus important, comme par exemple  $N = 162$ , se profilait. La famille des seaborgia semble subir le même phénomène. Ce changement de profil de la systématique à partir de  $Z = 104$  permet de se questionner à propos de l'influence du gap  $N = 152$  pour les noyaux superlourds et surtout sur l'existence d'un gap en neutrons plus élevés. On peut également se demander si l'influence d'un gap significatif en proton (comme par exemple  $Z = 104$ ) serait en jeu au début de la région des superlourds.

Le temps de demi-vie de fission spontanée, observée à  $N = 152$ , décroît de sept ordres de grandeur entre  $Z = 102$  et  $Z = 104$ . Ce comportement pourrait être expliqué par la diminution de la barrière de fission externe, ce qui induit une barrière de fission totale plus fine



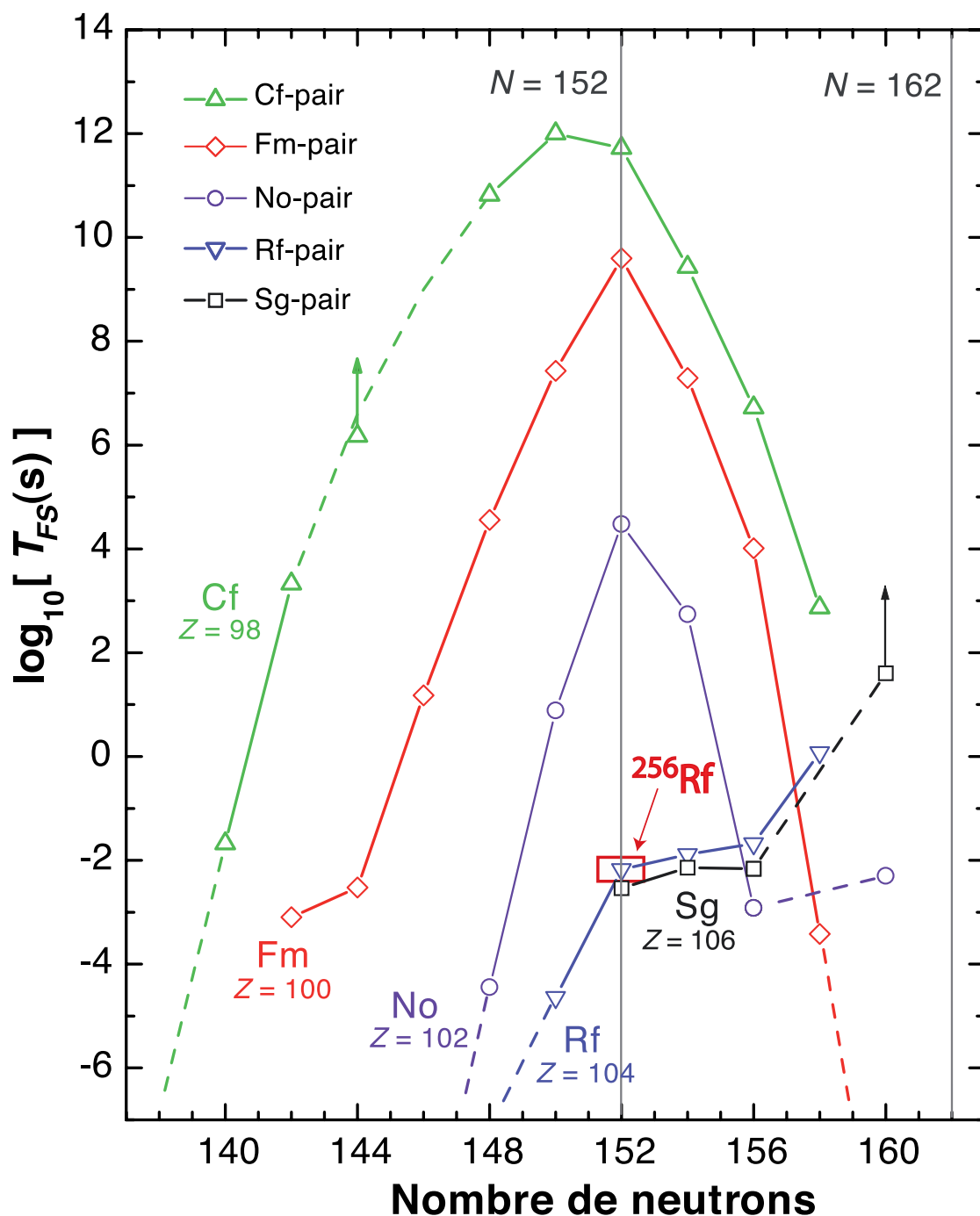


Figure 4.1: Evolution du temps de demi-vie partiel de fission spontanée des noyaux pairs-pairs connus du californium ( $Z = 98$ ) au seaborgium ( $Z = 106$ ) en fonction du nombre de neutrons (d'après [Bel03]). Le noyau d'intérêt, le  $^{256}\text{Rf}$ , est encadré. On note l'échelle de temps logarithmique.

*Evolution of the spontaneous fission partial half-life for the known even-even nuclei of elements from californium ( $Z = 98$ ) to seaborgium ( $Z = 106$ ) as a function of the number of neutrons (based on [Bel03]). The nucleus of interest, the  $^{256}\text{Rf}$ , is pointed. Note the logarithmic time scale.*

et donc rend la probabilité de fission plus importante. Ce changement est d'ailleurs cohérent avec les voies de décroissance majoritaire des deux isotopes comparés. En effet, le noyau de  $^{254}\text{No}$  décroît majoritairement par émission d'une particule  $\alpha$  et celui de  $^{256}\text{Rf}$  par fission spontanée.

Jusqu'à présent, toutes les mesures de caractéristiques de ce noyau ont été réalisées en spectroscopie retardée au plan focal d'un séparateur, comme présenté dans la Section 4.2. Ainsi, la spectroscopie prompt de ce noyau n'avait jamais été réalisée auparavant - le noyau le plus lourd étudié avec cette technique était le noyau de  $^{255}\text{Lr}$  [Kete09]. L'expérience proposée a pour objectif de fournir plus d'informations sur la systématique du gap  $N = 152$  mais également d'atteindre pour la première fois un noyau superlourd avec cette technique et, par la même occasion, le gap  $Z = 104$ . En sus de cette expérience, l'étude des rutherfordia permettrait d'apporter des informations complémentaires sur la région des noyaux transfermia et de surcroit sur la transition entre cette région et celle des superlourds.

Dans cette région de masse, les noyaux sont généralement déformés de façon quadrupolaire prolata ( $\beta \approx 0.25$  d'après [Sob01]) dans leur état fondamental. On s'attendait donc à observer la bande de rotation basée sur l'état fondamental de l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$  lors de cette expérience. En outre, les transitions  $\gamma$  de faible énergie d'excitation subissent très fortement la conversion interne. On peut donc estimer que les transitions électromagnétiques de plus basse énergie ne peuvent sans doute pas être observables comme c'est le cas pour les autres noyaux étudiés dans la région, par exemple le  $^{246}\text{Fm}$ ,  $^{250}\text{Fm}$  et le  $^{254}\text{No}$ . Ce phénomène est d'autant plus accentué que le noyau d'intérêt possède un plus grand nombre de protons que ces noyaux-ci (voir la Figure 2.5).

De plus, cette expérience a permis d'obtenir des informations complémentaires dans le cadre de la recherche d'états isomériques de haut- $K$ . Antérieurement, deux expériences dédiées spécifiquement à cette recherche ont été réalisées. Elles sont décrites dans la Sous-section 4.2.3 et présentent des résultats contradictoires. Cette expérience était donc l'occasion, en complément de la spectroscopie prompt qui était l'objectif principal, de réaliser une expérience indépendante avec une instrumentation différente en vue de tenter de comprendre et de départager les résultats précédents (voir le Chapitre 6).

## 4.2 Etat de l'art du noyau de $^{256}\text{Rf}$

Avant mon expérience de thèse, seuls l'état fondamental et une indication non confirmée d'états isomériques étaient connus sur le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Cette section a pour objectif de passer en revue les informations connues sur ce noyau avant mon expérience de thèse. Après avoir introduit la découverte de l'isotope d'intérêt, les études sur sa décroissance sont discutées. Sa mesure de section efficace de production la plus précise est ensuite présentée avant de donner plus de détails sur les informations obtenues lors des recherches d'états isomériques de cet isotope.

En pleine période de compétition à la synthèse des noyaux les plus lourds (voir la Section 1.2), l'élément  $Z = 104$  a été pour la première fois identifié au Joint Institute of Nuclear Research, à Dubna, en 1964. Une cible de  $^{242}\text{Pu}$  a été bombardée par un faisceau de  $^{22}\text{Ne}$  pour obtenir l'isotope de  $^{259}\text{Rf}$  [Fle64]. Trois ans plus tard, en 1969, l'équipe de A. Ghiorso

synthétisa les isotopes de  $^{257}\text{Rf}$ ,  $^{258}\text{Rf}$  et  $^{259}\text{Rf}$ , au Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL), en bombardant une cible de  $^{249}\text{Cf}$  avec un faisceau de carbone [Ghi69]. L'isotope étudié dans cette thèse, le  $^{256}\text{Rf}$ , ne fut découvert qu'en 1975 par l'équipe de Y.Ts. Oganessian du Joint Institute for Nuclear Research (JINR) de Dubna en URSS. Il a été synthétisé, ainsi que l'isotope de  $^{255}\text{Rf}$ , en projetant un faisceau d'ions de  $^{50}\text{Ti}$  sur une cible constituée d'atomes de  $^{208}\text{Pb}$  [Oga75]. Depuis lors, les découvertes de plus d'une douzaine d'isotopes de l'élément rutherfordium, du  $^{253}\text{Rf}$  au  $^{268}\text{Rf}$  ont été revendiquées.

Historiquement, cet élément fut nommé kurchatovium par les scientifiques russes, en l'honneur du père de la bombe atomique soviétique I. Kurchatov. De leur côté, les américains proposèrent le nom rutherfordium en l'honneur du "père de la physique nucléaire", E. Rutherford. La querelle, issue de la participation de I. Kurchatov à la conception d'une arme atomique, dura jusqu'en 1997 quand l'IUPAC (voir la Section 1.2) attribua le nom rutherfordium à l'élément  $Z = 104$  et dubnium à l'élément  $Z = 105$ .

Le Tableau 4.1 récapitule les expériences réalisées sur ce noyau au sein des différents laboratoires. Le temps de demi-vie de fission spontanée  $T_{FS}$ , la section efficace de production  $\sigma$  par la réaction  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{256}\text{Rf}$  ainsi que le rapport d'embranchement de fission spontanée  $b_{FS}$  du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  y sont répertoriés.

Laboratoire	Année	Référence	$T_{FS}$ (ms)	$\sigma$ (nb)	$b_{FS}$ (%)
JINR Dubna	1975	[Oga75]	5	6	-
JINR Dubna	1984	[Oga84]	$6.7 \pm 0.2$	5.5	-
GSI	1985	[Hes85]	$7.4 \pm 0.9$	$16 \pm 10$	$99 \pm 7$
LBNL	1985	[Som85]	$9 \pm 2$	$7 \pm 3$	97
GSI	1997	[Hes97, Hes01]	$6.2 \pm 0.2$	$12 \pm 1$	$99.7 \pm 0.2$
LBNL	2002	[Pat02]	$7.0 \pm 0.7$	$6.7 \pm 1.8$	$98 \pm 7$
GSI	2005	[Sul07b]	$6.7 \pm 0.9$	-	$97 \pm 2$
GSI	2006	[Str06]	$5.1 \pm 1.0$	-	$97 \pm 2$
LBNL	2008	[Drag08]	$6.70 \pm 0.09$	$15.7 \pm 0.2$	-
LBNL	2009	[Jep09]	$6.67 \pm 0.09$	$17 \pm 2$	-
ANL	2011	[Rob11]	$6.9 \pm 0.4$	14	-

Table 4.1: Tableau récapitulatif des études réalisées sur le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  avec, si disponibles, les valeurs mesurées de temps de demi-vie de fission spontanée, de section efficace de production par la réaction  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{256}\text{Rf}$  et le rapport d'embranchement de fission spontanée. On note que l'expérience présentée dans [Som85] a été réalisée en utilisant la réaction de fusion chaude  $^{249}\text{Cf}(^{12}\text{C}, 5n)^{256}\text{Rf}$ .

*Summary table of the studies realized on the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus with, if available, the measured values of the spontaneous fission half-life, the production cross section of the  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{256}\text{Rf}$  reaction and the spontaneous fission branching ratio. It is worth pointing that the experiment presented in [Som85] was realized using the  $^{249}\text{Cf}(^{12}\text{C}, 5n)^{256}\text{Rf}$  hot fusion reaction.*

### 4.2.1 Etudes de la décroissance

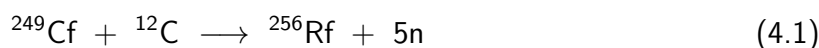
A sa découverte, le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  a été caractérisé comme un noyau décroissant très majoritairement par fission spontanée, de temps de demi-vie d'environ 5 ms et d'une faible section efficace de production de 6 nb.

Depuis lors, plusieurs expériences ont été réalisées au sein de différents laboratoires pour mieux caractériser ce noyau (voir le Tableau 4.1). D'après la systématique des expériences effectuées depuis 2008, qui présentent une meilleure précision, l'isotope en question possède un temps de demi-vie légèrement inférieur à 7 ms pour une section efficace de production de l'ordre de 15 nb.

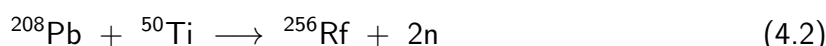
D'après [Hes97], ce noyau fissionne spontanément avec une probabilité supérieure à 99.5% et décroît en émettant une particule  $\alpha$  avec un rapport d'embranchement de  $b_\alpha = 0.32 \pm 0.17\%$ . L'énergie de ce rayonnement a été mesurée à  $8790 \pm 20$  keV [Hes97] et  $8774 \pm 8$  keV [Pat02].

### 4.2.2 Mesures de section efficace de production

Les noyaux transfermia ( $Z \geq 100$ ) ne peuvent pas être créés en quantité significative par bombardement neutronique dans les centrales nucléaires. Il est donc nécessaire d'utiliser une réaction de fusion-évaporation (voir la Section 2.1) pour synthétiser le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Il peut, par exemple, être produit par la réaction de fusion chaude suivante:



Cependant, cette réaction possède une faible section efficace de  $7 \pm 3$  nb [Som85]. La réaction mesurée présentant la section efficace de production la plus élevée pour synthétiser ce noyau est:



Cette dernière est la réaction qui a été utilisée pour mon expérience de thèse. C'est la double magicité du noyau de  $^{208}\text{Pb}$  ( $Z = 82$ ,  $N = 126$ ) et la magicité neutron de celui de  $^{50}\text{Ti}$  ( $N = 28$ ) qui apportent un complément de stabilité à la réaction. Pour obtenir la valeur de la section efficace, des mesures ont été effectuées lors de plusieurs campagnes avec différents instruments.

Une expérience de mesure de la section efficace a été réalisée, en 2009, au Lawrence Berkeley National Laboratory [Drag08]. Elle a été choisie comme référence car il s'agit d'une expérience récente entièrement dédiée à cette mesure proposant une statistique et une précision importantes.

Les fonctions d'excitations des voies 1n ( $^{257}\text{Rf}$ ) et 2n ( $^{256}\text{Rf}$ ) obtenues sont reprises sur la Figure 4.2. La section efficace de la réaction d'intérêt a été mesurée à  $15.7 \pm 0.2$  nb pour une énergie cinétique, dans le référentiel du laboratoire, de  $T_{lab} = 239$  MeV au centre de la cible. Cela correspond à une énergie d'excitation de  $E_{CN}^* = 23.3$  MeV pour le noyau composé lors de sa création au centre de la cible.

Des mesures de section efficace de capture et de probabilité de formation du noyau composé sont présentées dans [Nai07]. Pour une énergie du faisceau dans le centre de masse  $T$  de 194.2 MeV, elles ont été mesurées à  $\sigma_{capture} = 69.4 \pm 0.9$  mb et  $P_{CN} = 0.33$ .

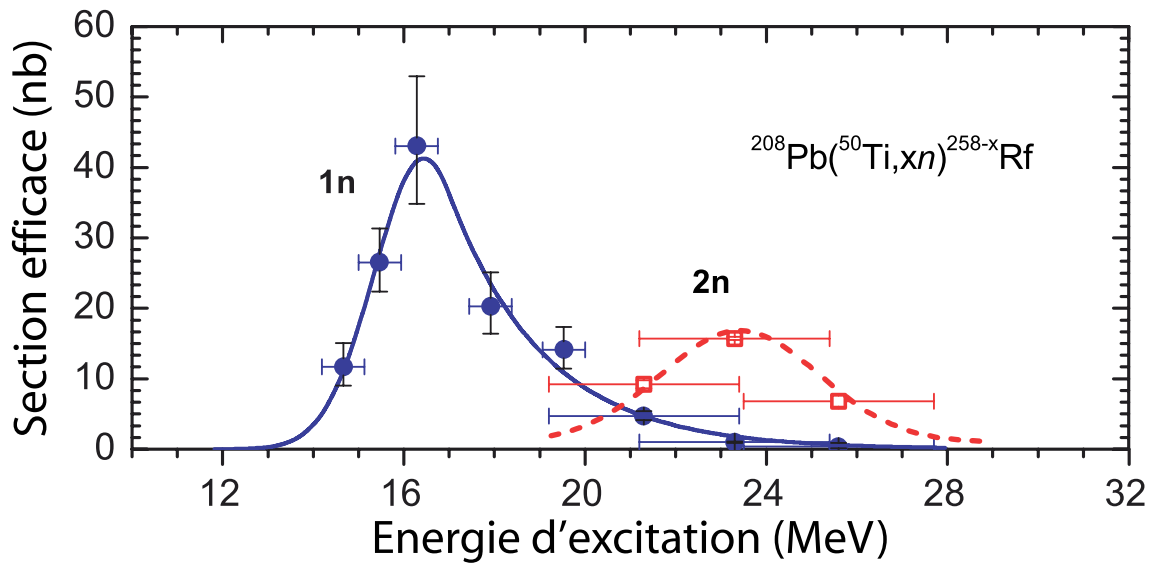


Figure 4.2: Fonction d'excitation des voies 1n et 2n de la réaction de fusion-évaporation entre les noyaux de  $^{50}\text{Ti}$  et de  $^{208}\text{Pb}$  (d'après [Drag08]).

*Excitation function of the 1n and 2n exit channels for the fusion-evaporation reaction between the  $^{50}\text{Ti}$  and  $^{208}\text{Pb}$  nuclei (based on [Drag08]).*

### 4.2.3 Recherches d'états isomériques

Avant ce travail de thèse, deux expériences ont été dédiées à la recherche d'états isomériques de haut- $K$  dans l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ . Elles sont décrites dans cette section. Ces résultats sont comparés avec ceux obtenus lors de mon expérience de thèse dans le Chapitre 6. On note que les états isomériques de haut- $K$  sont présentés en détails dans la Section 2.5.

#### 4.2.3.1 Recherche d'états isomériques au LBNL

La première expérience a été réalisée en 2009 [Jep09] au Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL). Le cyclotron de 88 pouces (88-Inch Cyclotron) a été utilisé pour fournir 6 jours de faisceau d'ions de  $^{50}\text{Ti}$  d'une intensité sur cible d'environ 200 pnA. Ils ont été accélérés à une énergie cinétique de 243 MeV dans le référentiel du laboratoire (soit 239 MeV au centre de la cible). Le faisceau a été projeté sur une cible rotative de  $500 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  de  $^{208}\text{Pb}$  en sandwich entre deux couches de  $25 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  de carbone.

Les résidus d'évaporation ont été collectés par le séparateur à gaz Berkeley Gas-filled Separator (BGS) qui permet de les séparer du faisceau et des autres produits de réaction par une sélection en rigidité magnétique. Le gaz permettant l'équilibrage des charges est, comme RITU, l'hélium (voir la discussion sur les séparateurs à gaz dans la Sous-section 3.2.2).

Après être passés à travers un compteur proportionnel, les noyaux d'intérêt s'implantent au plan focal dans un détecteur DSSD d'environ 1 mm d'épaisseur et de dimension  $5\times 5$  cm divisé en  $16\times 16$  pixels. Un détecteur germanium à géométrie trèfle était monté à 5 mm derrière le DSSD. Son efficacité absolue de détection des rayonnements  $\gamma$  était de 17% à 122 keV et 3.5% à 1 MeV. Les tracés-clés de cette étude sont représentés sur les Figures 4.3 et 4.4.

H.B. Jeppensen et ses collaborateurs ont identifié 5 400 noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  pour lesquels l'implantation d'un noyau de recul a été suivie d'une fission spontanée dans le même pixel du DSSD. Deux caractéristiques de cet isotope ont été mesurées: le temps de demi-vie à  $6.67 \pm 0.09$  ms et la section efficace de production à  $17 \pm 2$  nb. Ces deux valeurs, comparées à celles mesurées lors des expériences précédentes, ont permis de conforter la sélection des noyaux d'intérêt. On note qu'aucune indication d'une décroissance d'un état excité par fission spontanée n'a été décelée.

Afin d'identifier les états isomériques, des signaux d'électrons générés temporellement entre l'implantation d'un noyau de recul et le dépôt d'énergie d'une fission spontanée dans le même pixel du DSSD ont été recherchés. Trois types d'événements ont été identifiés en fonction du nombre strict de signaux d'électrons consécutifs détectés : 1, 2 et 3 signaux entre l'implantation et la fission. Les distributions en énergie de ces signaux sont représentées, par type d'événements, sur la Figure 4.3.A. De manière similaire, les spectres de rayonnements  $\gamma$  en coïncidence avec ces catégories d'événements sont présentés sur la Figure 4.3.B. Chacun des trois cas observés est discuté indépendamment ci-après.

A noter que chaque énergie mesurée pour un signal d'électrons correspond à celle d'une bouffée composée d'un ou plusieurs électrons de conversion interne émis en cascade (voir la discussion dans la Sous-Section 2.2.2). Ces électrons sont émis suffisamment rapidement pour que leur énergie soit sommée et qu'ils soient considérés comme un unique signal par l'acquisition. Le seuil de détection d'une bouffée d'électrons est d'environ 100 keV pour le DSSD du LBNL.

Sur l'ensemble de 5 400 noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  observés, 985 événements avec un unique signal d'électrons entre l'implantation et la fission ont été identifiés. Il s'agit d'une corrélation génétique dite de type Recul-électron-Fission (notés R-e-F). Leur distribution en énergie est représentée sur la Figure 4.3.A.1. Des rayonnements  $\gamma$  détectés dans le détecteur trèfle ont été recherchés dans une fenêtre de  $\pm 160$  ns autour de la détection des électrons corrélés. Au total, 227 rayonnements  $\gamma$  ont été détectés dont 35 formant un photopic à  $900 \pm 1$  keV (voir la Figure 4.3.B.1). Le rapport pic sur total de 14% semble indiquer que ce spectre contient uniquement un photopic et son fond Compton.

Le deuxième type d'événements est caractérisé par la détection de strictement deux signaux d'électrons en sandwich entre l'implantation et la fission. Ainsi, 147 événements de corrélation de type Recul-électron-électron-Fission (R-e-e-F) ont été identifiés. Les distributions en énergie des premiers et seconds signaux d'électrons ainsi sélectionnés constituent respectivement les Figures 4.3.A.2 et 4.3.A.3. L'étude des photons associés a montré qu'aucun photopic n'est en coïncidence avec les premières bouffées d'électrons (voir la Figure 4.3.B.2). Cependant, les secondes bouffées d'électrons sont en coïncidence avec un photopic à 900 keV comme on peut l'observer sur la Figure 4.3.B.3.

De plus, 7 événements de type Recul-électron-électron-électron-Fission (R-e-e-e-F) ont été détectés. Ils sont caractérisés par la mesure de strictement trois signaux d'électrons compris temporellement entre l'implantation et la fission. Leur distribution en énergie est représentée sur les Figures 4.3.A.2 et 4.3.A.3 par des carrés (premières bouffées d'électrons), des triangles (secondes bouffées) et des cercles (dernières bouffées).

Ces différentes distributions d'électrons ont été interprétées comme des superpositions

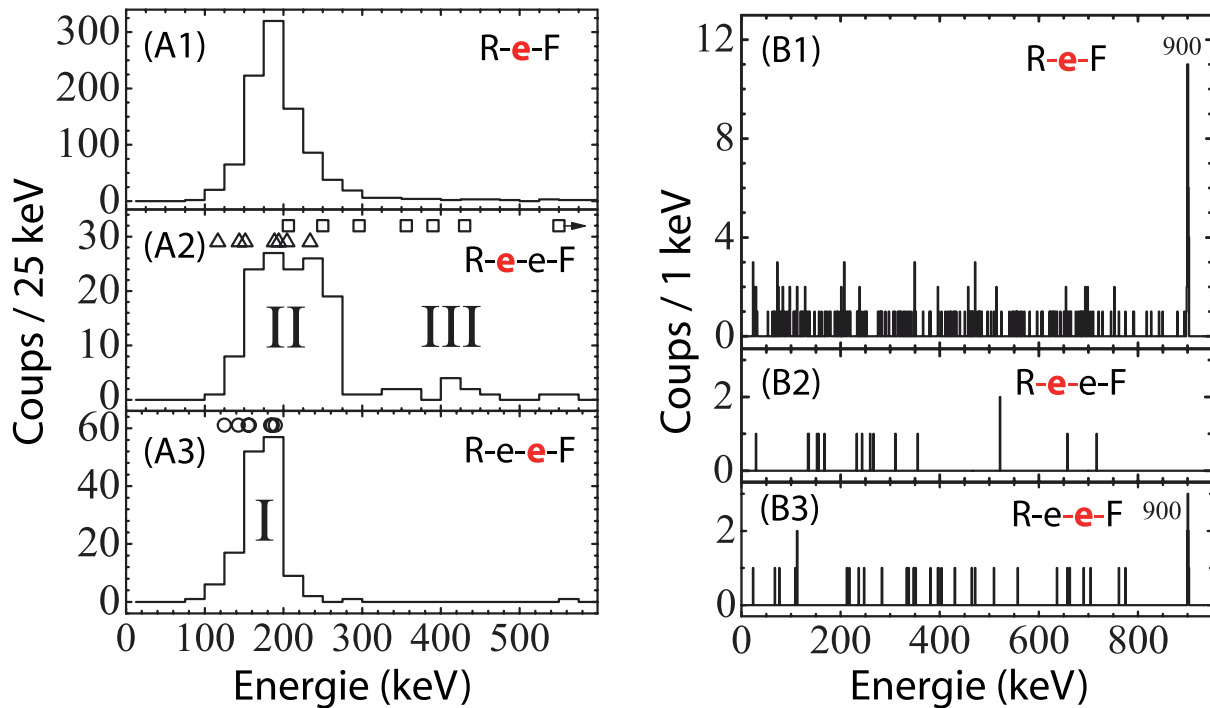


Figure 4.3: Résultats de la recherche d'un état isomérique dans le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  réalisée au LBNL - première partie (d'après [Jep09]).

(A) : Distribution en énergie pour (A1) : les bouffées d'électrons des événements R-e-F, (A2) : la première bouffée d'électrons détectée pour les événements R-e-e-F et (A3) : la seconde pour les événements R-e-e-F. Les distributions associées avec les trois isomères sont étiquetées I, II et III. Les symboles indiquent les énergies pour les premières (carrée), les secondes (triangle) et les troisièmes (cercle) bouffées d'électrons pour chacun des 7 événements R-e-e-e-F.

(B) : Spectre des rayonnements  $\gamma$  en coïncidence avec (B1) : les bouffées d'électrons des événements R-e-F, (B2) : de la première bouffée des événements R-e-e-F et (B3) : de la seconde bouffée des événements R-e-e-F.

*Results of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus isomeric states search realized at the LBNL - first part (based on [Jep09]).*

*(A): Sum-energy spectrum for (A1): the electrons from the R-e-F events, (A2): the first electron shower from the R-e-e-F events and (A3): the second electron shower from the R-e-e-F events. The electron distributions associated with the three isomers are labelled I, II, and III. Symbols indicate the sum energies for the first (square), second (triangle), and third (circle) electron bursts in each of the 7 R-e-e-e-F events.*

*(B): Delayed  $\gamma$ -ray spectra for (B1):  $\gamma$ -rays in prompt coincidence with electrons from the R-e-F events, (B2):  $\gamma$ -rays in prompt coincidence with the first electron shower from the R-e-e-F events and (B3):  $\gamma$ -rays in prompt coincidence with the second electron shower from the R-e-e-F events.*

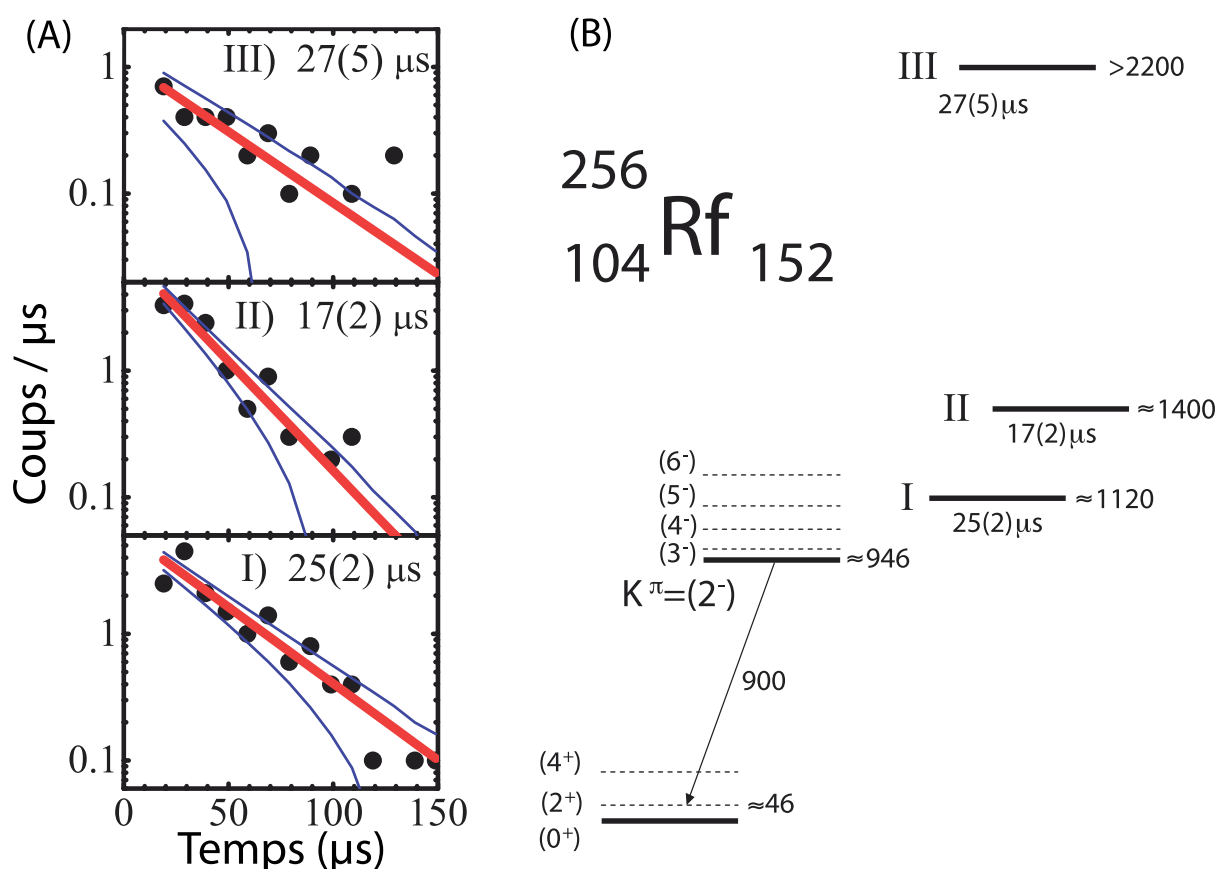


Figure 4.4: Résultats de la recherche d'un état isomérique dans le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  réalisée au LBNL - seconde partie (d'après [Jep09]). (A): Mesure des temps de demi-vie pour les trois états isomériques identifiés notés I, II et III. (B): Schéma de niveaux proposé pour l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ , les énergies sont données en keV.

*Results of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus isomeric states search realized at the LBNL - second part (based on [Jep09]). (A): Half-life measurement for the three identified isomeric states I, II and III. (B): Proposed level scheme for the  $^{256}\text{Rf}$  isotope, energies are given in keV.*

d'une, deux ou trois bouffées d'électrons en cascade. Ainsi, les trois distributions notées I, II et III, dans l'ordre croissant d'énergie d'excitation, sur la Figure 4.3.A sont interprétées comme les énergies mesurées des cascades de transitions suivant la décroissance de trois états isomériques de haut- $K$ . Ces derniers sont eux-mêmes en cascade. Les signaux d'électrons étiquetés I ont une distribution énergétique fine piquée à 175 keV avec un maximum de 225 keV, ceux étiquetés II ont une distribution large centrée à 200 keV et ayant pour maximum 275 keV et les électrons étiquetés III sont de haute énergie et possèdent une distribution très étalée entre 300 et 600 keV (voir la Figure 4.3.A). Les trois distributions en énergie des événements R-e-e-F sont en accord avec ce scénario. En effet, dans l'ordre chronologique de leur arrivée, elles couvrent respectivement les distributions III, II et I. Selon la voie par laquelle le noyau est peuplé, il est donc possible de détecter 0, 1, 2 et 3 bouffées d'électrons.

Des temps de demi-vie ont pu être mesurés pour ces trois états en tenant compte de l'ordre d'arrivée des bouffées d'électrons, de leur énergie respective définie par les distribu-



tions I, II et III et du temps mort de l'acquisition qui est estimé à environ 14  $\mu\text{s}$ . Dans l'ordre croissant d'énergie d'excitation, les temps de demi-vie ont été mesurés respectivement à  $25 \pm 2$ ,  $17 \pm 2$  et  $27 \pm 5$   $\mu\text{s}$  (voir la Figure 4.4.A). En se basant sur les énergies des rayonnements  $\gamma$  et électrons mesurées, leurs énergies d'excitation respectives sont estimées à  $\approx 1120$ ,  $\approx 1400$  et  $\approx 2200$  keV. En se basant sur des arguments énergétiques, il a été proposé que ces trois états soient, dans l'ordre croissant d'énergie d'excitation, un état 2-qp neutron de  $K = 6$  ou 7, un état 2-qp neutron de  $K = 10-12$  et un état 4-qp dont le caractère neutron ou proton n'est pas précisé.

En se basant sur la systématique de la région et le fait qu'aucune transition pouvant correspondre à un rayonnement de la bande de rotation basée sur l'état fondamental n'a été détectée, le photopic de 900 keV a été attribué à une décroissance partant d'un état intermédiaire situé entre le plus bas des trois isomères de haut- $K$  et l'état fondamental. Cette transition a été désignée comme étant de multipolarité E1. L'état intermédiaire a été désigné comme un état  $K^\pi = 2^-$  et le point d'arrivée de la transition est attribué à l'état  $2^+$  de la bande rotation de l'état fondamental. L'énergie d'excitation de ce dernier, de 46 keV, est basée sur la systématique de la région des transférmas (voir quelques valeurs mesurées dans le Tableau 5.8). L'état intermédiaire aurait donc une énergie d'excitation d'environ 946 keV. Ceci a donné lieu à la proposition du schéma de niveaux présentée sur la Figure 4.4.B.

Une seconde expérience a été réalisée en 2010 au LBNL en vue d'étudier par spectroscopie retardée les noyaux superlourds de  $^{261}\text{Sg}$  ( $Z = 106$ ) et de  $^{257}\text{Rf}$  [Berr10, Berr11]. Le dispositif expérimental utilisé est identique à celui décrit précédemment.

Les événements de  $^{256}\text{Rf}$  ont été discriminés de ceux de  $^{257}\text{Rf}$  par le mode de décroissance : dominant par fission spontanée pour le premier ( $\approx 100\%$ ) et par émission d'une particule  $\alpha$  pour le second ( $> 98.6\%$ ). Le nombre total de noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  détectés n'est pas donné dans la référence. Le spectre en énergie d'électrons obtenus est présenté sur la Figure 4.5. Les bouffées d'électrons comprises entre une implantation et une décroissance d'un noyau de  $^{256}\text{Rf}$  ont été recherchées. Avec cette sélection, 191 événements de type Recoil-électron-Fission (R-e-F) ont été identifiés. La distribution en énergie de ces derniers est centrée approximativement autour de 175 keV. L'identification de 21 événements par corrélation génétique R-e-e-F a également été réalisée. Aucune information n'est donnée sur la présence d'événements à trois bouffées d'électrons consécutives ou plus.

Ces données semblent être une confirmation de la présence de plusieurs isomères dans ce noyau. Les distributions énergétiques des deux électrons sont centrées autour de  $\approx 175$  keV avec cependant une différence notable: celle de la première bouffée émise est plus large que celle de la seconde. Ces résultats semblent aller dans le sens de ceux de l'expérience précédemment présentée [Jep09]. Cependant, cette seconde expérience n'étant pas dédiée au noyau de  $^{256}\text{Rf}$ , la statistique est faible et peu de détails sont donnés dans la publication sur l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ . Ces résultats ne seront donc pas utilisés dans le Chapitre 6 pour comparaison avec ceux obtenus dans cette thèse.

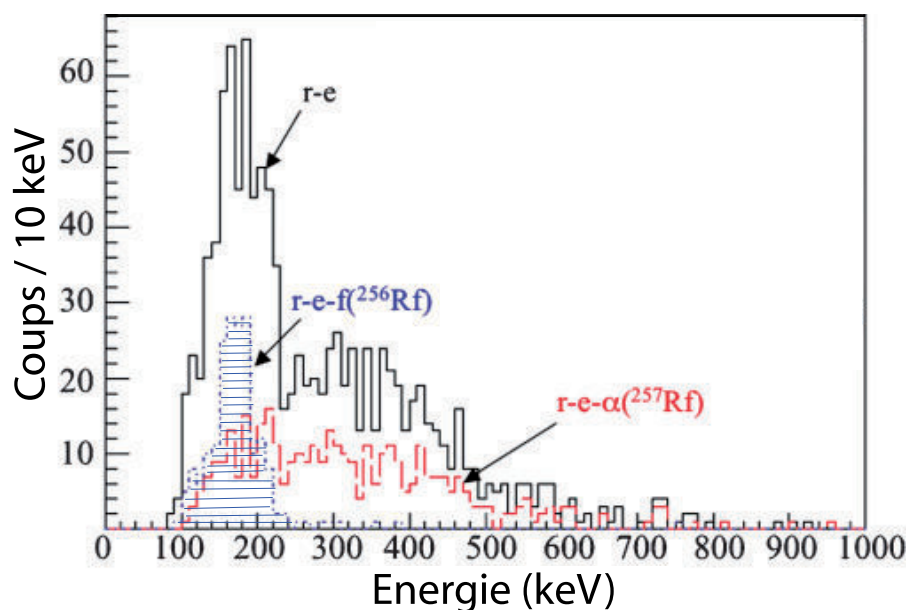


Figure 4.5: Spectres en énergie des bouffées d'électrons obtenus pour plusieurs sélections lors de la recherche d'états isomériques dans l'isotope de  $^{257}\text{Rf}$  réalisée au LBNL (d'après [Berr10]). Le spectre en pointillés bleus correspond aux événements de type R-e-F identifiés comme provenant des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$ .

*Energy spectrum of the identified electron showers obtained for several selections during an isomeric states search in the  $^{257}\text{Rf}$  isotope realized at the LBNL (based on [Berr10]). The dotted blue spectrum corresponds to the R-e-F type events identified as coming from the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus.*

#### 4.2.3.2 Recherche d'états isomériques au ANL

En 2011, une expérience a été réalisée au Argonne National Laboratory (ANL) [Rob11]. Un faisceau d'ions de  $^{50}\text{Ti}$ , d'une intensité sur cible moyenne de 260 pA, a été produit grâce à l'accélérateur ATLAS. Ces ions, d'une énergie cinétique dans le référentiel du laboratoire de 242.5 MeV (240 MeV au centre de la cible), ont irradié une cible d'atomes de  $^{208}\text{Pb}$  de  $500 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  pendant 4 jours.

Les isotopes d'intérêt ont été sélectionnés grâce au séparateur à vide Argonne Fragment Mass Analyzer (FMA) [Bac96] qui a été réglé pour sélectionner les noyaux de masse  $A = 256$ . Au niveau du plan focal, la position, le temps de passage et le dépôt d'énergie des résidus d'évaporation sont récupérés par un compteur à avalanche à grilles parallèles (PGAC).

Au total, 783 noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  ont été identifiés via leur décroissance par fission spontanée suivant l'implantation d'un noyau de masse d'intérêt dans un détecteur d'implantation DSSD. Ce dernier d'une épaisseur de  $140 \mu\text{m}$  est doté de  $40 \times 40$  pixels de  $1 \text{mm}^2$ . Les rayonnements  $\gamma$  ont été détectés grâce à quatre détecteurs à géométrie trèfle placés autour du plan focal. Leur efficacité totale de détection était de  $\approx 9\%$  à 900 keV.

Sur l'ensemble des isotopes de  $^{256}\text{Rf}$  identifiés, seuls 19 événements de corrélation génétique Recul-électron-Fission (R-e-F) ont été détectés. Leur distribution énergétique est tracée sur la Figure 4.6.A. La distribution de la différence de temps entre la détection de l'implantation

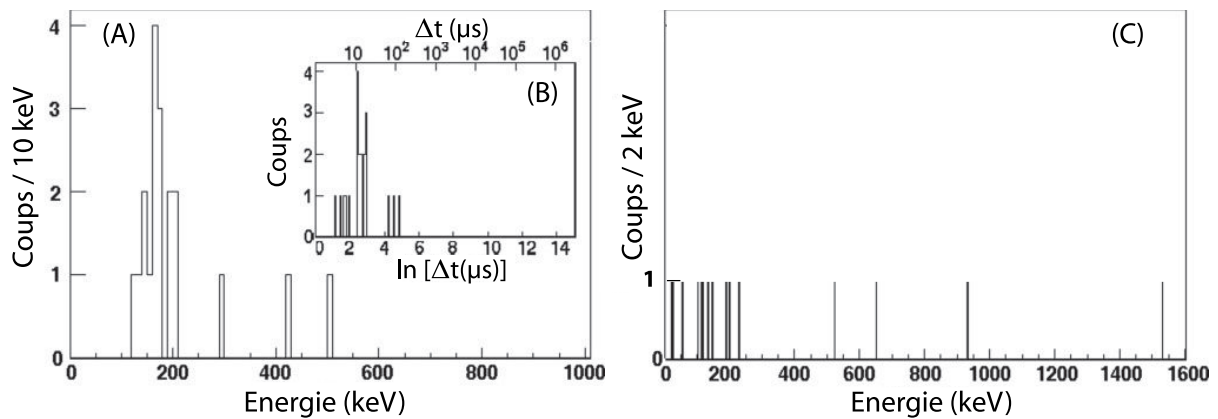


Figure 4.6: Résultats de la recherche d'états isomériques dans le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  réalisé au ANL (d'après [Rob11]). (A): Distribution en énergie des signaux d'électrons identifiés par sélection de Recoil-électron-Fission. (B): Distribution de la différence de temps entre la détection de l'implantation et le signal d'électrons en échelle de temps logarithmique. (C): Spectre des rayonnements  $\gamma$  en coïncidence prompt avec les signaux d'électrons.

*Results of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus isomeric states search realized at the ANL (based on [Rob11]). (A): Energy distribution of the electrons identified by a Recoil-electron-Fission selection. (B): Time difference distribution between a recoil and an electron for Recoil-electron-Fission events. (C): Energy spectrum of the  $\gamma$ -rays in coincidence with identified electrons.*

et de l'électron correspond à un temps de demi-vie de  $17 \pm 5 \mu\text{s}$  (voir la Figure 4.6.B). Le spectre de rayonnements  $\gamma$  détectés en coïncidence prompt avec ces électrons (voir la Figure 4.6.C) ne permet pas de mettre en évidence de pic potentiellement associé à un état isomérique. Aucun événement avec au moins deux électrons en sandwich n'a été mis en évidence. Cette analyse semble montrer l'existence d'un unique état isomérique de haut- $K$ .

Le seuil de détection des signaux d'électrons dans le DSSD était d'environ 130 keV comme on peut le voir sur la Figure 4.6.A. En se basant sur les énergies de décroissance de l'isomère  $K^\pi = 8^+$  du  $^{254}\text{No}$ , une efficacité de détection de 79% a été simulée. Le système d'acquisition possède un temps mort de 40  $\mu\text{s}$  débutant 25  $\mu\text{s}$  après l'implantation d'un noyau de recul ainsi que d'un temps mort global de  $\approx 5\%$ . En tenant compte de l'efficacité et du temps mort, un faible rapport isomérique de  $5 \pm 2\%$  est obtenu. En se basant sur cette faible valeur de peuplement, il a été proposé que ce soit un état isomérique 4-qp.

Ces résultats semblent être en contradiction avec ceux de l'expérience décrite précédemment [Jep09]. Une série de tests complémentaires, en utilisant la réaction  $^{170}\text{Er}(^{50}\text{Ti}, 4n)^{216}\text{Th}$ , a donc été réalisée pour prouver la qualité du dispositif expérimental et de l'acquisition des données. Aucun dysfonctionnement n'a été mis en évidence.

On peut se questionner sur la si faible statistique observée comparée à celle de l'expérience présentée dans [Jep09]. Une différence notable est celle de l'épaisseur du détecteur d'implantation qui est de 140  $\mu\text{m}$  au ANL à comparer avec une épaisseur de 1 mm au LBNL. Cependant, le parcours d'un électron de 100 keV est de 0.08 mm et de 0.45 mm pour un électron de 300 keV. Les probabilités de perte d'informations due à la fuite d'un électron du détecteur (ou du pixel de référence) sont très faibles dans les deux cas.

Le temps mort de l'acquisition au LBNL est d'environ 14  $\mu\text{s}$  après un signal tel que celui d'implantation. Au ANL, le temps mort est de 40  $\mu\text{s}$  débutant 25  $\mu\text{s}$  après un signal. Cette valeur entraîne certainement une perte de données considérable. Il est typiquement de l'ordre de grandeur des temps de demi-vie des états isomériques du noyau d'intérêt (environ 20  $\mu\text{s}$ ). Cette contrainte empêche ainsi fortement l'observation d'un état isomérique décroissant après l'implantation. Plus particulièrement, l'observation des événements avec deux ou trois états isomériques en cascade est dans ce cas extrêmement peu probable. De plus, le seuil de détection d'un signal au niveau du DSSD est plus élevé au ANL (130 keV) que pour l'autre expérience (100 keV). L'effet cumulé de ces deux contraintes peut expliquer le peu de statistique observé. Pour obtenir de meilleurs résultats pour ce noyau précis avec ce dispositif expérimental, il serait nécessaire d'améliorer ou de modifier l'acquisition au niveau du plan focal.

Une analyse similaire à ces deux expériences a été réalisée sur les données de mon expérience de thèse et est présentée dans le Chapitre 6.

### 4.3 Développements techniques

Une meilleure connaissance du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  était très importante pour le domaine pour les raisons exprimées dans la Section 4.1. La réalisation de cette expérience, prioritaire, a été retardée pendant plusieurs années. En effet, plusieurs développements étaient nécessaires pour pouvoir la réaliser au JYFL. L'IPHC y a très fortement contribué au travers de trois thèses successives (F. Khalfallah, J. Piot et ce travail). Ces développements sont passés en revue dans cette section.

Le changement régulier au fil des ans de l'instrumentation de détection au niveau de la cible a contribué à l'augmentation de l'efficacité de détection des rayonnements  $\gamma$  au JYFL. Au milieu des années 1990, le premier instrument exploité fut DORIS (DOdecahedral aRay In Suomi) possédant une efficacité absolue de 0.5% à l'énergie de référence de 1.33 MeV. Par la suite, JUROSPHERE fut mis en place en 1997 puis de 1999 à 2001 avec une efficacité de 1.7%. La première spectroscopie prompte d'un noyau transfermia en Europe, celle de l'isotope de  $^{254}\text{No}$ , a été réalisée avec SARI (Segmented Array at RItu) en 1999. Ce dernier possédait une efficacité similaire à celle de JUROSPHERE. Le passage à JUROGAM premier du nom en 2003 a permis d'atteindre une efficacité de 4.2%. L'ensemble actuellement en place est JUROGAM II qui possède une efficacité de détection absolue des rayonnements  $\gamma$  de 5.2% (voir la Sous-section 3.2.1 pour une description du spectromètre et la Sous-section 5.1.2 pour la mesure de son efficacité).

La réalisation de cette expérience a également demandé des travaux au niveau de la cible. La faible section efficace de production du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  nécessite l'utilisation d'un faisceau très intense (supérieure à 25 pA). Pour que la cible puisse supporter une telle irradiation et ainsi limiter les risques de perçage, il était obligatoire de développer un système de support de cible rotatif (voir la Sous-section 3.2.1). Ce système a été conçu, réalisé et mis en place par l'IPHC en 2003 lors de la thèse de F. Khalfallah [Kha07].

Un important travail de simulation de la cinétique des réactions de fusion-évaporation dans la région des noyaux transfermia a été réalisé en amont de ce travail dans la thèse

de F. Khalfallah [Kha07]. Il visait principalement à tester la faisabilité de diverses réactions. L'isotope de  $^{256}\text{Rf}$  était le principal point d'accroche de cette étude.

Des simulations ont été réalisées durant cette même thèse en vue de trouver l'épaisseur optimale de cible pour différentes réactions de fusion-évaporation. Une recherche de l'épaisseur la plus adaptée à la réaction  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{256}\text{Rf}$  a été effectuée. Cette simulation, basée sur le séparateur à gaz RITU, prend en compte la limite d'intensité imposée par l'électronique des détecteurs germanium au plan cible, les pertes d'énergie en fonction de l'épaisseur de la cible ainsi que l'effet du straggling, une déflexion angulaire de la trajectoire du noyau de recul. Cette dernière contribution dépend de l'épaisseur de la cible. Il faut donc trouver un compromis pour optimiser le nombre de noyaux implantés au plan focal du séparateur.

L'épaisseur optimale obtenue est de  $e_{opt.} = 305 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ . Cela démontre que les cibles "minces" permettent d'optimiser le taux de détection. La cible de l'épaisseur la plus mince disponible au JYFL a été utilisée lors de l'expérience :  $e_{exp.} = 466 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  (voir la Sous-section 5.1.1).

L'intensité élevée de faisceau nécessaire à la réussite d'une telle expérience induit un nombre d'événements parasites importants autour de la cible. Comme discuté dans la Sous-section 3.3.1, il était primordial de passer d'une électronique analogique à une électronique numérique pour l'acquisition des multispectromètres  $\gamma$ . Ceci a été réalisé, lors de la thèse de J. Piot [Pio10], avec les cartes digitales TNT2D (voir la photographie sur la Figure 4.7.A) pour instrumenter la détection autour du niveau du plan cible de RITU. Ce type de carte permet de gérer un taux de comptage plus élevé et, ainsi, de mesurer un plus grand nombre de rayonnements surtout à basse énergie comme on peut le voir sur la Figure 4.7.B. De plus, le passage d'une acquisition de type analogique à numérique offre une meilleure linéarité sur l'ensemble de l'intervalle d'énergie (voir la différence notable sur la Figure 4.7.C). Ces deux améliorations sont particulièrement importantes à basse énergie.

Dans ce cadre, JUROGAM I a été totalement instrumenté en électronique digitale ce qui a constitué une première mondiale. Par la suite, JUROGAM II l'a également été. La réussite du passage à une électronique numérique a ouvert la voie à l'adaptation, par l'Université de Liverpool, de cartes digitales Lyrtech VHS-ADC qui ont été utilisées lors de mon expérience de thèse sur JUROGAM II.

La condition primordiale à la faisabilité de la spectroscopie était l'obtention d'un faisceau intense isotopique d'ions de  $^{50}\text{Ti}$  au JYFL. Il était obligatoire d'atteindre une intensité seuil de 25 pA pour obtenir une statistique suffisante en quelques semaines. Ce développement a été réalisé à cheval sur deux thèses : celle de J. Piot [Pio10] puis la mienne. Un résumé des travaux de J. Piot puis la présentation détaillée de ceux réalisés durant ma thèse sont disponibles dans la Partie III.

Ces différents développements, excepté pour l'instant l'usage du faisceau, sont régulièrement utilisés au JYFL. Ils ont d'ailleurs permis d'ouvrir la voie à l'étude d'autres isotopes aux extrêmes de section efficace de production comme les noyaux de  $^{246}\text{Fm}$  [Pio11, Pio12a] (11 nb) et de  $^{180}\text{Pb}$  [Rah10] ( $\approx 10$  nb). Ces deux expériences ont démontré en 2009 la faisabilité d'une expérience de spectroscopie prompt d'un noyau possédant une section efficace de l'ordre de la dizaine de nanobarns (la limite actuelle d'après [The09]) sur une durée de l'ordre de deux semaines. Cette prouesse technique permis de rendre la communauté confiante quant à la

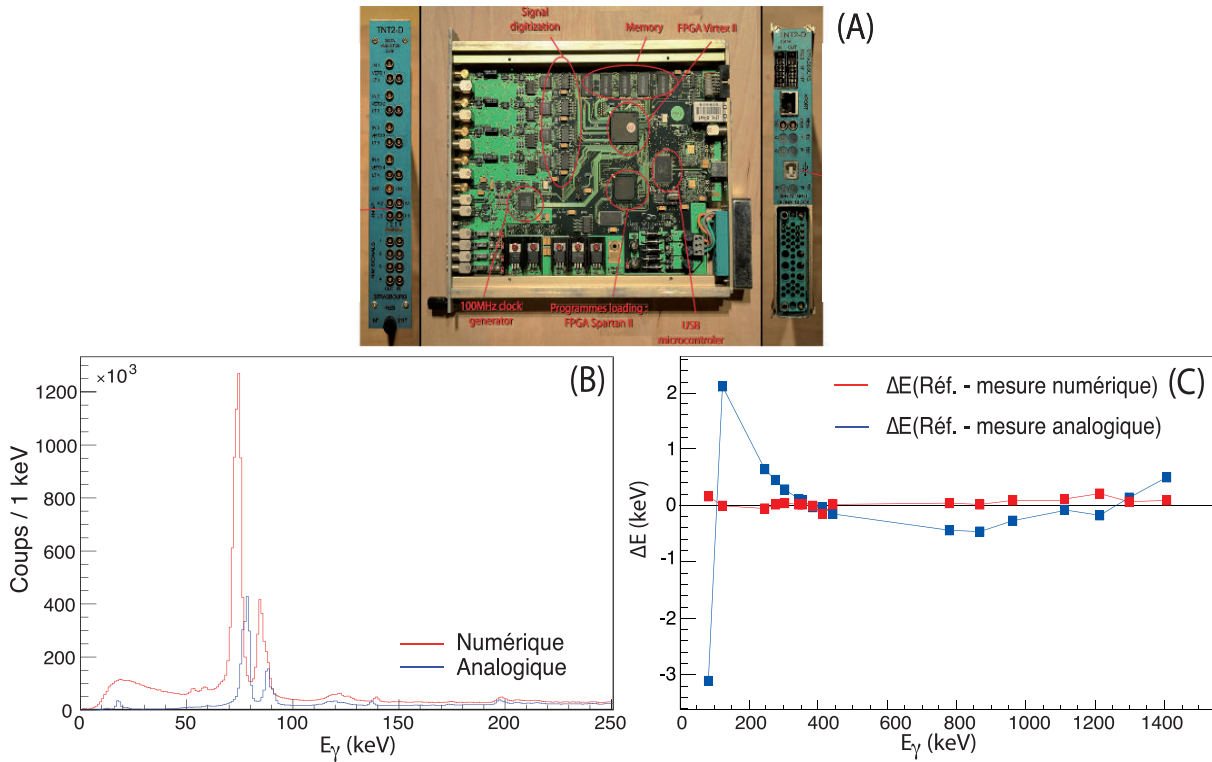


Figure 4.7: (A) : Photographie d'une carte TNT2D produite à l'IPHC. (B) : Partie basse du spectre en énergie des rayonnements  $\gamma$  mesurés avec une acquisition numérique et analogique. (C) : Différence entre les énergies tabulées pour les raies provenant de la décroissance d'une source mixte composée de noyaux de  $^{133}\text{Ba}$  et  $^{152}\text{Eu}$  et les valeurs mesurées avec les cartes TNT2D ainsi que l'acquisition analogique (d'après [Pio10]).

(A): Photograph of a TNT2D card produced at the IPHC. (B):  $\gamma$ -ray energy spectra measured with digital and analogue acquisition. (C): Energy deviation from the tabulated values measured with the decays of a source composed of  $^{133}\text{Ba}$  and  $^{152}\text{Eu}$  nuclei for both a TNT2D card and the analogue acquisition (based on [Pio10]).

possibilité de réaliser l'étude du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  qui est présentée dans cette thèse.

## 4.4 Energie, cinématique et conditions expérimentales

Plusieurs calculs réalisés en prévision de l'expérience sont exposés dans cette section. Certains résultats comme le nombre de noyaux produits ou le temps de vol dans le séparateur RITU sont comparés avec les valeurs expérimentales dans le Chapitre 5.

### 4.4.1 Chaleurs de réactions

La chaleur de réaction  $Q$  de la réaction de fusion-évaporation  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{256}\text{Rf}$  est donnée par la formule suivante :

$$Q = \Delta(^{208}\text{Pb}) + \Delta(^{50}\text{Ti}) - \Delta(^{256}\text{Rf}) - 2 \cdot \Delta(n) = -183.58 \text{ MeV} \quad (4.3)$$

Cette chaleur de réaction est fortement négative du fait de la double magicité du  $^{208}\text{Pb}$  et la magicité neutron du  $^{50}\text{Ti}$  qui apportent toutes deux de la stabilité à la réaction. Comme cette valeur est négative, la réaction est dite endothermique, c'est-à-dire qu'elle nécessite un apport d'énergie pour se produire.

La chaleur de réaction  $Q_{NC}$  de la réaction de production du noyau composé de  $^{258}\text{Rf}$  est de:

$$Q_{NC} = \Delta(^{208}\text{Pb}) + \Delta(^{50}\text{Ti}) - \Delta(^{258}\text{Rf}) = -166.66 \text{ MeV} \quad (4.4)$$

La chaleur de réaction  $Q_{evap1}$  de l'évaporation du premier neutron pour un noyau composé, qui correspond à l'opposé de l'énergie de liaison du neutron  $S_{n1}$ , est de:

$$Q_{evap1} = -S_{n1} = \Delta(^{258}\text{Rf}) - \Delta(^{257}\text{Rf}) - \Delta(n) = -7.611 \text{ MeV} \quad (4.5)$$

La chaleur de réaction  $Q_{evap2}$  de l'évaporation du second neutron, qui correspond à l'opposé de l'énergie de liaison du neutron  $S_{n2}$ , est de:

$$Q_{evap2} = -S_{n2} = \Delta(^{257}\text{Rf}) - \Delta(^{256}\text{Rf}) - \Delta(n) = -6.309 \text{ MeV} \quad (4.6)$$

#### 4.4.2 Calculs énergétiques

Considérons une énergie cinétique des projectiles d'ions de  $^{50}\text{Ti}$  fournie par l'accélérateur, dans le référentiel du laboratoire, de  $T_{lab} = 239.0 \text{ MeV}$  au centre de la cible. Cette valeur correspond au maximum de la fonction d'excitation  $2n$  de [Drag08].

La réaction étant endothermique, l'énergie cinétique des projectiles doit être supérieure à celle de l'énergie seuil  $E_{seuil}$  pour que la réaction puisse être possible:

$$E_{seuil} = |Q| \cdot \frac{M_{\text{Pb}} + M_{\text{Ti}}}{M_{\text{Pb}}} = 227.7 \text{ MeV} \quad (4.7)$$

On observe que  $T_{lab} > E_{seuil}$ , la réaction est permise.

L'énergie cinétique totale du système projectile-cible  $T$  avant la réaction, dans le référentiel du centre de masse, est de:

$$T = T_{lab} \cdot \frac{M_{\text{Pb}}}{M_{\text{Pb}} + M_{\text{Ti}}} = 192.7 \text{ MeV} \quad (4.8)$$

Les valeurs précédemment calculées permettent d'accéder à l'énergie d'excitation  $E_{NC}^*$  du noyau composé à sa création:

$$E_{NC}^* = T + Q_{NC} = 23.1 \text{ MeV} \quad (4.9)$$

Le noyau composé devant, dans le cas de la formation d'un noyau de  $^{256}\text{Rf}$ , évaporer deux neutrons risque à tout moment de fissionner tant que cela n'est pas fait. On peut calculer l'énergie d'excitation  $E_R^*$  du noyau de recul à sa création avec:

$$E_R^* = E_{NC}^* - \sum_{\text{neutrons}} E_n \quad (4.10)$$

où  $E_n$  est la somme de l'énergie de liaison  $S_n$  et de l'énergie cinétique  $E_{evap}$  emportée par le neutron  $n$  lors de son émission.

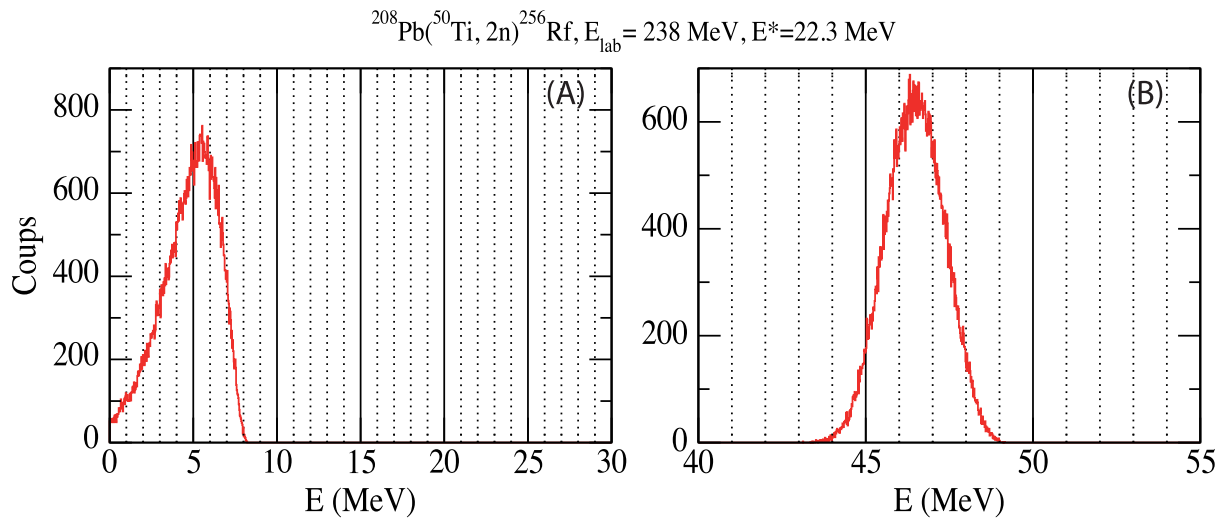


Figure 4.8: Simulations réalisées pour la réaction  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{256}\text{Rf}$  présentées dans la thèse de F. Khalfallah (d'après [Kha07]). (A) : Distribution de l'énergie d'excitation des résidus d'évaporation. (B) : Distribution de l'énergie de recul des résidus d'évaporation.

*Simulations realized in the case of the  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)^{256}\text{Rf}$  fusion-evaporation reaction presented in F. Khalfallah Ph.D. thesis (based on [Kha07]). (A): Excitation energy distribution of the evaporation residues. (B): Recoiling energy distribution of the evaporation residues.*

Les distributions de ces énergies ont été simulées dans [Kha07], où  $E_{\text{evap}1}$  et  $E_{\text{evap}2}$  sont en moyenne de 0.9 MeV pour la réaction qui nous intéresse. Une énergie  $E_R^*$  moyenne de 6 MeV est calculée (voir la Figure 4.8.A). On note cependant que l'énergie cinétique à mi-cible des projectiles  $T_{\text{lab}}$  considérée lors de ces simulations est légèrement plus faible que celle des calculs présentés (238 MeV au lieu de 239 MeV).

### 4.4.3 Barrière de fission

Pour que la réaction soit possible, l'énergie cinétique dans le centre de masse  $T$  doit se situer autour de la barrière coulombienne. Pour maximiser la probabilité de fusion-évaporation, il faut qu'elle soit plus basse que toutes les voies de sorties potentielles donc légèrement en-dessous de la barrière. Toute la difficulté consiste à bien évaluer cette énergie. La valeur classique de la barrière coulombienne  $B_{\text{coul}}$  est définie par la formule suivante :

$$B_{\text{coul}} = \frac{e^2}{4 \cdot \pi \cdot \epsilon_0} \cdot \frac{Z_{\text{Ti}} \cdot Z_{\text{Pb}}}{(R_{\text{Ti}} + R_{\text{Pb}})} = 1.44 \cdot \frac{Z_{\text{Ti}} \cdot Z_{\text{Pb}}}{r_0 \cdot (A_{\text{Ti}}^{1/3} + A_{\text{Pb}}^{1/3})} = 208.0 \text{ MeV} \quad (4.11)$$

Les rayons sont calculés tels que  $R_i = r_0 \cdot A_i^{1/3}$  avec une valeur  $r_0 = 1.3 \text{ fm}$ .

Cette valeur est toutefois éloignée du chiffre réaliste. La hauteur de la barrière d'interaction entre un ion projectile de  $^{50}\text{Ti}$  et un noyau cible de  $^{208}\text{Pb}$  peut être calculée de manière plus précise avec le modèle classique de Bass (discuté dans la Section 2.1). En effet, il a été montré que ce type de calcul est plus réaliste que le calcul classique de la barrière coulombienne. La barrière d'interaction  $B_{\text{int}}$  [Bas74] est définie par un calcul unidimensionnel. Elle est donnée



par :

$$B_{int} = \frac{Z_{\text{Ti}} \cdot Z_{\text{Pb}} \cdot e^2}{r_0 \cdot (A_{\text{Ti}}^{1/3} + A_{\text{Pb}}^{1/3}) + 2.70 \text{ fm}} - 2.70 \text{ MeV} \cdot \frac{A_{\text{Ti}}^{1/3} \cdot A_{\text{Pb}}^{1/3}}{A_{\text{Ti}}^{1/3} + A_{\text{Pb}}^{1/3}} = 193.5 \text{ MeV} \quad (4.12)$$

Par la suite, ce modèle a été affiné et présenté dans [Bas77]. Les valeurs obtenues sont très proches des résultats expérimentaux.

$$B_{Bass} = \frac{e^2 \cdot Z_{\text{Ti}} \cdot Z_{\text{Pb}}}{r} - \frac{R_{\text{Ti}} \cdot R_{\text{Pb}}}{R_{\text{Ti}} + R_{\text{Pb}}} \cdot G(r) \quad (4.13)$$

$$\text{avec } R_i = a \cdot A_i^{1/3} + b \cdot A_i^{-1/3} \text{ où } a = 1.16 \text{ et } b = -1.39 \quad (4.14)$$

$G(r)$  est une fonction universelle construite à partir d'un large nombre de systèmes, elle est définie par :

$$G(r) = [A \cdot e^{(r-R_{\text{TiPb}})/d_1} + B \cdot e^{(r-R_{\text{TiPb}})/d_2}]^{-1} \quad (4.15)$$

avec  $A = 0.033 \text{ fm} \cdot \text{MeV}^{-1}$ ,  $B = 0.007 \text{ fm} \cdot \text{MeV}^{-1}$ ,  $d_1 = 3.5 \text{ fm}$ ,  $d_2 = 0.65 \text{ fm}$  et  $R_{\text{TiPb}} = R_{\text{Ti}} + R_{\text{Pb}} + 0.3$ .

Pour la réaction d'intérêt, une énergie de  $B_{Bass} = 194.2 \text{ MeV}$  est calculée.

L'énergie cinétique  $T$  est donc légèrement inférieure à celle de la barrière  $B_{int}$  et de  $B_{Bass}$ . Ceci va permettre aux deux noyaux de pouvoir fusionner pour créer un noyau composé tout en limitant le risque de fission. On note que ce type de calcul néglige certains aspects de la dynamique de la fusion. Pour obtenir des résultats plus réalistes, un travail complémentaire serait nécessaire.

#### 4.4.4 Temps de vol noyau de recul

En utilisant les résultats précédents, on peut obtenir la valeur de l'énergie cinétique du noyau de recul dans le centre de masse  $T_R$ :

$$T_R = T_{lab} \cdot \frac{M_{\text{Ti}}}{M_{\text{Ti}} + M_{\text{Pb}}} = T_{lab} - T = 46.3 \text{ MeV} \quad (4.16)$$

Cette valeur est cohérente avec le maximum de la distribution calculée dans [Kha07], présentée sur la Figure 4.8.B. Elle permet, en utilisant le modèle du choc élastique, de remonter à la vitesse du noyau de recul avec la formule suivante:

$$T_R = \frac{1}{2} \cdot M_{\text{Rf}} \cdot v^2 = \frac{1}{2} \cdot M_{\text{Rf}} \cdot c^2 \cdot \frac{v^2}{c^2} \quad (4.17)$$

$$\Leftrightarrow \frac{v}{c} = \sqrt{\frac{2 \cdot T_R}{M_{\text{Rf}} \cdot c^2}} \quad (4.18)$$

$$\Leftrightarrow \frac{v}{c} = \beta = 1.97\% \quad (4.19)$$

Le rapport  $\beta$  est exploité dans le Chapitre 5 pour réaliser la correction de l'Effet Doppler.

Grâce à cette valeur, la vitesse du noyau de recul dans RITU peut être obtenue :

$$v = 5.89 \cdot 10^6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1} \quad (4.20)$$

Sachant que la longueur du séparateur RITU est de  $d_R = 4.8$  m, on peut estimer le temps de vol  $\Delta t$  d'un noyau de recul dans le séparateur à gaz à :

$$\Delta t = \frac{d_R}{v} = 0.815 \mu\text{s} \quad (4.21)$$

Ce temps est très petit devant celui de demi-vie du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Il est ainsi peu probable qu'un noyau décroisse durant son temps de vol. On note que cette valeur dépend également de l'influence du gaz et de la trajectoire de l'ion dans le séparateur RITU qui ne sont pas prises en compte ici. Elle a servi de référence pour les réglages du temps d'acquisition de l'électronique (voir la Section 5.1) et est comparée avec celle obtenue expérimentalement (voir la Section 5.4).

#### 4.4.5 Section efficace et taux de production

Le nombre de noyaux implantés  $N$  dans le DSSD peut être estimé par la formule suivante:

$$N = 6.25 \cdot 10^{-30} \cdot I \cdot \frac{\mathcal{N}_A \cdot \sigma \cdot e}{A} \cdot T_{RITU} \cdot \Delta t \quad (4.22)$$

où:

- ◇  $I$  est l'intensité du faisceau (exprimée en pA).
- ◇  $\mathcal{N}_A$  est le nombre d'Avogadro (en  $\text{mol}^{-1}$ ).
- ◇  $\sigma$  est la section efficace de production de la réaction de fusion-évaporation (en nanobarn).
- ◇  $e$  est l'"épaisseur" (ou masse surfacique) de la cible (en  $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ ).
- ◇  $A$  est la masse molaire des atomes constituant la cible (en  $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$ ).
- ◇  $T_{RITU}$  est l'efficacité de transmission du noyau de recul dans le séparateur RITU.
- ◇  $\Delta t$  est la durée totale de l'expérience (en seconde).

On définit  $p$  comme étant la probabilité pour un ion projectile de fusionner avec un noyau cible et de former le résidu d'évaporation attendu tel que:

$$p = \frac{\mathcal{N}_A \cdot \sigma \cdot e}{A} \quad (4.23)$$

On peut estimer le taux de production avec les valeurs suivantes: une cible de  $^{208}\text{Pb}$  d'une épaisseur  $500 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ , une section efficace de production de 16 nb, une intensité moyenne de 30 pA et une efficacité de transmission dans le séparateur RITU estimée à 40%.

Dans le cadre de cette réaction, cette situation correspond, pour un ion de  $^{50}\text{Ti}$  projeté sur la cible, à une probabilité  $p = 2.32 \cdot 10^{-14}$  de fusionner avec un noyau de  $^{208}\text{Pb}$  pour former un noyau d'intérêt de  $^{256}\text{Rf}$  après évaporation de deux neutrons.

On peut donc s'attendre à détecter 6.25 événements d'intérêt par heure. Cette valeur correspond à l'observation de 150 noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  par jour. Pour une durée type d'expérience de 2 semaines, on estime identifier 2101 noyaux ce qui est, d'après les expériences précédentes, suffisant pour observer une bande de rotation par spectroscopie prompt.

#### 4.4.6 Comparatif des conditions expérimentales

J'ai réalisé une analyse en spectroscopie retardée du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  qui est présentée dans le Chapitre 6. Les résultats obtenus y sont comparés avec ceux des expériences similaires décrites dans les Références [Jep09] et [Rob11]. Afin de comprendre les différences entre ces expériences, certaines de leurs caractéristiques sont récapitulées dans le Tableau 4.2.

Expérience	Réf. [Jep09]	Réf. [Rob11]	Ce travail
Epaisseur de la cible ( $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	500	$\approx 500$	446
Epaisseur de carbone ( $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	50	0	0
Energie du faisceau à mi-cible (MeV)	$\approx 239$	$\approx 240$	239
Nom du séparateur	BGS	FMA	RITU
Mode du séparateur	gaz	vide	gaz
Longueur du séparateur (m)	4.7	8.2	4.8
Epaisseur du DSSD ( $\mu\text{m}$ )	$\approx 1000$	140	300
Dimensions du DSSD (cm)	$5\times 5$	$4\times 4$	$12\times 4$
Segmentation du DSSD	$16\times 16$	$40\times 40$	$120\times 40$
Seuil énergétique du DSSD (keV)	$\approx 100$	$\approx 130$	$\approx 75$
Temps mort de l'acquisition ( $\mu\text{s}$ )	$\approx 14$	$\approx 40$	$\approx 12$

Table 4.2: Tableau comparatif de caractéristiques des trois dispositifs expérimentaux utilisés pour rechercher des états isomériques dans le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ .

*Comparative table of characteristics from the three experimental setups used to investigate isomeric states in the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus.*

Spectroscopie  $\gamma$  prompte du  $^{256}\text{Rf}$ 

## Sommaire

---

<b>5.0</b>	<b>Summary</b>	<b>132</b>
<b>5.1</b>	<b>Conditions expérimentales</b>	<b>135</b>
5.1.1	Faisceau et cible	135
5.1.2	Réglages de l'instrumentation de détection	136
5.1.2.1	JUROGAM II	138
5.1.2.2	RITU	139
5.1.2.3	GREAT - DSSD	140
5.1.2.4	GREAT - Diodes PIN	140
5.1.2.5	GREAT - Détecteurs au germanium au plan focal	140
<b>5.2</b>	<b>Sélection des noyaux d'intérêt</b>	<b>142</b>
<b>5.3</b>	<b>Caractérisation des noyaux d'intérêt</b>	<b>146</b>
5.3.1	Mesure de la section efficace de production	146
5.3.2	Mesure du temps de demi-vie	147
<b>5.4</b>	<b>Mise en évidence de la bande de rotation</b>	<b>148</b>
5.4.1	Sélection par méthode de Recoil-Fission Tagging	149
5.4.1.1	Première approche	149
5.4.1.2	Utilisation du temps de vol	150
5.4.2	Sélection par méthode de Recoil Tagging	153
<b>5.5</b>	<b>Discussions sur la bande de rotation</b>	<b>155</b>
5.5.1	Effet des sélections sur le temps de vol	155
5.5.2	Effet de la statistique	156
5.5.3	Effet du fold	156
5.5.4	Intensités relatives	159
5.5.5	Intensités absolues	161
<b>5.6</b>	<b>Caractérisation de la bande de rotation</b>	<b>163</b>
5.6.1	Définition des spins des transitions	163
5.6.2	Moments d'inertie	165
5.6.3	Energies des premiers états excités	166
<b>5.7</b>	<b>Interprétation physique</b>	<b>168</b>
5.7.1	Introduction	168
5.7.2	Moments d'inertie cinématiques	170
5.7.3	Moments d'inertie dynamiques	172

---

## 5.0 Summary

The spectroscopic study of  $^{256}\text{Rf}$  was performed at the Accelerator Laboratory of the University of Jyväskylä in September 2011. The nuclei of interest were produced through the fusion-evaporation reaction of a  $^{50}\text{Ti}$  beam impinging on a  $^{208}\text{Pb}$  rotating target. The beam was accelerated to an energy of 242 MeV such that the center-of-target energy corresponded to the maximum of the excitation function for the 2n evaporation channel. The  $446 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  thick target was irradiated for more than 450 hours. The average beam intensity was 29 pnA. Several details of the experiment are presented in Table 5.1.

The experiment was performed using the JUROGAM II array, the gas-filled separator RITU and the focal plane detection system GREAT (see Section 3.2). The data acquisition system was set in order to record all singles germanium events detected from  $-3 \mu\text{s}$  to  $+7 \mu\text{s}$  with respect to the detection of an event in the DSSDs. Every detector was calibrated using my own automatic calibration programs (see Figure 5.1). All the germanium detectors from JUROGAM II and GREAT were calibrated using a  $^{133}\text{Ba}$ - $^{152}\text{Eu}$  mixed source (see Figures 5.2 and 5.4). An “add-back” function was applied for the clover and planar germanium detectors. The RITU dipole rigidity was set at 2.06 T·m. The DSSDs were optimized for  $^{256}\text{Rf}$ : the front side was set to measure spontaneous fission fragments with a total energy up to 250 MeV (see the Figure 5.3) and the back side for conversion electrons (up to 2 MeV).

The nuclei of interest were discriminated from all other recoiling nuclei using the Recoil-Fission Tagging technique. This requires several conditions. First, the implantation of a recoiling nucleus, identified by the energy deposited in the MWPC, has to be followed by a decay signal in the implantation detector. These signals have to be observed in the same pixel of the DSSDs. Taking account of the half-life of the nucleus of interest, both signals have to be detected in an optimal 100 ms time window. Since  $^{256}\text{Rf}$  decays mostly by spontaneous fission, the decay signal energy was required to be between 30 and 250 MeV. A gate on the energy implantation versus Time-of-Flight in RITU matrix (see Figure 5.5) is imposed to improve the selection. With all these conditions, 2210 events of interest are obtained. Their energy spectrum is presented on the Figure 5.6. No events were observed with a similar analysis imposing a  $\alpha$ -decay condition instead of a spontaneous fission (Recoil-Alpha Tagging technique).

A production cross section of  $16.7 \pm 2.5 \text{ nb}$  and a half-life of  $6.91 \pm 0.16 \text{ ms}$  were measured (see Figure 5.7). Both of these values are consistent with previous experiments.

The energy spectrum of the prompt  $\gamma$ -rays correlated with the set of 2210 Recoil-Fission Tagging events is plotted in Figure 5.8. X-rays transitions of the rutherfordium element can be seen while more intense lead X-rays transitions reflects the target element pollution present in that spectrum. To suppress contributions of the  $^{208}\text{Pb}$  nuclei, a two-dimensional polygonal “gate” on a matrix of the MWPC-DSSD Time-of-Flight versus the time difference between detection of the  $\gamma$ -ray and the recoil was used (see Figure 5.9). The energy spectrum of selected prompt single  $\gamma$ -rays is shown in Figure 5.10. One can observe 8 regularly spaced transitions at 161, 218, 272, 323, 371, 417, 459 and 499 keV (see Table 5.2); this is the first observation of a rotational band in a superheavy nucleus. A single 293 keV transition was also observed. However, no high-energy transitions were seen.

The energy spectrum of prompt  $\gamma$ -rays correlated only with recoil events (without con-

dition on the fission) was also analysed (see Figure 5.11). No gain in term of statistics can be obtained with this selection since the detection efficiency of spontaneous fission is almost 100% in the implantation detector. Furthermore, more background is selected with this technique. It proves again that, as can be seen in Figure 5.12, fission allows a very clean selection.

Since the  $^{256}\text{Rf}$  cross section is quite low, strong statistical effects can appear. This is illustrated in Figure 5.13 where a 272 keV transition only shows up after several days of the experiment.

The prompt  $\gamma$ -ray spectrum is plotted fold by fold in Figure 5.14. Since JUROGAM II has a high granularity, it is still possible to observe several rotational band transitions for a fold of 2 or 3 with very low background, but also limited statistics (see Table 5.3).

The relative intensities of the observed transitions were determined taking into account the electron conversion factors and the JUROGAM II detection efficiency. The values obtained are listed in Table 5.4. One observes, as for other transfermium nuclei, that the relative intensity decreases with increasing spin. The prompt  $\gamma$ -ray spectrum corrected by the relative intensity is displayed in Figure 5.15. The calculated absolute intensities are presented in Table 5.5. It shows that only  $19 \pm 7\%$  of the identified nuclei decay promptly with a  $6^+$  to  $4^+$  transition !

The Harris method was used to characterise the rotational band. A fit based on the experimental kinematic moment of inertia was used to assign spin values to the observed states (see Figure 5.16). Several possibilities were tested. The first observed transition, 161 keV, is assigned as a  $6^+$  to  $4^+$  transition (see Figure 5.17). The band is therefore observed up to a spin of  $20 \hbar$ . The corresponding Harris parameters are  $\mathcal{J}_0 = 66.7 \hbar^2 \cdot \text{MeV}^{-1}$  and  $\mathcal{J}_1 = 175.5 \hbar^4 \cdot \text{MeV}^{-3}$ .

The two lowest in-band transitions are not observed since the internal conversion factors are quite high. Their energies have been extrapolated using the Harris function (in green on Figure 5.18). The  $4^+$  to  $2^+$  transition is estimated as 104 keV and the  $2^+$  to  $0^+$  as 44 keV. Energies and spins of all transitions are listed in Table 5.6.

A level scheme of  $^{256}\text{Rf}$  ground-state rotational band is plotted in Figure 5.19. It is quite similar to that for  $^{254}\text{No}$ . Their similarity can be explained by the influence of the  $N = 152$  deformed shell gap since they are isotones.

To obtain new structure information, the kinematic and dynamical moments of inertia corresponding to the ground-state rotational band of four even-even transfermium nuclei,  $^{250}\text{Fm}$ ,  $^{252}\text{No}$ ,  $^{254}\text{No}$  and  $^{256}\text{Rf}$  (see Table 5.7), are compared.

The experimental kinematic moments of inertia fitted by the Harris function are plotted in Figure 5.20.A. The  $^{256}\text{Rf}$  moment of inertia presents a very similar behaviour as a function of rotational frequency as the  $N = 152$  isotone  $^{254}\text{No}$ , though the absolute value is slightly lower over the full frequency range. The rotational properties of the  $N = 150$  isotones are somewhat different, showing much faster alignment than the  $N = 152$  nuclei. These differences can be explained by the fact that the pairing correlations are weakened at a deformed shell gap, which leads to a larger moment of inertia. With isotopic and isotonic comparisons between these moments, it was possible to show the influence of large deformed shells gaps at  $N = 152$  and  $Z = 100$ . It also suggests that there is no large gap at  $Z = 104$ . According to Table 5.8, all studied nuclei have a similar deformation parameter. This lends support to

the argument that the differences in moment of inertia are due to pairing effects.

The experimental dynamical moments of inertia normalized by their Harris function are plotted in Figure 5.20.B. On this plot, one can observe at which rotational frequency the alignment phenomenon appears. The behaviour at low rotational frequency is similar for all nuclei, but a divergence from the smooth behaviour appears above frequencies of around 0.15 MeV in the  $N = 150$  isotones and above 0.2 MeV in the  $N = 152$  nuclei, indicating an alignment effect. It is interesting to note that the alignment occurs simultaneously in the  $N = 150$  isotones, but appears later in the  $N = 152$  isotones, and is delayed in  $^{254}\text{No}$  relative to  $^{256}\text{Rf}$ . It has been shown that in this region of nuclei there is competition between a neutron  $j_{15/2}$  and a proton  $i_{13/2}$  alignment. This effect is sensitive to the relative positions of the relevant orbitals to the Fermi surface. In the  $N = 150$  isotones, the Fermi surface is just below the neutron  $\nu j_{15/2}[734]9/2^-$  orbital, which is filled in the  $N = 152$  nuclei. Given that  $^{254}\text{No}$  and  $^{256}\text{Rf}$  are isotones, it can be speculated that the difference is due to the shift of the proton Fermi surface, moving from  $^{254}\text{No}$  to  $^{256}\text{Rf}$ . In  $^{256}\text{Rf}$  the proton Fermi surface is closer to the  $\pi i_{13/2}[624]9/2^+$  orbital. Experimental data on neighbouring nuclei and theoretical investigations would be required to explain these subtle differences in detail.

Dans ce chapitre sont présentés les travaux qui ont mené à la première spectroscopie  $\gamma$  prompt d'un isotope d'un élément superlourd, le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Il débute par une description des conditions expérimentales. La méthode de sélection des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  par méthode de Recoil-Fission Tagging est décrite. Les mesures de leur temps de vie et section efficace sur ces noyaux sont ensuite présentées. Cette sélection permet de mettre en évidence une bande de rotation au-dessus de l'état fondamental du noyau via plusieurs méthodes qui sont détaillées. Une discussion sur certaines caractéristiques de cette bande est ensuite proposée. La caractérisation de la bande de rotation observée par la méthode de Harris est ensuite présentée. Son interprétation physique permet de conclure ce chapitre en discutant des orbitales et effets de couches dans la région.

## 5.1 Conditions expérimentales

La spectroscopie de l'isotope  $^{256}\text{Rf}$  a été réalisée au Laboratoire de l'Accélérateur du JYFL avec le dispositif décrit en détails dans la Section 3.2. Cette étude fait suite à une proposition d'expérience qui a été déposée auprès du PAC du JYFL en septembre 2010 (voir [Gre10]). L'expérience s'est déroulée en deux parties : du 1<sup>er</sup> au 19 septembre puis du 26 septembre au 3 octobre 2011, soit un total de 25 jours dédiés. Cette section résume les caractéristiques de l'expérience ainsi que les réglages de l'instrumentation.

### 5.1.1 Faisceau et cible

Les noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  ont été synthétisés par la réaction de fusion froide  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti}, 2n)$  (voir la Sous-section 4.2.2). Le faisceau isotopique de  $^{50}\text{Ti}^{11+}$  [Rub12a] a été fourni par la source ECRIS 2 de 14 GHz [Koi01] et accéléré par le cyclotron K130. Le développement de ce faisceau, ainsi que l'appareillage utilisé pour sa production, sont discutés en détails dans la Partie III de cette thèse.

L'énergie cinétique des ions de  $^{50}\text{Ti}$  a été réglée à 242 MeV en sortie de cyclotron. Elle a été choisie afin que l'énergie cinétique du faisceau au centre de la cible soit 239 MeV (soit  $4.78 \text{ MeV}\cdot\text{nucléon}^{-1}$ ) ce qui correspond au maximum de la fonction d'excitation de la voie  $2n$  d'après [Drag08] (voir la Figure 4.2). L'incertitude sur l'énergie délivrée par le cyclotron est estimée à environ 1 MeV.

Durant l'expérience, deux cibles neuves isotopiques de  $^{208}\text{Pb}$  d'une épaisseur de  $446 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  ont été exploitées. Il s'agit de l'épaisseur de cible la plus faible disponible au JYFL. Elle a été choisie en vue d'optimiser le nombre d'implantation de noyau de recul (voir la discussion de la Section 4.4). La première de ces cibles a été utilisée pendant les dix premiers jours et la deuxième lors du reste de l'expérience. Ce sont des cibles autoportantes ne possédant aucune couche de support en carbone. Elles étaient montées sur le mécanisme rotatif, tournant à environ 400 tours par minute.

La cible a été irradiée durant un total de 450.4 heures. L'intensité sur cible du faisceau, sur l'intégralité de l'expérience, était en moyenne de 28.8 pA, ce qui correspond à  $1.8 \cdot 10^{11}$  ions projetés par seconde. L'intensité maximale atteinte était de 490 nA, soit 45 pA. Une dose intégrée de  $2.9 \cdot 10^{17}$  ions a donc été projetée sur cible sur l'ensemble



de l'expérience. On note, que pour une meilleure précision dans ces résultats, une mesure de l'intensité du faisceau au niveau de plan cible a été réalisée chaque demi-heure durant l'intégralité de l'expérience grâce à une cage de Faraday dédiée.

Le Tableau 5.1 résume les caractéristiques principales de l'expérience :

Réaction utilisée	$^{50}\text{Ti}(^{208}\text{Pb}, 2n)^{256}\text{Rf}$
Faisceau utilisée	$^{50}\text{Ti}^{11+}$
Energie du faisceau	242 MeV
Temps d'irradiation	450.4 h
Intensité moyenne	28.8 pA
Intensité maximale	45 pA (495 nA)
Dose totale	$2.9 \cdot 10^{17}$ ions
Cibles utilisées	$^{208}\text{Pb}$
Épaisseur des cibles	$446 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$

Tableau 5.1: Résumé des caractéristiques de l'étude spectroscopique du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ .

*Summary of characteristics of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus spectroscopic study.*

### 5.1.2 Réglages de l'instrumentation de détection

Les différents détecteurs utilisés durant cette expérience ont été réglés pour optimiser la détection des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  ainsi que leurs rayonnements. Les différents réglages effectués sont passés en revue dans cette section. Ces détails spécifiques à mon expérience complètent la description générale du dispositif expérimental de la Section 3.2.

L'électronique d'acquisition a été réglée au début de l'expérience pour enregistrer toutes les informations provenant de l'ensemble des détecteurs dans un intervalle de temps d'une durée de 10  $\mu\text{s}$  compris entre  $-3 \mu\text{s}$  et  $+7 \mu\text{s}$  par rapport à la détection d'un événement dans le détecteur d'implantation DSSD. Cette durée permet amplement de contenir le temps de vol d'un résidu d'évaporation dans le séparateur RITU estimé à  $0.815 \mu\text{s}$  (présenté dans la Sous-section 4.4.4). Les énergies des rayonnements  $\gamma$  détectés ont été déterminées en utilisant un algorithme de Moving Window Deconvolution (MWD) [Geo93] implémentés dans les circuits intégrés des cartes d'acquisition.

Sur l'ensemble de l'expérience, 1.1 To de données expérimentales (soit plus de 100 milliards d'événements individuels) ont été sauvegardées. Chacune des analyses complètes des données nécessitait ainsi plusieurs heures (variable en fonction de l'ordinateur) avec le logiciel GRAIN. Plusieurs dizaines d'analyses ont été réalisées.

J'ai développé des programmes d'étalonnage dédiés aux détecteurs utilisés. Chacun d'entre eux était optimisé pour étalonner tous les segments d'un type de détecteur de manière automatique. Le programme identifie les pics les plus intenses dans chaque spectre brut. En se basant sur la liste des transitions des sources utilisées, une énergie est attribuée à chaque photopic. Ce scénario est alors validé par calcul du  $\chi^2$  réduit. Les résultats peuvent être contrôlés visuellement grâce à des matrices qui sont données en sortie du programme tel que celle présentée sur la Figure 5.1. Sur ce type de figure, les transitions les plus intenses de chaque segment

de détecteur, comme les strips de la face X du détecteur planaire sur cette figure en particulier, doivent être alignées énergétiquement sur l'ensemble des strips. Ces programmes permettent d'obtenir directement en sortie les coefficients d'étalonnage dans le format accepté en entrée par GRAIN. Ces programmes ont été testés avant l'expérience sur les données d'études spectroscopiques, réalisés au JYFL, des isotopes de  $^{246}\text{Fm}$  [Pio11, Pio12a],  $^{252}\text{No}$  [Sul12] et  $^{255}\text{Lr}$ . Ils ont été utilisés online lors de mon expérience de thèse ainsi que lors de deux expériences de la campagne SAGE de 2012 : celle visant à l'étude des noyaux de  $^{251}\text{Md}$  [The10, Dec12] et de  $^{255}\text{Lr}$  [San10].

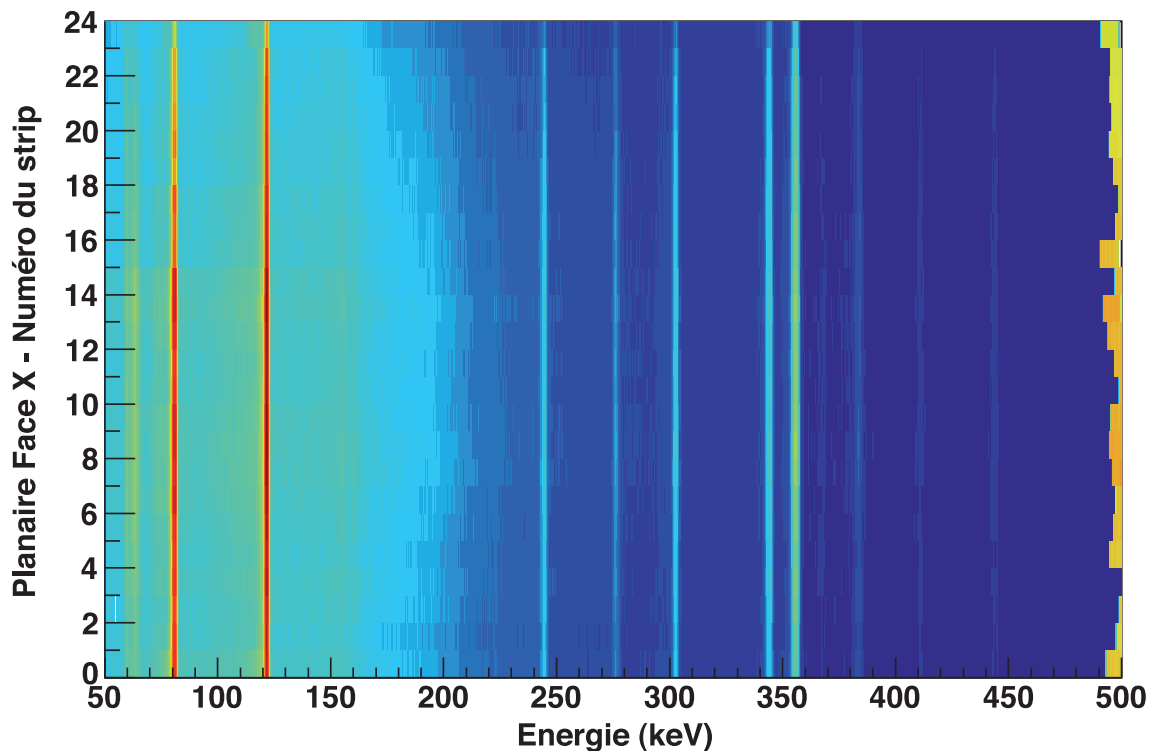


Figure 5.1: Matrice de l'énergie des rayonnements  $\gamma$  mesurés dans la face avant (notée X) du détecteur planaire contre le numéro du strip touché. Les rayonnements  $\gamma$  proviennent d'une source mixte de  $^{133}\text{Ba}$  et de  $^{152}\text{Eu}$ . On observe le seuil de la zone hors-gamme (dit overrange) à environ 500 keV qui est dû au choix de gain des détecteurs. Cette matrice permet de vérifier que le détecteur est bien étalonné si les photopics sont alignés pour toutes les segmentations aux énergies des transitions des sources.

*Matrix of the  $\gamma$ -rays energy detected in the back face of the planar detector versus the strip number. The  $\gamma$ -ray are emitted by a mixed source composed of  $^{133}\text{Ba}$  and  $^{152}\text{Eu}$  nuclei. One observes the threshold of the overrange area at approximately 500 keV, that comes from the gain settings of the detectors. This matrix allows to check if the detector is well calibrated. The transitions have to be aligned at the sources photopeak energies for all the detector segments.*

### 5.1.2.1 JUROGAM II

Le multispectromètre JUROGAM II était placé autour de la cible afin de mesurer les transitions  $\gamma$  émises par les produits de fusion-évaporation. La sphère de cristaux de germanium était dans sa configuration optimale avec 15 détecteurs tronconiques et 24 détecteurs trèfles en place durant l'intégralité de l'expérience. Son étalonnage a été réalisé grâce à une source mixte, placée au centre de la sphère, composée de  $^{133}\text{Ba}$  et de  $^{152}\text{Eu}$  d'activités respectives de 24 kBq et 26 kBq au moment de l'expérience. Plusieurs mesures identiques ont été réalisées au long de l'expérience pour vérifier régulièrement les coefficients d'étalonnage.

A basse énergie, les rayonnements  $\gamma$  sont principalement soumis à l'effet photoélectrique dans les cristaux de germanium ( $Z = 32$ ). A plus haute énergie, ils sont soumis à l'effet Compton. Dans le cas d'un détecteur trèfle, une partie de l'énergie d'une transition peut ainsi s'échapper d'un cristal et être détectée dans un des cristaux voisins. Il est donc intéressant de sommer ces contributions afin de reconstituer l'énergie pleine et d'augmenter la statistique des spectres de rayonnements  $\gamma$  pour ce type de détecteur.

Dans le cadre de cette problématique, j'ai écrit une fonction pour réaliser l'Add-Back des détecteurs de géométrie trèfle. Elle est utilisée pour l'ensemble des résultats obtenus avec JUROGAM II dans cette thèse. Cette dernière va sommer les dépôts d'énergie mesurés dans deux cristaux adjacents d'un détecteur trèfle à condition qu'ils soient détectés dans une fenêtre de temps de 500 ns. Les coïncidences entre les rayonnements détectés dans deux cristaux en diagonal l'un par rapport à l'autre ne sont pas prises en compte. Chaque détecteur trèfle est ici considéré comme indépendant. Les gains relatifs d'efficacité obtenus grâce à ce procédé sont de 3.7% à 356 keV, de 21.8% à 963 keV et de 33.2% à 1407 keV.

L'efficacité absolue totale de détection des rayonnements  $\gamma$  de JUROGAM II a été mesurée à 5.2% à 1.33 MeV (avec Add-Back). La courbe d'efficacité correspondante présente un maximum de près de 18% à une énergie d'environ 175 keV comme on peut le voir sur la Figure 5.2. La résolution en énergie des détecteurs a été mesurée en source à 3.05 keV pour l'ensemble des détecteurs de géométrie tronconique et à 3.32 keV pour l'ensemble des détecteurs de géométrie trèfles (à une énergie de référence de 1.33 MeV).

Cette courbe d'efficacité ainsi que les suivantes ont été extrapolées avec la formule suivante :

$$\varepsilon(E_\gamma) = a \cdot E_\gamma^{-b} \cdot \left(1 - c \cdot \exp^{-(d \cdot E_\gamma^2 + e \cdot E_\gamma + f)}\right) \quad (5.1)$$

où  $E_\gamma$  est l'énergie du rayonnement  $\gamma$  et  $a$ ,  $b$ ,  $c$ ,  $d$ ,  $e$ ,  $f$  sont les paramètres de la fonction. Le terme  $a \cdot E_\gamma^{-b}$  est une exponentielle décroissante qui correspond à la partie haute énergie ( $>250$  keV) de la courbe. Le reste de la fonction permet de corriger l'efficacité à basse énergie.

Un alignement en temps a été réalisé pour chacun des cristaux de JUROGAM II, à la dizaine de nanosecondes près. Il permet de minimiser l'écart de temps entre l'arrivée des signaux des différents détecteurs. Ainsi, on peut procéder à une meilleure sélection temporelle des rayonnements d'intérêt et réduire le nombre de corrélations fortuites.

Les énergies mesurées des rayonnements  $\gamma$  ont été corrigées de l'effet Doppler. Il s'agit d'un décalage entre les fréquences initiales et mesurées des rayonnements émis par un noyau en vol. Les longueurs d'onde sont diminuées dans le sens du vol du noyau avec des fréquences qui deviennent plus importantes et sont inversement augmentées dans le sens inverse. Ce phéno-

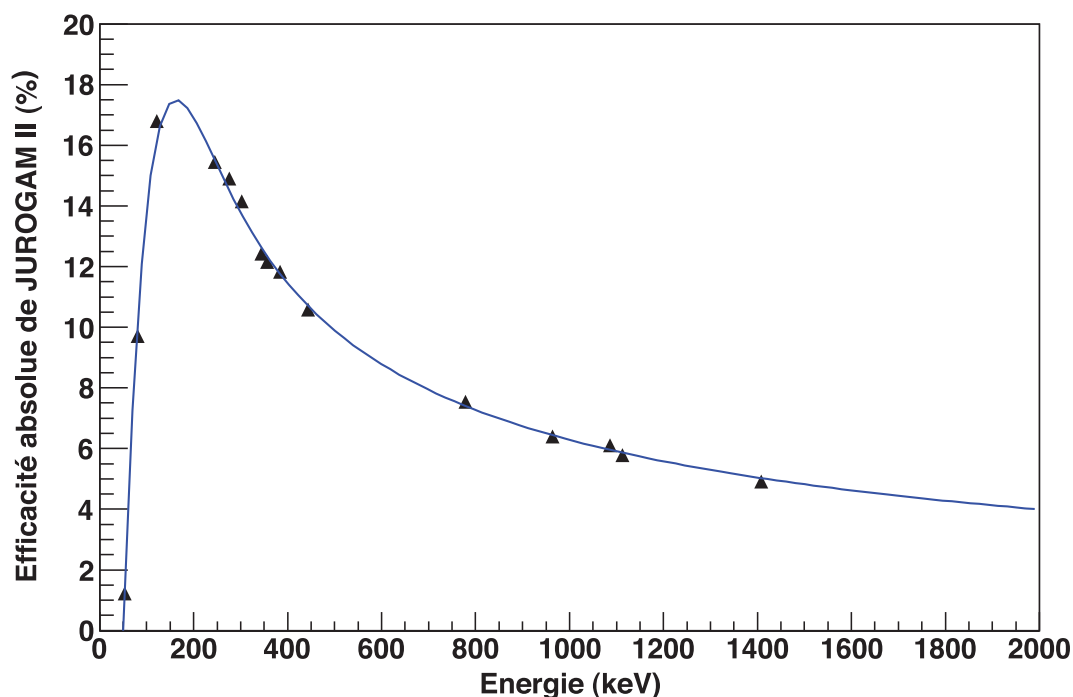


Figure 5.2: Courbe de l'efficacité absolue de détection de rayonnement  $\gamma$  de JUROGAM II mesurée juste avant la spectroscopie du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  à l'aide d'une source mixte composée de noyaux de  $^{133}\text{Ba}$  et de  $^{152}\text{Eu}$ .

*Absolute  $\gamma$ -ray detection efficiency curve of JUROGAM II measured just before the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus spectroscopy using a mixed  $^{133}\text{Ba}$  and  $^{152}\text{Eu}$  source.*

mène varie continûment en fonction de l'angle  $\theta$  entre le vecteur vitesse du résidu d'évaporation et celui du rayonnement émis. L'énergie corrigée  $E'_\gamma$  est reliée à l'énergie mesurée  $E_\gamma$  par la formule suivante :

$$E'_\gamma = E_\gamma \cdot (1 + \beta \cdot \cos \theta) \quad (5.2)$$

où  $\beta = v(^{256}\text{Rf})/c$ , avec  $v(^{256}\text{Rf})$  la vitesse du résidu d'évaporation lors de l'émission du rayonnement  $\gamma$  et  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide.

Une valeur de  $\beta = 1.97\%$  a été obtenue lors des calculs préparatoires à l'expérience (voir la Section 4.4). Cette valeur a été appliquée à toutes les énergies des rayonnements  $\gamma$  détectés par JUROGAM II lors de l'analyse.

### 5.1.2.2 RITU

Le séparateur RITU était rempli d'hélium à une pression de 0.6 mbar durant l'expérience. Les réglages des aimants ont été 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 a été ensuite affiné afin de maximiser le nombre de noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  observés dans le détecteur d'implantation. Après optimisation, la rigidité du dipôle était réglée à une valeur de 2.06 T·m.

### 5.1.2.3 GREAT - DSSD

Au plan focal du séparateur RITU, le spectromètre GREAT a été optimisé pour détecter les différents types d'émissions possibles du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  : les dépôts de fissions spontanées, les électrons de conversion et les rayonnements  $\gamma$  retardés. Les deux faces du DSSD ont été réglées avec un gain différent. La face arrière, notée X, avait un gain pour détecter les électrons de conversion jusqu'à une énergie d'environ 2 MeV. La face avant, notée Y, est la face d'implantation. Son gain a été réglé pour détecter les fragments de fission spontanée. En effet, le rapport d'embranchement de décroissance  $\alpha$  est très faible ce qui limite fortement l'utilisation de ce type de particules pour l'identification des noyaux d'intérêt (voir la Sous-section 4.2.1).

Comme première approche, un réglage grossier du gain de la face avant a été réalisé via les rayonnements  $\alpha$  issus d'une tri-source ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  et  $^{244}\text{Cm}$ ). Un réglage plus précis a été réalisé en exploitant la réaction de fusion-évaporation entre une cible de  $^{164}\text{Dy}$  et un faisceau de  $^{48}\text{Ca}$ . Le gain a été, par la suite, diminué d'un facteur 16, pour pouvoir observer tous les événements présentant un dépôt d'énergie allant jusqu'à 250 MeV.

Pour contrôler ce réglage, la réaction de fusion-évaporation  $^{206}\text{Pb}(^{48}\text{Ca}, 2n)^{252}\text{No}$  a été exploitée pendant une dizaine d'heures. En effet, l'isotope de  $^{252}\text{No}$  ( $b_{FS} = 0.29 \pm 0.02$  et  $b_{\alpha} = 0.71 \pm 0.03$  d'après [Sul07a]) a permis d'observer plus de 250 événements de fissions spontanées ainsi que des décroissances par émission de particule  $\alpha$  identifiées grâce à la méthode Recoil-Decay Tagging. On peut observer ces événements sur la Figure 5.3. On y remarque une distinction énergétique très prononcée entre les rayonnements  $\alpha$  et les dépôts de fission spontanée du  $^{252}\text{No}$ . Elle prouve, qu'avec ces réglages, les deux types de décroissance peuvent être aisément distingués. Ce gain prend également en compte les dépôts d'énergie lors de l'implantation des noyaux de recul (typiquement de 10 à 30 MeV).

### 5.1.2.4 GREAT - Diodes PIN

N'étant pas opérationnelles, les diodes PIN n'ont pas été utilisées lors de cette expérience.

### 5.1.2.5 GREAT - Détecteurs au germanium au plan focal

Quatre détecteurs au germanium étaient situés autour du DSSD dans le plan focal : le détecteur de géométrie planaire ainsi que trois détecteurs de géométrie trèfle (deux EURO-GAM latéralement et un VEGA au-dessus du DSSD). Ils ont tous été étalonnés grâce à une source mixte de  $^{133}\text{Ba}$  et de  $^{152}\text{Eu}$  placée à l'entrée du tunnel.

De manière similaire aux détecteurs trèfles de JUROGAM II, une fonction a été écrite pour réaliser l'Add-Back des détecteurs trèfle. Elle est similaire à celle utilisée pour les cristaux de même géométrie de JUROGAM II. Elle permet de sommer les dépôts d'énergies mesurées dans deux cristaux adjacents d'un détecteur trèfle si elles sont détectées dans une fenêtre de temps de 500 ns, sans prendre en compte les coïncidences entre deux cristaux en diagonal l'un de l'autre. Les gains relatifs d'efficacité obtenus grâce à ce procédé sont de 4.6% à 356 keV, de 22.2% à 963 keV et de 31.4% à 1407 keV.

Une autre fonction a été programmée lors de l'analyse pour effectuer l'Add-Back du

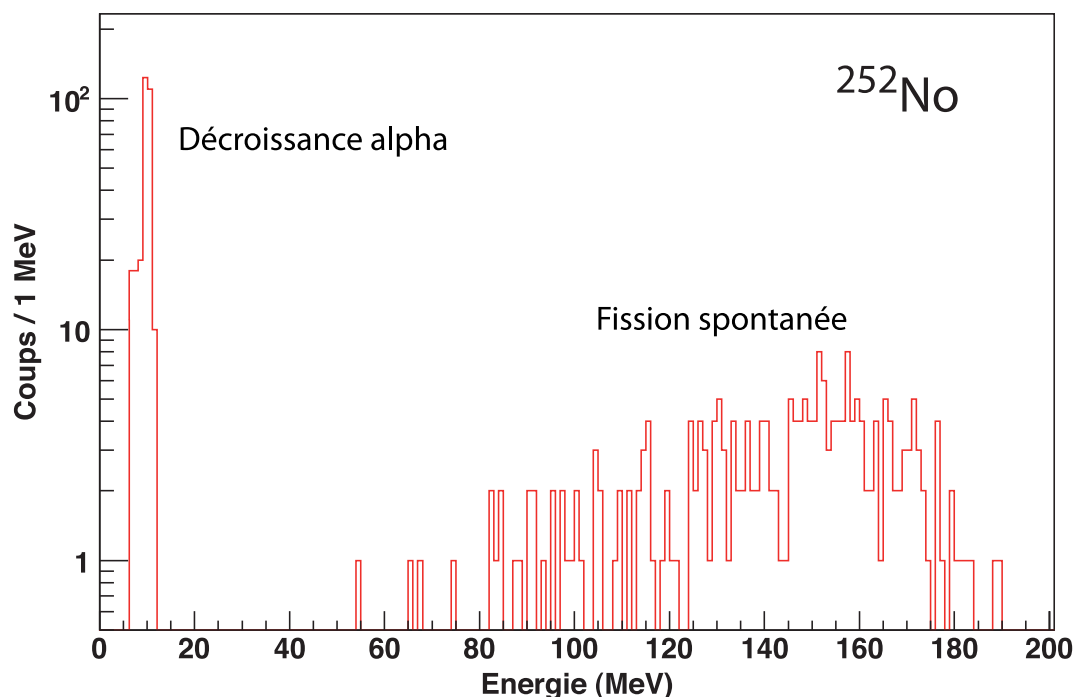


Figure 5.3: Spectre en énergie des produits de décroissance du noyau de  $^{252}\text{No}$  détectés dans le DSSD. Ils ont été identifiés avec la méthode de Recoil Tagging. Ce spectre permet de mettre en exergue la distinction énergétique claire entre les décroissances par particule  $\alpha$  et par fission spontanée obtenus grâce au gain choisi.

*Energy spectrum of the  $^{252}\text{No}$  nucleus decay products detected in the DSSD selected using the Recoil Tagging technique. This spectrum allows to highlight the clear energy distinction between decays by  $\alpha$  particle and by spontaneous fission allowed thanks to the chosen gain.*

détecteur planaire. Un spectre est réalisé indépendamment pour chacun des cotés du détecteur : X et Y. Lorsque deux rayonnements sont détectés dans un intervalle de temps de 500 ns dans deux strips adjacents, les deux énergies sont additionnées et ajoutées au spectre. Si un événement n'a pas de partenaire, son énergie individuelle est ajoutée au spectre final. Il est possible de tracer individuellement le spectre de chaque type de contribution. On note que les rayonnements dont l'énergie est inférieure à 15 keV (équivalent à la zone du piédestal) ou supérieure à 500 keV (situés hors de la gamme d'énergie du détecteur, dit l'overrange) sont rejetés. Ce procédé permet également d'observer des transitions au-delà du seuil énergétique du détecteur. Les gains relatifs d'efficacité obtenus grâce à ce procédé sont de 0.4% à 121 keV et de 34.0% à 356 keV pour la face X tandis qu'ils sont de 0.3% à 121 keV et de 27.8% à 356 keV pour la face Y.

Ces fonctions d'Add-Back sont utilisées pour tous les résultats concernant ces deux types de détecteurs.

Les efficacités relatives des détecteurs ont été mesurées et tracées sur la Figure 5.4. L'efficacité de détection des rayonnements  $\gamma$  de la somme des 3 détecteurs trèfles a été mesurée à 2.0% à 1.33 MeV. L'efficacité de détection des rayonnements  $\gamma$  du détecteur planaire a été mesurée à 2.6% à 100 keV. Contrairement aux rayonnements  $\gamma$  émis lors de l'expé-

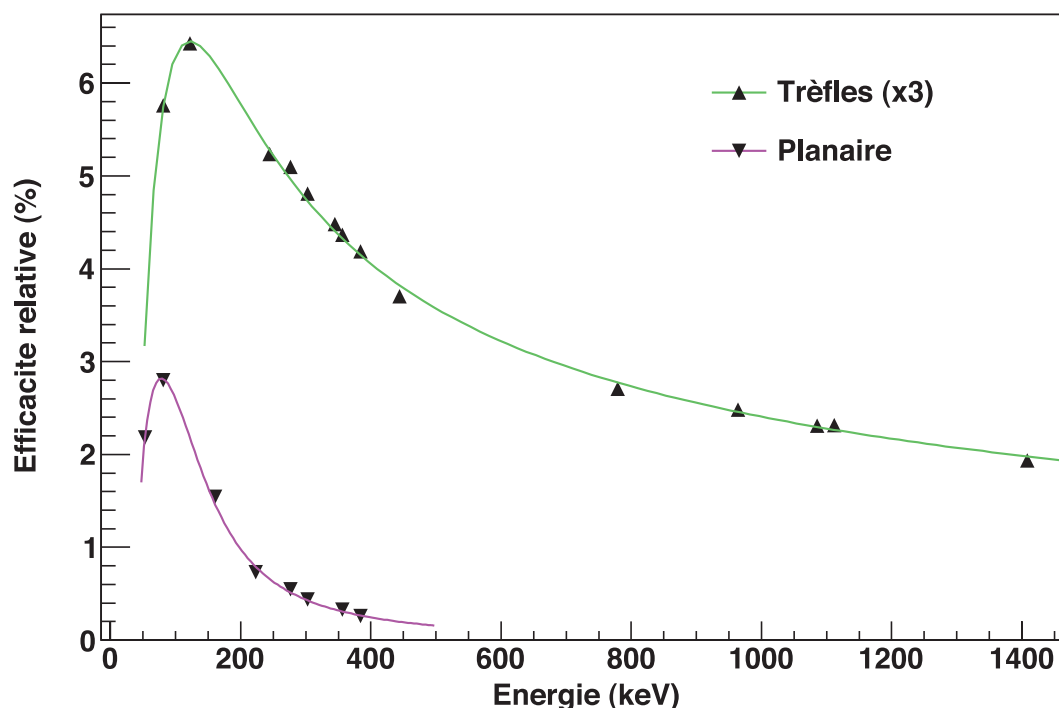


Figure 5.4: Courbe de l'efficacité relative de détection de rayonnement  $\gamma$  des détecteurs au germanium au plan focal pour la somme des trois détecteurs trèfles et pour le détecteur planaire. Elles ont été mesurées lors de l'étude du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  à l'aide d'une source mixte composée de noyaux de  $^{133}\text{Ba}$  et de  $^{152}\text{Eu}$ .

*Relative  $\gamma$ -ray detection efficiency of the focal plane germanium detectors for the sum of three clover detectors and for the planar detector. They were measured using a mixed  $^{133}\text{Ba}$  and  $^{152}\text{Eu}$  source for the  $^{256}\text{Rf}$  spectroscopic study.*

rience à partir du point d'implantation du noyau dans le DSSD, les rayonnements utilisés pour l'étalonnage ont été émis d'une source mixte de  $^{133}\text{Ba}$  and  $^{152}\text{Eu}$  située à l'avant du DSSD. L'efficacité mesurée est relative, et non absolue comme celle de JUROGAM 2. Cependant, les valeurs mesurées lors de l'étalonnage sont du bon ordre de grandeur et sont donc utilisées lors de la recherche d'états isomériques pour vérifier la cohérence de certains résultats.

## 5.2 Sélection des noyaux d'intérêt

Les isotopes de  $^{256}\text{Rf}$  ont été discriminés des autres noyaux implantés dans GREAT. Ces derniers sont principalement des cibles ou quasi-cibles mais également des noyaux transuranniens plus légers. Pour réaliser cette sélection, il a fallu définir plusieurs critères permettant de nettoyer les spectres et d'en ressortir les informations recherchées. Ces différents critères vont être passés en revue dans cette section.

La première étape consiste à identifier des séquences correspondantes à l'implantation et à la fission spontanée du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . L'implantation d'un noyau de recul est définie comme un événement qui est détecté dans le DSSD après son passage par le gaz du MWPC

(signalé par un dépôt d'énergie  $\Delta E$ ). Le signal de décroissance de ce noyau, quant à lui, doit être détecté par la suite et ne pas être en coïncidence avec un signal dans le gaz du MWPC pour ne pas être confondu avec l'implantation d'un noyau de recul. On cherche ainsi des événements laissant ces deux signaux dans cet ordre-ci et ceci dans le même pixel du DSSD.

D'après les différentes publications (voir le Tableau 4.1), le temps de demi-vie du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  est d'environ 6.7 ms. On définit donc une fenêtre de temps de plusieurs fois ce temps de vie. Si la différence de temps entre l'implantation d'un noyau de recul et une décroissance de ce noyau est validée par cette fenêtre, l'événement est conservé. On néglige ici l'apport du temps de vol dans RITU étant donné qu'il est petit devant le temps de demi-vie du noyau ( $0.8 \mu\text{s} \ll 6.7 \text{ ms}$ ). Plusieurs valeurs temporelles ont été testées. C'est une fenêtre optimale de 100 ms qui a été validée. Elle permet d'obtenir un maximum de noyaux d'intérêt sans sélectionner d'autres noyaux décroissants potentiellement par fission spontanée. Il est possible d'ouvrir une fenêtre si longue (environ 15 temps de demi-vie !) grâce à la sélection très propre réalisée par la décroissance par fission spontanée qui est discutée ci-après. Quelques événements d'intérêt sont ainsi observés après plusieurs temps de demi-vie et permettent un apport non négligeable de statistique. Si on ouvre une fenêtre plus longue que 100 ms, on observe de très rares événements. Ils pourraient s'agir d'autres noyaux décroissant par fission spontanée de la région des transférmas tels que le  $^{252}\text{No}$ .

Contrairement à la plupart des noyaux déjà étudiés en spectrométrie prompte dans cette région de masse (excepté une partie importante des isotopes de  $^{252}\text{No}$ ), la voie de décroissance ultra-majoritaire du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  est la fission spontanée. Le rapport d'embranchement de décroissance  $\alpha$  est même trop faible pour être pris en compte dans la sélection ! En effet, on s'attend statistiquement à détecter moins de deux particules  $\alpha$  par tranche de 1000 noyaux d'intérêt synthétisés. Pour sélectionner efficacement l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ , il faut séparer les événements de fission des autres, c'est-à-dire principalement des décroissances  $\alpha$  des autres noyaux implantés. Grâce à l'exemple du noyau de  $^{252}\text{No}$  (voir la Figure 5.3), on sait que l'utilisation de cette technique est possible. Une fenêtre en énergie est appliquée aux signaux de décroissance pour ne conserver que les événements de fission déposant une énergie allant de 30 à 220 MeV. Ainsi, les noyaux décroissant par émission de particules  $\alpha$ , déposant une énergie typique de 5 à 12 MeV, sont rejetés. De plus, les potentiels effets de sommation de deux particules  $\alpha$  ne peuvent pas être considérés avec cette sélection. Les électrons émis par conversion interne et par décroissance  $\beta$ , d'énergie encore plus faible, sont également rejetés.

La Figure 5.5.A représente la matrice du temps de vol dans GREAT ( $T_oF$ ) en fonction de l'énergie d'implantation des noyaux de reculs dans le DSSD (notée  $E$ ). Elle est dite matrice  $E - T_oF$ . Elle prend en compte l'ensemble des noyaux de recul de l'expérience. C'est une matrice très complexe qui possède à la fois des produits de transfert, des quasi-cibles, des noyaux transférmas et les noyaux recherchés.

Si on impose en plus d'observer un événement de fission, d'énergie comprise entre 30 et 220 MeV, détecté après l'implantation d'un noyau de recul dans une fenêtre de 100 ms, on obtient la matrice de la Figure 5.5.B. Elle s'avère être extrêmement propre et permet de faire ressortir les noyaux de  $^{256}\text{Rf}$ . La fenêtre bidimensionnelle (ou plus généralement appelée *gate*) tracée en rouge sur les deux figures permet de délimiter la zone où se situent ces événements. Cette sélection est appliquée pour le reste de l'analyse. On passe ainsi de 43 323 123 événe-



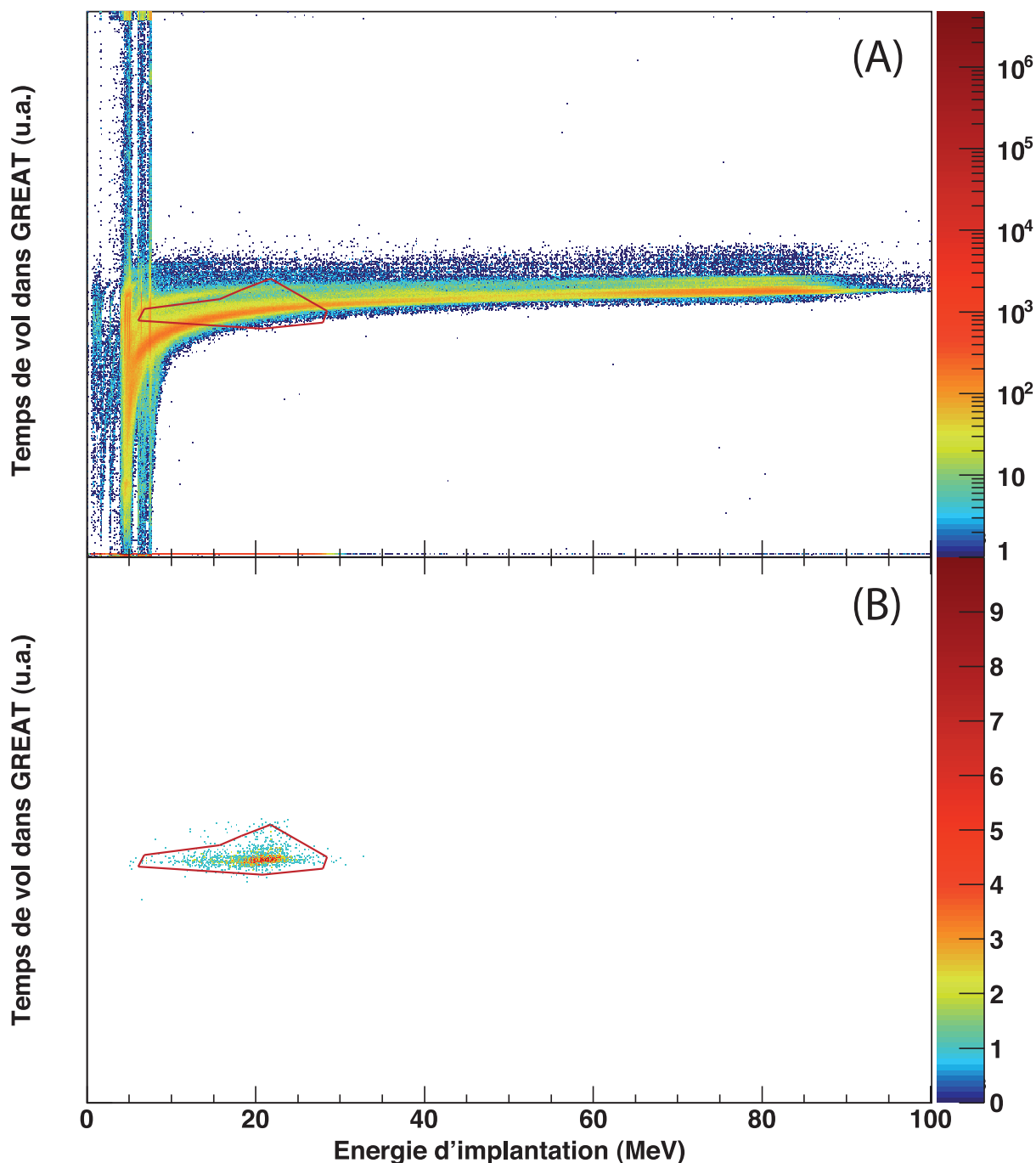


Figure 5.5: Matrices du temps de vol dans GREAT en fonction de l'énergie d'implantation des noyaux de recul mesurés dans la face avant du DSSD (A) : pour tous les noyaux de recul. (B) : pour les noyaux de recul qui sont suivis d'un événement de fission dans une fenêtre temporelle de 100 ms. La fenêtre rouge, définie à partir de cette distribution, correspond à la sélection utilisée pour les noyaux de  $^{256}\text{Rf}$ .

*Matrices of the Time-of-Flight in GREAT versus the implantation energy measured in the DSSD for (A): all the recoiling nuclei. (B): the recoiling nuclei which are followed by a fission event in a time window of 100 ms. The red window, defined on this distribution, corresponds to the selection used for the  $^{256}\text{Rf}$  nuclei.*

ments sur la Figure 5.5.A à 2 210 événements sur la Figure 5.5.B.

Pour résumer cette discussion, la sélection des isotopes de  $^{256}\text{Rf}$  requiert quatre conditions :

- ◇ L'implantation d'un noyau de recul et un événement de fission spontanée doivent être détectés successivement dans le même pixel du DSSD.
- ◇ Le dépôt d'énergie de la fission spontanée doit être compris entre 30 et 220 MeV.
- ◇ Le temps de recherche entre l'implantation et la fission est limité à une valeur optimale de 100 ms.
- ◇ Les noyaux de recul sont sélectionnés en utilisant la fenêtre de la matrice  $E - ToF$  (en rouge sur la Figure 5.5).

Cette sélection est une application de la méthode de "Recoil-Decay Tagging" et plus spécifiquement de celle nommée "Recoil-Fission Tagging" (voir la Section 3.1). On obtient grâce à elle un ensemble de 2 210 événements d'intérêt sur la totalité de l'expérience. Cette valeur est en accord avec les prévisions de noyaux identifiés présentées dans la Section 4.4.

La Figure 5.6 représente le spectre en énergie des dépôts de fissions spontanées de ces noyaux. Ce spectre est asymétrique et présente un maximum pour une énergie d'environ 160 MeV. On note que les valeurs d'énergie ont une précision de l'ordre du MeV étant donné

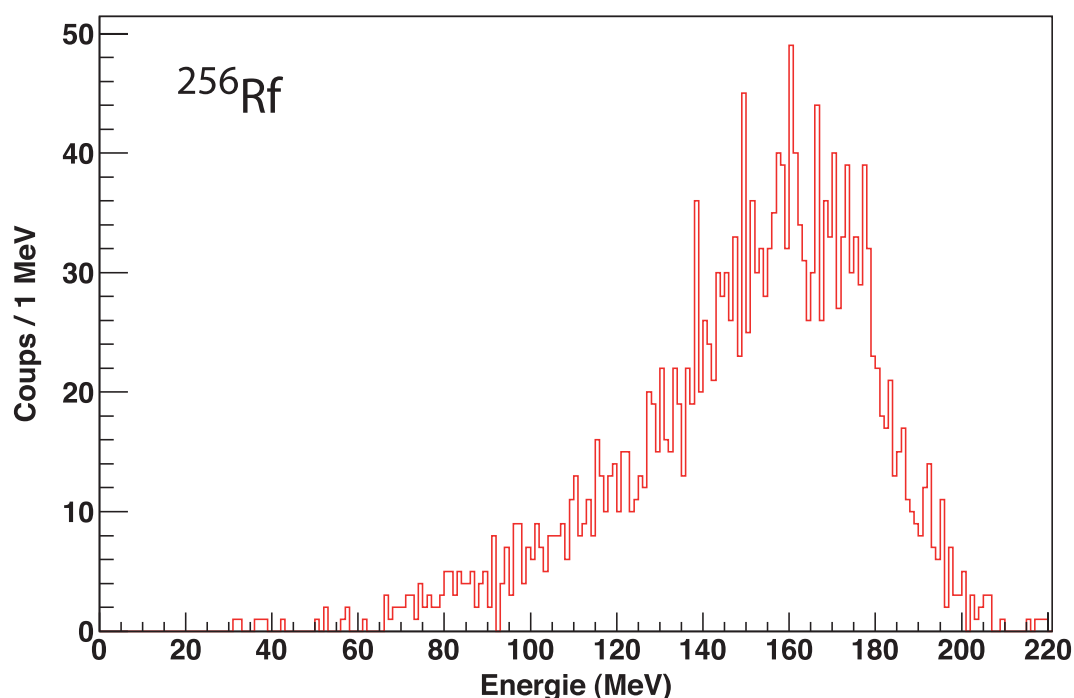


Figure 5.6: Distribution des dépôts d'énergie de fissions spontanées attribuées à la décroissance des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  par la méthode de Recoil-Fission Tagging. Elles ont été mesurées sur la face avant du détecteur d'implantation DSSD.

*Energy deposition distribution of the spontaneous fissions attributed to  $^{256}\text{Rf}$  nuclei obtained by the Recoil-Fission Tagging method. They were measured on the front side of the implantation detector DSSD.*

que les étalonnages en énergie ont été réalisés sur des particules  $\alpha$  puis le gain a été modifié pour détecter les fragments de fission.

On cherche à discuter cette distribution en énergie. Pour cela, on exploite les distributions en énergie des fragments de fissions d'un noyau très lourd dont les distributions sont connues avec précision, l'isotope de  $^{252}\text{Cf}$ . Pour ce noyau, la somme de l'énergie cinétique totale libérée lors d'une fission spontanée est d'environ 200 MeV. La distribution en énergie par fragment est asymétrique avec deux pics centrés respectivement autour de 85 et 115 MeV (des mesures récentes sont présentés dans [Gra07]). En partant de l'énergie cinétique du faisceau incident, la distribution de distance d'implantation dans le DSSD d'un noyau de recul a été simulée et est centrée autour de 4  $\mu\text{m}$  [Dec13]. On sait que les deux fragments sont émis isotropiquement et à  $180^\circ$  l'un de l'autre (voir la Sous-section 2.3.3). Il s'agit donc de la distance minimale pour qu'un fragment de fission s'échappe du détecteur. Par exemple, un fragment de fission de masse  $A \approx 80$  d'énergie cinétique de 115 MeV dépose environ 70 MeV dans le silicium lors de son trajet sur cette distance avant de sortir du DSSD. Le second fragment dépose toute son énergie car il aurait environ 440  $\mu\text{m}$  de silicium à franchir. On peut donc estimer que cette distribution est cohérente avec les valeurs attendues pour l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ . Les valeurs maximales de dépôts d'énergie ( $\approx 210$  MeV) sont cohérentes avec l'énergie calculée en utilisant l'Equation 2.14.

Une recherche par méthode de "Recoil-Alpha Tagging" a également été réalisée. Les sélections appliquées sont identiques à la liste ci-dessus à la seule différence que l'intervalle d'énergie imposé est de 5 à 15 MeV afin d'optimiser la détection des particules  $\alpha$  individuelles ou en cascade. Le spectre en énergie obtenu ne permet pas de faire apparaître un pic à l'énergie précédemment mesurée de la décroissance du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ .

En tenant compte d'une efficacité de détection des particules  $\alpha$  d'environ 50% et du rapport d'embranchement correspondant de 0.32% (daprès [Hes97]), on s'attend à observer trois décroissances de ce type pour cet isotope. Il est probable qu'un nombre inférieur de particules ait été identifié ou que la précision énergétique soit trop faible pour distinguer les événements intéressants du bruit. La méthode Recoil-Alpha Tagging ne sera pas utilisée pour l'identification des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  lors de cette thèse. On se limitera strictement à la sélection par fission spontanée (Recoil-Fission Tagging) pour la suite.

## 5.3 Caractérisation des noyaux d'intérêt

A partir de la sélection présentée dans la section précédente, deux mesures ont été réalisées dans un premier temps sur l'ensemble des noyaux identifiés pour confirmer que des isotopes de  $^{256}\text{Rf}$  ont été sélectionnés : la mesure de la section efficace de production ainsi que du temps de demi-vie.

### 5.3.1 Mesure de la section efficace de production

La section efficace de production du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  a été calculée en partant de la formule ci-après qui est un réarrangement de l'Equation 4.22. Les variables utilisées sont

définies dans la Sous-section 4.4.5.

$$\sigma = \frac{N \cdot A}{\mathcal{N}_A \cdot T \cdot \rho \cdot I \cdot \Delta t \cdot b_{FS}} \quad (5.3)$$

Le calcul a été réalisé avec un nombre de noyaux identifiés de  $N = 2210$ , une intensité de faisceau moyenne de  $I = 28.8$  pA, une transmission dans RITU de  $T = 40 \pm 5\%$  et un temps d'irradiation de la cible de  $\Delta t = 450.4$  heures. L'efficacité de détection de la fission spontanée est estimée à environ 100%. Le rapport d'embranchement de fission spontanée  $b_{FS}$  est de 99.68% (d'après [Hes97]). On obtient alors une section efficace de production de  $\sigma = 16.7 \pm 2.5$  nb.

Ces deux valeurs sont cohérentes avec celles publiées pour les études antérieures du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  (à comparer avec la liste du Tableau 4.1) et confortent les sélections réalisées.

### 5.3.2 Mesure du temps de demi-vie

Pour mesurer le temps de demi-vie du noyau, la différence de temps entre l'implantation du noyau de recul et la détection de la fission spontanée dans le même pixel du détecteur d'implantation a été mesurée pour chaque événement. La distribution de cette différence est tracée sur la Figure 5.7 sous deux formes. La Figure 5.7.A représente la courbe exponentielle "classique" de décroissance avec une échelle de temps linéaire. En passant à une échelle de temps logarithmique, on obtient la Figure 5.7.B. Cette méthode est régulièrement utilisée pour mesurer les temps de vie dans le cas de faible statistique [Bar74, Schm84, Schm00, Lop07].

Habituellement, le nombre de décroissances par unité de temps, dans le cas d'une seule voie de décroissance possible, est donné par :

$$\frac{dN(t)}{dt} = N_0 \cdot \lambda \cdot e^{-\lambda \cdot t} \quad (5.4)$$

où  $N_0$  est le nombre de noyau produit et le temps de vie est donné par  $\tau = 1/\lambda$  pour un état donné.

Pour obtenir un spectre pour lequel les intervalles de temps sont proportionnels au temps, c'est-à-dire avec des écarts -ou bins- de temps logarithmiques, le changement de variable suivant est effectué :

$$\theta = \log_{10}(t) = \ln(t)/\ln(10) \quad (5.5)$$

La densité de distribution du nombre de décroissance par bin de temps, dans le cas d'un noyau décroissant à partir d'un seul état, est de ce fait :

$$\frac{dN(\theta)}{d\theta} = N_0 \cdot \ln(10) \cdot \lambda \cdot 10^\theta \cdot e^{-\lambda \cdot 10^\theta} \quad (5.6)$$

Cette formule possède l'avantage de permettre d'inspecter facilement plusieurs ordres de grandeur de temps ainsi que d'être adapté aux faibles statistiques. Elle donne facilement accès aux temps de demi-vie. Dans le cas d'un système à un seul temps de vie, le maximum de la fonction (noté  $\theta_{max}$ ) permet de retrouver le temps de vie  $\tau$  avec la formule suivante :

$$\tau = 10^{\theta_{max}} \quad (5.7)$$

La représentation en base  $\log_{10}$  est spécifiquement choisie pour une meilleure interprétation graphique. L'extrapolation réalisée avec l'Equation 5.6 sur la Figure 5.7.B, en noir, est en bon accord avec la distribution. Le bon accord entre les deux montre l'évidence d'une unique voie de décroissance par fission spontanée dans l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ .

Il s'agit de l'état fondamental du noyau superlourd. On mesure un temps de vie de  $\tau = 10.0$  ms ce qui correspond à un temps de demi-vie de  $T_{1/2} = 6.91 \pm 0.16$  ms.

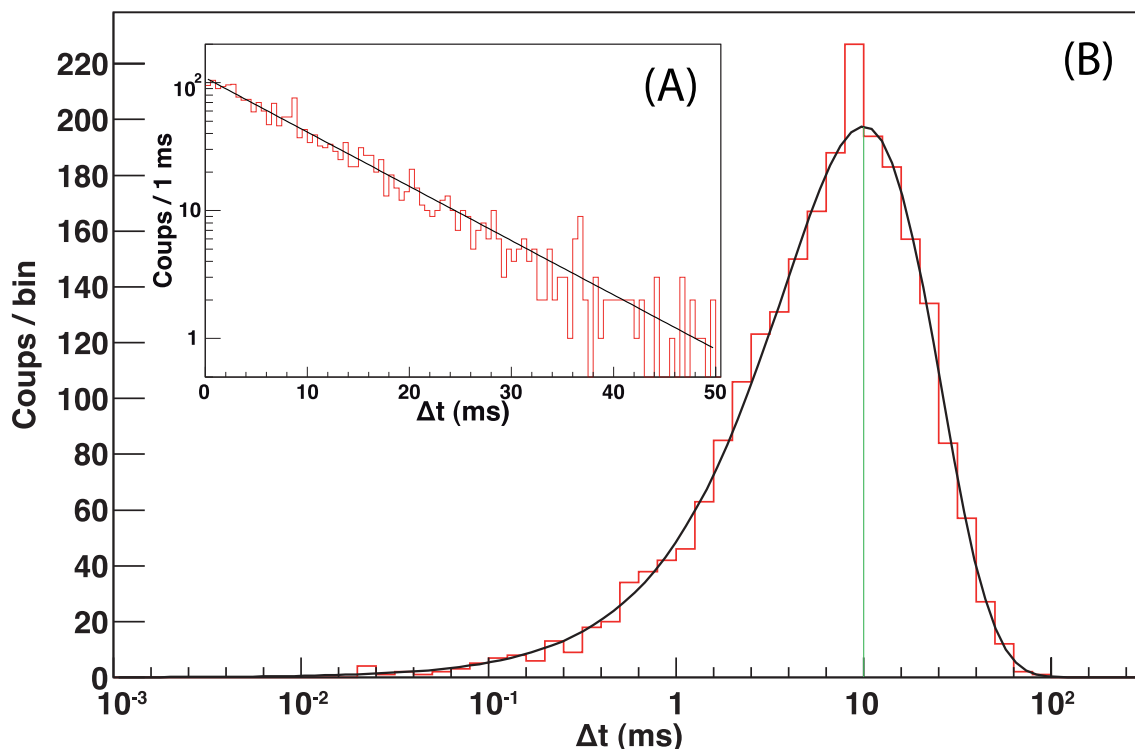


Figure 5.7: Distribution de la différence de temps entre l'implantation d'un noyau de recul et le détection d'une fission spontanée dans un même pixel du DSSD avec une (A) : représentation logarithmique du nombre de coups. (B) : représentation logarithmique (en base 10) de la différence de temps. Le maximum de la courbe (ici symbolisé par un trait vert) correspond au temps de vie de la décroissance. L'extrapolation utilisée pour mesurer le temps de demi-vie est tracée en noir sur les deux courbes.

*Time difference distribution between the implantation of a recoiling nucleus and the detection of the corresponding spontaneous fission in the same pixel of the DSSD with (A): a logarithmic representation of the number of hits. (B): a logarithmic representation (in basis 10) of the time difference. The maximum of the curve (here symbolized by a green line) corresponds to the decay lifetime. The fit used to measured the half-life is drawn in black on both curves.*

## 5.4 Mise en évidence de la bande de rotation

Dans la Section 5.2, la sélection des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  a été détaillée. Cette section décrit la mise en évidence des rayonnements  $\gamma$  prompts corrélés avec ces noyaux. Plusieurs

approches sont détaillées. En fin de section, trois études complémentaires sur ces rayonnements sont présentées.

### 5.4.1 Sélection par méthode de Recoil-Fission Tagging

Pour obtenir le spectre de rayonnements  $\gamma$  émis par le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ , la méthode de "Recoil-Fission Tagging" définie dans la Section 5.2 a été appliquée. Les rayonnements  $\gamma$  corrélés à ces noyaux ont été inspectés. Cette méthode spécifique est utilisée pour la première fois pour l'obtention de toute la statistique du spectre de rayonnements  $\gamma$  prompts d'un noyau transactinide.

#### 5.4.1.1 Première approche

On considère tous les rayonnements  $\gamma$  détectés dans JUROGAM II compris dans un intervalle de temps de  $-3 \mu\text{s}$  à  $+7 \mu\text{s}$  autour de l'implantation d'un des 2210 noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  identifiés. Le spectre de rayonnements  $\gamma$  obtenu constitue la Figure 5.8.

Des rayonnements X correspondant aux valeurs tabulées de l'élément plomb (le noyau cible) et de l'élément rutherfordium (le noyau recherché) sont également observés. En effet, la couche K du cortège électronique du plomb est excitée par le dépôt d'énergie dû à l'interaction du faisceau avec la cible. Les rayonnements de l'élément rutherfordium confirment que cette sélection comporte des informations sur le noyau d'intérêt. Toutefois, les rayonnements

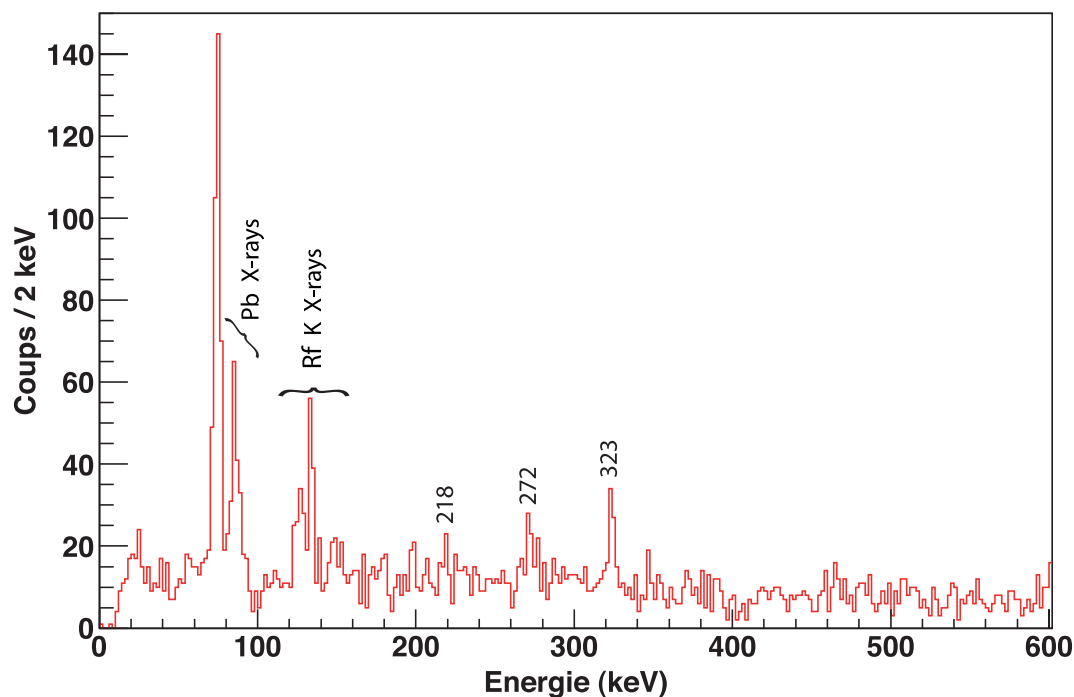


Figure 5.8: Spectre des rayonnements  $\gamma$  prompts du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  obtenu par la méthode "Recoil-Fission Tagging".

*Prompt  $\gamma$ -ray spectrum of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus obtained by the "Recoil-Fission Tagging" technique.*

du plomb étant plus nombreux, on peut en déduire que ce spectre est fortement pollué par l'élément cible.

Trois photopics, à des énergies de 218, 272 et 323 keV, qui semblent être régulièrement espacés sont observés. Il pourrait s'agir de transitions appartenant à l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ . Toutefois, il n'est pas possible de conclure car la pollution semble importante et plus de transitions successives seraient nécessaires pour bien affirmer qu'il s'agit d'une bande de rotation. Une approche plus fine, avec une pollution moindre, est nécessaire.

#### 5.4.1.2 Utilisation du temps de vol

Pour affiner la sélection, une sélection supplémentaire utilisant la notion de temps de vol est appliquée. Pour cela, la matrice (dite  $ToF - \Delta t$ ) du temps de vol dans GREAT du noyau de recul (noté  $ToF$ ) en fonction de la différence de temps entre la détection du rayonnement  $\gamma$  et de l'implantation du noyau de recul correspondant (notée  $\Delta t$ , le temps de vol dans RITU) est utilisée.  $\Delta t$  correspond en fait au temps mis par le noyau de recul pour traverser les 4.8 mètres de longueur du séparateur RITU. Cette matrice est tracée sur la Figure 5.9.

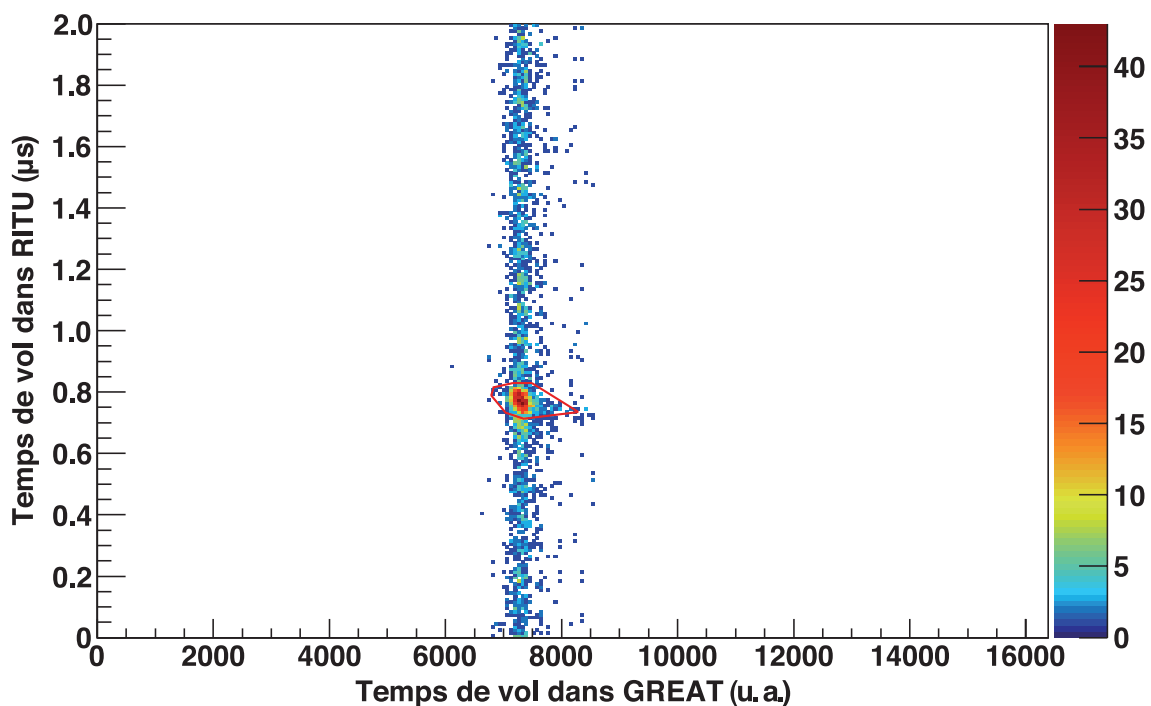


Figure 5.9: Matrice de la différence de temps entre la détection d'un rayonnement  $\gamma$  et de l'implantation du noyau de recul associé ( $\Delta t$ ) en fonction du temps de vol dans GREAT de ce noyau de recul ( $ToF$ ). Elle permet de sélectionner les rayonnements  $\gamma$  corrélés au noyau d'intérêt. La sélection par méthode de Recoil-Fission Tagging était déjà appliquée au préalable.

*Matrix of the time difference between the detection of a  $\gamma$ -ray and the implantation of the associate recoiling nucleus ( $\Delta t$ ) versus this nucleus's Time-of-Flight in GREAT ( $ToF$ ). This matrix allows to select the  $\gamma$ -rays correlated with the nucleus of interest. The selection by Recoil-Fission Tagging method was beforehand already applied.*

La zone à forte statistique correspond aux rayonnements issus des noyaux  $^{256}\text{Rf}$ . La périodicité temporelle des autres événements confirme qu'il s'agit de coïncidences fortuites. En appliquant une sélection sur la première zone (en rouge sur la figure), une majorité de coïncidences fortuites est ainsi rejetée. En effet, les quasi-cibles ou noyaux de transfert ont des vitesses différentes de celles des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  lors de leur traversée de RITU.

Les noyaux d'intérêt ont ainsi un temps de vol dans le séparateur d'environ  $0.8 \mu\text{s}$ . Cette valeur correspond au temps de  $0.815 \mu\text{s}$  calculée précédemment (voir l'Equation 4.21). La modélisation par le choc élastique permet donc une bonne estimation de la vitesse de recul.

En appliquant cette sélection, le spectre tracé sur la Figure 5.10 est obtenu. On passe ainsi de 3506 rayonnements  $\gamma$  visibles sur la Figure 5.9 à 1366 (745 sur la plage énergétique affichée pour le zoom). Ce chiffre est à comparer avec une estimation de plus de  $10^{12}$  rayonnements  $\gamma$  détectés durant l'expérience par les cristaux de JUROGAM II. On observe sur la figure des rayonnements X des éléments plomb et rutherfordium. Toutefois, ceux du second sont plus nombreux que ceux du noyau cible. Le spectre a donc été grandement nettoyé en conservant les événements d'intérêt et en supprimant une grande partie de la pollution due au plomb.

Cette sélection met clairement en évidence une structure de pics régulièrement espacés. Une telle séquence est caractéristique des bandes de rotation dans les autres noyaux de la région. Cette observation prouve que le  $^{256}\text{Rf}$  est un noyau déformé. Cette séquence peut donc être attribuée à la bande de rotation construite sur l'état fondamental du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Huit transitions  $\gamma$  provenant de cette bande sont identifiées à des énergies de 161, 218, 272, 323, 371, 417, 459 et 499 keV.

Une transition est également observée à 293 keV. Elle ne semble pas appartenir à une structure de transitions E2 tel une bande de rotation. Elle pourrait être une transition de type E1 ou M1 provenant de la décroissance d'un état de bas- $K$  de faible temps de vie. Cet aspect est discuté dans le Chapitre 6.

La partie haute énergie du spectre de rayonnements  $\gamma$  a été analysée (voir la Figure 5.10.B). Contrairement à ce qui est observée dans d'autres noyaux dans la région tels que ceux de  $^{250}\text{Fm}$  et de  $^{254}\text{No}$ , aucune transition de haute énergie (de 600 keV à 2 MeV) de haute statistique n'est mise en évidence. Cela prouve qu'il n'y a pas d'émission prompte d'une transition de 900 keV à partir d'un état excité de bas- $K$  comme cela a été suggéré par [Jep09] (voir la Figure 4.4.B).

Les énergies des rayonnements X et  $\gamma$  identifiés ont été mesurées et listées dans le Tableau 5.2.

On observe également un pic de faible statistique à une énergie de 538 keV. Il pourrait potentiellement correspondre à la transition suivante de la bande de rotation au vue de l'évolution des différences d'énergies. Il n'y a cependant pas assez de statistiques pour conclure.

Les intégrales des deux photopics à 218 et à 272 keV sont similaires à celles obtenues sur la Figure 5.10. Cela prouve que la sélection en temps de vol permet de supprimer fortement le bruit de fond. L'intégrale du photopic à 323 keV est plus faible avec cette sélection. Cela est certainement dû à la contribution d'un polluant dans le spectre de la Figure 5.8.

Il est très peu probable que les rayonnements observés correspondent à d'autres noyaux de la région. Les isotopes de  $^{255}\text{Rf}$  ou de  $^{257}\text{Rf}$  décroissent très majoritairement par rayonne-



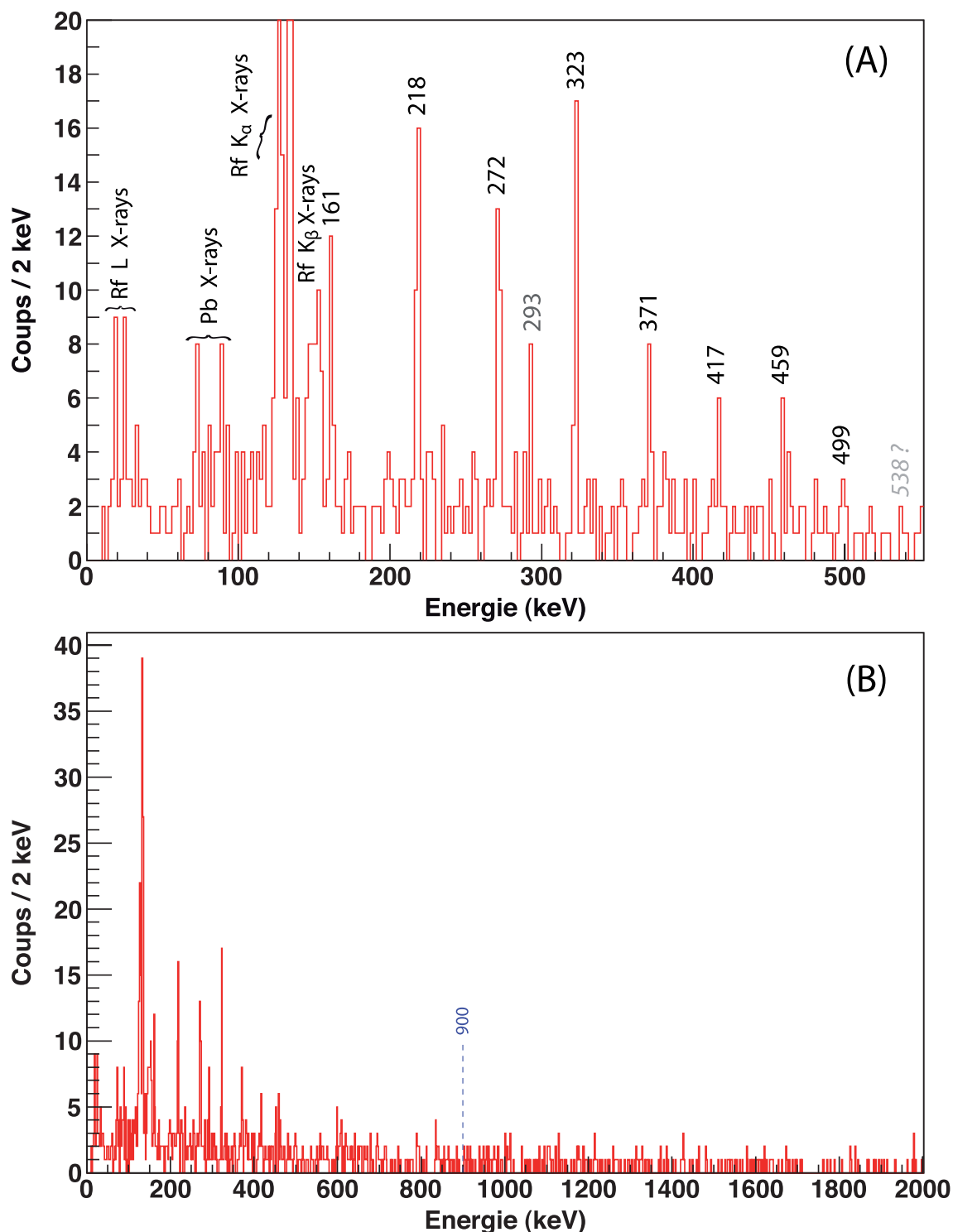


Figure 5.10: Spectre  $\gamma$  prompt du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  obtenu par la méthode "Recoil-Fission Tagging" avec un nettoyage des coïncidences fortuites par la matrice des temps de vol. (A) : Zoom sur la partie basse énergie. (B) : Spectre jusqu'à une énergie de 2 MeV.

*Prompt  $\gamma$ -ray spectrum of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus obtained by "Recoil-Fission Tagging" technique with a cleaning of the random coincidences by the Times-of-Flight matrix. (A): Zoom on the low energy part. (B): Spectrum up to an energy of 2 MeV.*

Energie mesurée (keV)	Noyau	Affectation	Energie tabulée (keV)
18 ± 1	Rf	Rayon X $L_{\alpha_1}$	17.893
25 ± 1	Rf	Rayon X $L_{\beta_1}$	24.650
73 ± 1	Pb	Rayon X $L_{\alpha_1}$	72.805
85 ± 1	Pb	Rayon X $K_{\beta_1}$	84.938
127 ± 1	Rf	Rayon X $K_{\alpha_2}$	126.302
143 ± 1	Rf	Rayon X $K_{\alpha_1}$	133.381
148 ± 1	Rf	Rayon X $K_{\beta_3}$	148.550
150 ± 1	Rf	Rayon X $K_{\beta_1}$	150.279
155 ± 1	Rf	Rayon X $K_{\beta_2}$	155.904
161 ± 1	$^{256}\text{Rf}$	Transition #1	-
218 ± 1	$^{256}\text{Rf}$	Transition #2	-
272 ± 1	$^{256}\text{Rf}$	Transition #3	-
323 ± 1	$^{256}\text{Rf}$	Transition #4	-
371 ± 1	$^{256}\text{Rf}$	Transition #5	-
417 ± 2	$^{256}\text{Rf}$	Transition #6	-
459 ± 2	$^{256}\text{Rf}$	Transition #7	-
499 ± 2	$^{256}\text{Rf}$	Transition #8	-
293 ± 1	$^{256}\text{Rf}$	Autre transition	-

Tableau 5.2: Liste des rayonnements X et  $\gamma$  observés, mesurés à partir du spectre de la Figure 5.10.

*List of the observed X-rays and  $\gamma$ -rays measured from the spectrum plotted in Figure 5.10.*

ments  $\alpha$ , il ne peuvent donc pas être sélectionnés dans ce cas à cause de la fenêtre d'énergie sur la décroissance par fission spontanée qui est appliquée. C'est également le cas pour la plupart des noyaux transférmiens, plus bas en masse, qui décroissent majoritairement par rayonnements  $\alpha$  ou  $\beta$ . Au contraire, le noyau de  $^{254}\text{Rf}$  décroît par fission spontanée. Toutefois, comme sa section efficace est inférieure à la dizaine de nanobarns [Drag08] et que la cible de  $^{208}\text{Pb}$  est pure à plus de 99%, il n'est pas possible qu'il ait été produit en quantité significative par la fusion-évaporation entre un ion du faisceau de  $^{50}\text{Ti}$  et un atome de  $^{206}\text{Pb}$  de la cible.

### 5.4.2 Sélection par méthode de Recoil Tagging

La méthode "Recoil-Fission Tagging" a été utilisée pour obtenir la bande de rotation. C'est une méthode très puissante et sélective qui a généralement l'inconvénient de diminuer fortement la statistique. Pour tenter d'augmenter la statistique, la méthode "Recoil Tagging" a été testée (voir la Section 3.1). Il s'agit de la même sélection que précédemment sans imposer de condition sur la détection d'une fission spontanée. Une sélection sur le noyau de recul via la matrice  $E - ToF$  et une sélection sur les rayonnements  $\gamma$  via la matrice des temps de vol sont donc imposées. Plus de 150 000 noyaux de reculs implantés sont ainsi pris en compte.

Le spectre correspondant à la Figure 5.11 est ainsi obtenu. Il permet également de

mettre en évidence la bande de rotation. On y observe les rayonnements X du plomb et du rutherfordium. Ceux du noyau cible sont en quantité particulièrement importante. Cette sélection contient 8 transitions aux mêmes énergies que celles observées sur la Figure 5.10, cependant il est très pollué par le plomb ou autres quasi-cibles. Le niveau de bruit de fond est ainsi très important comparé à la sélection précédente.

On observe des transitions non présentes avec les sélections précédentes. Elles proviennent de la désexcitation des noyaux constituant la cible de  $^{208}\text{Pb}$ , des produits de transfert ou des noyaux de germanium des détecteurs de JUROGAM II qui ont été activés (avec par exemple un photopic à 182 keV).

Cet exercice met clairement en avant l'apport significatif de la sélection à partir de la fission pour cette analyse. En effet, cette dernière permet de supprimer la majeure partie de la pollution. Cette méthode ne permet pas d'obtenir plus de statistique que la méthode Recoil-Fission Tagging. En effet, contrairement à la plupart des autres noyaux de la région qui décroissent par émission d'une particule  $\alpha$  (avec environ une chance sur deux de la détecter), le dépôt d'énergie de la fission spontanée du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  est détecté avec une efficacité proche de 100%.

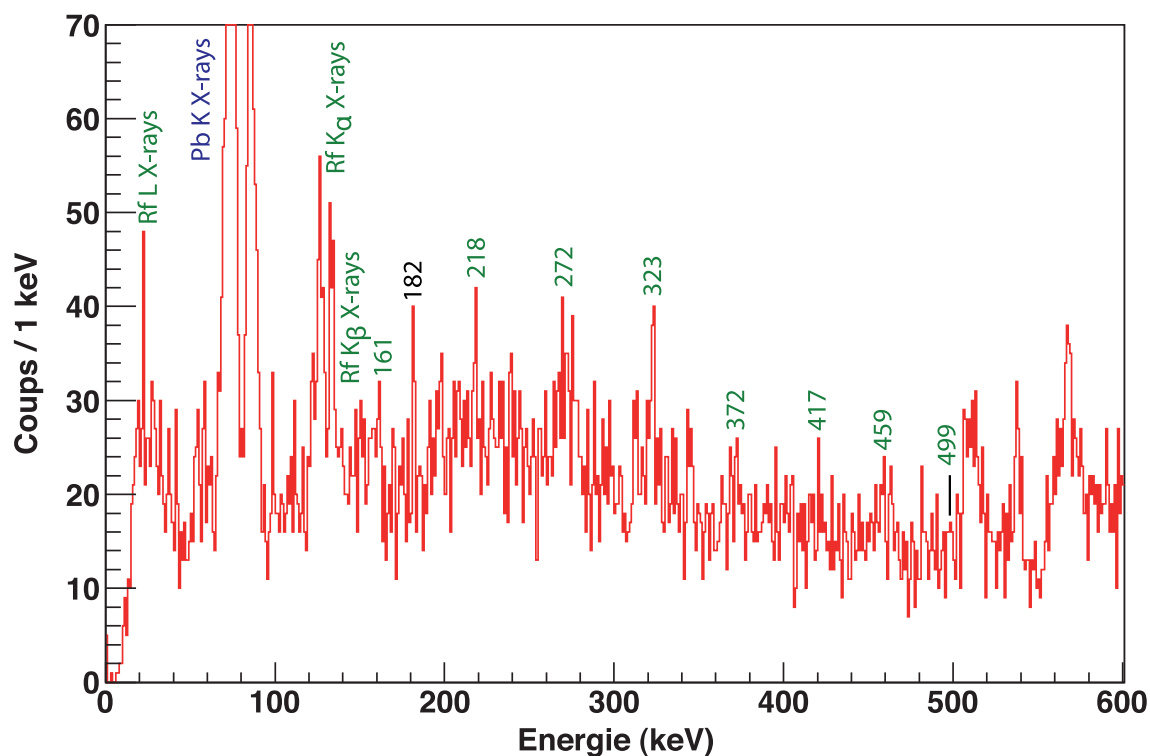


Figure 5.11: Spectre  $\gamma$  prompt du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  obtenu par la méthode "Recoil Tagging" avec un nettoyage par la matrice des temps de vol.

*Prompt  $\gamma$ -ray spectrum of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus obtained by the "Recoil Tagging" technique using the Time-of-Flight matrix.*

## 5.5 Discussions sur la bande de rotation

Des études supplémentaires ayant pour objectif de mieux comprendre les effets des sélections utilisées mais également de mieux appréhender les effets de statistique et de multiplicité pour une expérience à faible section efficace de production ont été réalisées. Les intensités relatives et absolues des différentes transitions observées ont été examinées et sont présentées dans cette section.

### 5.5.1 Effet des sélections sur le temps de vol

L'influence des différentes sélections effectuées sur le temps de vol du noyau de recul dans RITU ( $\Delta t$ ) est discutée dans cette partie. La différence du nombre de rayonnements  $\gamma$  considérés pour chacune des quatre sélections appliquées est tracée sur la Figure 5.12. On observe que c'est essentiellement la fission qui permet de nettoyer les événements qui ne sont pas d'intérêt. Cette sélection réduit drastiquement le bruit de fond. La fenêtre sur la matrice des temps de vol permet de supprimer des coïncidences aléatoires, principalement des produits de transfert ou des noyaux-cibles.

On note que pour la courbe en bleu, une structure périodique suit la fréquence de

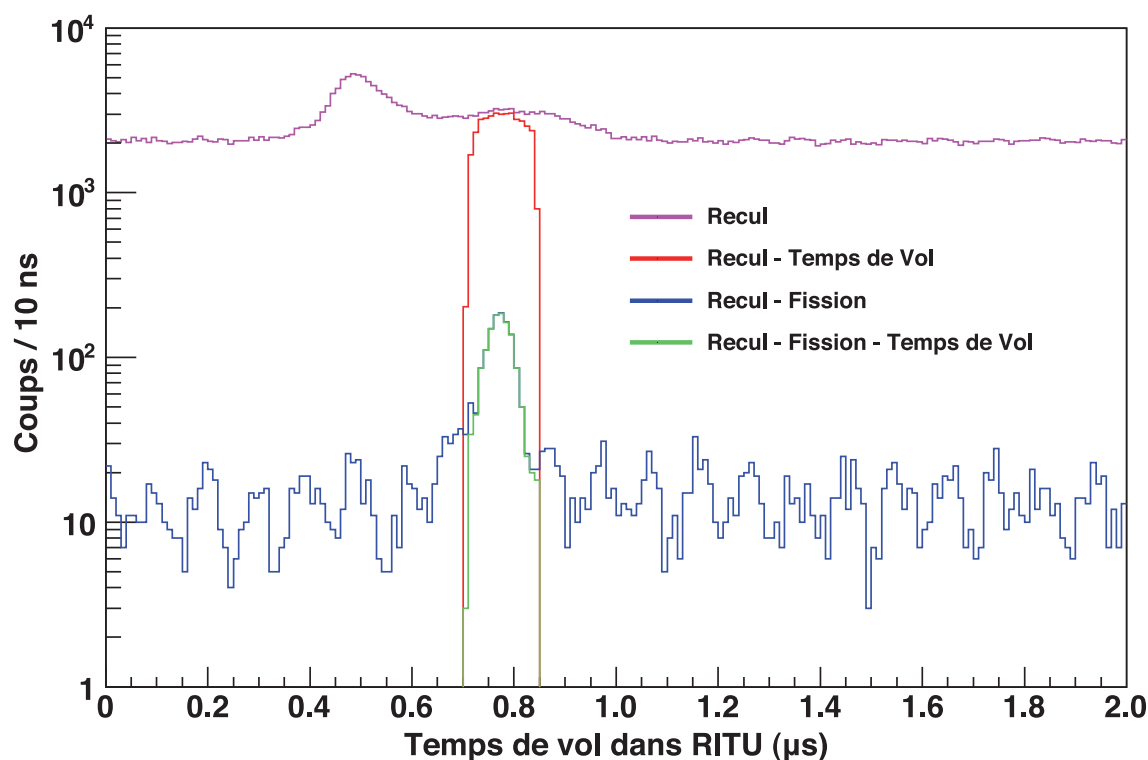


Figure 5.12: Histogramme du nombre de rayonnements  $\gamma$  corrélés en fonction du temps de vol dans RITU ( $\Delta t$ ) pour quatre sélections différentes.

*Histogram of the number of correlated  $\gamma$ -rays as a function of the Time-of-Flight in RITU ( $\Delta t$ ) for four different selections ("Recoil", "Recoil-Time of Flight", "Recoil-Fission" and "Recoil-Fission-Time of Flight").*

fonctionnement du cyclotron. En effet, un paquet d'ions  $^{50}\text{Ti}^{11+}$  est projeté en sortie sur la cible toute les 100 ns (soit une fréquence de 10 MHz). Sur la courbe concernant les noyaux de recul seuls (en mauve sur la figure), on observe une bosse autour du temps de vol  $\Delta t = 0.5 \mu\text{s}$ . Elle correspond à la contribution de noyaux cibles, quasi-cibles ou de produits de transfert qui traversent RITU plus rapidement que les noyaux transférants. En effet, ces premiers sont moins lourds et plus énergétiques.

### 5.5.2 Effet de la statistique

La section efficace de production d'un noyau comme le  $^{256}\text{Rf}$  est extrêmement faible ce qui amène à des résultats ayant de très faibles statistiques. Pour observer ce phénomène sur cette expérience, les noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  identifiés ont été découpés, dans leur ordre chronologique de détection, en paquet de 250 unités. Les spectres de rayonnements  $\gamma$  correspondant à ces paquets ont été tracés sur la Figure 5.13. On note que ces spectres sont des sous-ensembles de celui de la Figure 5.10.

Des effets statistiques sont clairement observés sur ces différents spectres. Pour le paquet #001-250, la bande de rotation est observable distinctement alors que ce n'est pas le cas pour les paquets suivants. La statistique de la troisième transition observée (272 keV) était extrêmement faible pour les 750 premières fissions. Cependant, le nombre de coups associés à cette transition est important pour le paquet #751-1000. Cela démontre qu'il est primordial de prendre en compte ces effets statistiques lors de l'analyse des spectres de ce type d'expérience.

### 5.5.3 Effet du fold

Comme on a pu le voir dans la Sous-section 3.2.1, JUROGAM II est un détecteur possédant 111 segmentations de germanium dans la configuration utilisée lors de l'expérience. Il s'agit donc d'une instrumentation qui permet d'obtenir des spectres en coïncidence  $\gamma$  multiple. Un certain nombre de rayonnements  $\gamma$  détectés a été associé à chaque noyau de  $^{256}\text{Rf}$  identifié, c'est ce que l'on appelle le fold. Les nombres de noyaux classés par valeur de fold stricte sont présentés dans le Tableau 5.3. Ces chiffres sont basés sur les résultats correspondant à la Figure 5.11. Plus de la moitié des fissions n'apporte aucun rayonnement  $\gamma$  (1 205/2 210). La contribution majeure provient des 707 fissions corrélées avec la détection d'un unique rayonnement. Puis le nombre de fissions contribuant diminue progressivement avec l'augmentation du fold. On observe une seule coïncidence quintuple.

La Figure 5.14 représente le spectre de rayonnements  $\gamma$  pour des folds stricts allant de 1 à 4. On observe que la bande de rotation se profile distinctement pour les folds 1 et 2 mais également pour un fold 3. Pour ce dernier, les transitions allant de 218 à 372 keV sont observables. La transition de 161 keV est majoritairement convertie tandis que les transitions de haute énergie sont plus rarement peuplées. Ces deux faits expliquent qu'ils ne sont pas observés à haut fold. Augmenter ce paramètre semble permettre de nettoyer le spectre.

A partir d'un fold 4, il n'y a plus suffisamment de statistiques pour observer les transitions d'intérêt. On note que l'unique événement de fold 5 ne présente pas de rayonnements correspondant à la bande de rotation, ni aux énergies des rayonnements X. Cependant, la statistique globale de l'expérience est très faible. Il n'est donc pas possible d'utiliser une méthode

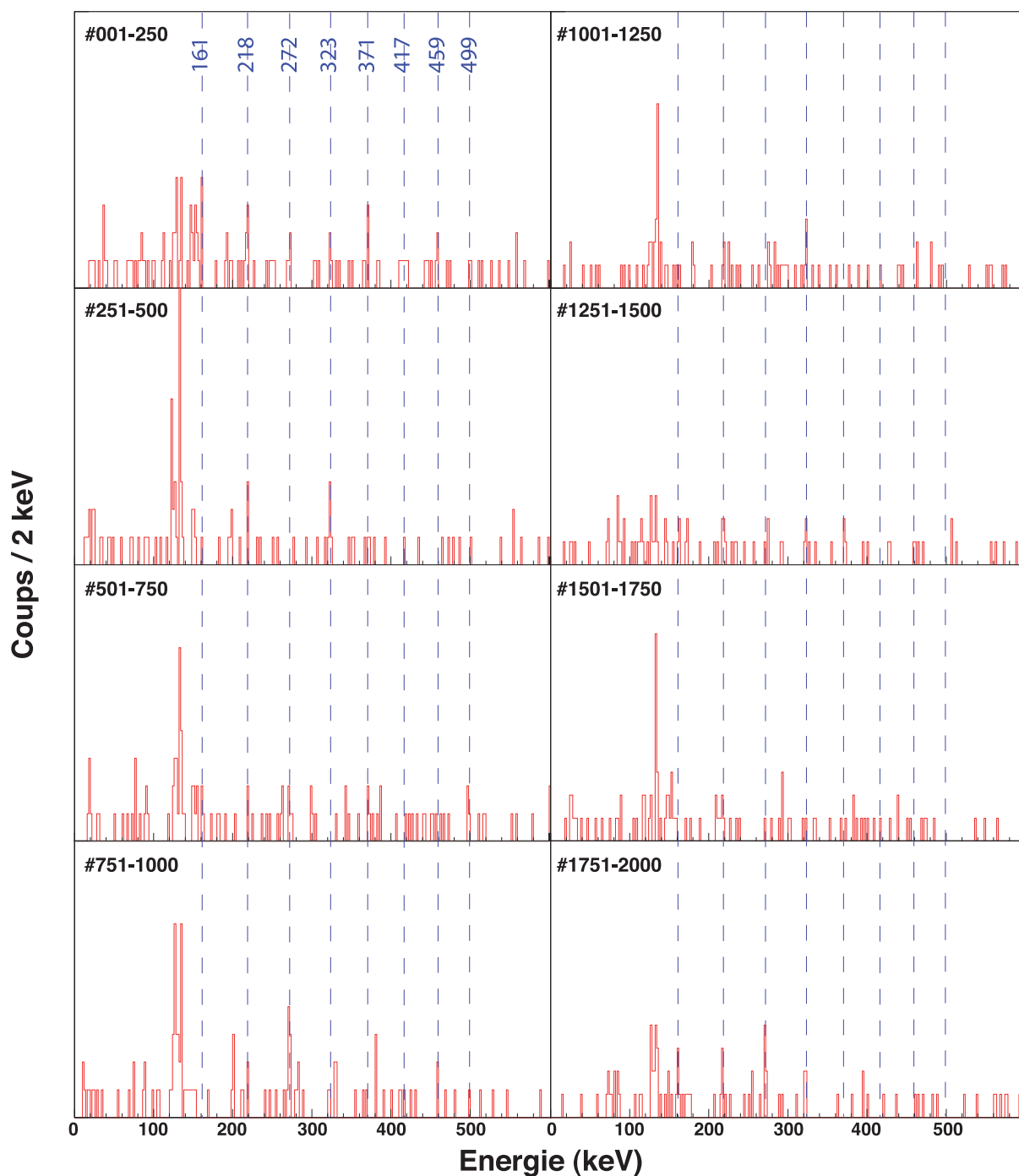


Figure 5.13: Spectres des rayonnements  $\gamma$  prompts associés à des paquets de 250 événements de  $^{256}\text{Rf}$  rangés dans leur ordre chronologique de détection dans le cas de la sélection Recoil-Fission Tagging. Cette figure permet d'observer les effets statistiques pour une expérience de si faible section efficace.

*Spectra of the  $\gamma$ -rays associated with groups of 250 identified nuclei of  $^{256}\text{Rf}$  classed by their chronological order of detection. The selection was made with the Recoil-Fission Tagging method. This figure allows to observe the statistical effects for an experiment with a such low cross section.*

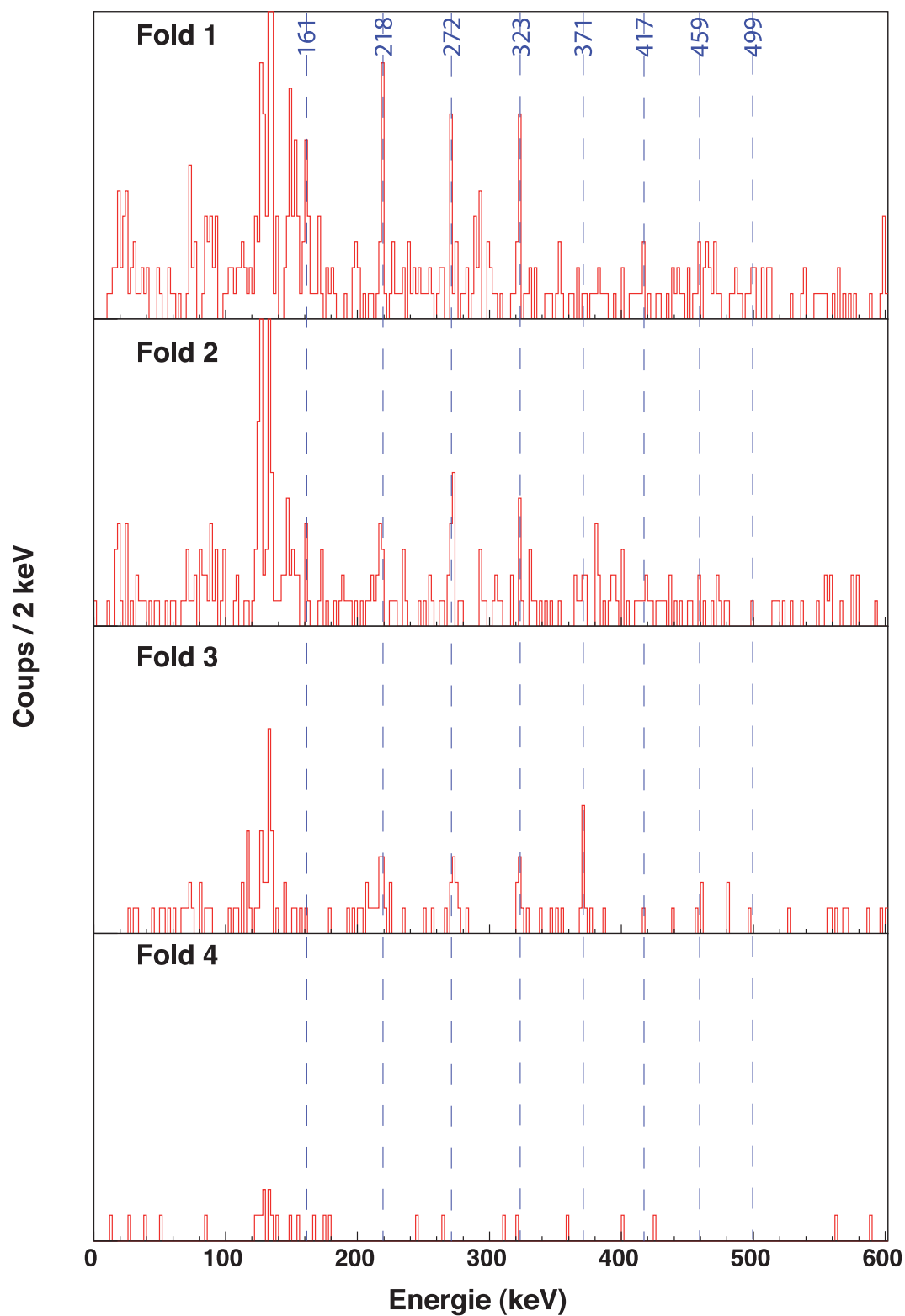


Figure 5.14: Spectres des rayonnements  $\gamma$  pour des folds  $\gamma$  stricts de 1 à 4 dans JUROGAM II dans le cas de la sélection Recoil-Fission Tagging.

*$\gamma$ -rays spectra obtained with JUROGAM II for strict values of folds from 1 to 4 using the Recoil-Fission Tagging method.*

Fold $\gamma$ strict	Nombre de noyaux de $^{256}\text{Rf}$ identifiés
0	1 205
1	707
2	224
3	60
4	11
5	1
6	0

Tableau 5.3: Nombre de noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  par fold  $\gamma$  strict détectés dans JUROGAM II avec une sélection par méthode de Recoil-Fission Tagging.

*Number of identified  $^{256}\text{Rf}$  nuclei for strict values of fold of  $\gamma$ -ray detected by JUROGAM II. The selection was made with the Recoil-Fission Tagging method.*

de coïncidence de type  $\gamma$ - $\gamma$  pour affiner le spectre obtenu sur la Figure 5.10.

#### 5.5.4 Intensités relatives

Les valeurs des intensités relatives des huit transitions observées sont calculées dans cette sous-section. Pour ce calcul, l'aire de pic  $A_M(E_\gamma)$  a été mesurée sur la Figure 5.10 pour chacune des transitions. Une soustraction de bruit de fond, sous forme de fonction affine, a été appliquée localement à chaque transition en utilisant le logiciel ROOT. Elle tient compte du bruit de fond avant et après le photopic concerné. L'aire corrigée de la première transition observée  $A_C(161 \text{ keV})$  est prise comme référence. Les intensités relatives  $I_R$  sont calculées grâce à la formule suivante :

$$I_R(E_\gamma) = \frac{1}{A_C(161 \text{ keV})} \cdot \frac{A_M(E_\gamma) \cdot (\alpha(E_\gamma) + 1)}{\varepsilon_\gamma(E_\gamma)} \quad (5.8)$$

où l'aire mesurée est corrigée par le coefficient de conversion interne total  $\alpha(E_\gamma)$  correspondant aux transitions E2 de l'élément rutherfordium (voir la Figure 2.5) et par l'efficacité absolue totale de détection  $\varepsilon_\gamma(E_\gamma)$  des rayonnements  $\gamma$  de JUROGAM II (voir la Figure 5.2).

Les résultats obtenus sont répertoriés dans le Tableau 5.4. La statistique étant très faible, les erreurs sur les intensités sont relativement importantes. On observe que plus le spin est élevé, moins la transition est intense. Ce schéma de peuplement est identique à celui des autres noyaux de la région.

La Figure 5.15 permet d'observer l'impact des corrections sur le spectre  $\gamma$  prompt. Le spectre  $\gamma$  observé (en rouge) y est successivement corrigé de l'efficacité de détection  $\gamma$  de JUROGAM II (en bleu) puis par le taux de conversion interne (en vert). On note que seules les 8 transitions  $\gamma$  observées de la bande de rotation sont corrigées par le taux de conversion interne. Une approximation du nombre de rayonnements  $\gamma$  émis par les isotopes de  $^{256}\text{Rf}$  identifiés durant l'expérience peut être obtenue.



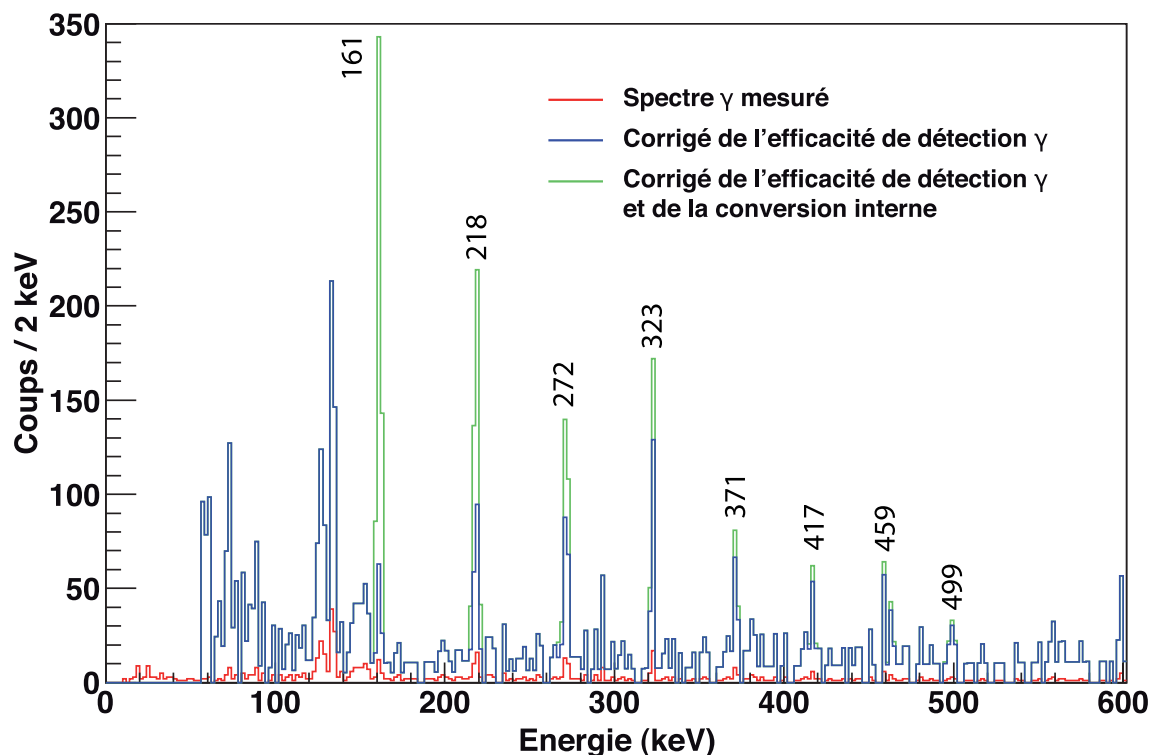


Figure 5.15: Spectre des rayonnements  $\gamma$  en coincidence avec les noyaux sélectionnés par méthode Recoil-Fission Tagging dans trois cas : mesuré (similaire à la Figure 5.10), corrigé de l'efficacité de détection  $\gamma$  de JUROGAM II et corrigé par l'efficacité de détection  $\gamma$  ainsi que par le taux de conversion interne  $\alpha(E2)$ . Seules les 8 transitions  $\gamma$  observées de la bande de rotation sont corrigées par le taux de conversion interne.

*Spectrum of  $\gamma$ -rays in coincidence with recoiling nuclei selected by Recoil-Fission Tagging method in three cases: measured in red (similar to the one in Figure 5.10), corrected by the  $\gamma$ -ray detection efficiency of JUROGAM II (blue) and corrected by the  $\gamma$ -ray detection efficiency as well as by the internal conversion factor  $\alpha(E2)$  (green). The 8 observed  $\gamma$ -ray transitions are the only ones to be corrected by the internal conversion factor.*

$E_\gamma$ (keV)	Aire mesurée	Taux de conversion interne $\alpha(E2)$	Efficacité de détection $\varepsilon_\gamma$ (%)	Intensité relative (%)
$161 \pm 1$	14	4.463	18.7	$100 \pm 36$
$218 \pm 1$	24	1.321	16.9	$81 \pm 23$
$272 \pm 1$	20	0.592	14.7	$53 \pm 17$
$323 \pm 1$	20	0.334	13.2	$49 \pm 16$
$371 \pm 1$	9	0.217	12.0	$22 \pm 10$
$417 \pm 2$	8	0.156	11.1	$20 \pm 9$
$459 \pm 2$	7	0.121	10.4	$18 \pm 10$
$499 \pm 2$	6	0.098	9.9	$16 \pm 9$

Tableau 5.4: Calcul de l'intensité relative des transitions observées de la bande de rotation basée sur l'état fondamental du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Les intensités ont été normalisées par rapport à celle de la transition de 161 keV.

*Relative intensity for the observed transitions from the ground-state based rotational band of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus. The intensities were normalized in respect to the 161 keV transition one.*

### 5.5.5 Intensités absolues

Les intensités absolues des transitions  $\gamma$  promptes observées ont été calculées : le nombre de coups mesuré pour chaque pic a été corrigé du bruit de fond, de l'efficacité de détection  $\gamma$  absolue et du taux de conversion électronique  $\alpha(E2)$ . Ces valeurs ont ensuite été rapportées au nombre total d'événements de  $^{256}\text{Rf}$  identifiés, c'est-à-dire 2210. Les intensités absolues obtenues sont reportées dans le Tableau 5.5.

On observe que les valeurs absolues de la bande de rotation diminue avec l'augmentation du spin de la transition. Il s'agit d'une caractéristique observée dans d'autres noyaux de la région tel que ceux de  $^{250}\text{Fm}$  [Gre08] et de  $^{254}\text{No}$  [Eec06].

Ces intensités donnent une indication forte sur le peuplement des différents états excités de la bande rotation. On observe que seuls  $19 \pm 7\%$  du total des noyaux se désexcitent en passant par l'état  $6^+ \rightarrow 4^+$ . Ces valeurs sont cohérentes avec celles mesurées sur le noyau de  $^{254}\text{No}$ , présentées dans la Référence [Eec06]. Il y a donc environ 80% des contributions qui passent par d'autres états tels que des structures non-yrast ou des isomères de haut- $K$ .

L'intensité de la transition non-attribuée de 293 keV est également tabulée. Comme elle n'appartient pas à la bande de rotation basée sur l'état fondamental, il pourrait s'agir d'une désexcitation provenant d'une structure non-yrast. L'intensité a été calculée en posant l'hypothèse qu'il s'agisse d'une transition E1 et M1. S'il s'agit d'une transition de type M1, elle pourrait expliquer une partie ( $11 \pm 4\%$ ) de l'intensité non observée.

Ces différentes contributions sont discutées plus en détails dans le Chapitre 6 en tenant compte des contributions provenant des états isomériques de haut- $K$ .

$E_\gamma$ (keV)	Nombre de coups réels	Intensité absolue (%)
$161 \pm 1$	409.7	$19 \pm 7$
$218 \pm 1$	330.5	$15 \pm 4$
$272 \pm 1$	216.0	$10 \pm 3$
$323 \pm 1$	202.5	$9 \pm 3$
$371 \pm 1$	91.2	$4 \pm 2$
$417 \pm 2$	83.1	$4 \pm 2$
$459 \pm 2$	75.1	$3 \pm 2$
$499 \pm 2$	66.6	$3 \pm 2$
$293 \pm 1$	52.6	$2 \pm 1$ (E1)
$293 \pm 1$	208.0	$10 \pm 4$ (M1)

Tableau 5.5: Nombres de rayonnements  $\gamma$  prompts émis au plan cible par les 2210 noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  identifiés, déduits grâce aux corrections sur l'efficacité de détection et le taux de conversion interne, et les intensités absolues calculées correspondantes.

*Numbers of prompt  $\gamma$ -rays emitted at the target level for the 2210 identified  $^{256}\text{Rf}$  nuclei, deduced thanks to the detection efficiency and the internal conversion rate, and the corresponding calculated absolute efficiencies.*

## 5.6 Caractérisation de la bande de rotation

Les transitions attribuées à la bande de rotation au-dessus de l'état fondamental du  $^{256}\text{Rf}$  sont caractérisées dans cette section grâce aux moments d'inertie calculés avec la méthode de Harris. Les énergies des transitions non observées sont ensuite extrapolées. Toute la discussion s'effectue à partir du résultat de la méthode Recoil-Fission Tagging (voir la Figure 5.10).

### 5.6.1 Définition des spins des transitions

La méthode de Harris a été utilisée pour assigner des valeurs de spins aux huit transitions  $\gamma$  observées [Harr64, Harr65]. Cette méthode ainsi que les mouvements collectifs de rotation sont présentés en détails dans la Sous-section 2.4.3.

Le  $^{256}\text{Rf}$  est un noyau pair-pair. Son état fondamental est de facto de spin-parité  $0^+$ . On s'attend donc à observer une bande de rotation au-dessus de son état fondamental consistant en des transitions reliant des états de spins positifs et pairs par pas de  $2\hbar$ . Afin de déterminer le spin initial, noté  $I_0$ , de la première transition observée (161 keV), le moment d'inertie cinématique de cette bande de rotation a été calculé selon 10 hypothèses : en attribuant un spin entier initial allant de  $2^+$  à  $11^+$  à cette transition. La paramétrisation de Harris a ensuite été testée sur chaque hypothèse pour permettre d'assigner les spins.

Pour chaque hypothèse, la valeur du moment d'inertie cinématique expérimental  $\mathcal{J}_{exp.}^{(1)}$ , correspondant à chacune des 8 transitions observées, est calculée avec la formule suivante :

$$\mathcal{J}_{exp.}^{(1)}(\omega) = \frac{(I - \frac{1}{2})}{\omega(I \rightarrow I - 2)} \quad (5.9)$$

où  $I$  est le spin exprimé en unité de  $\hbar$  et  $\omega$  est la fréquence de rotation ( $\omega = \frac{E_\gamma}{2\hbar}$ ) exprimée en  $\text{MeV} \cdot \hbar^{-1}$ .

Chacun des ensembles de points découlant d'une des 10 hypothèses a été ensuite extrapolé avec le moment d'inertie cinématique de Harris  $\mathcal{J}_{Har.}^{(1)}$  qui correspond à la formule suivante :

$$\mathcal{J}_{Har.}^{(1)}(\omega) = \mathcal{J}_0 + \mathcal{J}_1 \cdot \omega^2 \quad (5.10)$$

où  $\mathcal{J}_0$  et  $\mathcal{J}_1$  sont deux paramètres à définir qui sont propres à une bande rotation.

La Figure 5.16 est la représentation visuelle de cette étude. On retrouve les hypothèses de spins  $I_0$  pairs sur le haut de la figure et pour les spins  $I_0$  impairs sur le bas. Pour chacune de ces hypothèses, la valeur du  $\chi^2$  réduit a été calculé et retranscrit sur la Figure 5.17. On observe un minimum clair pour le spin  $I_0 = 6^+$  qui présente le  $\chi^2$  réduit le plus faible (valant 0.143). On peut donc affirmer que la première transition observée (161 keV) est une transition  $6^+ \rightarrow 4^+$ . Cela signifie que la bande de rotation est observée expérimentalement jusqu'à un spin de  $20\hbar$ . On note que la méthode utilisée pour l'attribution des spins est similaire à celle présentée dans [Wu92].

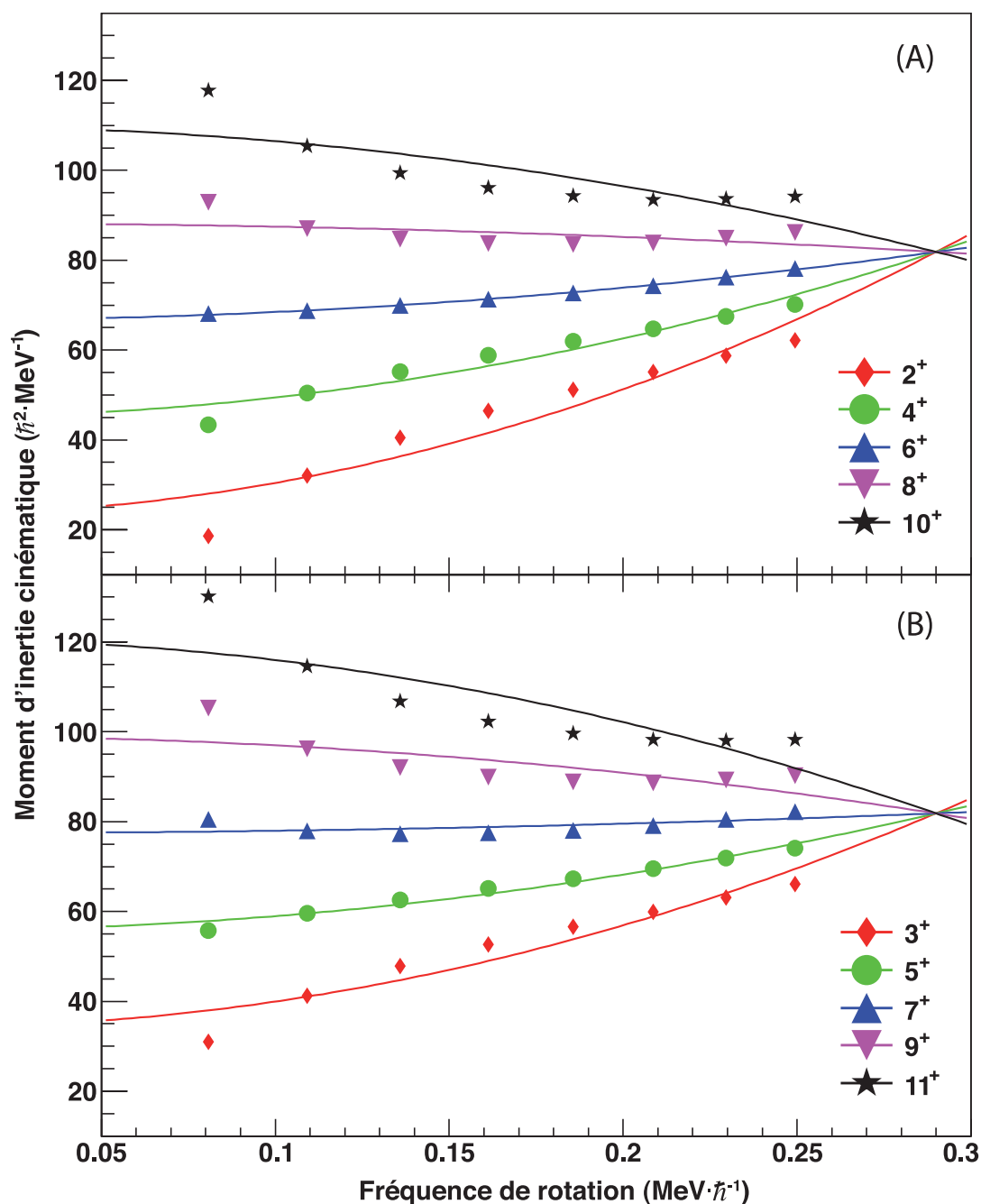


Figure 5.16: Extrapolation par la méthode Harris du moment d'inertie cinématique expérimental (calculé avec l'Equation 5.9) de la bande de rotation basée sur l'état fondamental de l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ . Plusieurs hypothèses de spin initial de la première transition observée (161 keV) ont été testées : (A) les spins pairs de  $2^+$  à  $10^+$  et (B) les spins impairs de  $3^+$  à  $11^+$ . Chaque hypothèse est extrapolée avec l'Equation 5.10.

*Extrapolation of the experimental kinematic moment of inertia (calculated using the Equation 5.9) of the rotational band above the ground-state of the  $^{256}\text{Rf}$  isotope by the Harris method. Several hypotheses for the initial spin of the first observed transition (161 keV) were tested: (A) the even spins from  $2^+$  to  $10^+$  and (B) the odd spins from  $3^+$  to  $11^+$ . Each series of data is extrapolated using the Equation 5.10.*

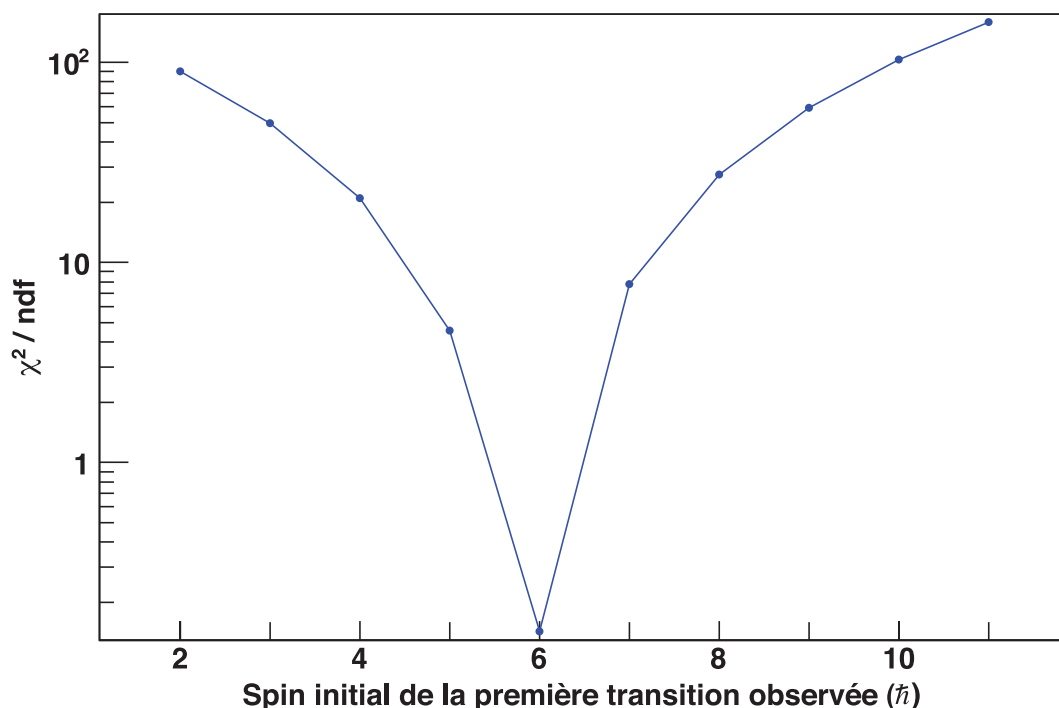


Figure 5.17: Valeur du  $\chi^2$  réduit de l'extrapolation du moment d'inertie cinématique expérimental (voir la Figure 5.16) par la méthode de Harris en fonction de l'hypothèse sur la valeur du spin initial de la première transition observée.

*Reduced  $\chi^2$  value of the experimental kinematic moment of inertia extrapolation (see the Figure 5.16) by the Harris method as a function of the hypothesis on the initial spin value of the first observed transition.*

## 5.6.2 Moments d'inertie

En plus du moment d'inertie cinématique, il est également possible d'obtenir le moment d'inertie dynamique expérimental  $\mathcal{J}_{exp.}^{(2)}$ . Il a été calculé pour chaque transition de la bande de rotation du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  en utilisant la formule suivante :

$$\mathcal{J}_{exp.}^{(2)}(\omega) = \frac{2 \cdot \hbar}{(\omega(I) - \omega(I - 2))} \quad (5.11)$$

Les valeurs qui en découlent peuvent être extrapolées avec le moment d'inertie dynamique de Harris  $\mathcal{J}_{Har.}^{(2)}$  avec :

$$\mathcal{J}_{Har.}^{(2)}(\omega) = \mathcal{J}_0 + 3 \cdot \mathcal{J}_1 \cdot \omega^2 \quad (5.12)$$

Les moments cinématique et dynamique expérimentaux de la bande de rotation sont tracés sur la Figure 5.18. On observe une croissance régulière induite par l'alignement progressif des paires sur l'axe de rotation sous l'effet de la force de Coriolis. Les extrapolations par la méthode de Harris sont appliquées aux transitions à basse énergie (ici jusqu'à  $0.22 \text{ MeV} \cdot \hbar^{-1}$ ). En effet, cette paramétrisation peut seulement être utilisée avant que l'alignement ne joue un rôle important. On peut ainsi observer sur la figure ce phénomène débiter après  $0.2 \text{ MeV} \cdot \hbar^{-1}$ .

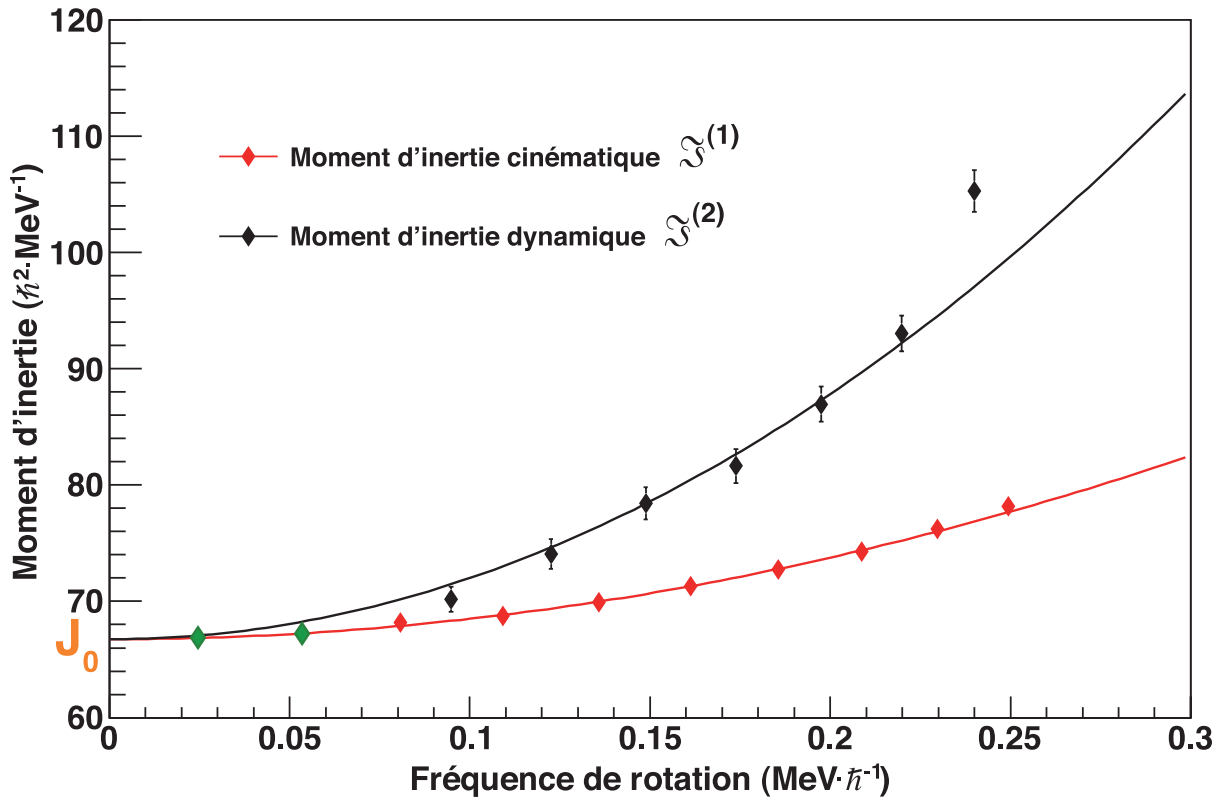


Figure 5.18: Moments d'inertie cinématique et dynamique expérimentaux extrapolés par la méthode Harris pour la bande de rotation basée sur l'état fondamental du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Les deux premières transitions non observées (représentées par des points verts) ont été extrapolées grâce à l'Equation 5.13.

*Experimental kinematic and dynamic moments of inertia extrapolated by the Harris method for the rotational band above the ground-state of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus. The first two transitions energies, that were not observed, are extrapolated thanks to the Equation 5.13 and are represented by green diamonds.*

Les valeurs obtenues pour les deux paramètres sont  $\mathcal{J}_0 = 66.7 \text{ } \hbar^2 \cdot \text{MeV}^{-1}$  et  $\mathcal{J}_1 = 175.5 \text{ } \hbar^4 \cdot \text{MeV}^{-3}$ . Elles sont utilisées pour la suite de ce travail.

### 5.6.3 Energies des premiers états excités

Les deux transitions de plus basse énergie,  $4^+ \rightarrow 2^+$  et  $2^+ \rightarrow 0^+$ , ne sont pas observées expérimentalement. Cela est dû au haut taux de conversion interne qui règne pour un noyau si lourd pour des rayonnements de basse énergie (voir la Sous-section 2.2.2). A partir de la paramétrisation de Harris, les valeurs énergétiques des transitions non observées ont pu être extrapolées. Cette méthode a été fréquemment utilisée pour obtenir les énergies des têtes de bandes non observées dans le cadre de l'étude des bandes de rotation des noyaux superdéformés [Beck92]. Pour réaliser cette opération, on utilise la formule suivante qui donne

l'expression du spin  $I$  en fonction de la fréquence de rotation :

$$I(\omega) = \mathcal{J}_0 \cdot \omega + \mathcal{J}_1 \cdot \omega^3 + \frac{1}{2} \quad (5.13)$$

Connaissant les valeurs de  $\mathcal{J}_0$  et de  $\mathcal{J}_1$  et en imposant des valeurs de  $I$  de  $2 \hbar$  et de  $4 \hbar$ , on obtient, pour les transitions  $2^+ \rightarrow 0^+$  et  $4^+ \rightarrow 2^+$ , respectivement des énergies de 44 keV et 104 keV. Cette opération est schématisée sur la Figure 5.18 où l'on observe les deux points verts qui correspondent aux énergies extrapolées.

Les coefficients de conversion interne totale de ces deux transitions, de type E2, sont de  $\alpha(44 \text{ keV}) = 1830$  et de  $\alpha(104 \text{ keV}) = 31.5$  (d'après [Kib08, Bricc]). Ces chiffres, très importants, expliquent le fait que ces deux transitions n'aient pas été observées expérimentalement par spectroscopie  $\gamma$ .

Les deux premiers états excités de la bande de rotation sont donc placés à des énergies d'excitation de  $E(2^+) = 44 \text{ keV}$  et  $E(4^+) = 148 \text{ keV}$ . Le rapport  $R_{42}$  entre ces deux énergies d'excitation est donc :

$$R_{42} = \frac{E(4^+)}{E(2^+)} = 3.32 \quad (5.14)$$

Ce rapport, très proche de la valeur théorique de 3.33 attendue pour un rotateur quantique rigide (voir la discussion de la Sous-section 2.4.2), prouve pour la première fois le caractère purement rotationnel d'une structure d'un noyau superlourd.

Le Tableau 5.6 récapitule les informations sur la bande de rotation jusqu'au spin  $20^+$ . La similitude entre les valeurs de spin calculées avec l'Equation 5.13 et celles des spins attribués aux transitions confirme ces résultats.

Il est également possible de réaliser cet assignement en utilisant une autre méthode qui

Energie (keV)	Spin initial ( $\hbar$ )	Spin final ( $\hbar$ )	Spin calculé ( $\hbar$ )
(44)	2	0	2.00
(104)	4	2	4.00
161	6	4	5.98
218	8	6	8.01
272	10	8	10.01
323	12	10	12.00
371	14	12	14.01
417	16	14	16.02
459	18	16	17.95
499	20	18	19.87

Tableau 5.6: Calcul et assignement des spins des transitions observées de la bande de rotation basée sur l'état fondamental du  $^{256}\text{Rf}$ . Les deux premières énergies ont été extrapolées grâce à la méthode de Harris.

*Spin calculation and assignment for the observed transitions of the rotational band above the ground-state of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus. The first two energies were extrapolated thanks to the Harris method.*



est décrite dans [Hol68]. Les énergies mesurées des transitions peuvent être tracées en fonction d'une hypothèse sur le spin initial de la transition et extrapolées par la formule suivante :

$$E_{\gamma}(I \rightarrow I - 2) = a \cdot \left( \sqrt{1 + b \cdot I \cdot (I + 1)} - \sqrt{1 + b \cdot (I + 1) \cdot (I + 2)} \right) \quad (5.15)$$

où  $a$  et  $b$  étant deux paramètres à déterminer.

Les hypothèses de spin initial de  $2^+$  à  $11^+$  ont également été testées avec cette méthode. Le spin de  $6^+$  a été confirmé. L'extrapolation correspondante permet d'obtenir des valeurs de  $a = 15858 \text{ keV}$  et de  $b = 9.406 \cdot 10^{-4} \text{ } \hbar^{-2}$  avec un rapport  $\chi^2/\text{ndf} = 0.39$ . Ainsi, les énergies des deux premières transitions sont extrapolées à 44 et 104 keV. Cette deuxième méthode présente donc des valeurs de spin identiques à celle de Harris et permet de la confirmer.

## 5.7 Interprétation physique

L'étude présentée dans ce chapitre a mené à la mise en évidence de la bande de rotation basée sur l'état fondamental du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  et à sa caractérisation. Pour obtenir de nouvelles informations dans cette région, il est nécessaire de la comparer avec d'autres noyaux transférmiens connus. Cette comparaison est discutée dans cette section.

### 5.7.1 Introduction

Seule une autre bande de rotation basée sur l'état fondamental d'un noyau transférmiens pair-pair possédant 152 neutrons est connue : celle du  $^{254}\text{No}$ . Son schéma de niveaux est comparé avec celui du  $^{256}\text{Rf}$  sur la Figure 5.19. On observe une très forte similitude entre les deux schémas. Les écarts entre les énergies des transitions des deux noyaux sont faibles, avec un maximum de 5 keV. Il semble y avoir une forte ressemblance entre le comportement de ces deux noyaux qui peut sans doute être expliquée par l'influence du gap déformé  $N = 152$ .

L'observation de la bande de rotation jusqu'à un spin maximal de  $20 \hbar$  est cohérent avec les spins maximaux observés dans la région des noyaux transférmiens (typiquement de  $16 \hbar$  à  $24 \hbar$ ). Ce maximum dépend en partie de l'efficacité de détection des détecteurs germanium (décroissantes avec l'énergie) et de la faible statistique. Il est aussi affecté par le mécanisme de réaction de capture et, en particulier, par la hauteur de la barrière de fission. Ce phénomène a été étudié en détails expérimentalement par G. Henning [Hen12] et à travers des modélisations par N. Rowley [Pio12a]. Le spin maximal observé dans ce travail est cohérent avec les calculs présentés dans la dernière référence.

La comparaison des moments d'inertie de noyaux, dont la bande de rotation basée sur l'état fondamental est connue, a été réalisée pour tenter de mieux comprendre la région. Il s'agit d'une puissante source d'information pour obtenir les propriétés des noyaux en rotation. En effet, il est bien connu que ces moments sont sensibles aux propriétés nucléaires comme la force d'appariement et aux orbitales proches de la surface de Fermi. Quatre noyaux, dont la bande de rotation bâtie sur l'état fondamental est connue, ont été choisis en vue de réaliser des comparaisons isotopiques et isotoniques. Ils sont listés, ainsi que leurs nombres de nucléons et la référence d'où les énergies des transitions sont tirées, dans le Tableau 5.7.

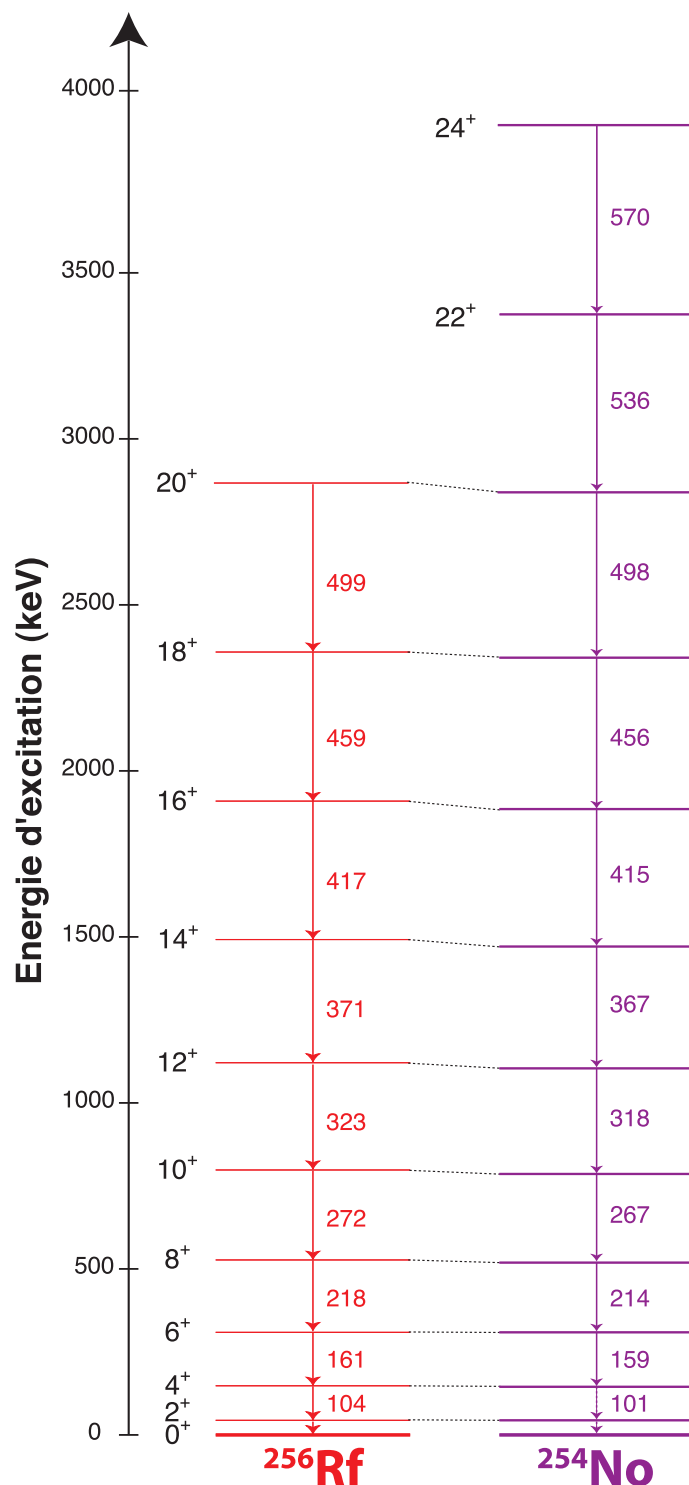


Figure 5.19: Schémas de niveaux de la bande de rotation basée sur l'état fondamental des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  (ce travail) et de  $^{254}\text{No}$  (énergies de [Eec05]). Les pointillées permettent de guider l'œil pour la comparaison des énergies d'excitation des deux noyaux.

*Level schemes of the rotational band above the ground-state for the  $^{256}\text{Rf}$  (this work) compared to the  $^{254}\text{No}$  one (energies from [Eec05]). The dotted lines allow to guide the eye for the excitation energies comparison between both nuclei.*

Isotope	Protons	Neutrons	Référence
$^{250}\text{Fm}$	100	150	[Gre08]
$^{252}\text{No}$	102	150	[Herz01]
$^{254}\text{No}$	102	152	[Eec05]
$^{256}\text{Rf}$	104	152	Ce travail

Tableau 5.7: Liste des isotopes exploités pour la comparaison des moments d'inertie. Les références d'où sont tirées les énergies d'excitations sont renseignées.

*List of the selected isotopes for the moments of inertia comparisons. The rotational band transition energies are taken from the specified references.*

### 5.7.2 Moments d'inertie cinématiques

Les moments d'inertie cinématiques expérimentaux de quatre noyaux listés dans le Tableau 5.7 ainsi que leurs extrapolations constituent la Figure 5.20.A. Ces extrapolations ont été réalisées grâce à l'Equation 5.10 qui a été appliquée à la partie bas-spin des points expérimentaux. Ce tracé permet d'estimer à quelle fréquence de rotation l'alignement se réalise. En effet, c'est lorsque les valeurs expérimentales ne correspondent plus à l'extrapolation que l'alignement sur l'axe de rotation commence à opérer.

On observe que le moment d'inertie du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  présente un comportement similaire à celui de  $^{254}\text{No}$  avec toutefois une valeur absolue de moment d'inertie légèrement plus faible. En revanche, les deux isotones  $N = 150$  présentent des propriétés rotationnelles différentes. En effet, l'alignement se réalise beaucoup plus rapidement. Ils possèdent un comportement en fonction de la fréquence de rotation similaire l'un de l'autre avec, cependant, une grande différence de valeur absolue de moment d'inertie. La différence des propriétés de rotation entre les isotones  $N = 150$  et  $N = 152$  est un sujet qui a déjà été discuté dans les Références [Herz01, Dug01, Ben03a, AIK09].

Il est intéressant de s'interroger sur la raison de la différence de valeur absolue entre les différents noyaux. Il est possible que ces changements dans le moment d'inertie proviennent des différences de déformations ou, comme discuté dans [Sob01, Afa03], des effets induits par les gaps sur l'appariement des nucléons. En effet, l'énergie d'appariement est affaiblie à l'approche d'un gap déformé, ce qui conduit à une plus grande valeur de moment d'inertie. On peut alors discuter trois comparaisons isotopiques ou isotoniques :

- ◇ Le  $^{250}\text{Fm}$  a le plus grand moment d'inertie sur l'ensemble de la gamme de fréquence de rotation. Lorsque l'on ajoute 2 protons, pour atteindre le noyau de  $^{252}\text{No}$ , le moment d'inertie diminue. Cela peut être dû à l'influence du gap déformé  $Z = 100$ .
- ◇ Le  $^{254}\text{No}$ , avec deux neutrons de plus, a un moment d'inertie plus important que le noyau de  $^{252}\text{No}$  sur toute la gamme de fréquence. Ceci démontre certainement l'influence du gap déformé  $N = 152$ .
- ◇ Si un gap déformé important devait exister à  $Z = 104$ , on s'attendrait à un plus grand moment d'inertie pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  que pour celui de  $^{254}\text{No}$ . L'absence d'un tel effet suggère qu'il n'y a pas de gap significatif à  $Z = 104$ . En fait, la différence de valeur absolue entre les deux noyaux peut être expliquée par l'influence décroissante de

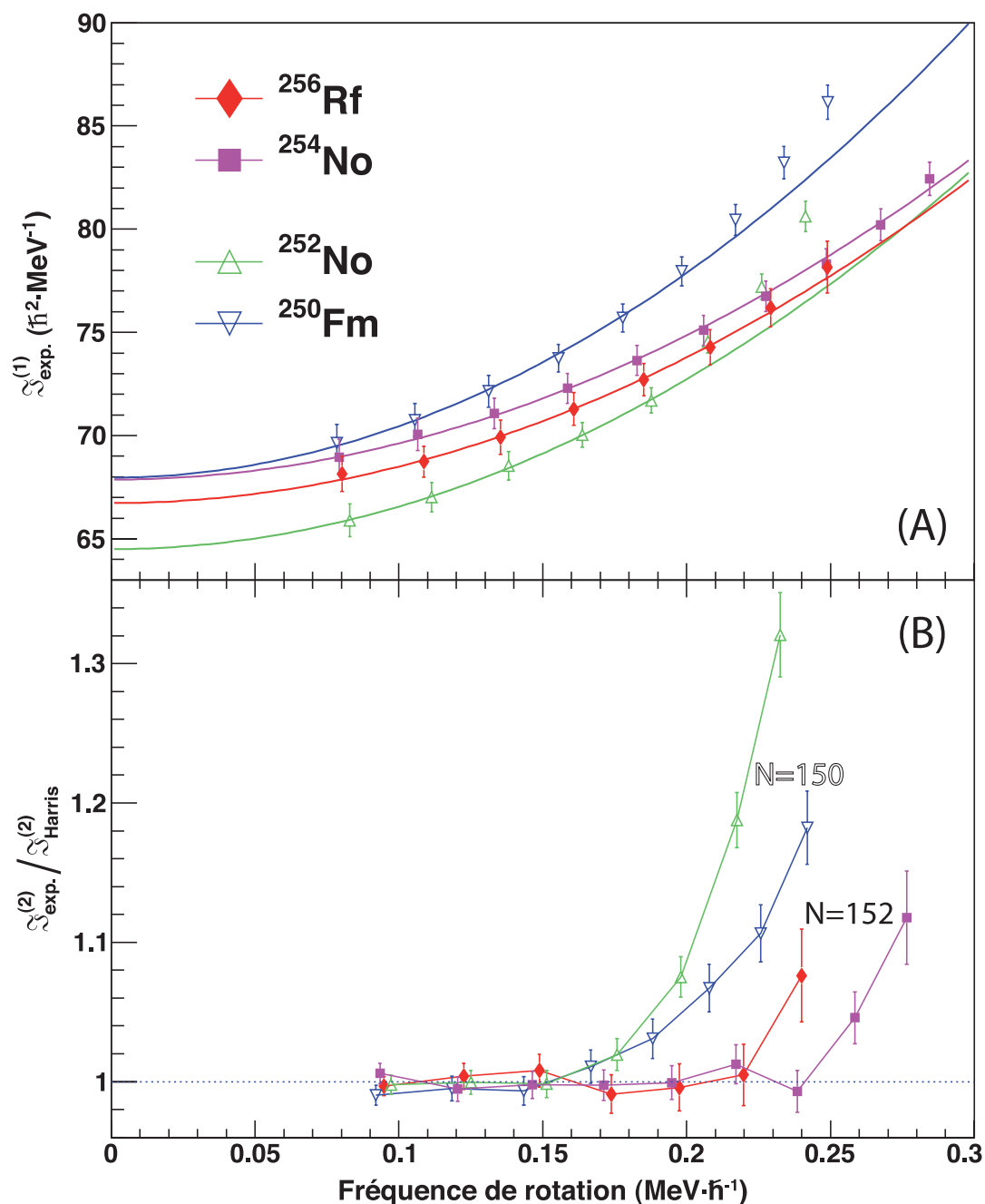


Figure 5.20: (A) : Moments d'inertie cinématiques expérimentaux des noyaux de  $^{250}\text{Fm}$ , de  $^{252}\text{No}$ , de  $^{254}\text{No}$  et de  $^{256}\text{Rf}$  extrapolés par la méthode de Harris. (B) : Moments d'inertie dynamiques expérimentaux des noyaux de  $^{250}\text{Fm}$ , de  $^{252}\text{No}$ , de  $^{254}\text{No}$  et de  $^{256}\text{Rf}$  normalisés par leurs extrapolations respectives par la méthode d'Harris. La droite en trait pointillée symbolise la valeur qu'arboreerait un pur rotateur quantique.

(A): Experimental kinematic moments of inertia for the  $^{250}\text{Fm}$ ,  $^{252}\text{No}$ ,  $^{254}\text{No}$  and  $^{256}\text{Rf}$  nuclei extrapolated by the Harris method. (B): Experimental dynamic moments of inertia for the  $^{250}\text{Fm}$ ,  $^{252}\text{No}$ ,  $^{254}\text{No}$  and  $^{256}\text{Rf}$  nuclei normalized by their respective extrapolations obtained with the Harris method. The dotted line symbolizes the value corresponding to a pure quantum rotor.

l'important gap déformé  $Z = 100$ .

Le Tableau 5.8 présente, pour cinq noyaux transfermia, les valeurs expérimentales de l'énergie d'excitation du niveau  $E_{exp.}(2^+)$  déduites des extrapolations, les paramètres extrapolés  $\mathcal{J}_0$  et les paramètres de déformation quadrupolaire  $\beta_2$  ainsi que les énergies  $E_{theo.}(2^+)$ . Les deux dernières caractéristiques proviennent de la Réf. [Sob01]. On peut observer que les paramètres de déformation  $\beta_2$  sont approximativement égaux pour tous les noyaux. Cela soutient l'argument que les différences de moment d'inertie seraient dues aux effets d'appariement. En se basant sur les comparaisons précédentes, on s'attendrait à ce que le noyau de  $^{252}\text{Fm}$  possède le moment d'inertie le plus haut et l'énergie  $E(2^+)$  la plus faible. Malheureusement, il n'y a pas encore de valeur expérimentale disponible.

Isotope	$E_{exp.}(2^+)$ (keV)	$\mathcal{J}_0$ ( $\hbar^2 \cdot \text{MeV}^{-1}$ )	$\beta_2$	$E_{theo.}(2^+)$ (keV)
$^{250}\text{Fm}$	44.0	68.1	0.248	43.9
$^{252}\text{Fm}$	-	-	0.250	42.0
$^{252}\text{No}$	46.4	64.4	0.252	44.5
$^{254}\text{No}$	44.1	68.0	0.252	41.6
$^{256}\text{Rf}$	44.8	66.7	0.249	43.4

Tableau 5.8: Energies expérimentales  $E_{exp.}(2^+)$  et théoriques  $E_{theo.}(2^+)$  de l'énergie du premier état excité de la bande de rotation, le paramètre  $\mathcal{J}_0$  extrapolé et le calcul théorique du paramètre de déformation quadrupolaire  $\beta_2$  pour cinq noyaux transfermia pairs-pairs sélectionnés. Les valeurs de  $\beta_2$  et les énergies  $E_{theo.}(2^+)$  proviennent de [Sob01].

*Experimental  $E_{exp.}(2^+)$  and theoretical  $E_{theo.}(2^+)$  energies of the first excited state of the rotational band, the fitted parameter  $\mathcal{J}_0$  and the theoretical calculation of the quadrupolar deformation parameter  $\beta_2$  for five selected transfermium even-even nuclei. The  $\beta_2$  values and the  $E_{theo.}(2^+)$  energies comes from [Sob01].*

### 5.7.3 Moments d'inertie dynamiques

La Figure 5.20.B compare les moments d'inertie dynamiques de la même série de noyaux : le  $^{250}\text{Fm}$ , le  $^{252}\text{No}$ , le  $^{254}\text{No}$  et le  $^{256}\text{Rf}$ . Pour ce faire, le rapport entre le moment d'inertie dynamique expérimental et son extrapolation de Harris (en utilisant l'Equation 5.12) est tracé en fonction de la fréquence de rotation pour chacun des noyaux. Cette division permet d'obtenir une courbe normalisée qui facilite l'interprétation. Ainsi, lorsque la valeur est unitaire, le noyau se comporte comme un pur rotateur quantique. Lorsque la valeur devient supérieure à 1, ceci est un signe de l'effet de l'alignement du moment angulaire avec l'axe de rotation.

Il est intéressant de noter que si l'on avait fait la différence entre ces deux grandeurs au lieu d'en faire le rapport, on aurait pu observer le même phénomène. Cependant, la valeur de référence correspondant au comportement d'un rotateur quantique aurait été 0 au lieu de 1.

L'effet de l'alignement apparaît pour une fréquence d'environ  $0.15 \text{ MeV} \cdot \hbar^{-1}$  pour les deux isotones  $N = 150$  et à  $0.20\text{-}0.25 \text{ MeV} \cdot \hbar^{-1}$  pour les deux isotones  $N = 152$ . D'après les

Références [Afa03, Ben03a, AIK09], une compétition dans le cadre de l'alignement apparaît dans ces noyaux entre les orbitales neutron  $\nu 1j_{15/2}$  et proton  $\pi 1i_{13/2}$ . Les différences observées sont dues à la position relative des orbitales en question par rapport à la surface de Fermi. Pour les isotones  $N = 150$ , la surface de Fermi est juste en-dessous de l'orbitale neutron  $\nu 1j_{15/2}[734]9/2^-$  tandis qu'elle est au-dessus pour les isotones  $N = 152$ .

De plus, un délai dans le phénomène d'alignement est observé entre les noyaux de  $^{254}\text{No}$  et de  $^{256}\text{Rf}$ . Cet effet devrait uniquement provenir des protons étant donné qu'il s'agit d'isotones. Il est très probable que cela soit dû au décalage de la surface de Fermi proton induit par l'addition de deux protons à l'isotope de  $^{254}\text{No}$ . En effet, ceci amène la surface du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  plus proche de l'orbitale  $\pi 1i_{13/2}[624]9/2^+$ .

Les orbitales neutron et proton discutées ci-avant ont été obtenues grâce au modèle Hartree-Fock Bogoliubov [Afa03, Ben03a]. Cependant, les orbitales mises en jeu dans ce cas ne sont pas connues avec certitude. Si on se base sur les diagrammes des particules individuelles présentés dans le Chapitre 1 qui ont été calculés avec le Modèle Woods-Saxon Universal, les orbitales proches de la surface de Fermi du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  sont  $\pi 2f_{5/2}[521]1/2^-$  ou  $\pi 1h_{9/2}[514]7/2^-$  pour les protons et  $\nu 1j_{15/2}[734]9/2^-$  ou  $\nu 2g_{9/2}[624]7/2^+$  pour les neutrons. La discussion reste toutefois identique.

Une investigation théorique plus détaillée basée sur un modèle prédisant correctement les niveaux des particules individuelles dans la région serait nécessaire pour expliquer plus en détails ces différences. Il serait tout aussi intéressant d'obtenir les bandes de rotation d'autres isotones ou isotopes dans la région pour compléter la systématique.

Tous ces résultats ont donné lieu à plusieurs publications. Un article a été publié dans *Physical Review Letters* dans lequel les résultats et leur interprétation ont été présentés pour la première fois [Gre12]. Un article de proceedings [Rub13a] qui donne plus de détails sur les conditions expérimentales et l'analyse de données effectuée a été publiée dans *Journal of Physics : Conference Series*. Il est à noter que l'article [Gre12] a été choisi pour un *Viewpoint* dans *Physics* [Wie12] ce qui permet de montrer la portée importante de ce travail. Cette même expérience a également donné lieu à une analyse en spectroscopie retardée qui est présentée dans le Chapitre 6.



Spectroscopie retardée du  $^{256}\text{Rf}$ 

## Sommaire

---

<b>6.0</b>	<b>Summary</b>	<b>176</b>
<b>6.1</b>	<b>Identification des événements isomériques</b>	<b>179</b>
6.1.1	Sélections des événements isomériques	179
6.1.2	Distribution en énergie	180
6.1.3	Distribution de la différence de temps	182
<b>6.2</b>	<b>Spectroscopie de rayonnements <math>\gamma</math> associés</b>	<b>183</b>
6.2.1	Spectroscopie des rayonnements $\gamma$ retardés - sélection isomérique	183
6.2.2	Spectroscopie des rayonnements $\gamma$ retardés - sélection large	184
6.2.3	Spectroscopie des rayonnements $\gamma$ prompts associés	186
<b>6.3</b>	<b>Mise en évidence et caractérisation des états isomériques</b>	<b>188</b>
6.3.1	Cascade d'états isomériques	188
6.3.2	Temps de demi-vie	190
6.3.3	Rapports isomériques	191
6.3.3.1	Effet du temps mort sur la détection	191
6.3.3.2	Probabilités de détection	193
6.3.3.3	Calculs du peuplement des états - première approche	194
6.3.3.4	Calculs du peuplement des états - notion de coupures	196
6.3.3.5	Calculs du peuplement des états - seuils en énergie	197
6.3.4	Temps de demi-vie équivalent	198
<b>6.4</b>	<b>Assignement des états isomériques</b>	<b>199</b>
6.4.1	Introduction	199
6.4.2	Discussion sur les rayonnements $\gamma$ observés	201
6.4.2.1	Discussion sur la transition de 900 keV	201
6.4.2.2	Discussion sur la transition de 683 keV	202
6.4.2.3	Discussion sur les transitions de basse énergie	203
6.4.3	Simulation de spectres d'électrons	204
6.4.4	Discussion de l'assignement des isomères (1) & (2)	206
6.4.5	Particules individuelles expérimentales	211
6.4.6	Approches théoriques	215
6.4.6.1	Influence du paramètre $\beta_6$	215
6.4.6.2	Calcul des états de multi-quasiparticules	216
6.4.7	Discussion de l'assignement de l'isomère (3)	219
<b>6.5</b>	<b>Proposition d'un schéma de niveaux pour le noyau de <math>^{256}\text{Rf}</math></b>	<b>220</b>

---



## 6.0 Summary

The Recoil-Fission Tagging selection technique, presented in Chapter 5, enabled the identification of 2210 events of interests (called R-F). Electron signals in the DSSD, which occurred between a recoil implantation and a spontaneous fission signal, were searched for as an indication of the isomeric states. An optimized time window between a recoil implantation signal and an electron detection of 500  $\mu\text{s}$  was applied. Using this specific selection, 382 Recoil-electron-Fission gated events (called R-e-F) were identified. Furthermore, events with more than one electron signal sandwiched between a recoil and a fission were also observed: 67 Recoil-electron-electron-Fission events (R-e-e-F) and 4 Recoil-electron-electron-electron-Fission events (R-e-e-e-F). No events with more than 3 electrons between Recoil and Fission were found. The numbers of observed events are compared to the two previous similar experiments [Jep09, Rob11] (see Table 6.1) discussed in Chapter 4. They are in good agreement with the LBNL values [Jep09].

The electron energy spectra associated to the three types of electron gated selection are displayed in Figure 6.1. It is important to note that the energy threshold for detection of an electron signature was about 75 keV. Comparison of the three electron energies in the case of the 4 R-e-e-e-F events to the two R-e-e-F distributions shows three distinguishable electron energy distributions. Second and third electrons of the 4 R-e-e-e-F events are associated to rather narrow energy distributions while the first electron corresponds to a wide flat distribution. The Figure 6.6 allows one to compare the R-e-F and R-e-e-F events showing that they are from the same decays. All these considerations associated with the observation of R-e-e-F and R-e-e-e-F events is a clear signature of a cascade of 3 isomeric states. They are labelled (1), (2) and (3) in increasing excitation energy.

For each type of selection, time distributions between recoil and successive electrons are plotted in Figure 6.2. One clearly observes the DSSD data acquisition system deadtime of 12  $\mu\text{s}$ . Since all distributions are on the same range, it is not possible to discriminate the different half-lives with this figure. However, it shows that a value of about 22  $\mu\text{s}$  is a good first indication for all observed lifetimes. More accurate half-lives were determined taking into account the electron energy distribution ranges to attribute a specific decay to a specific parent state. These ranges are established taking into account the energy spectra pattern. The measured half-lives are respectively 23, 18 and 27  $\mu\text{s}$  in increasing excitation energy. Obtained values are presented in Table 6.2 and show a rather good agreement with the LBNL experiment.

The estimation of the isomeric ratios, the probability to populate directly each isomeric state, was extracted from data. Several parameters were taken into account. First of all, the losses due to the acquisition deadtime were estimated. This effect can be illustrated with the Figure 6.7 where one can see that more than one quarter of the electrons goes undetected. The estimations for each state are listed in Table 6.3.

According to the initially populated isomeric state ((1), (2) or (3)), there is a probability to detect 0, 1, 2 or 3 electrons showers. All these probabilities are displayed in Figure 6.3.3.2 and were calculated taking into account a 50% geometric detection efficiency and the 12  $\mu\text{s}$  deadtime loss. With these values, a total isomeric ratio of 38% was obtained as a first estimate. A second estimate taking into account the energy distributions and overlapping pattern

was made for the experiment data as well as for relative distribution intensity extracted with the same method from the LBNL published spectra. The obtained values are listed in Table 6.4. This work shows that the total isomeric ratio is about 30 to 40%.

In order to be more accurate, a new approach taking into account the energy threshold (about 75 keV) was used. I wrote a code to estimate the electron total detection efficiency of a transition cascade using the internal conversion factors. It is planned to refine this study using simulation codes like GEANT4 and taking into account the atomic cloud rearrangement effects (X-ray, Auger electron and Coster-Kröning electron effects).

With estimated isomeric ratios and extracted isomer lifetimes, the total isomer population time evolution was simulated using a dedicated code based on the 4<sup>th</sup> order Runge-Kutta method. An “equivalent” half-life could be extracted as well as the time needed for seven eighths of the nuclei populated in an isomeric state to decay to the ground-state: 96  $\mu$ s. This calculation is illustrated in Figure 6.9.

The spectrum of  $\gamma$ -rays detected in the three focal plane clover detectors in prompt coincidence with the electrons is displayed in Figure 6.3. The optimized search time around an electron signal, subsequent of a decay from isomer (1), (2) or (3), was set to  $\pm 150$  ns. A total of 24 counts is observed in this amazingly clean selection. Five  $\gamma$ -rays unambiguously constitute a peak at 900 keV, confirming the transition observed at LBNL. This spectrum does not show any other peak except contributions that could be assigned to  $^{256}\text{Rf}$  K X-rays and Compton background. The  $\gamma$ -ray spectra associated in coincidence with either the electron decays of the R-e-e-F or the R-e-e-e-F events shows no clear  $\gamma$ -ray transition; the statistics may be too low.

Since the statistics are quite low, a complementary delayed  $\gamma$ -ray spectrum was investigated within a less selective - and wider - gate on  $^{256}\text{Rf}$  R-F events. This is only possible thanks to the cleanliness of the fission selection. The  $\gamma$ -ray energies measured in a time window of 100  $\mu$ s (about three “equivalent” half-lives) after the recoil implantation in the DSSD are displayed in Figure 6.4.A. A total of 18 full energy 900 keV transitions could be associated to  $^{256}\text{Rf}$ , increasing the statistics. An accumulation of statistics is seen at 683 keV. There is no evidence if this is a true transition or a background fluctuation. Expanding the low energy part of the spectrum, several  $\gamma$ -ray transitions seem to be present (see Figure 6.4.B). It is worth pointing that the 105, 161 and 218 keV  $\gamma$ -ray transitions correspond to the low-energy part of the ground-state band. Nevertheless, since the statistics are so close to the background level, it is quite difficult to make a clear statement for all these observed  $\gamma$ -rays.

Prompt  $\gamma$ -rays associated to an isomeric event were searched using the JUROGAM II array with the same two-dimensional polygonal “gate” used to obtain the prompt  $\gamma$ -ray spectrum. The energy spectrum shown in the top part of Figure 6.5 is correlated with recoils from R-F events that do not imply a delayed electron. The rotational band can be clearly observed. On the bottom of the figure are displayed  $\gamma$ -rays associated with R-e-F, R-e-e-F and R-e-e-e-F event. Dotted lines are plotted at the energy values of the eight transitions assigned to the ground-state rotational band in order to guide the eye. No peaks can be seen at these specific energies. It is a clear signature that the selections with electron(s) do not select  $^{256}\text{Rf}$  nuclei populated directly above the ground-state rotational band. Statistics of this spectrum are low. Most of the peaks may be random except perhaps the 4 counts at 400 keV that could

be a transition above an isomeric state.

In order to understand the observed electron energy distribution of isomer (1) decay (see Figure 6.1), I developed a code to simulate the distribution induced by the conversion of a cascade of transitions. As shown in Figure 6.11, four different cases were tested: deexcitation starting from  $4^+$ ,  $6^+$ ,  $8^+$  states, and a mix of the two latter states, down to  $0^+$  ground-state. The experimental and simulated spectra are only in agreement with the  $4^+$  solution. It is very likely that isomer (1) decays to this state. The simulation shows that the observed total energy of the transition(s) between this isomeric state and the ground-state is about 150 keV.

A transition of 900 keV was clearly observed. Since all nuclei populated in an isomeric state decay through state (1), it is very likely that (1) decays by the 900 keV transition. A total of 5 counts was seen in the spectrum of Figure 6.3. Taking into account all corrections, one would expect  $5.7 \pm 2.5$  counts for a 100% branching ratio for this transition which is consistent with this scenario.

A total of 18 counts was observed for the 900 keV transition in Figure 6.4.A. This value is also consistent with a 100% branching ratio scenario. Furthermore, the ratio of observed 900 keV transitions between the two types of selections (R-e-F and R-F) is consistent with the electron detection efficiency and the deadtime effect. Since no 900 keV transition is observed by prompt spectroscopy, it suggests that this transition does not decay from a low- $K$  band as proposed in the discussion of the LBNL results. Furthermore, no conclusion can be made for the 400 and 683 keV possible transitions since they have low statistics and are not observed by LBNL.

In order to discuss the  $K$  values of the three observed isomers, two sets of calculations were made using the Woods-Saxon Model: one at ANL, the other one at IPHC. The single-particle diagrams from the latter one are displayed in Figure 6.14 and illustrate well the influence of the  $\beta_6$  parameter on the orbitals. The energies of 2-qp and 4-qp states calculated by F. Kondev at ANL are listed in Figure 6.15.

One notes  $K_{(1)}$ ,  $K_{(2)}$  and  $K_{(3)}$  the  $K$  values for each isomer. Taking account of the previous discussion, one makes an assumption that the 900 keV  $\gamma$ -ray decays from isomer (1) to the  $4^+$  state from ground-state band ( $K_{(1)}^\pi = 0^+$ ). The hindrance factor was calculated for decay scenarios with  $K_{(1)}$  value ranging from 3 to 8 with both parities. The only values that fit the Löbner systematics are  $K_{(1)}^\pi = 4^-$ ,  $4^+$  and  $5^-$ . Since the models predict no  $4^+$  low enough in energy, this possibility is excluded.

All  $K_{(2)}$  values from 6 to 10 with both parities were tested on isomer (2); with both the  $4^+$  and  $5^-$  hypotheses on  $K_{(1)}$ . The only working combination is  $K_{(1)}^\pi = 5^-$  and  $K_{(2)}^\pi = 8^-$ , both proton 2-qp states.

The only 2-qp state with a higher value of  $K$  is a  $K^\pi = 10^+$  state. However, this state cannot be isomeric due to the presence of the  $K_{(2)}^\pi = 8^-$  state just below. Nevertheless, it may be part of the decay of isomer (3) as proposed for the case of  $^{254}\text{No}$ . Isomer (3) is most likely a 4-qp state with  $K_{(3)} \geq 13$ . Several possibilities were proposed by theoretical models but experimental data cannot distinguish between them, since these models could not fully explain isomers (1) and (2).

A tentative level scheme combining prompt and delayed spectroscopic study results is displayed on Figure 6.16. It is the first one for a superheavy nucleus.

L'analyse par spectroscopie retardée de l'isotope de  $^{256}\text{Rf}$ , décrite dans ce chapitre, a été réalisée à partir des mêmes données que celle de la spectroscopie prompte pour laquelle 2210 noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  ont été clairement identifiés. L'instrumentation et les réglages utilisés sont ceux présentés dans la Sous-section 5.1.2. La sélection des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  est identique à celle discutée dans la Section 5.2. Les résultats de cette analyse seront soumis à publication [Rub13b].

Le chapitre débute par l'identification d'états isomériques grâce à des bouffées d'électrons, c'est-à-dire à un ou plusieurs électrons émis de façon indifférenciée en cascade si rapide que leurs signaux s'empilent dans un signal unique (voir la Sous-section 2.2.2). La partie expérimentale se termine par la mise en évidence des rayonnements  $\gamma$  en coïncidence avec ces électrons. La suite du chapitre est ensuite dédiée à la discussion et à l'interprétation des résultats. Tous les rayonnements observés sont analysés et discutés pour arriver à une proposition d'un schéma de niveaux pour le noyau superlourd de  $^{256}\text{Rf}$ .

On note que deux expériences antérieures ont été effectuées pour réaliser une étude similaire [Jep09, Rob11]. Ces dernières sont décrites de manière détaillée dans la Sous-section 4.2.3. Les différents résultats obtenus lors de ce travail sont confrontés avec celles-ci dans ce chapitre.

## 6.1 Identification des événements isomériques

### 6.1.1 Sélections des événements isomériques

Les sélections présentées dans cette section sont effectuées sur la base de l'ensemble des 2210 noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  identifiés, qui sont présentés dans le Chapitre 5. Il s'agit des événements obtenus par corrélation génétique Recoil-Fission Tagging, noté événements R-F dans ce chapitre.

En vue de signer la présence d'états isomériques, les bouffées d'électrons détectés dans la face arrière du DSSD étant comprises temporellement entre le signal d'implantation d'un noyau de recul et celui d'une décroissance par fission spontanée ont été recherchées. Le signal d'une bouffée est recherché dans une zone de  $3 \times 3$  pixels centrée sur le dépôt d'énergie de fission spontanée; chaque pixel mesurant  $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ . En effet, un électron de 500 keV perd  $380 \text{ keV} \cdot \text{mm}^{-1}$  dans le silicium ce qui justifie ce choix de zone de recherche.

Plusieurs fenêtres de temps entre l'implantation et le signal de l'électron ont été testées. Une valeur optimisée de 500  $\mu\text{s}$  est appliquée car elle permet de maximiser le nombre d'électrons corrélés en minimisant la contribution du bruit de fond. Avec ces conditions spécifiques, 382 événements de corrélation génétique Recul-électron-Fission (notés R-e-F) ont été identifiés.

Des événements avec deux électrons détectés entre le noyau de recul et la fission spontanée ont aussi été recherchés : 67 événements de type Recul-électron-électron-Fission (notés R-e-e-F) ont été observés. De plus, 4 événements de type Recul-électron-électron-électron-Fission (notés R-e-e-e-F) ont été identifiés grâce à la mise en évidence de séries de trois électrons détectés successivement dans le même pixel. Aucun événement comprenant une cascade de 4 électrons ou plus n'a été trouvé. On note que, pour chacun des trois types de

Expérience	R-F	R-e-F	R-e-e-F	R-e-e-e-F
Ce travail	2 210 (100%)	382 (17.3%)	67 (3.0%)	4 (0.18%)
Réf. [Jep09]	5 400 (100%)	985 (18.2%)	147 (2.7%)	7 (0.13%)
Réf. [Rob11]	783 (100%)	19 (2.4%)	0 (0%)	0 (0%)

Tableau 6.1: Comparaison du nombre d'événements observés pour chaque type de sélection utilisée pour ce travail ainsi que pour les expériences similaires réalisées antérieurement. Pour chaque sélection, le rapport entre le nombre d'événements identifiés et le nombre d'événements R-F est ajouté entre parenthèses.

*Number of observed events for each selection used in this work as well as for previous experiments. For each selection, the ratio between the number of identified events and the number of R-F events is added in brackets.*

sélection, on impose un nombre strict d'électron(s) à observer (respectivement 1, 2 et 3).

Les nombres d'événements observés pour chaque type de sélection sont listés dans le Tableau 6.1. Les valeurs similaires pour les expériences présentées dans les Références [Jep09] et [Rob11] sont également données à titre de comparaison. Pour chaque type de sélection et chaque expérience, le rapport entre le nombre d'événements identifiés et le nombre d'événements R-F est également renseigné dans le tableau. On remarque que les rapports obtenus avec ce travail sont très similaires de ceux présentés dans [Jep09]. Au contraire, ils sont bien différents de ceux de [Rob11]. L'analyse de cette dernière n'a présentée aucun événement avec 2 ou 3 bouffées d'électrons et une proportion moindre d'événements de type R-e-F.

## 6.1.2 Distribution en énergie

Les distributions en énergie des électrons associés aux trois types de sélections discutés (R-e-F, R-e-e-F et R-e-e-e-F) sont tracées sur la Figure 6.1.

Sur le panneau (A) de la figure, la distribution en énergie des bouffées d'électrons mesurées dans le DSSD pour les événements R-e-F est tracée. Les distributions en énergie des premiers et des seconds électrons détectés pour chaque événement R-e-e-F sont tracées respectivement sur les panneaux (B) et (C). Sur ces mêmes panneaux, des symboles représentent les énergies du premier (carré noir), du second (triangle brun) et dernier (cercle mauve) électron de chaque événement R-e-e-e-F. Il est important de noter que le seuil énergétique pour détecter le signal d'une bouffée d'électrons est d'environ 75 keV comme on peut l'observer sur la figure.

Les formes de toutes ces distributions et la détection de plusieurs bouffées en cascade semblent indiquer l'existence de plusieurs états isomériques dans le noyau. Leur interprétation est discutée en détails dans la Sous-section 6.3.1.

De manière similaire aux rapports des nombres d'événements isomériques, on peut noter la ressemblance spectaculaire entre les distributions de ce travail et celles provenant de la Référence [Jep09] (voir les distributions sur la Figure 4.3.A). Les centroïdes des distributions sont légèrement décalés. Ces aspects sont discutés dans la partie interprétation de ce chapitre. La distribution des événements R-e-F est également en accord avec celle présentée

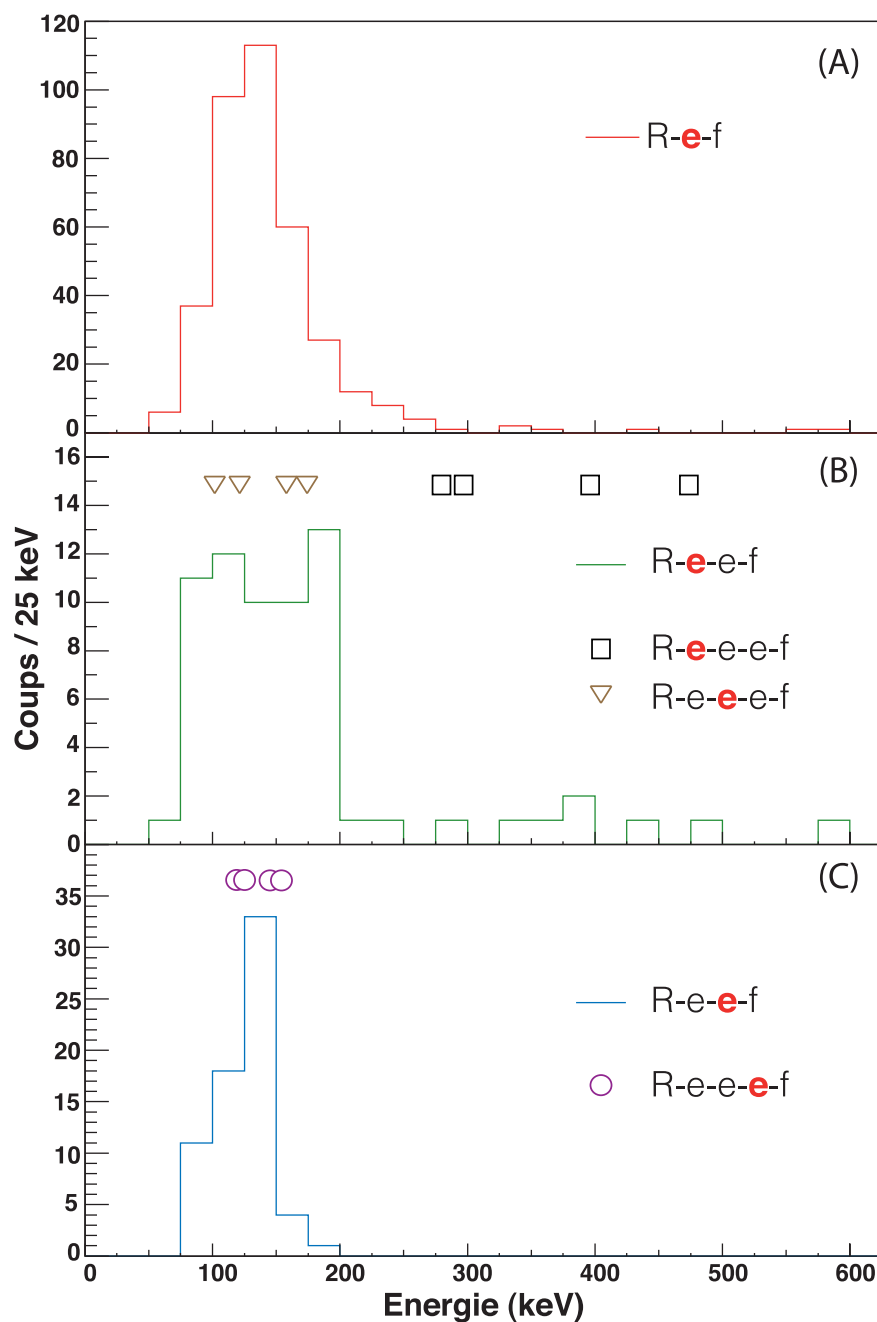


Figure 6.1: Distribution en énergie des bouffées d'électrons mesurées dans le DSSD pour (A) : les électrons des événements R-e-F, (B) : le premier électron détecté pour chaque événement R-e-e-F et (C) le second électron détecté pour chaque événement R-e-e-F. Sur (B) et (C), des symboles représentent les énergies du premier (carré noir), du second (triangle brun) et dernier (cercle mauve) électron de chaque événement R-e-e-e-F.

*Energy distributions of the electron shower measured in the DSSD for: (A): the electrons of the R-e-F events, (B): the first electron detected for each R-e-e-F event and (C): the second electron detected for each R-e-e-F event. On (B) and (C), symbols represent the energies of the first (black square), of the second (brown triangle) and the last one (purple circle) electron of each R-e-e-e-F event.*

dans [Berr10] (voir la Figure 4.5). De plus, celle de la référence [Rob11] (voir la Figure 4.6) semble également être en accord même si elle ne présente pas suffisamment de statistiques pour que l'on puisse se prononcer avec certitude.

### 6.1.3 Distribution de la différence de temps

Pour chaque sélection, les distributions en temps entre les signaux successifs, détectés pour les événements R-e-F, R-e-e-F et R-e-e-e-F, sont tracées sur la Figure 6.2. L'Equation 5.5 a été utilisée pour convertir les temps mesurés dans une échelle logarithmique. Ce tracé est similaire à celui réalisé pour le temps de demi-vie du noyau dans son état fondamental (voir la Figure 5.7).

L'effet du temps mort de l'acquisition du DSSD, qui est d'environ  $12\ \mu\text{s}$ , est observable sur la figure. Ainsi, deux bouffées d'électrons séparées en temps peuvent être détectées consécutivement si cette différence de temps est supérieure au temps mort. Cet aspect est discuté plus en détails dans la Sous-section 6.3.3.

Des temps de demi-vie ont été extrapolés de ces courbes grâce à l'Equation 5.6. Le temps de demi-vie entre le noyau de recul et l'électron des événements R-e-F a été mesuré à  $22 \pm 2\ \mu\text{s}$ . Le temps de demi-vie obtenu entre le noyau de recul et le premier électron des événements R-e-e-F est de  $20 \pm 4\ \mu\text{s}$  tandis que celui entre les deux électrons des évé-

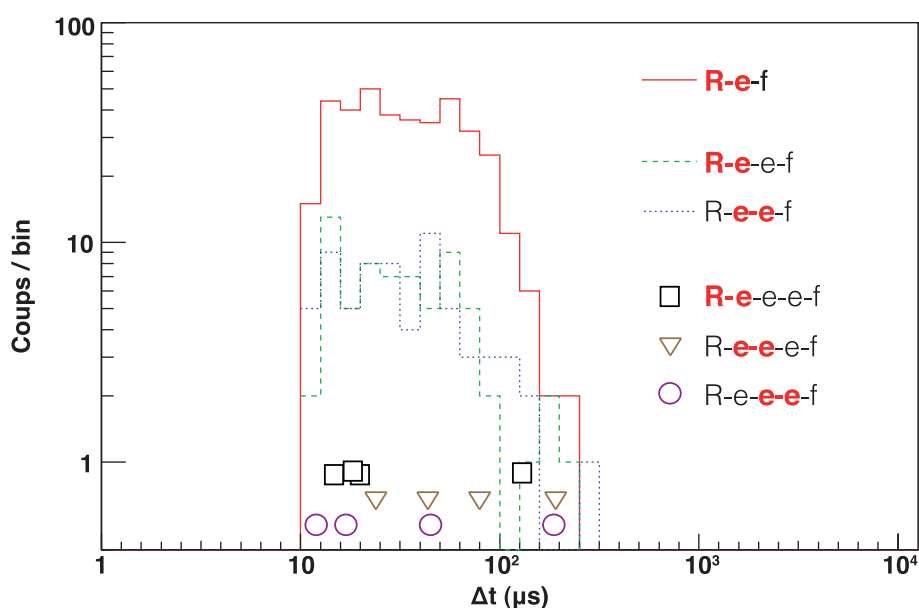


Figure 6.2: Distribution des différences de temps entre la détection des différents signaux pour : les événements R-e-F (ligne pleine), les événements R-e-e-F (lignes pointillées) et les événements R-e-e-e-F (symboles) : du premier (carré noir), du second (triangle brun) et du dernier (cercle mauve) électron détecté. On note l'échelle logarithmique.

*Time difference distribution between the detection of different signals for: the R-e-F events (full line), the R-e-e-F events (dotted lines) and the R-e-e-e-F events (symbols): of the first (black square), the second (brown triangle) and the last (purple circle) detected electron. One can note the logarithmic scale.*

nements R-e-e-F est de  $22 \pm 4 \mu\text{s}$ . Le nombre d'événements R-e-e-e-F est trop faible pour constituer une statistique suffisante pour pouvoir extraire un temps de demi-vie avec une précision raisonnable.

Toutefois, pour une configuration à plusieurs isomères émis en cascade comme c'est le cas ici, il n'est pas possible d'assigner immédiatement les temps de vie mesurés à des états car la probabilité de détecter chaque bouffée d'électrons n'est pas de 100%. Cette dernière dépend essentiellement du temps de demi-vie et de l'énergie des transitions mises en jeu. Ainsi, pour les sélections de types R-e-F et R-e-e-F, il n'est pas possible de déterminer directement combien de bouffées ont été émises et à quelle décroissance d'état appartient chaque bouffée d'électrons détectées. De plus, les événements R-e-e-e-F ne permettent pas de discriminer ces temps de demi-vie car ils présentent un étalement important en temps de vie et une très faible statistique. En effet, leurs différences de temps mesurées sont comprises dans l'intervalle des trois autres distributions. Il faut aussi prendre en compte qu'il n'y a pas de certitude quant au nombre exact d'isomères de haut- $K$  influents dans ce noyau.

On observe, toutefois, que toutes les demi-vies en question semblent être du même ordre de grandeur. Une valeur de  $22 \pm 2 \mu\text{s}$  est probablement une première indication raisonnable pour l'ensemble des états en question. Des chiffres plus précis des temps de demi-vie sont discutés dans la Sous-section 6.3.2.

## 6.2 Spectroscopie de rayonnements $\gamma$ associés

Les rayonnements  $\gamma$  mesurés corrélés avec les états isomériques sélectionnés dans la Section 6.1.1 sont présentés dans cette section. Une recherche de rayonnements observés avec les détecteurs germanium de GREAT au niveau du plan focal ainsi que ceux de JUROGAM II autour du plan cible a été effectuée et est discutée.

L'analyse des spectres du détecteur planaire par spectroscopie retardée n'a pas donné de résultat significatif, la statistique obtenue étant extrêmement faible.

### 6.2.1 Spectroscopie des rayonnements $\gamma$ retardés - sélection isomérique

Le spectre des rayonnements  $\gamma$  en coïncidence avec les électrons de la sélection R-e-F détectés avec les trois détecteurs trèfles de GREAT constitue la Figure 6.3. La fenêtre temporelle de recherche a été optimisée, en se basant sur les spectres de différence de temps, à une valeur de  $\pm 150 \text{ ns}$  autour du signal de la bouffée d'électrons. Un total de 23 coups compose ce spectre extrêmement propre. On observe quatre événements qui correspondent aux énergies des rayonnements X de la couche K de l'élément rutherfordium. Cela conforte le fait que les rayonnements de ce spectre proviennent principalement de l'isotope d'intérêt. On ne mesure aucune transition aux énergies qui correspondent à celles des huit transitions observées de la bande de rotation basée sur l'état fondamental du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ .

Cinq rayonnements  $\gamma$  constitue de manière inambigüe un photopic à 900 keV. Ce spectre ne présente pas d'autres photopics. Les autres contributions peuvent être affiliées au bruit de fond Compton du photopic. En effet, en tenant compte d'un rapport pic sur total typique



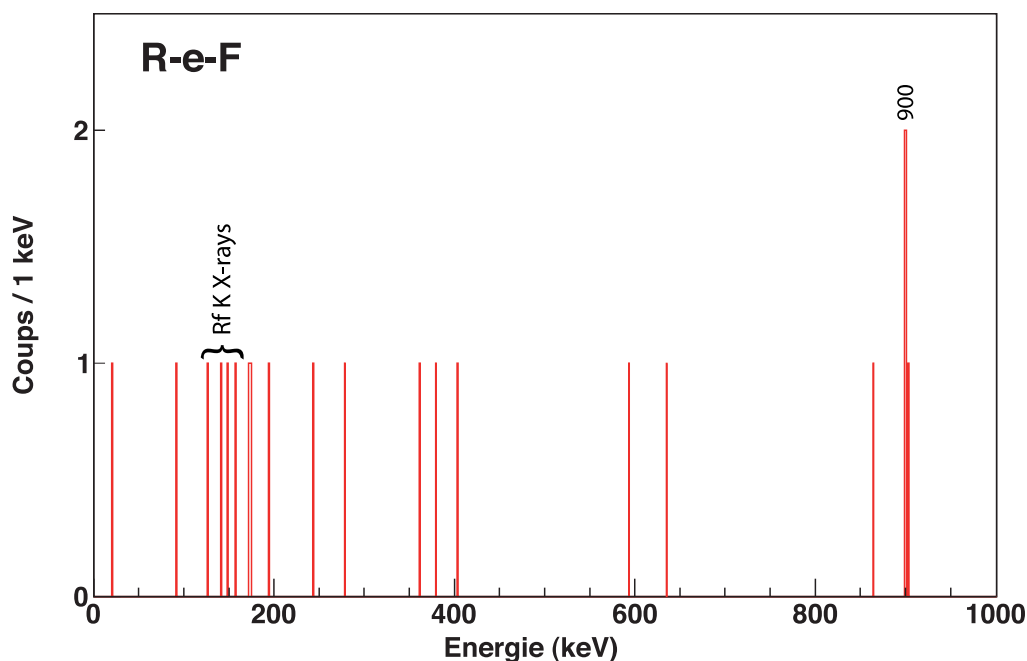


Figure 6.3: Spectre en énergie des rayonnements  $\gamma$  détectés dans les détecteurs trèfles du plan focal en coïncidence avec les bouffées d'électrons des événements R-e-F.

*Energy spectrum of  $\gamma$ -rays detected in the focal plane clover detectors in coincidence with the electron showers from the R-e-F events.*

de 0.42 provenant de la réjection Compton pour ce type de détecteur, on peut s'attendre à observer environ 7 rayonnements  $\gamma$  associés au photopic. Ceci est étayé par l'observation de 8 coups dans la gamme d'énergie qui correspond à celle du fond Compton. Ce spectre conforte ainsi celui observé dans la Référence [Jep09] (voir la Figure 4.3.B.1).

Les spectres identiques en coïncidence avec les électrons des sélections R-e-e-F et R-e-e-e-F ont été analysés en détail. Ils ne possèdent cependant pas assez de statistique pour permettre d'obtenir une quelconque indication dans cette étude.

## 6.2.2 Spectroscopie des rayonnements $\gamma$ retardés - sélection large

Comme le spectre de la Figure 6.3 présente une statistique faible, une étude similaire mais moins sélective sur les rayonnements  $\gamma$  a été réalisée avec une fenêtre de temps plus large.

Les rayonnements mesurés dans les détecteurs trèfles dans une fenêtre temporelle de 100  $\mu\text{s}$  après l'implantation d'un recul dans le DSSD sont tracés sur la Figure 6.4.A. Cette étude est uniquement possible grâce à l'extrême qualité de la sélection par la fission spontanée. Cette durée de 100  $\mu\text{s}$  correspond environ au temps nécessaire pour que sept huitièmes des isomères du  $^{256}\text{Rf}$  décroissent, c'est-à-dire trois équivalents temps de demi-vie. Une simulation validant cette valeur est présentée dans la Sous-section 6.3.4.

Sur ce spectre, on observe un photopic à 900 keV constitué de 18 coups. Cette sélection plus large permet donc d'accéder à 13 nouvelles occurrences de la transition associées aux

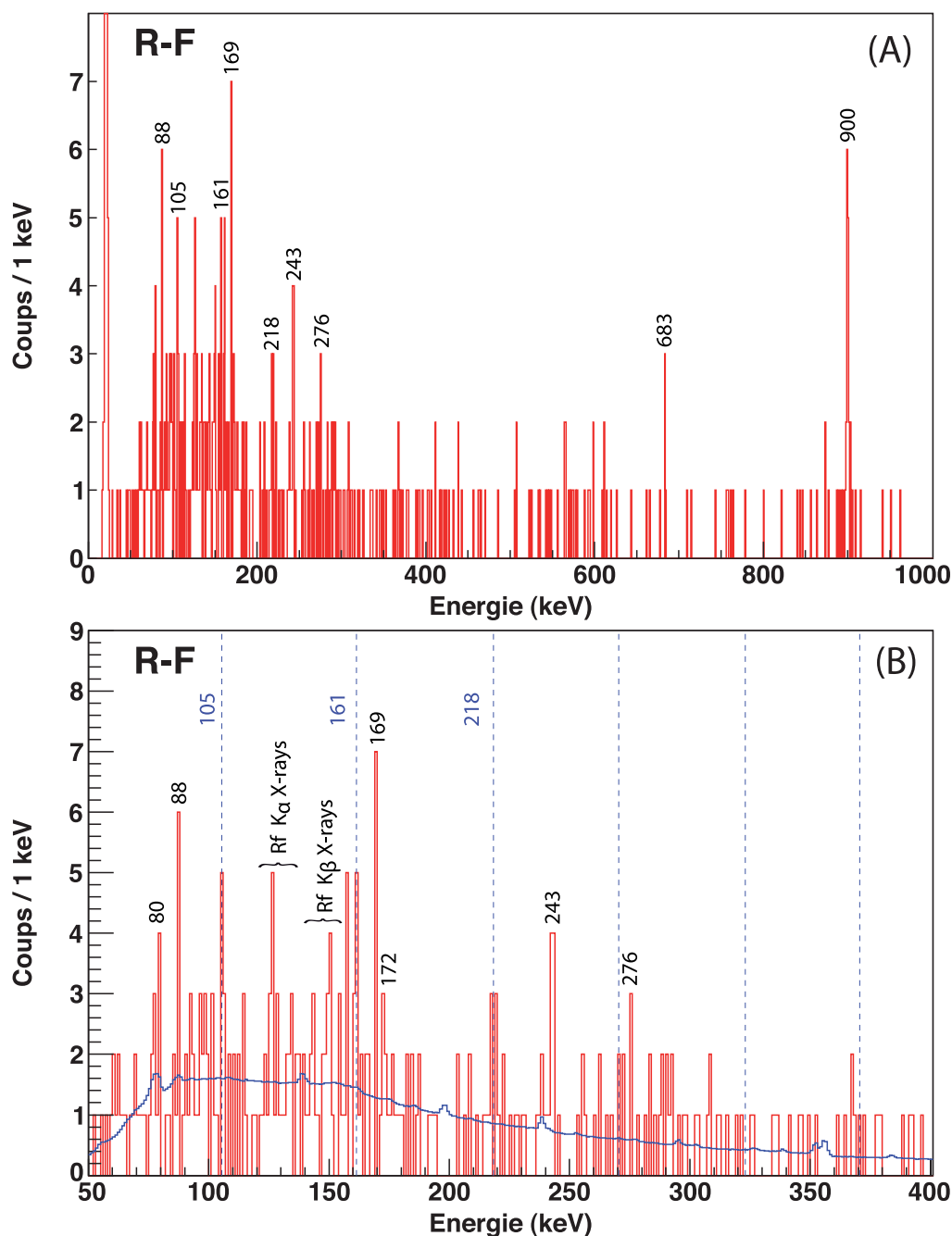


Figure 6.4: (A) : Spectre en énergie des rayonnements  $\gamma$  émis dans une fenêtre de  $100 \mu\text{s}$  après l'implantation d'un noyau de recul détectés dans les détecteurs trèfles du plan focal dans le cadre de la sélection R-F. (B) : Zoom sur la partie basse énergie de (A). Les lignes pointillées correspondent aux valeurs énergétiques des transitions attribuées à la bande de rotation basée sur l'état fondamental. Un bruit de fond normalisé au temps de mesure est superposé en bleu.

(A): Energy spectrum of the  $\gamma$ -ray, emitted in a  $100 \mu\text{s}$  time window after the recoiling nucleus implantation, detected in the focal plane clover detectors. The R-F events selection is used.

(B): Zoom on the low-energy part of (A). The dotted lines correspond to the energetic values of the transitions attributed to the ground-state rotational band. A background, normalised by the measurement time, is reported in blue.

états isomériques. Cela confirme clairement l'existence de ce photopic. Un photopic à 683 keV composé de 4 coups semble également présent. L'interprétation de ces résultats est discutée dans la section suivante.

En zoomant sur la partie basse énergie de la Figure 6.4.A, on peut observer plusieurs transitions  $\gamma$  (voir la Figure 6.4.B). Il est intéressant de tracer des lignes correspondantes aux énergies des transitions observées de la bande de rotation basée sur l'état fondamental. Ainsi, on peut pointer sur des photopics aux énergies suivantes : 105, 161 et 218 keV. Des transitions sont vues aux énergies attendues des rayonnements X de l'élément rutherfordium. On observe également d'autres transitions qui sont également discutées dans la Sous-section 6.4.2.

Un bruit de fond normalisé a été ajouté sur cette figure pour mieux interpréter les photopics observés et discuter s'ils correspondent à des transitions du noyau d'intérêt ou du bruit de fond. Cette distribution provient du spectre brut mesuré par les détecteurs trèfles et a été normalisée à la durée correspondante à la somme de l'ensemble des fenêtres de 100  $\mu\text{s}$  ouvertes pour les différents événements R-F.

### 6.2.3 Spectroscopie des rayonnements $\gamma$ prompts associés

Les rayonnements  $\gamma$  prompts associés aux états isomériques ont été recherchés en utilisant le multidétecteur JUROGAM II, situé autour de la cible. Ils ont été sélectionnés en utilisant la matrice du temps de vol dans RITU en fonction de celui dans GREAT. Ainsi, la fenêtre tracée en rouge sur la Figure 5.9 a été appliquée pour obtenir les spectres de la Figure 6.5.

Le spectre en énergie de la Figure 6.5.A prend en compte les événements R-F pour lesquels aucun électron isomérique n'est détecté, c'est-à-dire en excluant les rayonnements  $\gamma$  associés aux événements R-e-F, R-e-e-F et R-e-e-e-F. On y observe clairement la bande de rotation basée sur l'état fondamental.

La Figure 6.5.B présente le spectre des rayonnements  $\gamma$  associés strictement à des événements R-e-F, R-e-e-F et R-e-e-e-F. Les lignes pointillées bleues sont tracées aux énergies des huit transitions observées de la bande de rotation basée sur l'état fondamental pour guider l'œil. Aucune transition n'y est observée à ces énergies spécifiques. C'est la signature claire du fait que les événements dits isomériques ne sont pas liés à des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  peuplés directement au-dessus de l'état fondamental. On peut ainsi dire que les trois types de sélections utilisant des signaux d'électrons permettent bien de mettre en évidence des états isomériques et non des états basés sur l'état fondamental.

La statistique de ce spectre est très faible. Il doit être principalement composé de fluctuations statistiques. Toutefois, la transition à 400 keV semble réelle malgré sa faible statistique (4 coups). Comme il n'y a pas de statistique à cette énergie sur la Figure 6.5.A (voir la flèche verte), cela semble montrer que cette transition est liée à un état isomérique de long temps de vie.

La Figure 6.5.A correspond à la distribution de la Figure 5.10 (spectre "total") à laquelle on a soustrait la contribution de celle de la Figure 6.5.B. On en déduit que cette soustraction permet donc de nettoyer le spectre pour obtenir une meilleure représentation de la bande de rotation basée sur l'état fondamental.

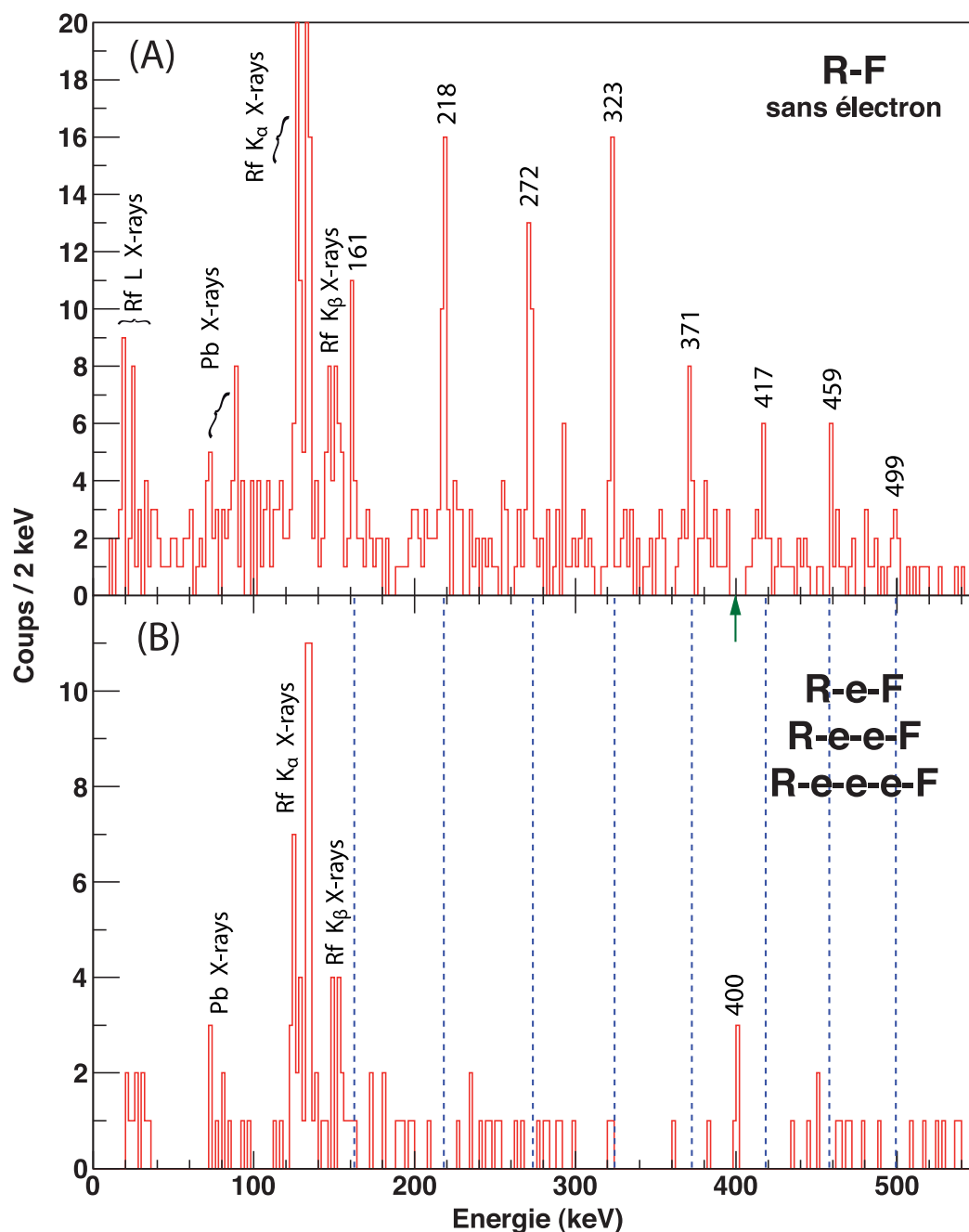


Figure 6.5: Spectre en énergie des rayonnements  $\gamma$  prompts collectés par JUROGAM II associés avec les noyaux de reculs des (A) : événements R-F sans observation de signal d'électrons. (B) : événements R-e-F, R-e-e-F et R-e-e-e-F. Les lignes pointillées bleues sont tracées aux énergies des huit transitions observées de la bande de rotation basée sur l'état fondamental étiquetées en (A). La flèche verte pointe vers l'énergie de la transition de 400 keV.

*Energy spectrum of the prompt  $\gamma$ -rays collected by JUROGAM II associated with the recoiling nuclei from (A): the R-F events without observation of an isomeric electron. (B): R-e-F, R-e-e-F and R-e-e-e-F events. Doted blue lines are drawn at the eight energies corresponding to ground-state rotational band which are labelled in (A). The green arrow points towards the 400 keV transition.*

## 6.3 Mise en évidence et caractérisation des états isomériques

### 6.3.1 Cascade d'états isomériques

Les trois types d'événements observés sont comparés dans cette sous-section afin d'interpréter les bouffées d'électrons. L'étude en spectroscopie retardée au le plan focal, entre l'implantation d'un noyau de recul et une fission spontanée, a révélé des événements avec émission de 1, 2 ou 3 bouffée(s) d'électrons en cascade. L'observation d'une bouffée d'électrons suivant l'implantation d'un noyau de recul ne peut être due qu'à une décroissance à partir d'un état isomérique de long temps de vie. La bouffée provient de la conversion interne partielle ou totale d'une cascade de transitions électromagnétiques en-dessous de l'état isomérique.

La Figure 6.1 permet d'obtenir des informations sur l'isomérisme dans le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . En effet, on observe des événements avec trois bouffées d'électrons consécutives ce qui signifie qu'il y a au moins trois états isomériques en cascade. En vue de discuter les liens entre les trois types de sélection (R-e-F, R-e-e-F et R-e-e-e-F), deux comparaisons ont été réalisées et sont décrites ci-dessous.

En premier lieu, lorsqu'on compare les énergies des trois bouffées d'électrons des événements R-e-e-e-F avec les deux distributions des événements R-e-e-F des Figures 6.1.B et 6.1.C, on observe qu'elles présentent trois gammes d'énergie distinctes :

- ◇ Les bouffées d'électrons émises en premier lors des événements R-e-e-e-F (les carrés) possèdent une énergie qui correspond à la partie haute énergie des premières bouffées des événements R-e-e-F (voir la Figure 6.1.B). Cela correspond également à la partie haute énergie des événements R-e-F (voir la Figure 6.1.A).
- ◇ Les bouffées émises en second (les triangles) ont déposé des énergies qui correspondent à la gamme du pic large de la Figure 6.1.B.
- ◇ Les cascades d'électrons émises en dernier (les cercles) ont des énergies qui correspondent à celle de la gamme du pic fin de la Figure 6.1.C.

Les distributions des secondes et troisièmes bouffées sont bien localisées alors que celle de la première possède une distribution très large. Dans le cadre de [Jep09], on note que cette configuration est similaire exception faite que la distribution des premières bouffées d'électrons chevauche celle des seconds pour les événements R-e-e-e-F.

En second lieu, on compare les distributions en énergie des événements R-e-F et R-e-e-F qui sont reportées, respectivement en traits pleins rouges et en pointillés bleus et verts, sur la Figure 6.6. Les deux distributions R-e-e-F ont été sommées et normalisées au nombre d'occurrences des événements R-e-F pour obtenir la courbe noire.

La nouvelle distribution obtenue est très similaire à la distribution des événements R-e-F, autant pour la forme, le placement du centroïde du pic que pour la contribution à haute énergie. Ces distributions semblent identiques aux variations statistiques près. Cela permet de démontrer que ces deux types d'événements proviennent très certainement des décroissances d'états isomériques identiques.

De plus, grâce à l'analyse des rayonnements  $\gamma$  prompts associés aux trois types de sélections utilisant des signaux d'électrons (voir la Sous-section 6.2.3), il est possible de mettre en évidence le fait que les événements R-e-F, R-e-e-F et R-e-e-e-F sélectionnent bien des états isomériques et non des états basés sur l'état fondamental.

Avec toutes ces considérations, il est possible de montrer que ces trois types de sélections proviennent de la décroissance de la même série d'états isomériques. On dénombre donc trois isomères ; la décroissance de chacun d'entre eux donne lieu à une bouffée d'électrons. La présence d'événements avec trois bouffées d'électrons consécutives prouve que ces trois états sont en cascade. Le noyau peut être peuplé au-dessus de chacun de ces états isomériques ou de l'état fondamental. Lors de la décroissance d'un noyau, il est donc possible de détecter de zéro à trois bouffées d'électrons par spectroscopie retardée.

Pour la suite de la discussion, les états isomériques de haut- $K$  observés sont notés (1), (2) et (3) dans l'ordre croissant d'énergie d'excitation. Ainsi, la bouffée d'électrons  $ei$  (où  $i = 1, 2$  ou  $3$ ) est émise suite à la décroissance de l'état isomérique (i) et provient de la conversion interne de la cascade de transitions  $\gamma$  située en-dessous de cet état.

De manière approximative, on peut définir un découpage en énergie pour chacune des cascades d'électrons. Les électrons des bouffées  $e1$  présentent une gamme d'énergie fine comprise entre 80 et 150 keV. Les bouffées  $e2$  ont une plage plus large allant de 80 à 200 keV

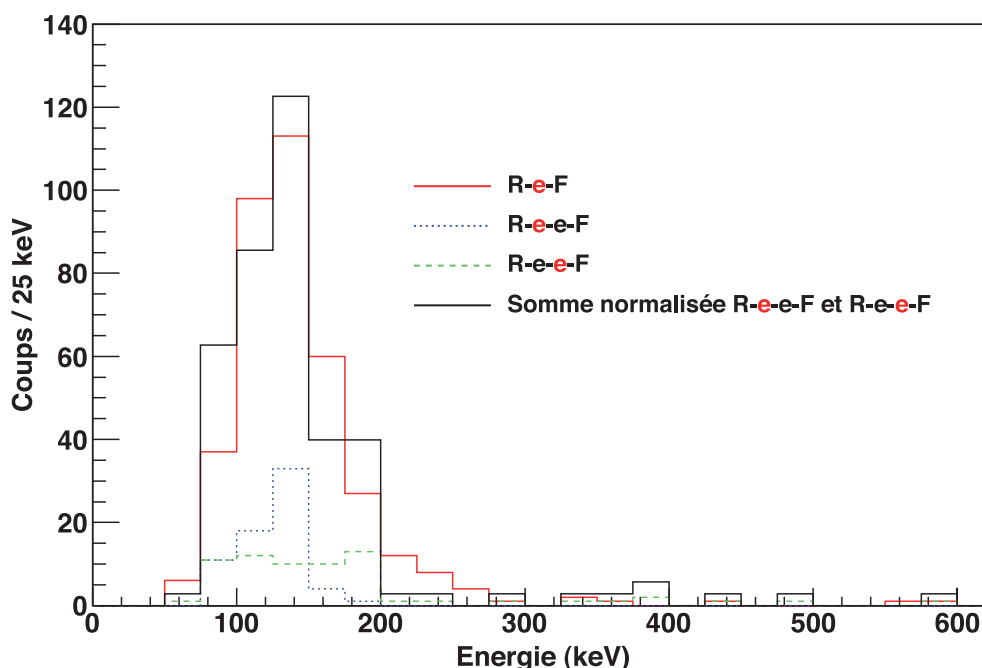


Figure 6.6: Distribution en énergie des bouffées d'électrons mesurées dans le DSSD pour les événements R-e-F et R-e-e-F. Les deux distributions en énergie des bouffées des événements R-e-e-F ont été sommées et normalisées au nombre de coups de la distribution R-e-F (courbe en noir) en vue de les comparer.

*Energy distribution of the electron showers measured in the DSSD for the R-e-F and R-e-e-F events. Both distributions of the R-e-e-F events were summed and normalized to the number of hits of the R-e-F distribution (black curve) in order to do a comparison between them.*

tandis celles notées  $e3$  sont étalées de 200 à 600 keV dans ces données. On note qu'il y a un chevauchement entre les énergies des bouffées  $e2$  et  $e3$  dans les résultats du LBNL [Jep09] (voir la Figure 4.3.A.2).

La bouffée  $e1$  peut correspondre à l'émission d'un ou plusieurs électrons de conversion correspondant aux transitions de la bande de rotation basée sur l'état fondamental. Cet aspect est discuté dans la Sous-section 6.4.3.

En se basant sur les similitudes entre ces distributions et celle de la Référence [Jep09], on peut considérer que cette partie de l'analyse permet de confirmer ces observations antérieures.

Les conditions expérimentales des trois expériences discutées sont présentées dans la Sous-section 4.4.6. La différence entre les résultats de l'expérience de l'ANL et ceux des expériences du LBNL et du JYFL peut être expliquée par l'influence conjointe de deux facteurs : premièrement, le seuil de détection en énergie du DSSD de l'ANL est plus élevé et deuxièmement, le temps mort de l'acquisition du même DSSD est plus long et moins adapté. Ces deux contraintes, et plus particulièrement la seconde, limitent fortement la détection de bouffées d'électrons, observées en très petite quantité à l'ANL. Ces aspects sont également discutés dans la Section 4.2.3. Si ces hypothèses sont correctes, les observations présentées dans la Référence [Rob11] semblent cohérentes avec celles des deux autres expériences.

On note toutes les contributions ne provenant pas d'états isomériques de haut- $K$  par (0). Il s'agit des noyaux peuplés sur la bande de rotation basée sur l'état fondamental ou par des structures parallèles possédant de petites durées de vie.

### 6.3.2 Temps de demi-vie

Une première estimation des temps de demi-vie pour chacun des trois états isomériques à  $22 \pm 2 \mu\text{s}$  a été extraite de la Figure 6.2 (voir la discussion de la Sous-section 6.1.3).

Des valeurs plus précises ont été déterminées en tenant compte des discussions de la sous-section précédente. En effet, on peut prendre en compte les intervalles d'énergie dans les distributions de la Figure 6.1 pour sélectionner les événements et attribuer plus précisément la décroissance à son état père. Les temps de demi-vie ont été calculés à partir des différences de temps de chacun des ensembles définis ci-après.

Les attributions aux décroissances des différents isomères, en partant de l'état isomérique de plus haute énergie, ont été réalisées de la manière suivante :

- ◇ Le temps de demi-vie de l'état (3) a été estimé en utilisant les contributions des premières bouffées d'électrons des événements R-e-e-F, de celles des premières bouffées des événements R-e-e-F ayant une énergie supérieure à 200 keV et celles ayant une énergie supérieure à 200 keV pour les événements R-e-F. La valeur obtenue est de  $27 \pm 6 \mu\text{s}$ .
- ◇ Le temps de demi-vie de l'état (2) a été estimé en utilisant les contributions des secondes bouffées des événements R-e-e-e-F et les premières des événements R-e-e-F ayant une énergie supérieure à 200 keV. On obtient un temps de demi-vie de  $18 \pm 4 \mu\text{s}$ .
- ◇ Le temps de demi-vie de l'état (1) a été estimé en utilisant les contributions des troisièmes bouffées d'électrons des événements R-e-e-e-F et les secondes des événements R-e-e-F pour obtenir un temps de demi-vie de  $23 \pm 4 \mu\text{s}$ .

Les valeurs obtenues sont contenues dans le Tableau 6.2 et comparées avec celles des deux autres expériences similaires. Elles sont en très bon accord avec les valeurs de la Référence [Jep09].

Expérience	Etat (1)	Etat (2)	Etat (3)
Ce travail	$23 \pm 4 \mu\text{s}$	$18 \pm 4 \mu\text{s}$	$27 \pm 6 \mu\text{s}$
Réf. [Jep09]	$25 \pm 2 \mu\text{s}$	$17 \pm 2 \mu\text{s}$	$27 \pm 5 \mu\text{s}$
Réf. [Rob11]	$19 \pm 5 \mu\text{s}$	-	-

Tableau 6.2: Temps de demi-vie mesurés pour les trois états isomériques identifiés dans le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  pour ce travail. Les valeurs présentées dans les Références [Jep09] et [Rob11] sont présentées pour comparaison.

*Measured half-lives for the three identified isomeric states in the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus with this work. The values published in the References [Jep09] and [Rob11] are reported for comparison.*

### 6.3.3 Rapports isomériques

Les résultats expérimentaux ont montré l'existence de quatre états de long temps de vie : l'état fondamental et trois états isomériques. D'après les mêmes observations, lors de sa création, le noyau peut être peuplé directement au-dessus de chacun de ces états. On cherche à obtenir les rapports isomériques, c'est-à-dire les rapports de peuplement de chacun de ces états.

On pose l'hypothèse que seules ces quatre possibilités existent dans ce noyau. Toutefois, il faut noter qu'il n'existe pas de preuve qu'il s'agisse des seuls états de long temps de vie pouvant être peuplés dans ce noyau. En effet, un ou plusieurs états peuvent ne pas être observés pour des raisons énergétiques, de temps de demi-vie très court par rapport au temps de vol dans RITU ou de très faible peuplement. La contribution notée (0) est donc la somme des contributions des états n'impliquant pas de temps de vie dans le processus le liant à l'état fondamental.

Les différents paramètres à prendre en compte sont discutés les uns après les autres dans cette sous-section.

#### 6.3.3.1 Effet du temps mort sur la détection

Pour pouvoir calculer la probabilité de détecter une bouffée d'électrons, il faut tenir compte du temps mort de l'acquisition au niveau du DSSD qui est environ de  $12 \mu\text{s}$ . En effet, cette valeur est du même ordre de grandeur que celles des temps de demi-vie mesurés. Cela entraîne une influence forte du temps mort sur la détection des bouffées d'électrons dans le cas d'une succession d'états isomériques.

Pour obtenir une quantification de l'influence de cette perte, on peut analyser la Figure 6.7. Il s'agit de la distribution de la différence de temps entre la détection d'un noyau de recul et d'une bouffée d'électrons pour les événements R-e-F. Elle a été extrapolée par la courbe attendue pour le temps de demi-vie correspondant (soit  $22 \mu\text{s}$ ). L'extrapolation a



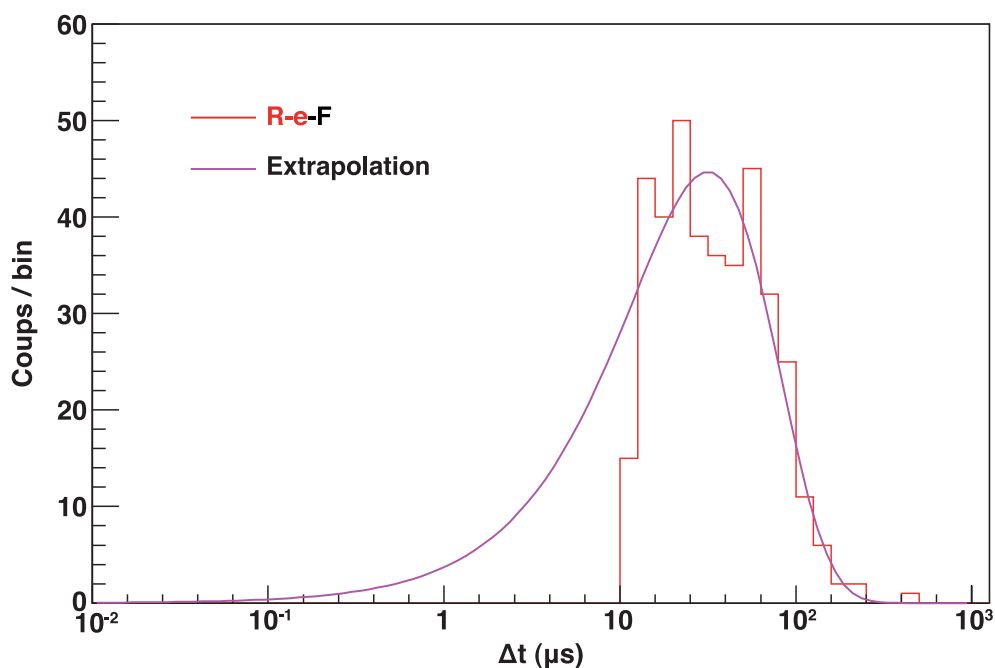


Figure 6.7: Distribution des différences de temps entre la détection du noyau de recul et de la bouffée d'électrons pour les événements R-e-F extrapolée, en se basant sur la partie temporelle haute, par l'Equation 5.6. La différence d'aire entre les deux distributions permet d'obtenir une bonne approximation de la perte induite par le temps mort.

*Time difference distribution between the detection of a recoiling nucleus and an electron shower for the R-e-F events. It is extrapolated by the Equation 5.6. The area difference between both of them allows obtaining a good approximation of the loss due to the deadtime.*

été réalisée en se basant uniquement sur la partie droite de la distribution, non affectée par le temps mort, en utilisant l'Equation 5.6. Le rapport entre l'aire de la distribution et celle en-dessous de l'extrapolation est de 72.3%. Il y a donc une non-détection d'environ 28% des bouffées d'électrons due au temps mort de 12  $\mu\text{s}$  pour un état isomérique de temps de demi-vie de 22  $\mu\text{s}$ .

Des extrapolations du même type ont été réalisées sur les distributions correspondant aux décroissances des trois états isomériques (1), (2) et (3). Les pertes induites par les temps morts sont notées dans le Tableau 6.3. Plus le temps de demi-vie est court, plus l'influence du temps mort est élevée.

	Etat (1)	Etat (2)	Etat (3)
Temps de demi-vie	$23 \pm 4 \mu\text{s}$	$18 \pm 4 \mu\text{s}$	$27 \pm 6 \mu\text{s}$
Perte par temps mort	26.6%	32.7%	22.8%

Tableau 6.3: Proportions d'événements non détectés dans le DSSD à cause du temps mort de l'acquisition. Ces valeurs dépendent du temps de demi-vie des états isomériques en question.

*Proportions of non-detected events in the DSSD caused by the 12  $\mu\text{s}$  acquisition deadtime. These values depend on the half-life value of each isomeric state.*

### 6.3.3.2 Probabilités de détection

On cherche à remonter aux nombres de noyaux peuplés pour chaque possibilité de peuplement direct : les états (0), (1), (2) et (3). Pour chacune de ces voies, il est possible d'observer au maximum un certain nombre de bouffées d'électrons. On note, par exemple,  $P_{(i)}(e_j, e_k)$  la probabilité de détecter la bouffée  $e_j$  et de ne pas détecter la bouffée  $e_k$  en ayant peuplé directement le noyau au-dessus de l'état isomérique (i).

Les quatre cas de figure existants sont discutés ci-dessous :

- ◇ Si le noyau est peuplé au-dessus de l'état fondamental (0) : aucun électron isomérique ne pourra être observé.
- ◇ Si le noyau est peuplé au-dessus de l'état (1) : il est uniquement possible d'observer la bouffée d'électrons  $e_1$  avec une probabilité  $P_{(1)}(e_1)$  ou ne pas l'observer avec une probabilité  $P_{(1)}(e_1)$ .
- ◇ Si le noyau est peuplé au-dessus de l'état (2) : il est possible d'observer les deux bouffées consécutives  $e_1$  et  $e_2$ , uniquement un des deux électrons ou aucun des deux. Cela mène respectivement aux quatre probabilités suivantes :  $P_{(2)}(e_1, e_2)$ ,  $P_{(2)}(e_1, e_2)$ ,  $P_{(2)}(e_1, e_2)$  et  $P_{(2)}(e_1, e_2)$ .
- ◇ Si le noyau est peuplé au-dessus de l'état (3) : il est possible d'observer de zéro à trois bouffées ( $e_1, e_2$  et  $e_3$ ). Cela amène aux huit probabilités notées  $P_{(3)}(e_1, e_2, e_3)$ ,  $P_{(3)}(e_1, e_2, e_3)$ ,  $P_{(3)}(e_1, e_2, e_3)$ ,  $P_{(3)}(e_1, e_2, e_3)$ ,  $P_{(3)}(e_1, e_2, e_3)$ ,  $P_{(3)}(e_1, e_2, e_3)$  (si, par exemple, seule la décroissance du second état isomérique est détectée),  $P_{(3)}(e_1, e_2, e_3)$  et  $P_{(3)}(e_1, e_2, e_3)$ .

Le nombre d'événements observés dépend de l'efficacité de détection. La fission donnant lieu à deux fragments de fission, émis à 180 degrés l'un de l'autre, la probabilité de détecter la fission spontanée est estimée à 100%. Etant donné qu'un noyau de recul s'implante peu profondément dans le DSSD, on peut considérer que l'efficacité de détection géométrique d'un électron est proche de 50% en première approche. Or, il s'avère que l'on observe des bouffées qui peuvent être composées de deux ou plusieurs électrons. La probabilité de détecter cette bouffée est supérieure à celle de détecter individuellement chacun de ces électrons. Si on néglige les effets de temps mort et de seuil, la probabilité de détecter  $n$  électrons émis dans une bouffée est de  $(1-(0.5)^n)$ . Ainsi, pour deux électrons dans une bouffée, cette probabilité est de 75%. De plus, si l'un des électrons a une énergie inférieure au seuil de détection, le fait que les charges qu'il génère se retrouvent dans une bouffée, fait qu'ensemble ils passeront le seuil de détection !

Pour pouvoir calculer les probabilités de la liste ci-dessus, il faut tenir compte de la détection ou non de la bouffée précédente. Si pour une série de bouffées d'électrons, la bouffée  $n-1$  est détectée, cela va influencer, via la perte due au temps mort, sur la détection de la bouffée  $n$ . Au contraire, si la bouffée  $n-1$  n'est pas détectée, on considère que la probabilité de détection de  $n$  n'est pas influencée par le temps mort. De plus, il faut également prendre en compte le fait que la première bouffée émise subit l'influence du temps mort induit par la détection de l'implantation du noyau de recul qui possède une probabilité proche de 100% ; similaire à celle de la détection de la décroissance du noyau par fission spontanée.

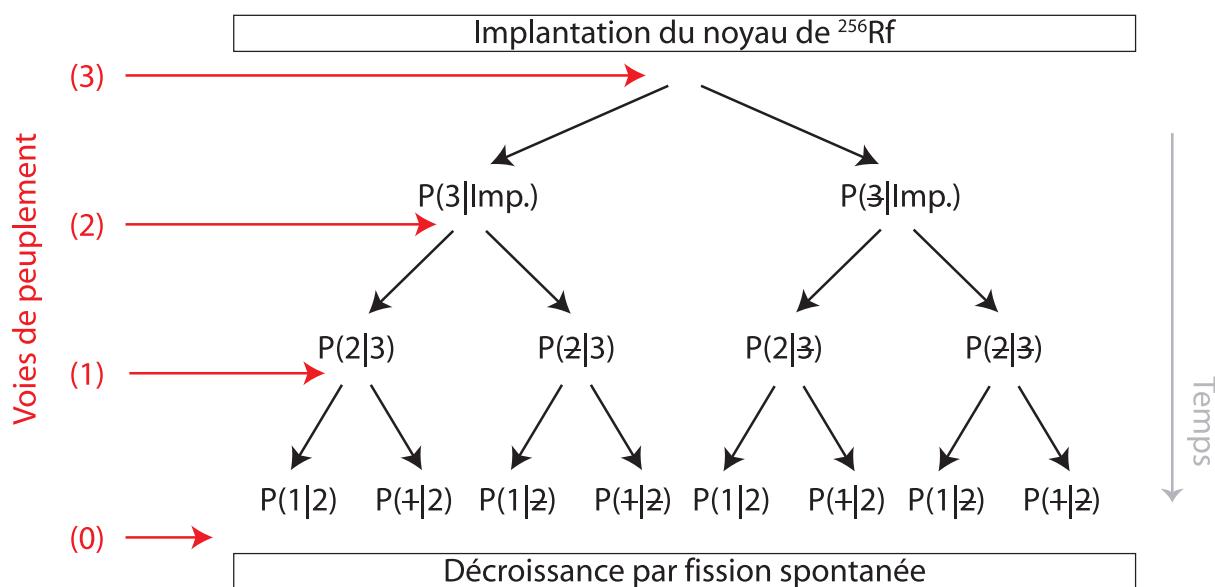


Figure 6.8: Schéma des probabilités conditionnelles de détection des bouffées d'électrons du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Les valeurs dépendent de la détection ou non de la particule précédente ce qui peut induire une perte du signal à cause du temps mort. Les flèches rouges indiquent les quatre voies de peuplement possibles pour ce noyau.

*Detection probabilities diagram of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus decay. These values depend on the detection of the previous particle which can induce a signal loss due to the deadtime. The red arrows point the different feeding branchings of this nucleus.*

Différentes probabilités conditionnelles sont schématisées sur la Figure 6.3.3.2. Les quatre voies de peuplement identifiées pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  sont tracées en rouge. On y observe les embranchements en fonction du peuplement. Les probabilités présentées sont inscrits dans le cadre d'un peuplement au-dessus de l'état (3). Plus le noyau est peuplé dans un état isomérique de haute énergie d'excitation, plus le nombre de possibilités de chemine-ments de décroissance augmente. Comme on le voit dans la figure, cette valeur est doublée à chaque état isomérique supplémentaire. Toutes les probabilités présentées ont été calculées en suivant ces conditions.

### 6.3.3.3 Calculs du peuplement des états - première approche

L'objectif est l'obtention des nombres de noyaux créés dans chacun des états notés  $N_0$  pour la somme des contributions ne passant pas par un état de long temps de vie et respectivement  $N_1$ ,  $N_2$  et  $N_3$  pour les états (1), (2) et (3). On définit  $N_{iso}$  comme le nombre total de noyaux peuplés au-dessus d'un des trois états isomériques.  $N_{tot}$  est le nombre total de noyaux de  $^{256}\text{Rf}$  identifiés tel que :

$$N_{tot} = N_0 + N_1 + N_2 + N_3 = N_0 + N_{iso} = 2210 \quad (6.1)$$

Pour calculer ces quantités, on définit le nombre de bouffées d'électrons observées correspondant à la décroissance de l'état (i) que l'on note  $E_i$ . Ces valeurs sont obtenues en se

basant sur les découpages des distributions énergétiques de la Figure 6.1. Dans cette première approche, on choisit une probabilité de détection de 50% pour une bouffée d'électrons. L'influence du temps mort discutée dans le paragraphe 6.3.3.2 est prise en compte.

Pour illustrer, on prend comme exemple la probabilité de détecter les trois électrons émis successivement  $P_{(3)}(e1, e2, e3)$ . Sans l'influence du temps mort, cette probabilité serait de 12.5% (trois fois 50% de probabilité de détecter un électron). En tenant compte pour chacun de ces électrons de la probabilité de non-détection dû au temps mort donnée dans le Tableau 6.3, la probabilité discutée est estimée à 4.8%.

Plusieurs raisonnements sont nécessaires pour obtenir les nombres de noyaux produits au-dessus de chaque état isomérique et vont être présentés successivement.

Les distributions des sélections R-e-e-F sont composées de quatre événements qui sont nécessairement peuplés au-dessus de l'état isomérique (3). De fait, on a  $E_3 = 4$ . En effet, il s'agit de la seule configuration pour laquelle il est possible d'observer trois bouffées d'électrons en cascade. On peut accéder à la valeur de  $N_3$  avec la formule :

$$E_3 = N_3 \cdot P_{(3)}(e1, e2, e3) \quad (6.2)$$

$$\Leftrightarrow N_3 = \frac{E_3}{P_{(3)}(e1, e2, e3)} = 84 \pm 46 \quad (6.3)$$

Cette valeur est cependant très approximative étant donné la faible statistique obtenue pour ce type d'événement. Il s'agit d'une estimation permettant d'avoir un aperçu du nombre de noyaux peuplés.

On peut accéder aux valeurs de  $N_2$  et de  $N_3$  en utilisant la distribution des premières bouffées émises des événements R-e-e-F (voir la Figure 6.1.B). Il ne peut s'agir que de bouffées  $e2$  et  $e3$  étant donné que les bouffées  $e1$  ne peuvent pas être émises en premières dans ce cas. On considère que toutes les bouffées dont l'énergie est inférieure à 200 keV correspondent à des  $e2$  (un total de  $E_2 = 57$  événements) et que celles ayant une énergie supérieure à 200 keV correspondent à des  $e3$  ( $E'_3 = 10$  événements). Le choix de cette valeur énergétique est basé sur le fait que l'on observe une coupure nette entre la statistique en-dessous et au-dessus de celle-ci et en se basant sur les distributions des événements R-e-e-e-F. Une autre stratégie de coupure entre les distributions est discutée plus loin.

Si la première bouffée observée est une  $e3$  alors le noyau fait forcément partie des  $N_3$  noyaux peuplés au-dessus de l'état (3). Etant donné que l'on observe uniquement deux bouffées, la seconde observée peut être soit une  $e1$ , soit une  $e2$ . Une de ces deux n'a pas été détectée par le DSSD. Le nombre de bouffées  $E'_3$  est donc dépendant de ces deux probabilités tel que :

$$E'_3 = N_3 \cdot (P_{(3)}(e1, e2, e3) + P_{(3)}(e1, e2, e3)) \quad (6.4)$$

$$\Leftrightarrow N_3 = \frac{E'_3}{(P_{(3)}(e1, e2, e3) + P_{(3)}(e1, e2, e3))} = 48 \pm 14 \quad (6.5)$$

Cette valeur, bien que différente, est cohérente avec celle obtenue via l'Equation 6.3 en tenant compte des barres d'erreurs.

Avec un raisonnement similaire, on peut calculer le nombre d'événements  $E_2$ . Si la première bouffée observée est une  $e2$  alors le noyau fait partie des  $N_2$  noyaux peuplés au-dessus de l'état (2) ou des  $N_3$  noyaux peuplés au-dessus de l'état (3) dont la bouffée  $e3$  n'a pas été détectée. Etant donné que l'on observe uniquement deux bouffées, la seconde observée ne peut être qu'une  $e1$ . Le nombre de bouffées  $E_2$  est donc dépendant des deux probabilités de ces événements tel que est :

$$E_2 = N_2 \cdot P_{(2)}(e1, e2) + N_3 \cdot P_{(3)}(e1, e2, e3) \quad (6.6)$$

$$\Leftrightarrow N_2 = \frac{E_2 - N_3 \cdot P_{(3)}(e1, e2, e3)}{P_{(2)}(e1, e2)} = 418 \pm 89 \quad (6.7)$$

La valeur manquante  $N_1$  peut être extraite de la distribution en énergie des bouffées d'électrons R-e-F (voir la Figure 6.1.A) en utilisant les valeurs de  $N_2$  et de  $N_3$ . Les bouffées de type  $e1$  peuvent provenir de noyaux peuplés au-dessus de chacun des trois états isomériques. Dans chaque cas, on observe une unique bouffée ce qui limite le nombre de possibilités. On y compte  $E_1 = 382$  bouffées d'électrons. Cette valeur dépend donc de plusieurs probabilités tel que :

$$E_1 = N_1 \cdot P_{(1)}(e1) + N_2 \cdot (P_{(2)}(e1, e2) + P_{(2)}(e1, e2)) + N_3 \cdot (P_{(3)}(e1, e2, e3) + P_{(3)}(e1, e2, e3) + P_{(3)}(e1, e2, e3)) \quad (6.8)$$

$$\Leftrightarrow N_1 = \frac{E_1 - (N_2 \cdot \sum P_{(2)} + N_3 \cdot \sum P_{(3)})}{P_{(1)}(e1)} = 358 \pm 100 \quad (6.9)$$

En additionnant les trois résultats successifs, on obtient ainsi une valeur  $N_{iso}$  du nombre de noyaux peuplés initialement au-dessus d'un état isomérique de :

$$N_{iso} = N_1 + N_2 + N_3 = 824 \pm 134 \quad (6.10)$$

Les rapports isomériques des états (1), (2) et (3) sont donc respectivement de  $16 \pm 4\%$ ,  $19 \pm 4\%$  et  $2 \pm 1\%$ . Le rapport isomérique total de ce noyau est alors de  $38 \pm 6\%$ . Cela correspond à  $N_0 = 1386 \pm 226$  noyaux non peuplés par un état isomérique de haut- $K$ .

#### 6.3.3.4 Calculs du peuplement des états - notion de coupures

Si l'on inspecte la distribution de la Figure 4.3 (provenant de [Jep09]), on observe pour les événements R-e-e-F un chevauchement entre les distributions  $e2$  et  $e3$ . Dans ce cadre-ci, la coupure franche à 200 keV pour les premières bouffées des événements R-e-e-F ne semble être qu'approximative. On émet l'hypothèse d'un chevauchement entre les deux distributions des états (2) et (3) dans les données de ce travail.

Expérience	Coupure	Total	Etat (1)	Etat (2)	Etat (3)
Ce travail	Franche	$37 \pm 6\%$	$16 \pm 4\%$	$19 \pm 4\%$	$2 \pm 1\%$
Ce travail	Chevauchement	$38 \pm 6\%$	$18 \pm 4\%$	$17 \pm 4\%$	$3 \pm 1\%$
Réf. [Jep09]	Chevauchement	$40 \pm 6\%$	$18 \pm 5\%$	$20 \pm 4\%$	$2 \pm 1\%$

Tableau 6.4: Comparaison des rapports isomériques expérimentaux calculés pour ce travail avec deux hypothèses de découpage des événements. Les rapports obtenus de la même manière pour les expériences de la Référence [Jep09] sont ajoutés à titre comparatif.

*Comparison of the experimental isomeric ratios calculated for this work with two different ways to cut event distributions. The isomeric ratios obtained using the same procedure for the Reference [Jep09] are added for comparison.*

Sur la Figure 6.1, on observe dix coups correspondant à des bouffées d'électrons sur la plage d'énergie supérieure à 200 keV. Ils sont repartis sur une zone de 13 canaux de largeur de 25 keV. La zone des électrons  $e2$  est, quant à elle, constituée de 5 canaux. On peut émettre l'hypothèse que la distribution des  $e3$  chevauche celle des  $e2$  sur dans toute la plage d'énergie, au même niveau que celui observé au-delà de 200 keV. En calculant un rapport entre ces différentes valeurs, on estime alors qu'il y a 3 bouffées  $e3$  dans la portion de distribution située en-dessous de la barre de 200 keV. La répartition obtenue est ainsi de 54 événements  $e2$  pour 13 événements  $e3$ .

Les rapports isomériques ont également été calculés pour cette hypothèse avec la procédure, dite "de chevauchement", décrite ci-avant. Le même calcul a également été réalisé avec les distributions extraites de [Jep09] avec une considération de chevauchement et en tenant compte du temps mort de 14  $\mu$ s pour l'acquisition du LBNL.

Les séries de résultats sont comparées dans le Tableau 6.4. On observe que la considération du chevauchement ne change pas les rapports qui restent dans les barres d'erreur. Les trois séries sont toutes consistantes les unes par rapport aux autres en tenant compte des barres d'erreurs. On peut ainsi donner une estimation du rapport isomérique total à environ 30 à 40%. On note par contre que le rapport isomérique total a été estimé à  $5 \pm 2\%$  dans [Rob11] sur la base d'événements R-e-F.

### 6.3.3.5 Calculs du peuplement des états - seuils en énergie

Les calculs précédents ne prennent pas en compte les effets de seuil de détection ainsi que la notion du nombre d'électrons par bouffée. En effet, pour en observer une, il faut que la somme énergétique des électrons détectés dépassent l'énergie seuil qui est  $\approx 75$  keV. Chaque électron d'une bouffée a environ une chance sur deux d'être détecté car le noyau de recul s'est peu profondément implanté. Pour obtenir les rapports isomériques exacts, il est donc nécessaire de connaître avec précision les énergies des transitions entre les différents états. Ne connaissant pas ces valeurs, il n'est donc pas possible d'obtenir une valeur précise des rapports isomériques dans le cadre de cette expérience. Les rapports du Tableau 6.4 sont donc approximatifs.

Néanmoins, une simulation de ces rapports peut être effectuée en posant des hypothèses sur les énergies des cascades de transitions électromagnétiques en-dessous d'un état isomérique. Pour réaliser cette simulation, j'ai généré un programme qui, pour chaque cascade, calcule la probabilité qu'un signal soit détecté dans le DSSD. Comme chaque rayonnement a une probabilité d'être converti en électron, les diverses combinaisons possibles sont calculées avec les facteurs de [Kib08, Bricc]. Les possibilités de conversion sur les sept premières couches électroniques (de K à Q) sont prises en compte. Pour chaque transition, la probabilité de détecter une cascade d'au-moins 75 keV est calculée. Une efficacité géométrique de détection de 50% pour chaque électron est considérée. Les premiers résultats obtenus permettent de mettre en évidence un rapport isomérique total compris entre 30 et 40% selon le scénario considéré, ce qui est consistant avec les résultats présentés ci-avant.

Les simulations réalisées ne prennent toutefois pas compte du réarrangement du nuage électronique (rayonnements X, électrons Auger et Cöster-Krönig). Cet aspect est à ajouter afin de réaliser un calcul plus réaliste. De plus, il serait également possible de simuler un effet de seuil qui tient compte d'une distribution non uniforme autour de 75 keV pour être encore plus précis.

Cette étude de rapports isomériques pourrait également être affinée avec l'apport de données à plus haute statistique qui donnerait accès aux valeurs exactes des énergies des transitions concernées. Il est aussi envisagé de reproduire les travaux présentés avec l'apport de la simulation (avec le logiciel GEANT4) pour obtenir des efficacités de détection des bouffées d'électrons plus réalistes.

### 6.3.4 Temps de demi-vie équivalent

Trois états isomériques ont été identifiés, leur temps de demi-vie mesurés et plusieurs rapports isomériques ont été discutés. A partir de ces informations, le temps de demi-vie équivalent des états isomériques en cascade a été calculé, c'est-à-dire le temps pour que les sept huitièmes des noyaux peuplés au-dessus d'un état isomérique ne le soient plus.

Pour cela, j'ai développé un code, utilisant la méthode de calcul numérique Runge-Kutta au 4<sup>ème</sup> ordre, qui va simuler la décroissance radioactive des trois états isomériques en se basant sur les temps de demi-vie présentés dans le Tableau 6.2.

A temps nul, le nombre de noyaux pour chaque état correspond aux nombres  $N_i$  obtenus pour la première hypothèse (avec chevauchement) présentée dans la Sous-section 6.3.3. A chaque itération (par pas d'une microseconde), le programme simule, en se basant sur les temps de demi-vie, le nombre de noyaux décroissant à partir de chacun des états (1), (2) et (3) et met à jour les valeurs de  $N_i$ . Lorsqu'un noyau décroît de l'état  $n$ , il passe à l'état  $n - 1$ . S'il atteint l'état fondamental (0), il n'est plus pris en compte dans la somme des noyaux qui est calculée à chaque itération.

Cette simulation permet d'obtenir le temps nécessaire pour que l'équivalent de trois temps de demi-vie du système se soit écoulé comme cela est illustré sur la Figure 6.9. Ce temps est défini par le code dès lors qu'il ne reste plus qu'un huitième des états isomériques originels. Dans le cas de l'hypothèse dite de chevauchement pour l'expérience du JYFL, un temps de 96  $\mu\text{s}$  est obtenu. On note que le temps de demi-vie initial du système est de 37  $\mu\text{s}$ .

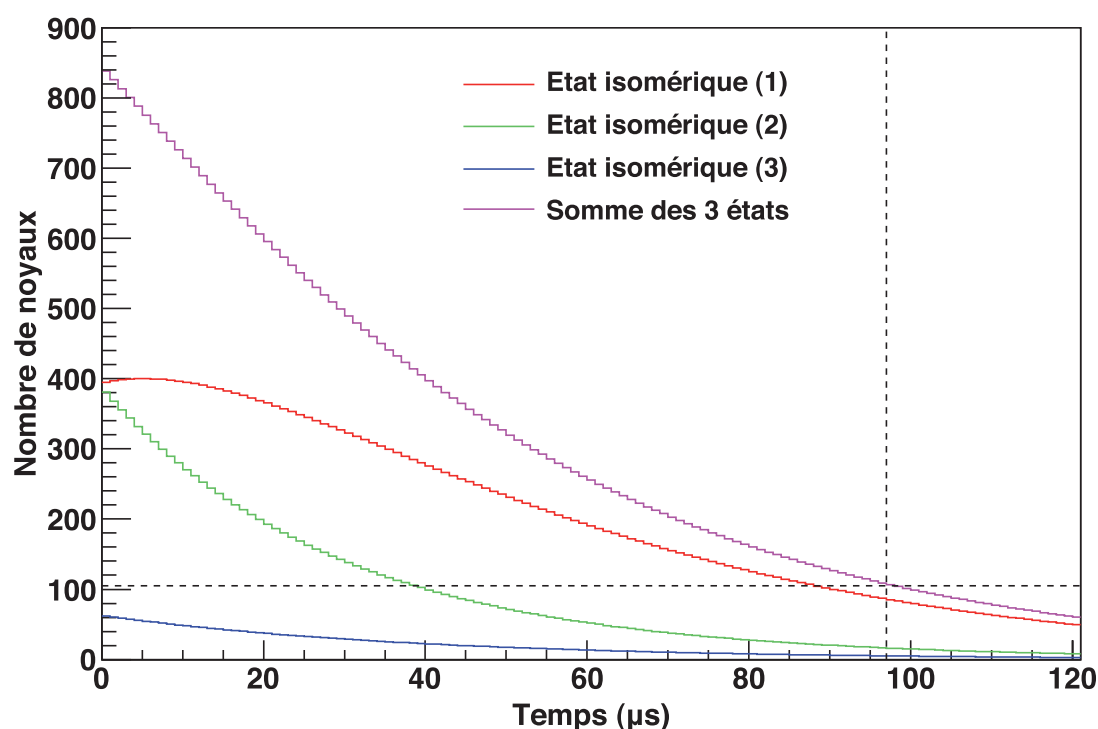


Figure 6.9: Simulation de la décroissance des états isomériques du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Le nombre de noyaux initiaux est basé sur la première hypothèse de coupure franche. Les traits pointillés symbolisent le temps nécessaire pour la décroissance de sept huitièmes des états, c'est-à-dire la durée de trois temps de demi-vie équivalents pour ce système à trois états isomériques.

*Simulation of the time needed for the decay of the  $^{256}\text{Rf}$  nuclei populated in an isomeric state. The numbers of initial nuclei result from the first cutting hypothesis. The dotted lines symbolize the needed time for the decay of seven eighths of the nuclei. It is equivalent to the duration of three equivalent half-lives for this three isomeric states-system.*

Ces valeurs sont donc en accord avec celle de  $100\ \mu\text{s}$  choisie pour la fenêtre large utilisée dans la Sous-section 6.2.2. Cette simulation confirme ainsi que ce choix était adéquat et a permis de récupérer suffisamment d'événements d'intérêt en minimisant le bruit de fond.

## 6.4 Assignement des états isomériques

### 6.4.1 Introduction

L'assignement et l'interprétation des trois états isomériques de haut- $K$  notés (1), (2) et (3) sont discutés dans cette section. Il y a typiquement deux voies de décroissance possibles pour expliquer le long temps de vie d'un état isomérique. Elles sont présentées schématiquement sur la Figure 6.10. Dans le premier cas, la grande valeur du  $\Delta K$  entre les états reliés par la transition  $\gamma$  induit une interdiction de cette transition. Elle ne peut se faire qu'au travers d'impuretés de la fonction d'onde induisant une durée de vie de l'état de départ (chemine-



ment A). Dans le second cas, la valeur de  $\Delta K$  entre les états reliés par la transition  $\gamma$  est faible, cette dernière est donc autorisée. La durée de vie provient de la faible énergie de la transition  $\gamma$  (cheminement B). Le schéma de désexcitation du noyau de  $^{250}\text{Fm}$  présente un bon exemple de coexistence et compétition de ces deux types de décroissances. Ce noyau présente en effet ces deux possibilités dans le cadre de la décroissance de l'état isomérique  $K = 8^-$  (voir le schéma de niveaux de la Figure 2.11).

Par ailleurs, une transition entre états de petit  $\Delta K$  et avec une grande différence d'énergie correspond en général à une transition autorisée très probable. L'état de départ ne présente donc pas long temps de vie et ne peut être observé en spectroscopie retardée que si elle fait suite à la décroissance d'un état isomérique. À l'extrême inverse, une transition de petite énergie avec un grand  $\Delta K$  serait elle très fortement empêchée, et serait difficilement observable.

Dans le cadre de la spectroscopie retardée du  $^{256}\text{Rf}$ , nous disposons des durées de vie des états isomériques observés, de transitions  $\gamma$  et de cascades d'électrons correspondant à différentes étapes de décroissance de ces états. C'est sur ces bases que les assignements des trois états isomériques observés vont être discutés au sein de cette section. Ces isomères étant en cascade, ils seront analysés les uns après les autres dans l'ordre croissant d'énergie d'excitation, avec pour objectif d'interpréter ces états en terme de particules individuelles et de quasi-particules.

Dans un premier temps, l'assignement de l'état isomérique noté (1) est discuté. Pour cela, les trois uniques informations expérimentales disponibles sont utilisées : le temps de demi-vie mesuré (23  $\mu\text{s}$ ), les rayonnements  $\gamma$  observés (voir la Sous-section 6.4.2) puis les électrons de conversion observés (voir la Sous-section 6.4.3).

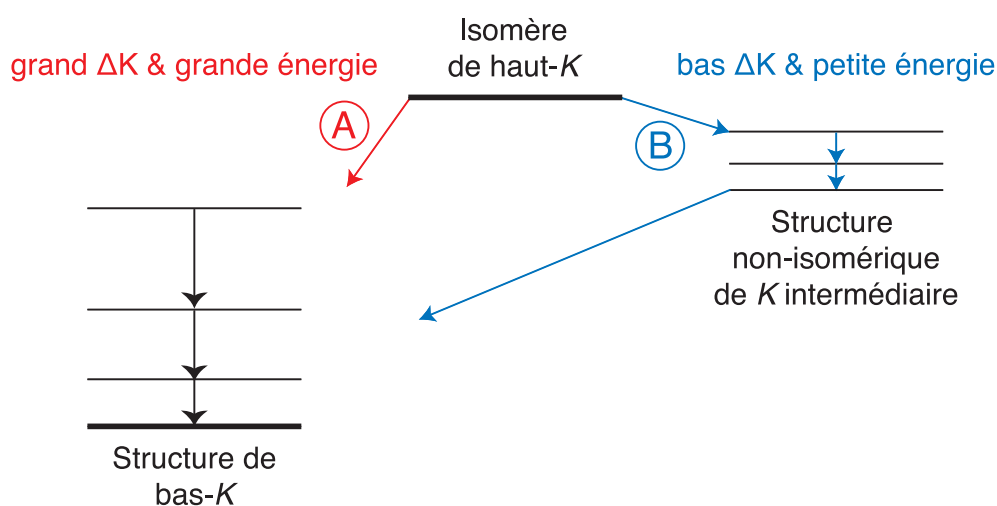


Figure 6.10: Illustration des deux chemins de décroissance possibles pouvant expliquer le long temps de vie d'un état isomérique. Dans le cas A, la durée de vie est due à un  $\Delta K$  fort alors que dans le cas B, elle est due à une faible énergie de transition  $\gamma$ .

*Illustration of the two possible decay paths explaining the long lifetime of an isomeric state. In the case A, the significant lifetime is due to the large difference in  $K$  value, where in the case B, it is due to the too small energy of the  $\gamma$ -ray transition.*

## 6.4.2 Discussion sur les rayonnements $\gamma$ observés

L'analyse des différents spectres de rayonnements  $\gamma$  présentés dans la Section 6.2 est réalisée dans cette sous-section en vue de discuter les attributions possibles des transitions observées.

### 6.4.2.1 Discussion sur la transition de 900 keV

Sur le spectre de la Figure 6.3, un photopic de 900 keV est observé. D'après le rapport pic sur fond, il semble que le reste du spectre constitue son fond Compton. Des rayonnements X de l'élément rutherfordium sont également présents. Cette unique transition  $\gamma$  est en coïncidence avec le signal d'électrons des événements R-e-F. Etant donné que tous les noyaux peuplés au-dessus d'un état isomérique de haut- $K$  semblent décroître par l'état isomérique (1), on peut attribuer cette transition à sa décroissance.

Nous avons observé 382 événements de type R-e-F. Par ailleurs, l'efficacité absolue de détection d'un rayonnement  $\gamma$  de 900 keV par les détecteurs clover a été estimée à 2.5% et celle d'un signal d'électrons correspondant à la décroissance de l'état (1) a été estimée à 46% pour le DSSD (dans le cadre de l'hypothèse de décroissance du  $4^+$  vers le  $0^+$  - voir la Sous-section 6.4.3). Ainsi, si on pose l'hypothèse d'un rapport d'embranchement de 100% pour cette transition et si on tient compte de la probabilité que la bouffée d'électrons considérée soit celle de l'état (1), et si on considère le taux de conversion interne et l'effet du temps mort (27% de perte), on s'attend à observer  $5.7 \pm 2.5$  rayonnements. L'observation de 5 coups semble donc cohérente avec les efficacités de détection et le nombre d'événements.

Ainsi, il est possible que l'état (1) décroisse par une transition de 900 keV avec un rapport d'embranchement proche de 100%. Si on tient compte de la discussion proposée dans la Sous-section 6.4.3, cet état pourrait décroître vers l'état  $4^+$  de la bande de rotation.

La Figure 6.4.A présente un photopic de 18 coups à 900 keV. En se basant sur une efficacité absolue de détection d'un rayonnement  $\gamma$  de 900 keV de 2.5%, sur le fait que la fenêtre en temps de 100  $\mu$ s ne prend en compte qu'environ sept huitièmes de la statistique et un total de 840 noyaux peuplés au-dessus d'un état isomérique (d'après les rapports isomériques calculés précédemment), on s'attend à observer  $18.4 \pm 4.9$  transitions de cette énergie. La mesure de 18 rayonnements est donc également cohérente avec un rapport d'embranchement de 100%.

La différence importante entre les 5 et 18 coups observés avec les deux méthodes (R-e-F et R-F) est a priori surprenante. Elle est toutefois expliquée par l'efficacité de détection de la bouffée d'électrons (46% - dans le cas d'une décroissance du  $4^+$  au  $0^+$  de la bande de rotation) et la perte due au temps mort de l'acquisition (27% - voir le Tableau 6.3).

Ainsi, un cheminement de "type A" selon la Figure 6.10 serait en accord avec les observations, mais étudions aussi un cheminement de "type B" suggéré par [Jep09]. Ce type de schéma de décroissance est souvent observé dans la région en parallèle à une désexcitation directe vers la bande de rotation basée sur l'état fondamental. C'est par exemple le cas pour le noyau de  $^{250}\text{Fm}$  dont plusieurs transitions décroissent à partir d'un état  $K^\pi = 2^-$  (voir la Figure 2.11). Dans ces cas, les transitions de haute énergie sont observées en spectroscopie

$\gamma$  prompt. Or, dans le cas de la décroissance des isomères de  $^{256}\text{Rf}$ , force est de constater qu'aucune transition de haute énergie (de 600 keV à 2 MeV) n'est mise en évidence sur le spectre des rayonnements  $\gamma$  prompts dans le Chapitre 5 (voir la Figure 5.10.B). Cela prouve qu'il n'y a pas d'émission prompte d'une transition de 900 keV à partir d'un état excité de bas- $K$ .

Selon ce type de schéma suggéré par [Jep09] (voir la Figure 4.4.B), on s'attendrait à observer de façon prompte  $14.4 \pm 4.6$  transitions de 900 keV avec JUROGAM 2 si le rapport d'embranchement était, par exemple, de 10%. On peut donc affirmer que le rapport d'embranchement de cette transition, si elle existe, est extrêmement faible.

On note que le temps de vol d'un noyau de recul dans le séparateur RITU est de l'ordre de la microseconde. De plus, JUROGAM 2 ne peut plus observer les transitions émises environ une dizaine de nanosecondes après la réaction de fusion-évaporation. Ainsi, si une transition possède un temps de vie entre ces deux ordres de grandeur, elle sera peu, voire pas du tout observée.

Si on pose l'hypothèse que la transition de 900 keV (ici de type E1) correspond à la décroissance entre l'état  $2^-$  ou  $3^-$  d'une bande basée sur un état non-isomérique  $K^\pi = 2^-$ . Pour que la systématique de Löbner soit respectée (voir la Sous-section 6.4.4), le temps de demi-vie de la décroissance de ces deux états serait de 23 ns. Cette transition devrait donc être observée avec une statistique suffisante.

Comme la transition en question est uniquement observée en spectroscopie retardée, cela semble exclure une désexcitation de 900 keV à partir d'une bande de bas- $K$  qui porterait la majorité de l'intensité, et donc exclure le cheminement du "type B" défini sur la Figure 6.10. On pose donc l'hypothèse que cette transition suit un cheminement de "type A".

Pour conclure, les observations expérimentales semblent montrer que la transition de 900 keV décroît uniquement à partir de l'état isomérique (1). L'interdiction de cette transition semble provenir d'un grand  $\Delta K$ . D'après le nombre de rayonnements observés, la décroissance des états isomériques passe majoritairement par cette transition-ci. Toutefois, les barres d'erreurs ne permettent pas d'affirmer avec certitude qu'il s'agit de l'unique transition possible.

#### 6.4.2.2 Discussion sur la transition de 683 keV

La Figure 6.4.A présente également une accumulation de 4 coups à 683 keV. Cette dernière peut représenter une transition de faible intensité. Toutefois, rien n'exclut qu'il s'agisse d'un effet de statistique.

En premier lieu, on discute l'hypothèse de l'association de cette transition avec celle de 900 keV. En effet, la différence entre les deux énergies est de 217 keV, valeur proche des 218 keV de la transition de l'état  $8^+$  à  $6^+$  de la bande de rotation basée sur l'état fondamental du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ .

Ainsi, si on pose l'hypothèse d'une triangulation entre ces trois transitions de 218, 683 et 900 keV. Dans ce scénario, la transition de 900 keV décroîtrait de l'état (1) sur l'état  $8^+$  et celle de 683 keV de l'état (1) sur l'état  $6^+$ . On estime une intensité relative pour ces deux transitions en fonction de la statistique observée sur le spectre de rayonnements  $\gamma$  (voir la Figure 6.4.A) en faisant des hypothèses sur leurs multipolarités. Sur l'ensemble des états isomériques passant par l'état (1),  $82 \pm 15\%$  passeraient par la transition de 900 keV et

$18 \pm 9\%$  par celle de 683 keV (si elles sont toutes les deux de type E1). En tenant compte du nombre d'états isomériques peuplés, des rapports isomériques et des efficacités de détection, on s'attendrait à observer  $15.1 \pm 4.8$  coups à 900 keV et  $3.9 \pm 2.2$  coups à 683 keV. Ces valeurs sont cohérentes avec celles observées.

Toutefois, avec ce rapport d'embranchement, cette transition aurait dû être observée lors de l'expérience du LBNL [Jep09] qui présentait plus de statistique. En effet,  $6.3 \pm 3.4$  coups devraient être visibles sur la Figure 4.3.B pour que les deux résultats soient cohérents. De plus, ce scénario présentant une triangularisation est réfuté par la discussion sur les spectres d'électrons (voir la Sous-section 6.4.3). En effet, la transition de 161 keV ( $\alpha = 4.463$ ) devrait présenter une contribution visible sur le spectre d'électrons présenté sur la Figure 6.1.C. La simulation correspondante à ce scénario (voir la Figure 6.11) présente une distribution différente de celle expérimentale.

Même si ce scénario est écarté pour la suite de ce travail, il serait intéressant de vérifier si une transition est observable à cette énergie lors d'une expérience à plus haute statistique (voir la partie Conclusions et Perspectives de cette thèse). En effet, l'observation de cette transition ne repose ici que sur quelques coups. Par ailleurs, si elle était confirmée par une nouvelle expérience, elle pourrait probablement aussi être placée sur un schéma de décroissance, ce qu'il ne nous a pas été possible de faire à ce stade.

### 6.4.2.3 Discussion sur les transitions de basse énergie

La Figure 6.4.B est un zoom sur la partie basse énergie du spectre présenté sur la Figure 6.4.A. On y observe plusieurs transitions dont certaines pourraient être des fluctuations statistiques. Certaines ont un niveau très proche du bruit de fond. Des tentatives de mise en évidence de structures de rotation ont été réalisées mais sans succès.

Sur ce spectre, on observe des photopics aux énergies de transitions de la bande de rotation : 105, 161 et 218 keV. Ils pourraient être une preuve du peuplement d'états excités de cette bande par les états isomériques. Ces possibilités sont discutées ci-dessous après avoir effectué une soustraction de bruit de fond linéaire sur les photopics.

Le photopic de 105 keV ne peut pas uniquement correspondre à la bande car en tenant compte de son taux de conversion interne, il ne devrait pas être observé avec une statistique si importante. En se basant sur le nombre d'états isomériques peuplés, de l'efficacité de détection et du taux de conversion interne, on s'attendrait à observer  $1.7 \pm 0.9$  coups s'il s'agissait d'une transition E2 alors que l'on en observe 9 sur le spectre. Il pourrait s'agir d'une transition à cette énergie (plutôt de type E1 en tenant compte des taux de conversion interne) au-dessus d'un état isomérique, ou d'un double pic.

On observe 7 coups pour chacun des deux photopics à 161 et à 218 keV. On s'attend à en observer respectivement  $9.4 \pm 2.5$  et  $20.2 \pm 5.2$  dans le cadre d'une désexcitation de tous les états isomériques sur l'état  $8^+$ . Cela semble une seconde fois réfuter le peuplement sur l'état  $8^+$  de la bande de rotation. De plus, la désexcitation des états isomériques par ces deux transitions est réfutée par les simulations de spectre d'électrons comme décrit dans la Sous-section 6.4.3. Ces deux photopics pourraient être des fluctuations statistiques ou d'autres transitions de mêmes énergies (qui ne serait pas de type E2) entre deux états isomériques.

Les rayonnements  $\gamma$  prompts associés aux trois types d'événements isomériques constituent la Figure 6.5.B. La présence de rayonnements X du rutherfordium et l'absence de transitions aux énergies de la bande de rotation semblent fortement confirmer qu'il s'agit d'un spectre lié aux états isomériques du noyau d'intérêt. On observe quelques photopics avec très peu de statistique. Il pourrait s'agir de bruit de fond, exception faite de celle à 400 keV qui semble être réelle. Cela pourrait être une transition émise promptement située au-dessus d'un des trois états isomériques. Toutefois, rien ne permet de l'assigner avec les présents résultats.

Une transition  $\gamma$  prompt de 293 keV est observée sur la Figure 5.10.A (7 coups après correction du bruit de fond). Elle ne semble pas appartenir à une structure de transitions E2 telle une bande de rotation. Elle pourrait être une transition de type E1 ou M1 provenant de la décroissance d'un état qui n'est pas isomérique car elle est observée promptement. Si elle était de type M1, cela correspondrait à  $10.8 \pm 3.8\%$  de rapport d'embranchement pour le noyau. Cependant, le manque d'informations sur cette transition empêche de conclure.

### 6.4.3 Simulation de spectres d'électrons

Il a été discuté dans la Sous-section 6.3.1 que la distribution en énergie de la Figure 6.1.C est composée en très grande majorité par la distribution de la cascade d'électrons de conversion située sous l'état (1). De plus, il a été vu dans la sous-section précédente que la décroissance de l'état (1) semble se réaliser vers le bas de la bande de rotation basée sur l'état fondamental via une transition de 900 keV. Pour tester cette hypothèse et discuter de l'état excité d'arrivée de la transition, une simulation de distributions d'énergie d'électrons de conversion a été réalisée, avec plusieurs scénarii, afin de les comparer avec la distribution expérimentale.

En première approche, j'ai produit un code sous ROOT permettant d'obtenir la contribution des électrons de conversion dans les distributions d'énergie. Il tient compte des coefficients de conversion interne de  $B_{\text{rcc}}$  [Kib08, Bricc]. Ce programme va considérer une cascade de transitions définie par l'utilisateur et va déterminer, pour chacune d'entre elles, si elles sont converties. Ainsi, il va calculer quelle énergie est mesurée par le détecteur d'implantation DSSD en fonction des rapports d'embranchement fournis par l'utilisateur. L'énergie de chacun des électrons d'une cascade est ensuite sommée. Si la somme dépasse l'énergie seuil de 75 keV, l'énergie sommée est comptabilisée dans le spectre. Autrement, elle passe inaperçue. La largeur de bin exploitée pour les spectres expérimentaux est utilisée pour cette simulation. Ce test présente toutefois quelques aspects qui pourraient être améliorés : il suppose par exemple une efficacité géométrique de 50% pour chaque électron quel que soit son énergie et la profondeur d'implantation et aucune prise en compte d'une résolution de détecteur n'a été insérée. Il s'agit ainsi d'une première approche, qui ne prend d'ailleurs pas en compte le réarrangement du nuage atomique (rayonnement X, électrons Auger et Coster-Krönig - voir la Sous-section 2.2.2).

J'ai simulé quatre schémas de décroissance différents plausibles. Les trois premiers consistent en l'alimentation directe par l'état isomérique (1) de l'état excité  $4^+$ , de l'état excité  $6^+$  et de l'état excité  $8^+$  de la bande de rotation basée sur l'état fondamental. On note que l'alimentation directe de l'état excité  $2^+$  n'a pas été simulée. Elle ne permettrait pas d'observer un signal d'électron car son énergie était trop faible. En effet, l'énergie de

cette première transition est inférieure à celle du seuil. Le dernier cas est un mélange de 82% d'alimentation de l'état excité  $6^+$  et de 18% de l'état excité  $8^+$  (situation discutée dans la Sous-section 6.4.2). Dans chacun des cas, la décroissance est considérée jusqu'à l'état  $0^+$ . Les spectres obtenus constituent la Figure 6.11.

Les trois spectres des cascades partant des états excités  $6^+$  et  $8^+$  présentent tous plusieurs pics. Aucun ne correspond à la distribution de la Figure 6.1.C qui présente un unique pic relativement fin. Ces solutions semblent donc être exclues.

Au contraire, le spectre simulé de la cascade partant du  $4^+$  présente un seul pic fin, de manière similaire à ce qui est observé sur le spectre expérimental. Ce dernier est cependant décalé en énergie d'environ 30 à 40 keV en plus. Cette différence pourrait être expliquée par la non-prise en compte des processus de réarrangement du nuage atomique (rayonnement X, électrons Auger et Coster-Krönig) dans la simulation. En effet, cette contribution peut expliquer cette différence car l'énergie de liaison de la couche L est environ de 30 keV. Ainsi, il est donc très probable que l'isomère (1) décroisse vers l'état excité  $4^+$ .

Un travail plus approfondi et réaliste a été démarré à la fin de ma thèse en utilisant l'outil de simulation GEANT4 [Ago03, All06]. Il reprend le même principe que celui discuté précédemment avec des mesures d'énergies réalistes tenant compte de la géométrie et des pertes d'énergies dans le silicium du détecteur d'implantation. Les coordonnées des implantations des noyaux de reculs sont basées sur les coordonnées  $X$ - $Y$  obtenues lors de mon expérience de thèse et sur des profondeurs d'implantation  $Z$  calculées de manière réaliste par F. Déchery [Dec13]. Cette version tient compte des rayonnements X, des électrons Auger et Coster-Krönig émis après les électrons de conversion interne grâce aux coefficients donnés dans [Krau79]. Cette seconde approche a été principalement réalisée par H. Faure en collaboration avec F. Déchery et moi-même.

À partir de ce code, une simulation équivalente à ce que j'ai réalisé en première approche a été effectuée. Les quatre distributions obtenues sont similaires, ce qui semble conforter l'assignement du point d'entrée dans la bande fondamentale à l'état  $4^+$ . Les légères différences observées proviennent de la prise en compte du réarrangement du nuage atomique. Ainsi, dans le cadre de cette approche approfondie, la distribution  $4^+$  à  $0^+$  est piquée sur sa droite au lieu de sa gauche dans le cadre de la première approche.

Toutefois, ces simulations n'excluent pas la possibilité d'une décroissance par une ou plusieurs transitions n'appartenant pas à la bande de rotation basée sur l'état fondamental. Cependant, elles démontrent que la somme des énergies des transitions émises est d'approximativement 150 keV. On pourrait ainsi imaginer un autre cas de figure consistant avec les observations faites sur les spectres d'électrons : une transition d'environ 100 keV entre deux états non-yrast suivie par la décroissance de l'état  $2^+$  à  $0^+$  de la bande de rotation ou une cascade de transitions entre états non-yrast dont la somme est environ de 150 keV.

Les simulations basées sur GEANT4 étaient en cours lors de l'écriture de ce document. De plus, cette étude était réalisée sur des détecteurs d'implantation correspondant à ceux du JYFL, du ANL et du LBNL. Cela devrait permettre de discuter les différences induites par leurs dimensions respectives. Ces simulations seront certainement mises en avant dans une publication ultérieure et/ou dans la thèse de H. Faure [Fau15]. Il est également prévu d'ajouter les détecteurs trèfles au plan focal pour simuler des spectres de rayonnements  $\gamma$

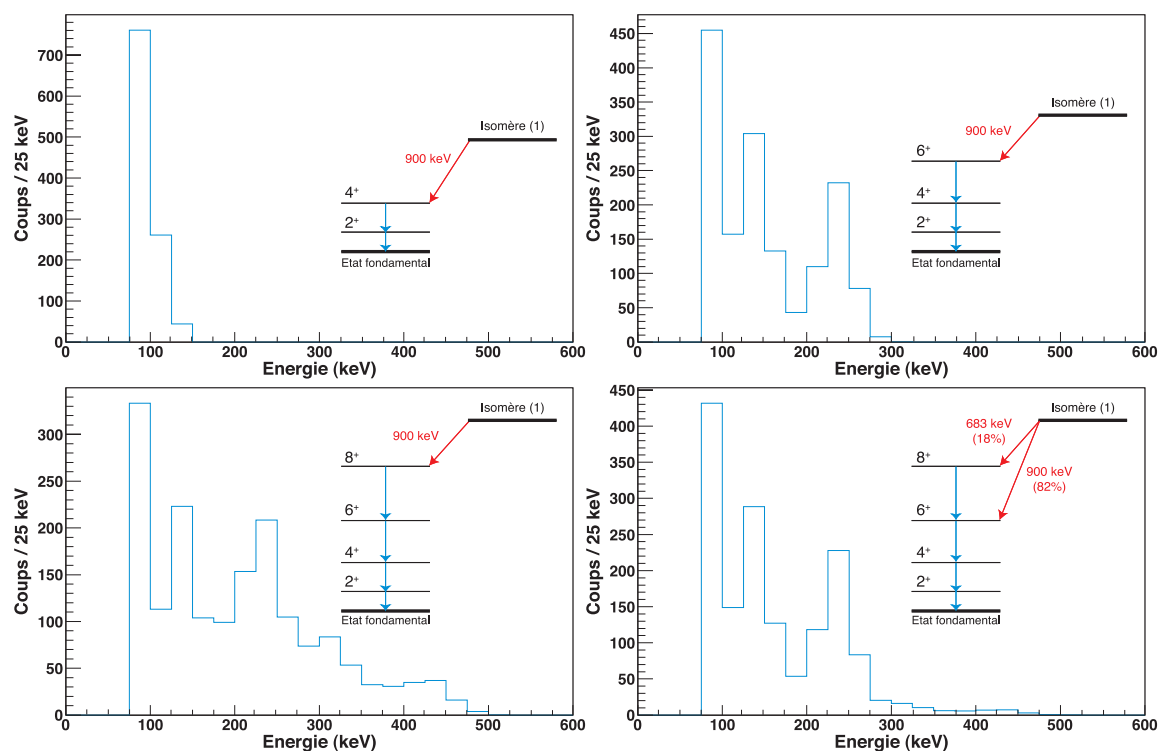


Figure 6.11: Spectres en énergie simulés de cascade d'électrons de conversion interne dans le cadre de la décroissance de l'état isomérique (1) du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Plusieurs scénarii de décroissance sont proposés. Ils sont représentés en insert dans les figures. Ces calculs ne prennent pas en compte le réarrangement du nuage atomique.

*Simulated energy spectra of internal conversion electron cascade in the case of the decay of the isomeric state (1) for the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus. Several scenarios represented in the figures are tested. These calculations do not take into account the rearrangement of the atomic cloud.*

et les comparer avec les spectres expérimentaux. La gestion du seuil pourrait également être améliorée. En effet, on considère dans le présent travail qu'il s'agit d'une coupure franche à 75 keV alors qu'il faudrait pour être plus réaliste simuler une fonction de coupure.

#### 6.4.4 Discussion de l'assignement des isomères (1) & (2)

Des tests basés sur le facteur d'empêchement (voir la Sous-section 2.5.4) ont été réalisés afin de discuter des valeurs de  $K$  des trois états isomériques. Chacun de ces tests est réalisé en posant une hypothèse sur les valeurs de  $K^\pi$  de l'état initial et de l'état final ainsi que sur le type et la multipolarité de la transition. Pour chacun des cas testés, l'empêchement réduit  $f_\nu$  est tout d'abord calculé grâce à l'Equation 2.51. On note que le taux de conversion interne de la transition est pris en compte. Deuxièmement, l'empêchement réduit dit de Löbner, noté  $f_\nu^{Lob}$  est extrait de la systématique expérimentale de Löbner [Lob68]. Ce paramètre correspond donc à la valeur d'empêchement attendue d'après la systématique (voir la Figure 2.10). Le test est conclu par la comparaison des deux valeurs d'empêchement obtenues. Si elles sont proches - tenant notamment compte des barres d'erreurs associées - la transition

basée sur cette hypothèse est envisageable dans la limite des barres d'erreur introduites par Löbner [Lob68]. Les assignements des états isomériques (1) et (2) sont discutés successivement dans cette sous-section grâce à cette méthode.

Il a été discuté dans la Sous-section 6.4.2 que l'intensité observée pour la transition de 900 keV semble montrer qu'elle est la voie majoritaire de décroissance de l'état isomérique (1) et qu'elle est uniquement émise de manière retardée du fait de son absence des spectres  $\gamma$  prompts. La comparaison entre les résultats expérimentaux et les simulations présentées dans la sous-section 6.4.3 indique que les états isomériques de haut- $K$  décroissent directement sur l'état  $4^+$  ( $K^\pi = 0^+$ ) de la bande de rotation basée sur l'état fondamental.

Ainsi, il semble que l'état isomérique (1) décroisse par une transition de 900 keV pour alimenter directement l'état  $4^+$ . A partir de là, on cherche à discuter la valeur de  $K^\pi$ , notée  $K_{(1)}^\pi$ , de l'état isomérique (1). Il s'agit d'un état de 23  $\mu$ s de temps de demi-vie décroissant par l'émission d'un rayonnement  $\gamma$  de grande énergie. On note que l'on prend en compte que les probabilités de transitions diminuent rapidement avec la multipolarité  $\lambda$  (voir le Tableau 2.2).

L'état (1) présente un temps de demi-vie élevé ce qui montre une interdiction importante. La différence  $\Delta K$  entre la bande de rotation basée sur l'état fondamental ( $K = 0$ , car c'est un noyau pair-pair) et  $K_{(1)}$  doit être relativement élevée pour expliquer cette interdiction.

Des tests de facteurs d'empêchement, décrits précédemment, ont été réalisés sur toutes les possibilités de décroissance à partir de valeur de  $K_{(1)}^\pi$  allant de 3 à 8 avec parités positive et négative. La transition permet une décroissance de la tête de bande de l'état (1) vers l'état  $4^+$  de la bande de rotation basée sur l'état fondamental ( $K^\pi = 0^+$ ) au travers d'une transition  $\gamma$  de 900 keV associée à un temps de demi-vie expérimental de 23  $\mu$ s. Les différents tests effectués et les facteurs obtenus sont résumés dans le Tableau 6.5.

Suite à ces tests, trois valeurs de  $K_{(1)}^\pi$  présentent une bonne compatibilité avec la systématique :

- ◇  $K_{(1)}^\pi = 4^-$  : transition E1
- ◇  $K_{(1)}^\pi = 4^+$  : mélange entre transitions M1 et E2
- ◇  $K_{(1)}^\pi = 5^-$  : transition E1

Ces trois résultats sont cohérents avec les différentes conditions discutées. On note que les hypothèses sur les états  $4^-$  et  $5^-$  semblent plus robustes que celle sur l'état  $4^+$ . Il faut cependant garder à l'esprit que les barres d'erreur de la systématique de Löbner ne nous permettent pas d'être pleinement conclusifs. On tire cependant ainsi une indication expérimentale très intéressante.

Etant donné qu'il n'est pas possible d'aller plus avant à propos de l'état (1), on cherche maintenant à discuter l'assignement du second état isomérique. Les deux seules informations expérimentales pour ce dernier sont le temps de demi-vie de 18  $\mu$ s et le spectre énergétique d'électrons. De plus, il a été défini dans la Sous-section 6.3.1 que la contribution entre 75 et 200 keV de la Figure 6.1.B est principalement constituée par les électrons de conversion associés à la décroissance de l'état (2).

Cette distribution expérimentale est un pic très large ce qui semble signifier que cette décroissance consiste en au moins deux transitions. En effet, dans ce cas de figure, il semble



possible de détecter 0, 1 ou plusieurs électron(s) en fonction de l'efficacité de détection du DSSD ainsi que du phénomène de conversion interne. De plus, la plage d'énergie de ce pic est relativement faible ce qui semble indiquer que la différence d'énergie d'excitation entre les états (1) et (2) est également relativement faible. La présence d'une transition de haute énergie entre ces deux états isomériques avec un rapport d'embranchement important semble être écartée. En effet, en tenant compte des rapports isomériques estimés, on s'attendrait à observer une transition entre ces deux états si le rapport d'embranchement était majoritaire. Par exemple,  $13.3 \pm 4.3$  transitions de 600 keV devraient être observées pour un rapport d'embranchement de 100%.

Des tests basés sur les facteurs d'empêchement calculés et de Löbner ont été réalisés pour ce second état isomérique afin de déterminer  $K_{(2)}^\pi$ , la valeur de  $K^\pi$  de l'état (2). Comme cet état présente un temps de demi-vie relativement élevé (18  $\mu\text{s}$ ), seules les possibilités avec une différence entre  $K_{(2)}$  et  $K_{(1)}$  qui soit supérieure ou égale à 3 ont été prises en compte. De plus, une énergie totale d'environ 300 keV a été considérée pour les transitions entre les états isomériques (1) et (2). Cette valeur se rapproche de celle de 275 keV,

Etat initial		Etat final		Type de transition	Facteur d'empêchement		ratio $f_\nu/f_\nu^{Lob}$
$K_{(1)}^\pi$	$I_{\text{initial}}^\pi$	$K_{(0)}^\pi$	$I_{\text{final}}^\pi$		$f_\nu$	$f_\nu^{Lob}$	
3 <sup>-</sup>	3 <sup>-</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	E1	$3.17 \cdot 10^5$	$7.10 \cdot 10^4$	4.46
3 <sup>+</sup>	3 <sup>+</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	M1	$2.97 \cdot 10^4$	1449	20.49
3 <sup>+</sup>	3 <sup>+</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	E2	$2.38 \cdot 10^7$	3600	6600
4 <sup>-</sup>	4 <sup>-</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	E1	4649	4481	1.04
4 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	M1	959	669	1.43
4 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	E2	1542	1414	1.09
5 <sup>-</sup>	5 <sup>-</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	E1	563	562	1.00
5 <sup>+</sup>	5 <sup>+</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	M1	172	47,3	3.63
5 <sup>+</sup>	5 <sup>+</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	E2	133	271	0.49
6 <sup>-</sup>	6 <sup>-</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	M2	12	111	0.11
6 <sup>+</sup>	6 <sup>+</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	E2	39	484	0.08
7 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	E3	2.5	150	0.02
7 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	M3	0.8	-	-
8 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	M4	0.05	-	-
8 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	0 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	E4	1.4	-	-

Tableau 6.5: Comparaison des facteurs d'empêchement expérimentaux calculés  $f_\nu$  aux valeurs  $f_\nu^{Lob}$  extraites des systématiques de Löbner [Lob68] selon différentes hypothèses sur l'état initial afin de déduire la valeur de  $K^\pi$  de l'état isomérique (1). L'énergie de la transition considérée est de 900 keV. Le symbole "-" signifie que la systématique de Löbner correspondante ne présente pas l'information nécessaire.

*Comparison of the experimental hindrance factors  $f_\nu$  calculated to the values  $f_\nu^{Lob}$  extracted from the Löbner systematics [Lob68] for several hypotheses on the initial state in order to deduce the  $K^\pi$  value of the isomeric state (1). The energy of the considered transition is 900 keV. The symbol "-" means that the corresponding Löbner systematics does not exist.*

Etat initial		Etat final		Type de transition	$E_\gamma$ (keV)	Facteur d'empêchement		ratio $f_\nu/f_\nu^{Lob}$
$K_{(2)}^\pi$	$I_{initial}^\pi$	$K_{(1)}^\pi$	$I_{final}^\pi$			$f_\nu$	$f_\nu^{Lob}$	
7 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	4 <sup>-</sup>	6 <sup>-</sup>	M1	170	7974	1449	5.503
7 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	4 <sup>-</sup>	5 <sup>-</sup>	E2	229	4055	3600	1.126
7 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	4 <sup>-</sup>	6 <sup>-</sup>	E1	170	24849	70711	0.351
7 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	4 <sup>-</sup>	5 <sup>-</sup>	M2	229	315	35000	0.009
8 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	4 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	M1	87	239	669	0.357
8 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	4 <sup>-</sup>	6 <sup>-</sup>	E2	170	44.7	31414	0.001
8 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	4 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	E1	87	445	4481	0.099
8 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	4 <sup>-</sup>	6 <sup>-</sup>	M2	170	13.9	316	0.044
9 <sup>-</sup>	9 <sup>-</sup>	4 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	E2	87	10.4	271	0.038
9 <sup>+</sup>	9 <sup>+</sup>	4 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	M2	87	3.7	114	0.032
7 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	4 <sup>+</sup>	6 <sup>+</sup>	E1	170	24849	70711	0.351
7 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	4 <sup>+</sup>	5 <sup>+</sup>	M2	229	315	35000	0.009
7 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	6 <sup>+</sup>	M1	170	7974	1449	5.503
7 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	5 <sup>+</sup>	E2	229	4055	3600	1.126
8 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	4 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	E1	87	445	4481	0.099
8 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	4 <sup>+</sup>	6 <sup>+</sup>	M2	170	13.9	316	0.044
8 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	M1	87	239	669	0.357
8 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	6 <sup>+</sup>	E2	170	45	1414	0.031
9 <sup>-</sup>	9 <sup>-</sup>	4 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	M2	87	3.7	114	0.032
9 <sup>+</sup>	9 <sup>+</sup>	4 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	E2	87	10.4	271	0.038
8 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	5 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	M1	146	4060	1449	5.503
8 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	5 <sup>-</sup>	6 <sup>-</sup>	E2	220	4055	3600	1.126
8 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	5 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	E1	146	18867	70711	0.267
8 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	5 <sup>-</sup>	6 <sup>-</sup>	M2	220	315	35000	0.009
9 <sup>-</sup>	9 <sup>-</sup>	5 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	M1	52	234	669	0.350
9 <sup>-</sup>	9 <sup>-</sup>	5 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	E2	146	40	1414	0.028
9 <sup>+</sup>	9 <sup>+</sup>	5 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	E1	52	306	4481	0.068
9 <sup>+</sup>	9 <sup>+</sup>	5 <sup>-</sup>	7 <sup>-</sup>	M2	146	0.7	316	0.000
10 <sup>-</sup>	10 <sup>-</sup>	5 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	E2	52	9.9	271	0.037
10 <sup>+</sup>	10 <sup>+</sup>	5 <sup>-</sup>	8 <sup>-</sup>	M2	52	3.4	115	0.030

Tableau 6.6: Comparaison des facteurs d'empêchement expérimentaux calculés  $f_\nu$  aux valeurs  $f_\nu^{Lob}$  extraites des systématiques de Löbner [Lob68] pour différentes hypothèses sur l'état initial afin de déduire la valeur de  $K^\pi$  de l'état isomérique (2).

*Comparison of the experimental hindrance factors  $f_\nu$  calculated to the values  $f_\nu^{Lob}$  extracted from the Löbner systematics [Lob68] for several hypotheses on the initial state in order to deduce the  $K^\pi$  value of the isomeric state (2).*

qui est celle maximale mesurée sur le spectre en énergie d'électrons correspondant lors de l'expérience du LBNL [Jep09]. Une valeur de 200 keV a été mesurée lors de la présente expérience (cf. Figure 6.1). Il est fort probable que toute l'énergie n'a pas été mesurée dans le détecteur d'implantation à cause des émissions dues au réarrangement du nuage atomique mais aussi car son épaisseur est plus faible que celle du détecteur du LBNL. Pour la suite, on pose l'hypothèse qu'un peu moins de 300 keV sépare les états (2) et (1). L'énergie choisie semble réaliste en tenant compte de la géométrie du détecteur d'implantation du JYFL et des émissions dues au réarrangement du nuage atomique. Les énergies de potentiels bandes de rotation basées sur l'état (1) ont été estimées d'après les valeurs de moments d'inertie des bandes de la région.

Différentes hypothèses ont été testées avec chacune des trois possibilités restantes de  $K_{(1)}^\pi$  :  $4^-$ ,  $4^+$  et  $5^-$  lorsqu'une possibilité vérifiant les conditions listées ci-avant existait. Ainsi, des valeurs de  $K_{(2)}^\pi$  allant de 7 à 10 (parités positive et négative) ont été testées. Les résultats des tests pour des transitions de multipolarité 1 et 2 sont résumés dans le Tableau 6.6. Aucun test avec une multipolarité supérieure ne présentait de possibilité réaliste.

On constate dans le Tableau 6.6 que seules trois transitions E2 entrent bien dans la systématique de Löbner. De plus, on verra plus loin qu'aucun état à une particule permettant de générer un état  $K^\pi = 7^+$  ou  $K^\pi = 7^-$  ne sont attendus assez près du niveau de Fermi dans le  $^{256}\text{Rf}$ . On peut donc conclure de cet ensemble de calculs de facteurs d'empêchement que seul le couple de nombres quantiques  $K^\pi = 5^-$  et  $K_{(2)}^\pi = 8^-$  a permis de vérifier ce test. Les facteurs d'empêchement obtenus pour la transition considérée sont  $f_\nu = 4059$  et de  $f_\nu^{Lob} = 3667$ . Il faut noter que la décroissance de l'état  $K_{(2)}^\pi = 8^-$  se fera en parallèle via une transition M1 d'environ 146 keV vers l'état  $7^-$  de la structure  $K^\pi = 5^-$  et une transition E2 d'environ 220 keV vers l'état  $6^-$  de la structure  $K^\pi = 5^-$ . Suivra une décroissance vers la tête de bande.

Ce schéma est très fortement en adéquation avec le spectre en énergie d'électrons correspondant. En effet, ces trois transitions M1 ont de très forts coefficients de conversion interne total (respectivement 6.6, 45.4 et 30.8) et le spectre observé correspondrait à l'observation, qui semble plausible, d'une ou deux d'entre-elles. Ces énergies ont été estimées en se basant sur les moments d'inertie connus de bandes au-dessus d'états isomériques d'autres noyaux de la région.

Il faut noter ici que cela n'implique aucunement que l'état  $K^\pi = 5^-$  soit l'isomère (1). En effet, si par exemple un état  $K^\pi = 4^-$  est situé juste sous cet état, la transition entre ces deux états se fera aisément et donc sans durée de vie. Il est donc toujours possible que l'état isomérique (1) soit  $K_{(1)}^\pi = 4^-$ . On ne peut donc pas exclure la possibilité que l'état isomérique (2) décroisse vers l'état  $5^-$  comme semble nous indiquer la systématique puis qu'il y ait une transition de basse énergie non isomérique entre les états  $5^-$  et  $4^-$ .

On verra un peu plus loin que ces états sont attendus à relativement basse énergie d'excitation dans le  $^{256}\text{Rf}$ . Ainsi, avant de discuter de l'attribution du troisième état isomérique et afin d'obtenir un point d'ancrage solide, les premières attributions proposées vont être confrontées à deux sources d'informations : les particules individuelles et les quasi-particules expérimentales (voir la Sous-section 6.4.5) puis celles calculées grâce à des modèles (voir la Sous-section 6.4.6).

### 6.4.5 Particules individuelles expérimentales

Les informations obtenues expérimentalement sur les niveaux d'énergie des particules individuelles neutrons et protons dans la région d'intérêt ont été explorées afin d'obtenir des indices sur l'assignement des états isomériques du  $^{256}\text{Rf}$ .

Contrairement aux protons, on dispose actuellement d'informations expérimentales substantielles pour les neutrons. Publiées récemment, les systématiques des particules individuelles  $N = 153$  [Anta13] et  $N = 151$  [Asa11] sont présentées respectivement sur les Figures 6.12.A et 6.12.B. Etant donné que le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  possède 152 neutrons, la systématique  $N = 153$  permet d'étudier les états de particules (états au dessus du niveau de Fermi neutron pour le  $^{256}\text{Rf}$ ) tandis que la systématique  $N = 151$  ceux de trous (états eu-dessus et en-dessous du niveau de Fermi neutron pour le  $^{256}\text{Rf}$ ). On note que l'énergie du niveau  $1/2^+[620]$  pour le noyau de  $^{253}\text{No}$  a été diminuée afin de corriger une erreur présente dans la publication correspondante.

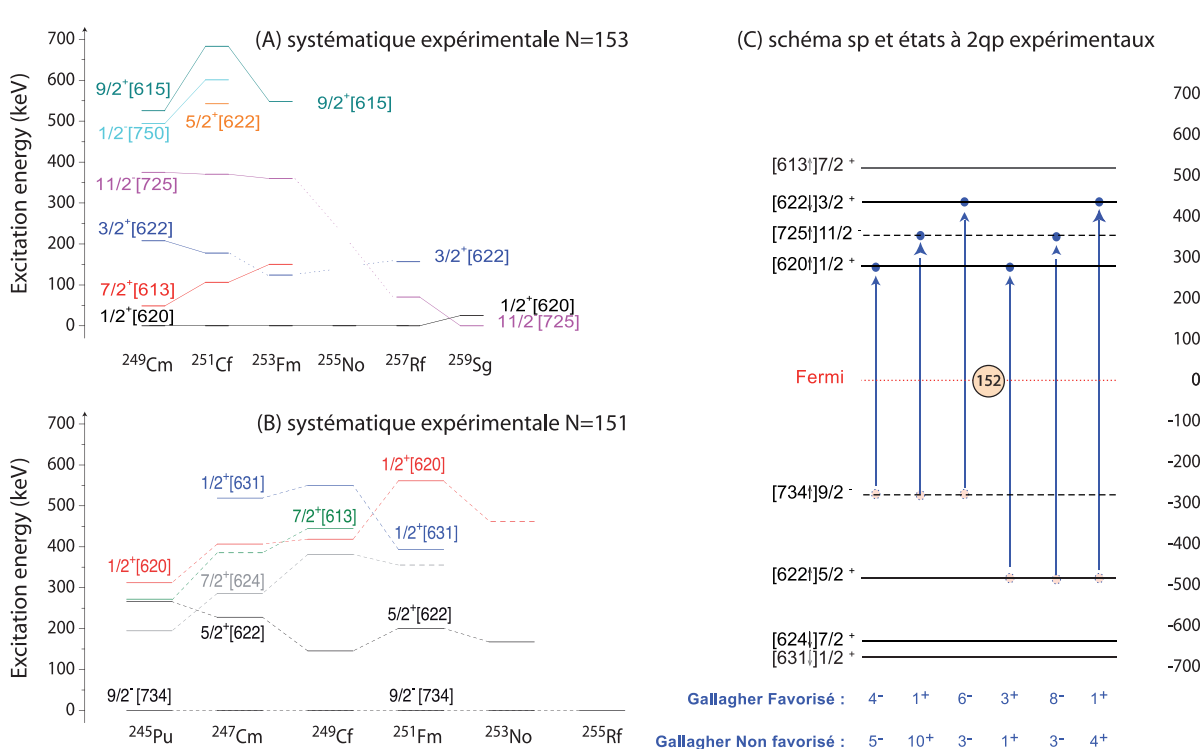


Figure 6.12: Niveaux d'énergie des états particules individuelles expérimentales pour : (A) la systématique  $N = 153$  (d'après [Anta13]), (B) la systématique  $N = 151$  (d'après [Asa11]) et (C) les niveaux à une particule autour du niveau de Fermi situé au gap  $N = 152$  pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . L'énergie du gap  $N = 152$  est ici arbitraire.

*Energy levels of the experimental single-particle states for: (A) the  $N = 153$  systematics (from [Anta13]), (B) the  $N = 151$  systematics (from [Asa11]) et (C) the single particle levels around the Fermi level situated at the  $N = 152$  gap for the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus. The  $N = 152$  gap width is here arbitrary.*

Sur la systématique  $N = 153$  [Anta13] représentée sur la Figure 6.12.A, on constate que l'état  $[620]1/2^+$  est attribué à l'état fondamental depuis le  $^{249}\text{Cm}$  jusqu'au  $^{257}\text{Rf}$ . Par ailleurs, quatre états à une particule se trouvent à une excitation inférieure à 400 keV. Le gap neutron  $N=152$  étant important, les premiers états excités de cette systématique correspondront aux niveaux à une particule situés au-dessus de l'état  $[620]1/2$ . De cette systématique, on tire non seulement l'ordre relatif de ces états attendu pour  $^{256}\text{Rf}$ , mais aussi une idée des écarts en énergie entre ces niveaux. La séquence expérimentale attendue au dessus du niveau de Fermi neutron est donc :  $[620]1/2^+$ ,  $[725]11/2^-$ ,  $[622]3/2^+$  et  $[613]7/2^+$ . Ils sont reportés sur la Figure 6.12.C.

Sur la systématique  $N = 151$  [Asa11] représentée sur la Figure 6.12.B, on constate que l'état  $[734]9/2^-$  est invariablement attribué à l'état fondamental. Il correspond donc au premier niveau sous le gap neutron  $N = 152$ . Ce gap étant important, les premiers états excités de cette systématique correspondront aux niveaux à une particule situés sous cet état. On constate que l'état  $[620]1/2$  intervient dans les états à une quasi-particule entre 300 et 400 keV dans cette systématique. On tire ainsi la séquence d'états à une particule expérimentaux :  $[734]9/2^-$ ,  $[622]5/2^+$ ,  $[624]7/2^+$  en s'éloignant de  $N = 152$ .

Les niveaux d'énergie des particules individuelles situées au voisinage du niveau de Fermi  $N = 152$  (cas du  $^{256}\text{Rf}$ ) ont été tracés sur la Figure 6.12.C. Pour cela, les énergies données par les deux systématiques expérimentales discutées ci-avant ont été utilisées. On note que, pour les états de trous, la systématique  $N = 151$  a été extrapolée pour l'élément rutherfordium car ses niveaux sont inconnus. Les états ont été placés sur la figure en tenant compte des rapports entre les énergies données. La valeur du gap énergétique autour du niveau de Fermi  $N = 152$  est tiré de l'écart entre  $[734]9/2^-$  et  $[620]1/2^+$  de la systématique  $N = 151$ .

Les états de quasi-particules (2-qp) possibles entre les niveaux tracés sont représentés par des flèches bleues. Dans cette approche, l'appariement n'est pas pris en compte ; il s'agit donc d'une approximation. Les valeurs de  $K^\pi$  calculées avec les règles de Gallagher (voir la Sous-section 2.5.3 et les références [Gal58, Gal62]) sont également indiquées dans les cas favorisé et défavorisé.

L'état de quasi-particule neutron de plus basse énergie est un état  $4^-$  (favorisé) ou  $5^-$  (défavorisé). Le second état grand  $K$  de plus basse énergie est un état  $10^+$ . On s'attendrait donc à observer un tel état dans le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Les états possibles de plus haute énergie présentent des valeurs de  $K$  plus faible que 10. Ainsi, d'après cette étude, ces états semblent être exclus car ils devraient se situer à des énergies d'excitation plus haute que celle de l'état  $10^+$ .

Concernant les protons, il n'existe pas de systématique aussi détaillée pour les chaînes isotopiques  $Z = 103$  et  $Z = 105$ . En effet, ces dernières sont difficiles d'accès expérimentalement. Il existe cependant des propositions d'attributions des premiers états de particules individuelles pour les noyaux de  $^{257}\text{Db}$  ( $Z = 105$ ) et de  $^{255}\text{Lr}$  ( $Z = 103$ ). Etant donné que le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  possède 104 protons, il s'agit respectivement des états de particules et des états de trous.

L'état fondamental de  $^{255}\text{Lr}$  ( $Z=103$ ,  $N=152$ ) est attribué à  $[521]1/2^-$  et le premier état excité proposé pour ce noyau est  $[514]7/2^-$  selon les Références [Hau08, Jep09b, San10].

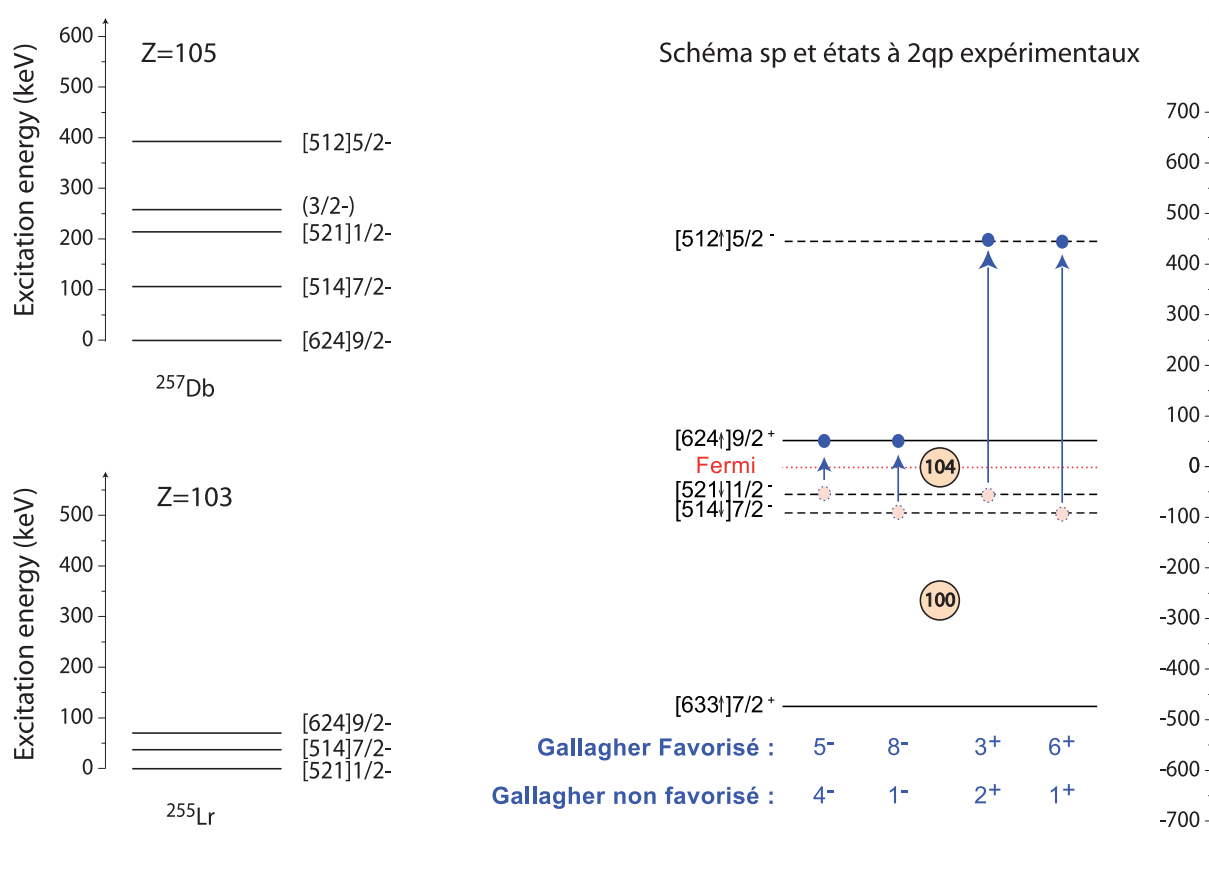


Figure 6.13: Niveaux d'énergie des états particules individuelles expérimentales protons pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Ils sont basés sur les propositions faites pour le noyau de  $^{255}\text{Lr}$  [San10] et celui de  $^{257}\text{Db}$  [Hes10]. L'énergie du gap  $Z = 104$  est ici arbitraire.

*Energie levels of the experimental single-particle states for the protons of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus. They are based on the proposals made for the nucleus of  $^{255}\text{Lr}$  [San10] and the one of  $^{257}\text{Db}$  [Hes10]. The  $Z = 104$  gap energy is here arbitrary.*

Ces deux états sont donc très probablement situés juste sous le niveau de Fermi du  $^{256}\text{Rf}$ . Par ailleurs, d'après [Hes01] et [Hes10], l'état fondamental du noyau de  $^{257}\text{Db}$  ( $Z=105$ ,  $N=152$ ) est attribué au  $[624]9/2^+$ . Quatre états excités sont reportés dans moins de 400 keV d'énergie d'excitation :  $[514]7/2^-$ ,  $[521]1/2^-$ ,  $[512]5/2^-$  et  $[633]7/2^+$ . Les deux premiers sont ceux proposés pour le noyau de  $^{255}\text{Lr}$  et le dernier est connu comme étant situé juste en dessous, d'après les données du  $^{249}\text{Bk}$  ( $Z=97$ ,  $N=152$ ) [Sew10]. Ils sont donc tous trois des états de trous pour le  $^{256}\text{Rf}$ . Il n'est pas étonnant de les retrouver si bas dans la structure de  $^{257}\text{Db}$  étant donné que nous avons montré avec ce travail que le gap  $Z=104$  est très faible. Sur cette base, les niveaux d'énergie des particules individuelles situées au voisinage du niveau de Fermi  $Z = 104$  (cas du  $^{256}\text{Rf}$ ) ont été tracés sur la Figure 6.13. À nouveau, la valeur du gap énergétique autour du niveau de Fermi  $Z = 104$  est tiré de l'écart entre  $[624]9/2^-$  et  $[512]5/2^-$  dans  $^{257}\text{Db}$ .

Les états de 2-qp proton possibles entre ces différents états ont été tracés sur la Figure 6.13 de manière similaire à celui réalisé pour les neutrons. Les états de quasi-particules de plus basses énergies sont  $K^\pi = 5^-$  et  $K^\pi = 8^-$ . Il faut noter que ces deux états doivent être relativement proches en énergie étant donné que les états  $[521]1/2^-$  et  $[514]7/2^-$  sont à moins de 40 keV dans  $^{255}\text{Lr}$ . Viennent ensuite des états de trop faible  $K$  pour induire une interdiction et un isomérisme  $K$ .

Ainsi, la séquence des états  $K^\pi$  à 2 quasi-particules issue de ces schémas pouvant donner un isomérisme  $K$  est la suivante :

- ◇ neutrons  $\nu 2 4^-$ ,  $\nu 2 10^+$  et  $\nu 2 8^-$ ,
- ◇ protons  $\pi 2 5^-$  et  $\pi 2 8^-$ .

La question principale est celle de l'ordre relatif de ces états excités neutrons et protons. Or, on a vu précédemment dans cette thèse que si le gap neutrons  $N=152$  est bien établi, il n'y a pas de gap proton à  $Z=104$ . Il faut cependant rester prudent étant donné que l'appariement joue également dans les états à 2 quasi-particules. On s'attend donc à avoir comme première excitation une excitation proton. Les états  $K^\pi = 5^-$  et  $K^\pi = 8^-$  étant très proches, on s'attend donc à les observer en premier. En conséquence, l'état neutron  $K^\pi = 10^+$  n'est pas isomérique du fait de la présence du  $K^\pi = 8^-$  proton vers lequel une transition n'est pas trop ralentie.

Il a été discuté dans la Sous-section 6.4.4 que  $K_{(1)}^\pi = 4^-$ ,  $4^+$  et  $5^-$  étaient les valeurs possibles du nombre quantique  $K$  pour l'état isomérique (1) en se basant sur les tests de facteurs d'empêchement. Or, aucun état 2-qp  $K_{(1)}^\pi = 4^+$  n'est constructible avec les particules individuelles expérimentales et n'est proposé par les calculs présentés dans la sous-section précédente. Cette possibilité, qui était la moins robuste des trois d'après son calcul d'empêchement réduit pour le premier état et qui ne présentait pas de solution pour l'attribution d'une valeur de  $K_{(2)}^\pi$ , est donc écartée. Il reste les possibilités d'un état 2-qp  $K_{(1)}^\pi = 4^-$  neutron et d'un état 2-qp  $K_{(1)}^\pi = 5^-$  proton.

Suite aux tests de facteurs d'empêchement réalisés entre les deux premiers états isomériques, seul le couple de valeurs  $K_{(1)}^\pi = 5^-$  et  $K_{(2)}^\pi = 8^-$  présente un facteur d'empêchement compatible avec la systématique de Löbner. La valeur  $K_{(1)}^\pi = 4^-$  semble moins favorable mais n'est entièrement exclue : cet état pourrait être situé à une énergie d'excitation légèrement inférieure à celle de l'état  $5^-$  et être isomérique. Ces propositions de valeur de  $K_{(1)}$  et de  $K_{(2)}$  sont compatibles avec les particules individuelles expérimentales et avec les résultats des modélisations qui proposent des états  $5^-$  et  $8^-$ . De plus, ces informations sont en accord avec le fait qu'il s'agisse respectivement d'états 2-qp neutrons et protons.

On prédit donc la séquence suivante :

- ◇  $\pi 2 5^-$  (isomère 1)
- ◇  $\pi 2 8^-$  (isomère 2)
- ◇  $\nu 2 10^+$  (non isomérique)

où encore, si le premier état neutron est plus bas que le premier état proton :

- ◇  $\nu 2 4^-$  (isomère 1)
- ◇  $\nu 2 5^-$  (non isomérique)

- ◇  $\pi^2 8^-$  (isomère 2)
- ◇  $\nu^2 10^+$  (non isomérique)

### 6.4.6 Approches théoriques

Afin de discuter l'assignement des états isomériques observés et en complément des particules individuelles expérimentales décrites dans la sous-section précédente, deux séries de calculs ont été réalisées sur le noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Elles sont toutes les deux obtenues en utilisant le modèle Woods-Saxon Universal, qui est basé sur un potentiel de champ moyen (voir la Section 1.4 et la Référence [Dud81]). La première série de calculs a été réalisée par D. Rouvel et J. Dudek [Rou13] à l'IPHC tandis que la seconde a été réalisée par F. Kondev au ANL [Kon13]. Ces deux séries sont complémentaires : elles permettent de discuter, dans les deux sous-sections qui suivent, de l'influence du paramètre  $\beta_6$  puis des états de multi-quasiparticules calculés pour le noyau d'intérêt.

#### 6.4.6.1 Influence du paramètre $\beta_6$

La première série de calculs, réalisée par D. Rouvel et J. Dudek [Rou13], a été effectuée avec des intensités d'appariement de  $G_n = 15.3/A$  et de  $G_p = 23.7/A$ . Les états de particules individuelles ont été calculés dans deux cas. Premièrement, un calcul a été réalisé en fonction de la déformation  $\beta_2$  en imposant des valeurs de  $\beta_4$  et  $\beta_6$  nulles. Un autre calcul a été réalisé à l'IPHC en fonction de la déformation  $\beta_2$  en imposant une valeur de  $\beta_4$  nulle et en laissant le paramètre  $\beta_6$  libre. On note que les énergies des états 2-qp et 4-qp n'ont pas été calculées de façon auto-consistantes dans cette première série de calculs. La méthode de Lipkin-Nogami a été utilisée pour le traitement de l'appariement nucléaire et la détermination des énergies de quasi-particules. Dans le second cas, le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  dans son état fondamental présentait une déformation  $\beta_2 = 0.251$  et  $\beta_6 = -0.045$ . On note que ces valeurs sont en accord avec celles obtenues par A. Sobczewski et ses collaborateurs grâce au modèle de Cranking :  $\beta_2 = 0.249$ ,  $\beta_4 = 0.001$  et  $\beta_6 = -0.050$  [Sob01] et celles obtenus par S. Ćwiok et al. grâce à l'approche Nilsson-Strutinsky :  $\beta_2 = 0.248$ ,  $\beta_4 = 0.005$  et  $\beta_6 = -0.052$  [Cwi94].

Les diagrammes de particules individuelles, que j'ai tracés à partir des deux séries de calculs, sont présentés sur la Figure 6.14 pour les protons et pour les neutrons. Seule la zone d'intérêt est présentée pour chacun des tracés. Les résultats obtenus avec et sans  $\beta_6$  sont illustrés, respectivement à droite et à gauche. On observe clairement l'effet du paramètre de déformation  $\beta_6$  qui modifie la position de certaines orbitales. Ainsi, le gap  $Z = 104$  est diminué et le gap  $N = 152$  est agrandi à la déformation d'intérêt ce qui est en accord avec les faits expérimentaux discutés dans la Section 5.7.

On note que l'influence du paramètre de déformation  $\beta_6$  est également discutée dans les Références [Liu11] et [Zha13a] en utilisant respectivement les modèles Woods-Saxon Universal et Cranked Shell Model. Il y est montré qu'il est indispensable de le prendre en compte pour reproduire les moments d'inertie expérimentaux.

Les possibilités d'états de 2-qp de plus basse énergie pouvant être réalisés avec les états de particules individuelles calculés sont également présentées sur la droite de la Figure 6.14. Il s'agit d'une première approche car aucun effet d'appariement ou de correction n'a été pris



en compte.

Les états calculés pour les protons ne semblent pas en accord avec ceux obtenus expérimentalement. C'est probablement dû à l'écart entre  $[514]7/2^-$  et  $[521]1/2^-$  accentué par la déformation  $\beta_6$ . L'état 2-qp de plus basse énergie pouvant être construit avec ces niveaux est  $K^\pi = 8^-$ . Les deux états 2-qp suivants sont  $6^+$  et  $5^-$ .

Les états calculés pour les neutrons ne présentent pas non plus le même ordre que ceux extraits expérimentalement. Les états 2-qp de plus basse énergie sont des états  $7^+$  et  $3^+$ . Il est probable que ce modèle ne reproduise pas correctement les états neutrons de ce noyau ou qu'il y manque des effets d'appariement ou des corrections adéquates. En tout cas, cette expérience est probablement un cas intéressant pour ancrer un programme d'amélioration de ce modèle.

#### 6.4.6.2 Calcul des états de multi-quasiparticules

La seconde série de calculs, réalisée par F. Kondev au ANL [Kon13], utilise les paramètres de déformation provenant de la Référence [Cwi94], c'est-à-dire  $\beta_2 = 0.248$ ,  $\beta_4 = 0.005$  et  $\beta_6 = -0.052$ . Pour calculer les états de quasi-particules, l'appariement basé sur la méthode de Lipkin-Nogami a également été utilisé. Ces états ont ensuite été corrigés par les interactions résiduelles n-n, p-p et p-n, en utilisant les données expérimentales valables dans la région.

Les intensités d'appariement  $G_n = 16.7/A$  et  $G_p = 23.8/A$  ont été obtenues en reproduisant les gaps protons et neutrons pour les noyaux de  $^{250}\text{Cf}$  et de  $^{254}\text{Fm}$ . Il s'agit des seuls noyaux pairs-pairs de la région pour lesquels la masse est connue avec une précision suffisante (4 chiffres significatifs). Les masses proviennent de la Référence [Wan12].

Trois versions de niveaux de quasiparticules ont été calculées :

- ◇ Les calculs provenant directement du code Woods-Saxon Universal, sans ajustement.
- ◇ Les calculs ajustés pour reproduire les états observés expérimentalement avec des noyaux N impair, Z pair pour les neutrons et Z impair, N pair pour les protons. Des valeurs ont été prises des noyaux de  $^{245}\text{Cm}$ ,  $^{247}\text{Cf}$ ,  $^{249}\text{Fm}$ ,  $^{251}\text{No}$  ( $N = 149$ ) ;  $^{247}\text{Cm}$ ,  $^{249}\text{Cf}$ ,  $^{251}\text{Fm}$ ,  $^{253}\text{No}$  ( $N = 151$ ) et  $^{249}\text{Cm}$ ,  $^{251}\text{Cf}$ ,  $^{253}\text{Fm}$  ( $N = 153$ ) pour les neutrons et les noyaux de  $^{249}\text{Bk}$  ( $Z = 97$ ) et  $^{251}\text{Es}$  ( $Z = 99$ ) pour les protons. Une approche similaire a été réalisée avec succès dans la région des terres rares.
- ◇ Les calculs ajustés tenant compte d'une estimation de plusieurs énergies d'interaction résiduelle qui a été réalisée à partir des données expérimentales. Des données neutron-neutron, proton-proton et neutron-proton ont été prises en compte.

Les énergies calculées pour les états 2-qp et 4-qp dans le dernier cas sont représentées sur la Figure 6.15. L'incertitude sur les calculs ajustés est estimée à 150-200 keV. Il est donc important de prendre en compte ce paramètre pour l'ordonnement de certains états 2-qp et 4-qp.

Il est intéressant de noter que, malgré les arguments concernant les tailles respectives des gaps protons et neutrons, l'état 2-qp calculé de plus basse énergie soit un état neutron, le  $K^\pi = 4^-$  (ou  $5^-$  s'il est Gallagher défavorisé) ! Conformément aux indications, expérimentales, le second état est proton et de  $K^\pi = 8^-$ . On trouve également un état  $K^\pi = 10^+$  en fin de liste. Ces différents états semblent confirmer les propositions d'assignement obtenues en se

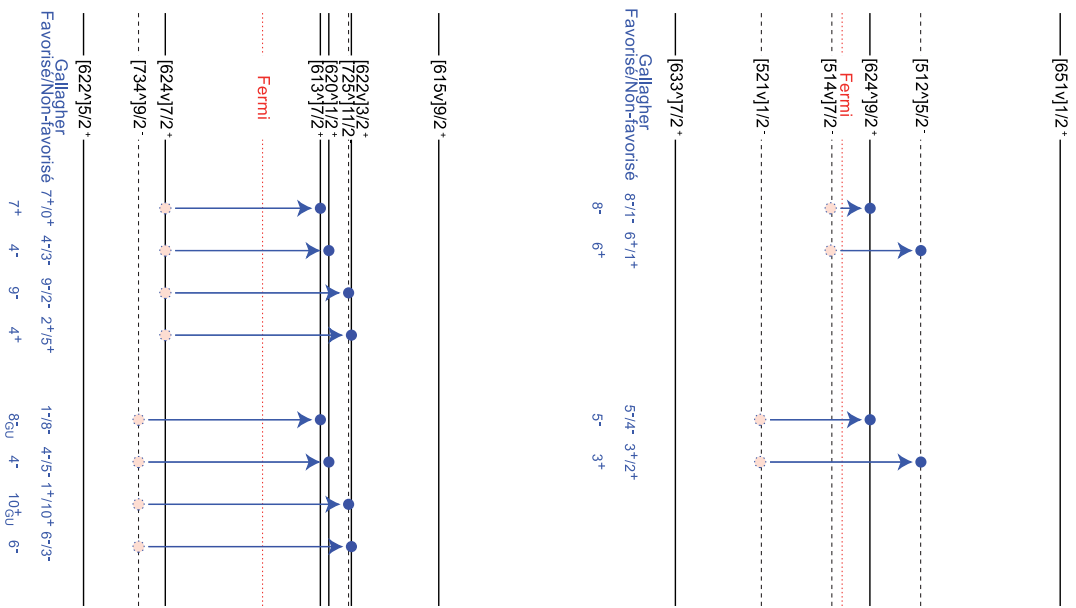
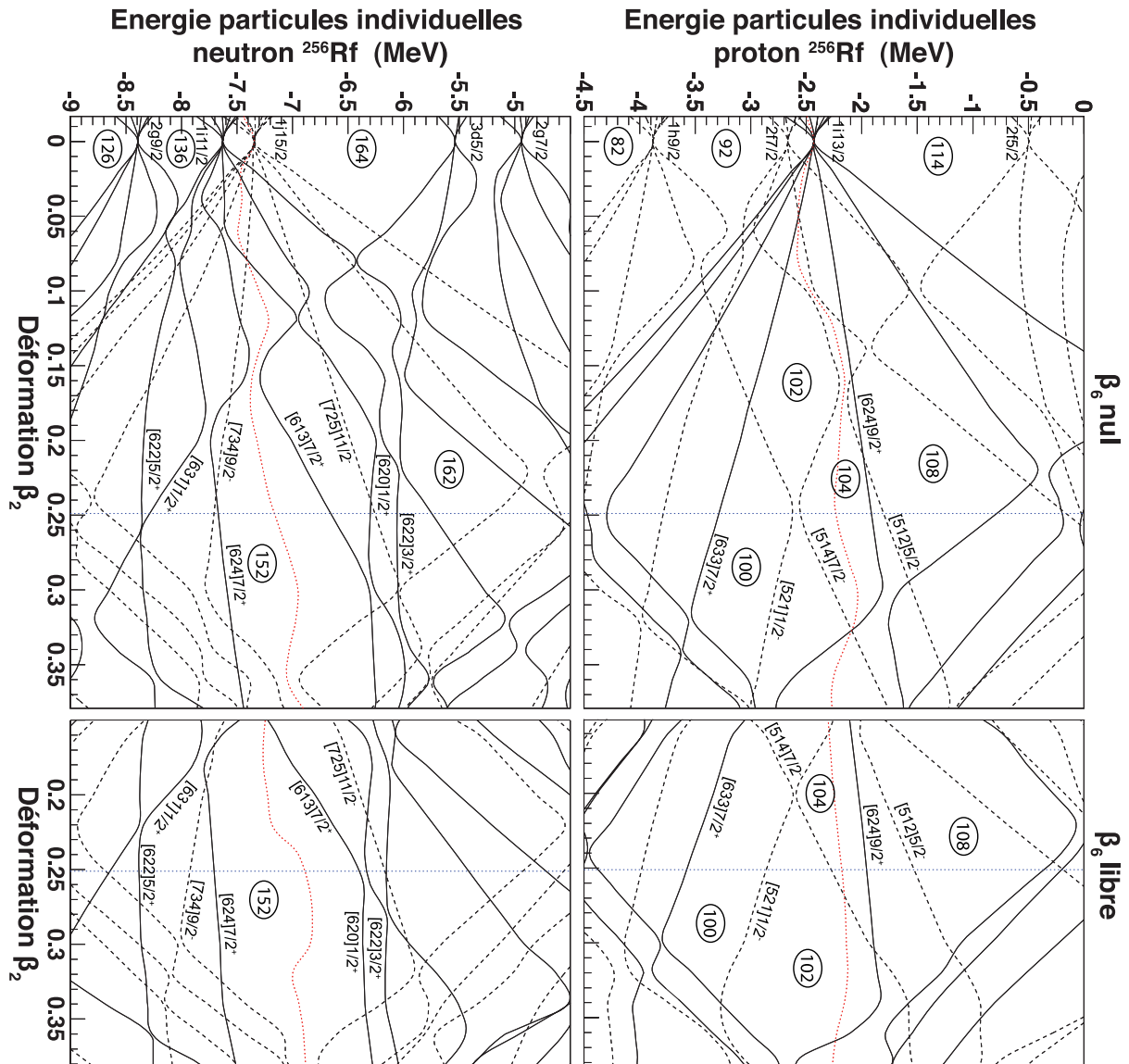


Figure 6.14: (Sur la page précédente) Schéma des orbitales des particules individuelles protons et neutrons pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  en fonction du coefficient de déformation quadrupolaire  $\beta_2$  calculé grâce au modèle "Woods-Saxon Universal" [Rou13]. A gauche, le paramètre  $\beta_6$  est nul ; à droite, il est laissé libre. Un schéma des possibilités d'états 2-qp de plus basse énergie est ajouté.

(On previous page): Energy level diagram for the proton single-particles of the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus as a function of the quadrupolar deformation coefficient  $\beta_2$ . It was calculated using the "Woods-Saxon Universal" model [Rou13]. On the left, the  $\beta_6$  parameter is null; on the right, it is free. Diagrams of the smallest energy 2-qp states possibilities are added.

$K^\pi$	Configuration neutrons	Configuration protons	$E_{qp}$ (keV)	$E_{res}$ (keV)	$E_{calc}$ (keV)
$0^+$			0	0	0
$4^-$	$1/2^+[620] \times 9/2^-[734]$		1137	-111	1026
$8^-_{\pi}$		$7/2^-[514] \times 9/2^+[624]$	1271	-57	1214
$6^-$	$3/2^+[622] \times 9/2^-[734]$		1295	-70	1225
$5^-$		$1/2^-[521] \times 9/2^+[624]$	1329	-100	1229
$6^+$		$5/2^-[512] \times 7/2^-[514]$	1352	-100	1252
$8^-_{\nu}$	$7/2^+[613] \times 9/2^-[734]$		1171	+218	1389
$10^+$	$9/2^-[734] \times 11/2^-[725]$		1492	+100	1592
$12^+$	$1/2^+[620] \times 9/2^-[734]$	$7/2^-[514] \times 9/2^+[624]$	2408	-133	2275
$14^+$	$3/2^+[622] \times 9/2^-[734]$	$7/2^-[514] \times 9/2^+[624]$	2566	-123	2443
$16^+$	$7/2^+[613] \times 9/2^-[734]$	$7/2^-[514] \times 9/2^+[624]$	2442	+137	2579
$12^-$	$1/2^+[620] \times 7/2^+[624] - 7/2^+[613] \times 9/2^-[734]$		2549	+114	2663
$18^-$	$9/2^-[734] \times 11/2^-[725]$	$7/2^-[514] \times 9/2^+[624]$	2763	+51	2814
$15^-$	$9/2^-[734] \times 11/2^-[725]$	$1/2^-[521] \times 9/2^+[624]$	2821	+8	2829
$17^+$	$7/2^+[624] \times 7/2^+[613] - 9/2^-[734] \times 11/2^-[725]$		2911	+206	3117

Figure 6.15: Niveaux d'énergie des états de quasi-particules 2-qp et 4-qp calculés avec le modèle Woods-Saxon Universal par F. Kondev pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  [Kon13]. Les énergies données pour chaque état envisagé sont : celles sans ajustement ( $E_{qp}$ ), les énergies résiduelles ( $E_{res}$ ) puis les valeurs ajustées en tenant compte de l'interaction résiduelle ( $E_{calc}$ ).

Multi-quasiparticles states energy levels (2-qp and 4-qp) calculated by F. Kondev with the Woods-Saxon Universal model for the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus [Kon13]. The given energies for each state are: the ones without ajustement ( $E_{qp}$ ), the residual energies ( $E_{res}$ ) and the ajusted values taking into account the residual interaction ( $E_{calc}$ ).

basant sur les facteurs d'empêchement et sur les particules individuelles expérimentales. On notera tout de même que l'on avait vu comme non compatible avec la durée de vie de l'isomère (2) une décroissance  $8^-$  vers  $4^-$ . Cependant, comme le  $\nu 2 4^-$  favorisé Gallagher se trouve un peu en dessous de son partenaire  $\nu 2 5^-$  défavorisé, on pourrait envisager une séquence où  $\pi 2 8^-$  (isomère 2) décroîtrait vers  $\nu 2 5^-$  (non isomérique) qui décroîtrait presque instantanément vers  $\nu 2 4^-$  (isomère 1).

Plusieurs possibilités d'états 4-qp plausibles pour l'assignation de l'isomère (3) qui va être discutées dans la sous-section suivante.

### 6.4.7 Discussion de l'assignement de l'isomère (3)

Les propositions d'assignement obtenues dans les sections précédentes en se basant sur les comparaisons de facteurs d'empêchement et sur les observations donnent une bonne indication pour les isomères (1) et (2). Pour ce qui est du troisième isomère, il faut probablement faire appel à des excitations à quatre quasi-particules. Ce fait serait cohérent avec les ratios isomériques observés.

La distribution en énergie de la bouffée émise à la décroissance de cet isomère est étendue sur une gamme d'énergie relativement large (voir la Figure 6.1.B). Elle s'étend jusqu'à environ 600 keV. On s'attend donc à une grande différence d'énergie entre l'état (2) et (3) comme cela a également été suggéré dans [Jep09]. Par ailleurs, la décroissance de (3) vers (2) passe probablement par un certain nombre de transitions qui pourraient être converties ou non. De fait, d'une bouffée d'électrons à la suivante, on n'observerait pas forcément la même énergie somme. La distribution observée s'étendant jusqu'à 600 keV, on a probablement près de 1 MeV d'écart entre (3) et (2). Ceci place l'isomère (3) à une énergie d'excitation supérieure à 2500 keV.

Par ailleurs, la présence de l'état neutron  $K^\pi = 10^+$  non isomérique, fait que l'on devra probablement faire appel à des états de K supérieur ou égal à 13 pour expliquer la durée de vie de 27  $\mu$ s observée pour l'isomère (3). Probablement que seules les valeurs de 13 ou 14 qui seraient compatibles avec les systématiques de Löbner.

La littérature procure certaines pistes pour assigner ce dernier état isomérique. Il a été proposé la présence d'un état  $K^\pi = 10^+$  pour le noyau de  $^{254}\text{No}$  dans [Cla10]. Ce dernier est un isotone de celui de  $^{256}\text{Rf}$  et l'état  $K^\pi = 10^+$  est un état neutron. L'état 4-qp pourrait être un état  $K_{(3)}^\pi = 14^+$  comme proposé dans [Tan06] ou un état  $K_{(3)}^\pi = 16^+$  comme proposé dans [Herz06] et [Cla10]. Cette dernière présente une interdiction probablement trop forte ( $\Delta K=6$ ). Toutes ces possibilités sont également proposées par les calculs théoriques (voir la Figure 6.15).

Nous ne disposons probablement pas de suffisamment de données dans cette expérience pour aller plus avant. Une expérience haute statistique de spectroscopie au plan forcal pourrait probablement permettre de résoudre cette question.

## 6.5 Proposition d'un schéma de niveaux pour le noyau de $^{256}\text{Rf}$

Grâce aux résultats obtenus dans cette expérience, un schéma de niveaux énergétiques peut être proposé pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  (voir la Figure 6.16). Il s'agit du premier schéma combinant des informations obtenues par spectroscopies prompt et retardée pour un noyau superlourd.

Cette figure permet de synthétiser les différentes informations obtenues. Le temps de demi-vie de l'état fondamental du noyau a été mesuré à 6.9 ms. Une bande de rotation basée sur cet état a été observée pour la première fois et cela jusqu'à un spin de  $20 \hbar$ . Trois états

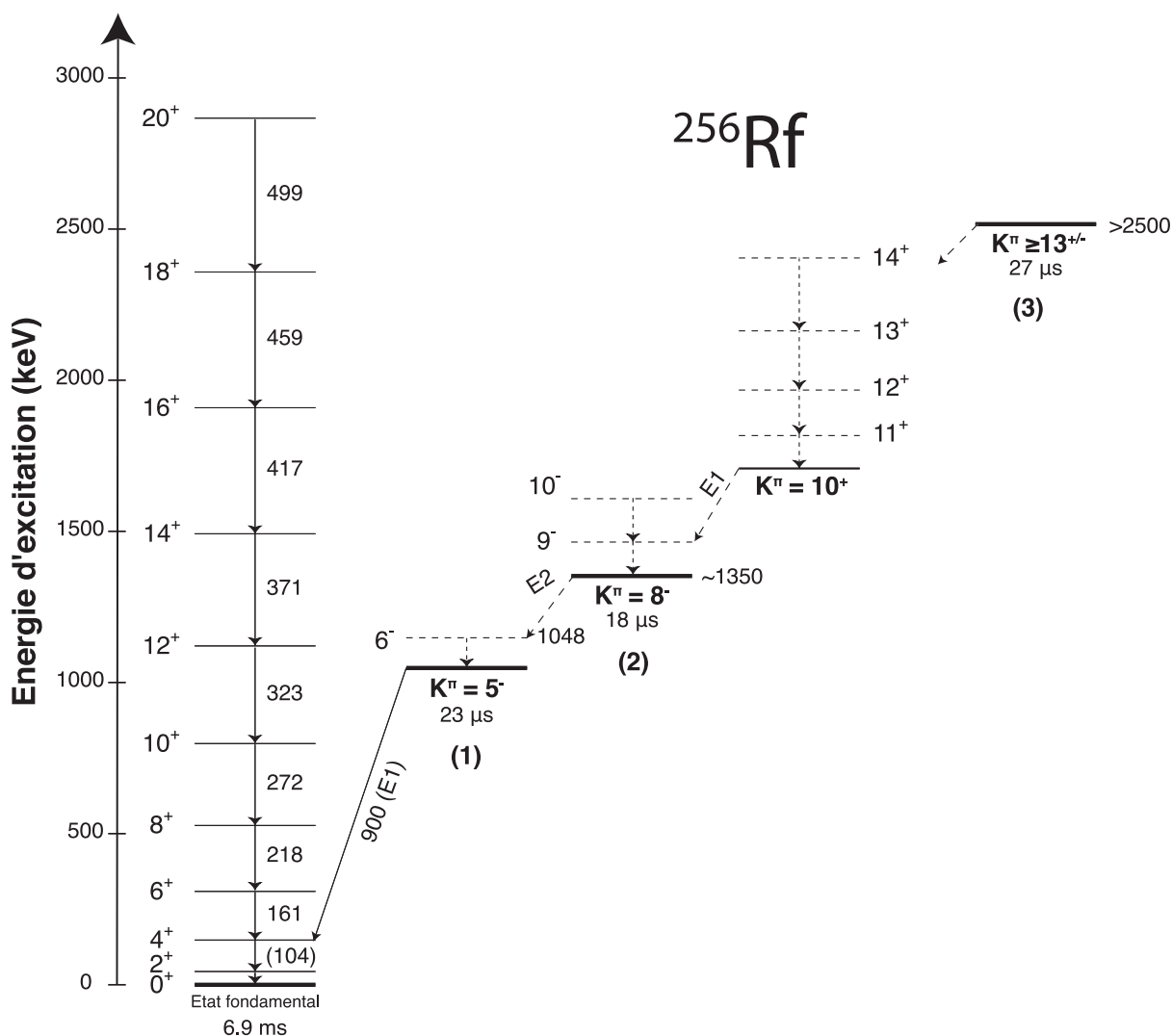


Figure 6.16: Schéma de niveaux tentatif pour le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  combinant les résultats obtenus par spectroscopie prompt et retardée.

*Tentative level-scheme for the  $^{256}\text{Rf}$  nucleus. It combines results from the prompt and the delayed spectroscopic study presented in this thesis.*

isomériques en cascade ont été identifiés. Leurs temps de demi-vie ont été mesurés à 23, 18 et 27  $\mu\text{s}$  dans l'ordre croissant d'énergie d'excitation. Le rapport isomérique total du noyau a été estimé et correspond à environ  $38 \pm 6\%$ . Une transition  $\gamma$  de 900 keV a été clairement observée et attribuée à la décroissance du premier état isomérique noté (1) vers l'état  $4^+$  de la bande fondamentale. En se basant sur les systématiques expérimentales et une approche théorique, des propositions de valeurs de  $K$  ont été faites pour les deux premiers isomères :  $K_{(1)}^\pi = 5^-$ ,  $K_{(2)}^\pi = 8^-$  que nous pensons être issus d'états 2qp protons. Nous trouvons plus prudent de ne pas assigner le troisième isomère, les seuls éléments tangibles étant la présence de l'état non isomérique  $K^\pi = 10^+$  (état 2qp neutrons) dans le chemin de décroissance de l'isomère (3) et le fait que de facto  $K_{(3)}$  soit supérieur ou égal à 13. Les énergies d'excitation proposées sont, dans l'ordre d'énergie d'excitation croissante, de 1048 keV, d'environ 1250 keV et d'environ 2500 keV. Un schéma de décroissance à partir de ces états est proposé sur la figure 6.16.



**Troisième partie**  
**Production de faisceau**





# Production d'un faisceau isotopique intense d'ions de $^{50}\text{Ti}$

## Sommaire

<b>7.0</b>	<b>Summary</b>	<b>226</b>
<b>7.1</b>	<b>Contexte</b>	<b>230</b>
<b>7.2</b>	<b>Méthodes principales de production d'un faisceau</b>	<b>232</b>
7.2.1	Sputtering	232
7.2.2	Penning Ion Gauge	233
7.2.3	Four à induction	233
7.2.4	MIVOC	234
<b>7.3</b>	<b>Résumé des résultats antérieurs</b>	<b>237</b>
<b>7.4</b>	<b>Etude détaillée du <math>\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2</math></b>	<b>242</b>
7.4.1	Etude de la conservation	242
7.4.2	Tests de concentration	244
7.4.3	Tests de l'influence du vide	245
7.4.3.1	Test du composé sec	246
7.4.3.2	Test du composé sous solvant	247
7.4.3.3	Test du composé protégé sous liquide ionique	248
7.4.4	Etude de l'évolution temporelle sur spectromètre de masse	250
7.4.5	Discussion	250
<b>7.5</b>	<b>Etude comparative de différents composés organométalliques</b>	<b>252</b>
7.5.1	Etude du $\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$	253
7.5.2	Etude du $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$	253
7.5.3	Etude complémentaire du $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$	256
7.5.4	Etude du $\text{Cp}^*_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$	257
7.5.5	Etude du $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$	258
7.5.6	Choix du composé	259
<b>7.6</b>	<b>Etude approfondie du <math>\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3</math></b>	<b>260</b>
7.6.1	Synthèse à partir de $\text{TiCl}_4$	260
7.6.2	Tests de sensibilité	261
7.6.3	Conditionnement	263
<b>7.7</b>	<b>Dispositif de production de faisceau au JYFL</b>	<b>264</b>
7.7.1	Cyclotron K130	265
7.7.2	ECRIS1	265

---

7.7.3	ECRIS2 . . . . .	266
<b>7.8</b>	<b>Faisceaux de titane intense au JYFL . . . . .</b>	<b>267</b>
7.8.1	Faisceau de titane naturel . . . . .	267
7.8.2	Faisceau de titane enrichi . . . . .	269
7.8.2.1	Résultats avec ECRIS1 . . . . .	271
7.8.2.2	Résultats avec ECRIS2 . . . . .	272

---

## 7.0 Summary

Intense ion beams are required for the production of superheavy elements through fusion-evaporation reactions. The development of an  $^{50}\text{Ti}$  isotopic beam was necessary to synthesize nuclei of  $^{256}\text{Rf}$  at JYFL. Since the titanium thermophysical temperatures are quite high (as shown in Table 7.1), it is rather difficult to produce such a beam. The titanium element has five stable natural isotopes but only 5.4% of  $^{50}\text{Ti}$  (see Table 7.2). The use of enriched titanium material is then required to reach sufficiently high beam intensity.

Several methods can be used to produce an intense ion beam. The four main ones are:

- ◇ sputtering of atoms out of an enriched metallic rod (see Figure 7.1).
- ◇ ionization of a solid target by an electric discharge by means of the Penning Ion Gauge (PIG) method.
- ◇ high temperature sublimation from a metallic or oxide pellet in an inductive oven inside an ECR ion source.
- ◇ feeding the plasma with a volatile organometallic compound through the Metal Ions from Volatile Compounds (MIVOC) method. By evaporation, the compound goes into an Electron Cyclotron Resonance (ECR) ion source (as the one in Figure 7.2), then is broken and ionized to create a beam. This method is commonly used to produce beams of metallic elements with a low material consumption rate.

The development in order to produce a  $^{50}\text{Ti}$  beam started in 2004 at Strasbourg. It was a large part of two Ph.D. theses at IPHC: J. Piot and, then, mine. During his thesis, J. Piot compared two production methods: the induction oven and the MIVOC methods. The latter one was chosen because it gave lower titanium consumption and higher yield. This method requires a strong collaboration between physicists and chemists. This was facilitated by the multidisciplinary character of the IPHC where all syntheses were realized.

Several organometallic molecules were then compared in order to find a good MIVOC candidate. Their list and modelling are presented respectively in Table 7.3 and Figure 7.3. In order to test all the different molecules, a mass spectrometer available at JYFL, was used (see Figure 7.4). Gaseous mass spectrometry was not only used for analysis, but was also an efficient means for vapour pressure measurements and validation of compounds as good MIVOC products, suitable for beam production in ECR sources. I developed, within this framework, several dedicated codes in order to plot and analyse mass spectra.

Among the tested molecules,  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  presented the best characteristics in 2009.

In order to synthesize  $^{256}\text{Rf}$  nuclei, an enriched compound of this molecule was synthesized (see the corresponding mass spectrum in Figure 7.5). However, no intense beam was obtained. The sample was not in its classical dry form and the source magnet could not separate titanium ions from chlorine ions (from the used solvent) since  $^{50}\text{Ti}^{10+}$  and  $^{35}\text{Cl}^{7+}$  have the same mass over charge ratio.

The beam development was continued at the beginning of my thesis. Since the chosen compound presents some instabilities, I made several series of tests on the  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  molecule in order to have a better understanding of its behaviour.

Different solvents were tested in order to observe if they are suitable for the compound long term storage (over several months). Among ten tested solvents (see the list in Table 7.4), the diethyl ether and the toluene show good conservation capacities. A summary of these tests and several photos are presented respectively in Table 7.5 and Figure 7.6.

Several product concentrations were tested in order to find the optimal concentration. It was observed that the compound aspect changes if the concentration used is too high (see in Figure 7.7). On the contrary, a too low concentration would lead to risks for the compounds in the final preparation phase where the solvent is evaporated. The listed observations in Table 7.6 give the optimal concentration of  $0.80 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ .

The vacuum influence on the molecule was tested at IPHC with high-vacuum pumps protected by nitrogen traps. Several samples were tested. A dry compound was submitted to vacuum. As one can see in Figure 7.8, the sample degraded (becoming black) meaning that this molecule is very sensitive to vacuum. The time evolution of the measured pressure, in Figure 7.9, shows a huge peak reflecting the fact that a reaction occurs, leading to large amount of methyl release.

A sample stored under solvent was then tested and also degraded (see Figure 7.10). Ionic Liquid (IL), a last generation almost vapour-pressureless solvent, was also tested. During the pumping, compound appearance in IL did not change (see Figure 7.11). The use of this solvent seems to be able to protect the compound when put in vacuum for several hours. Moreover, corresponding flow intensity is quite stable for long periods as shown in Figure 7.12.

The  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  molecule was also tested by mass spectroscopy. Figures 7.13 and 7.14 display its time evolution. It shows start of degradation of the compound after half an hour dry in vacuum. The clear signature is the appearance of a huge peak at the mass of the methyl groups. Ionic liquid was then added resulting in the disappearance of this methyl peak. It has been proved with this test that adding ionic liquid stops the degradation process. This latter could be similar to the reaction presented in Figure 7.15.

Since the  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  molecule possesses several instabilities and presents technical issues, several molecules were tested and compared in order to define the compound that should be used for the beam production.

$\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$  compound was synthesized and no MIVOC signature was observed in the mass spectrometer. It seems this molecule is unstable and decomposes at room temperature. Since it is too complicated to protect it from the temperature during all the process, this molecule was not chosen for the beam.

The  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  was already used to produce a natural beam at JYFL. The first tests confirmed to us that this compound is very air sensitive and needs specific handling (see

Figure 7.16). Its mass spectrum shows a quite good MIVOC signature that is even better than the one obtained with a commercial compound (see Figure 7.17). The time evolution of a sample pressure was analysed (see Figure 7.18). It shows that this molecule could give a stable beam intensity for hours and then suddenly drops down when there are no more products. Since this behaviour is optimal for a MIVOC beam, it seems to be a really good candidate.

The mass spectrum of the heaviest molecule tested,  $\text{Cp}_2^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ , is shown on Figure 7.19. No MIVOC signature was observed: the compound seems to have no volatility.

The last tested molecule was  $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$ . Its picture and a mass spectrum are presented in Figure 7.20. This compound shows a weak MIVOC signature. However, it needs to be warmed to release more vapour as done with this compound to generate thin titanium metallic layers in industrial applications. Unfortunately, it is too complicated to avoid redeposition on cold pipe walls for ECR ion source applications. This compound was not kept for further development.

After this series of tests (see conclusions in Table 7.7), the  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  molecule was selected to produce the beam for my thesis experiment. The behaviour of this compound was understood through several stability tests: each of them studied the effect of only one constraint. They established the sensitivity of the compound to moisture, oxygen and light (see Table 7.8). This compound is not as temperature sensitive as  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ , but was stored cold. It melts at around  $75^\circ\text{C}$ . A NMR spectrum of this compound is presented in Figure 7.21.

There are two ECR sources to produce a heavy ion beam at JYFL; ECRIS1 and ECRIS2 operated at 6.4 GHz and 14.1 GHz respectively (see Figure 7.23). ECRIS1 was used to test and study the titanium compounds and beams, and ECRIS2, designed to produce higher charge state beams, was used for intense beam production and  $K = 130$  cyclotron operation (see Figure 7.22).

In a first study based on non-enriched samples, the intensity for the  $^{48}\text{Ti}$  different charge states were examined on ECRIS1 (see Table 7.9) and the influence of source chamber pressure was studied (see in Figure 7.25). It was shown that the pressure should be around  $4.0 \cdot 10^{-7}$  mbar in order to get optimal operation. After optimizing on ECRIS2, a beam of natural titanium was sent through  $K = 130$  cyclotron. As usual, the intensity was approximately ten times higher than with ECRIS1 and a higher charge state distribution was obtained. The intensity delivered with respect to compound valve opening is plotted in Figure 7.24 and shows that there is an efficient low-pressure operating mode. A very promising intensity of  $13.5 \text{ e}\mu\text{A}$  was achieved for  $^{48}\text{Ti}$  out of a non-enriched sample (focussed on the ECR line Faraday cup).

An enriched compound of  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  was synthesized in 2011 at IPHC. Samples were first tested on a mass spectrometer and showed a very good MIVOC signal as one can see in Figure 7.26. The molecule was then studied on ECRIS1 where all the charge states were tested (see Table 7.10 and Figure 7.27). It was observed that the charge states  $8^+$  to  $11^+$  gave the highest intensities and that the overall intensity was higher than natural compound as expected for 92% enriched compound.

Plugged on ECRIS2, the enriched compound allowed us to produce an intense isotopic beam of  $^{50}\text{Ti}^{11+}$  for 25 days and enabling the spectroscopic study of  $^{256}\text{Rf}$ . A very stable

intensity was obtained which decreased very quickly when the sample was almost consumed. An average intensity of 29 pA on target was measured. A record of 15.5 eμA out of the ion source (45 pA on target) was achieved with the last sample (measured focussed on target). The consumption was around 0.6 mg·h<sup>-1</sup> in terms of titanium atoms. Table 7.11 summarizes the optimized measured intensities for each charge state in ECRIS2.

This successful development of the first isotopic beam of titanium using the MIVOC method was published. In the months following my experiment, a lower consumption working point was found on ECRIS1 and our method was also successfully tested at GANIL and FLNR ECR ion sources with natural titanium compounds. This beam development opens up a lot of new opportunities for prompt and delayed spectroscopic studies of the superheavy elements.

La production d'un faisceau isotopique intense de  $^{50}\text{Ti}$  est nécessaire à la réalisation de l'étude spectroscopique du noyau superlourd de  $^{256}\text{Rf}$ . Ce chapitre a pour objectif de présenter les développements réalisés à l'IPHC et au JYFL pour produire ce faisceau d'ions. Les résultats obtenus ont été publiés dans la revue *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* [Rub12a] et ont donné lieu à un rapport interne confidentiel à l'IPHC.

Des travaux de recherche pour l'obtention d'un faisceau de  $^{50}\text{Ti}$  ont débuté à Strasbourg dès 2004. Deux techniques de production de faisceau ont été testées : l'utilisation d'un four à induction et la méthode MIVOC. Ces deux méthodes sont les seules envisageables pour produire un tel faisceau avec le dispositif expérimental actuel du JYFL. De 2007 à 2010, J. Piot a consacré un volet de sa thèse à ce sujet [Pio10]. Durant ma thèse, je me suis fortement investi dans la suite de ces développements. Ces études sont présentées dans ce chapitre. Certains résultats obtenus dans ce cadre ne sont pas présentés dans ce document et ont donné lieu à un rapport confidentiel interne à l'IPHC.

Après une introduction sur la problématique du faisceau de titane, les différentes méthodes de production de faisceau sont décrites. Les résultats antérieurs à ma thèse dans le cadre de ce développement sont ensuite résumés. Plusieurs composés organométalliques de titane ont été testés comme candidats potentiels MIVOC, ce qui a mené à un comparatif détaillé. Parmi ces molécules, celles prometteuses de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  et de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  ont été étudiées avec une attention particulière. L'étude approfondie de la molécule sélectionnée pour la synthèse de  $^{256}\text{Rf}$ , celle de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ , est présentée par la suite. À l'aide du dispositif de production du JYFL qui est présenté, ce composé a permis de produire des faisceaux de titane naturel et isotopique au JYFL dont les caractéristiques sont détaillées en fin de chapitre.

## 7.1 Contexte

Afin de synthétiser des éléments superlourds en laboratoire, on utilise principalement la méthode de réaction par fusion-évaporation (discutée dans la Section 2.1). Ces réactions nécessitent d'utiliser un couple cible-projectile adéquat, et généralement riche en neutrons. Depuis une quinzaine d'années, l'isotope de  $^{48}\text{Ca}$  a joué un rôle primordial dans la production de noyaux lourds. En effet, il est caractérisé à la fois par sa richesse en neutrons et par un excès de liaison induit par sa double magie ( $Z = 20$  et  $N = 28$ ). Ce noyau clef des fusions froides est exploité à la fois en spectroscopie prompt et retardée. Dans le premier cas, il a permis pour la première fois d'étudier par spectroscopie prompt la structure fine d'un nombre conséquent d'isotopes du domaine des noyaux transfermia jusqu'au lawrencium ( $Z = 103$ ). Deuxièmement, dans le domaine de la synthèse des superlourds, il est l'apport qui a permis de repousser les limites des éléments connus jusqu'à atteindre des isotopes ayant 118 protons grâce notamment à l'utilisation de cibles radioactives d'actinides au FNLR à Dubna (voir [Oga07] pour plus de détails).

La quasi-totalité des possibilités de réactions de fusion-évaporation qu'offre le noyau de  $^{48}\text{Ca}$  a été utilisée. Il est donc nécessaire d'exploiter un nouveau noyau projectile, avec un nombre de protons plus élevé, pour repousser les limites des noyaux accessibles en spectroscopie et en synthèse. Le noyau suivant pair-pair stable riche en neutrons de la carte des nucléides est le  $^{50}\text{Ti}$ . Il possède 22 protons et a le fort avantage d'être magique en neutrons ( $N = 28$ )

ce qui amène de la stabilité lors d'une réaction. En effet, grâce à ces deux protons supplémentaires, cet isotope est la clef permettant d'étudier de nombreux noyaux. Des isotopes tels que le  $^{256}\text{Rf}$  ( $Z = 104$ ) et le  $^{257}\text{Db}$  ( $Z = 105$ ) pourraient être étudiés en spectroscopie prompte. En exploitant les mêmes cibles d'actinides que celles utilisées avec le noyau de  $^{48}\text{Ca}$ , il peut être envisagé de synthétiser de nouveaux éléments superlourds comme les très convoités éléments  $Z = 119$  et  $Z = 120$ , actuels "Saint-Graal" du domaine d'étude. Ainsi, ce faisceau représente un moyen pour réaliser plusieurs pas supplémentaires vers l'îlot de stabilité.

Le titane, élément  $Z = 22$ , est un métal de transition appartenant au groupe 4 et à la période 4 du tableau périodique des éléments. Il est léger, solide, d'un aspect blanc métallique et résiste à la corrosion. Il s'oxyde facilement car il est très sensible au contact de l'oxygène ou de l'eau. Dans la nature, on le trouve donc principalement sous forme d'oxyde de titane, majoritairement composé de molécules de dioxyde de titane  $\text{TiO}_2$ . Les températures de fusion et d'ébullition correspondantes, référencées dans le Tableau 7.1, sont très élevées. Il est, pour ces raisons, très difficile à réduire. Comme cela est discuté dans ce chapitre, ces caractéristiques compliquent fortement la tâche lors du développement d'un faisceau de cet élément. Les températures de changement d'état du tétrachlorure de titane  $\text{TiCl}_4$ , utilisé lors de ce développement, sont également renseignées dans le tableau.

Le titane naturel est composé de cinq isotopes stables (du  $^{46}\text{Ti}$  au  $^{50}\text{Ti}$ ) dont les masses atomiques et les rapports isotopiques naturels sont donnés dans le Tableau 7.2. Il est majoritairement composé de l'isotope de  $^{48}\text{Ti}$  à 73.72% [Zhu02]. L'isotope d'intérêt, le  $^{50}\text{Ti}$ , est très minoritaire : seulement 5.18% de l'abondance naturelle. Lors du développement du faisceau, cette forte contrainte a été contrebalancée par l'utilisation de composé enrichi comme cela est expliqué plus loin dans ce chapitre.

Molécule	Ti	$\text{TiO}_2$	$\text{TiCl}_4$
Température de fusion ( $^{\circ}\text{C}$ )	1668	1885	-24.8
Température d'ébullition ( $^{\circ}\text{C}$ )	3287	2500-3000	136.4

Tableau 7.1: Caractéristiques thermophysiques du titane sous trois formes chimiques [Lid12].  
*Thermophysical characteristics of the titanium element under three chemical forms [Lid12].*

Isotope	Neutrons	Masse atomique (uma)	Rapport isotopique naturel (%)
$^{46}\text{Ti}$	24	45.9526316 (9)	8.25 (3)
$^{47}\text{Ti}$	25	46.9517631 (9)	7.44 (2)
$^{48}\text{Ti}$	26	47.9479463 (9)	73.72 (3)
$^{49}\text{Ti}$	27	48.9478700 (9)	5.44 (2)
$^{50}\text{Ti}$	28	49.9447912 (9)	5.18 (2)

Tableau 7.2: Caractéristiques des cinq isotopes composants le titane naturel ( $Z = 22$ ) [Zhu02].  
*Characteristics of the five isotopes present in the natural titanium ( $Z = 22$ ) [Zhu02].*



## 7.2 Méthodes principales de production d'un faisceau

Il existe quatre méthodes, qui sont principalement exploitées à travers le globe, pour la production de faisceaux d'ions stables :

- ◇ L'ionisation par un laser des atomes métalliques d'une cible solide du matériel d'intérêt, la pulvérisation cathodique (sputtering).
- ◇ L'ionisation d'une cible solide par une décharge électrique au moyen de la méthode du Piège à Ions de Penning (dite Penning Ion Gauge).
- ◇ La vaporisation d'un échantillon métallique dans un four à induction à haute température dans une source (induction oven).
- ◇ La méthode MIVOC utilisant la sublimation d'un composé organométallique volatil.

Ces différentes méthodes sont chacune introduites dans cette section.

On injecte en général les ions obtenus à partir d'une source à ions ECR (Electron Cyclotron Resonance). En superposant un champ électromagnétique à haute fréquence et un champ magnétique statique à la fréquence de résonance cyclotron électronique, un plasma ionisé peut être efficacement produit. Une source ECR exploite cette résonance pour ioniser un plasma grâce à des micro-ondes qui sont injectées à la fréquence et la puissance adéquates pour améliorer l'efficacité d'ionisation. On peut ajouter dans la source un gaz de mélange (dit *buffer gas*) dont la valeur est définie par l'utilisateur. Les électrons libres dans le gaz sont chauffés par les micro-ondes et entrent ensuite en collision avec les atomes ou les molécules du gaz dans le volume et provoquent leur ionisation. Selon les sources, les ions produits peuvent être soit simplement chargés, soit multichargés si la pression du gaz est suffisamment basse pour empêcher la recombinaison.

### 7.2.1 Sputtering

La production d'un faisceau par technique de sputtering (ou pulvérisation cathodique) a été développée au ANL [Hark95]. Elle répondait aux demandes de plus en plus importantes de faisceaux d'ions très lourds pour l'Argonne Tandem Linac Accelerator System (ATLAS).

Cette méthode est schématisée sur la Figure 7.1. Elle requiert un échantillon de poudre de l'élément désiré qui est préalablement comprimé, grâce à une presse dédiée, en forme de cylindre à l'intérieur d'une structure adaptée en étain. Un faisceau laser est alimenté et passe à travers une lentille focalisatrice. L'échantillon est placé au point focal du laser de l'autre côté de la chambre à plasma, juste à son entrée. Des atomes de l'élément de l'échantillon en question vont être ionisés et vont contribuer à la production du faisceau.

Cette méthode peut être exploitée pour créer des faisceaux d'ions d'éléments lourds comme le calcium jusqu'à des faisceaux très lourds comme le bismuth. Les tests ont démontré que l'application d'une tension électrique négative de l'ordre de 1 kV (par rapport à la tension d'extraction de la source) à l'échantillon permet d'améliorer l'intensité du faisceau. Cette valeur peut être sensiblement améliorée par l'ajout d'un *buffer gas* tel que l'oxygène, l'azote ou l'argon.

La pression de vapeur optimale pour introduire suffisamment de matière dans la source

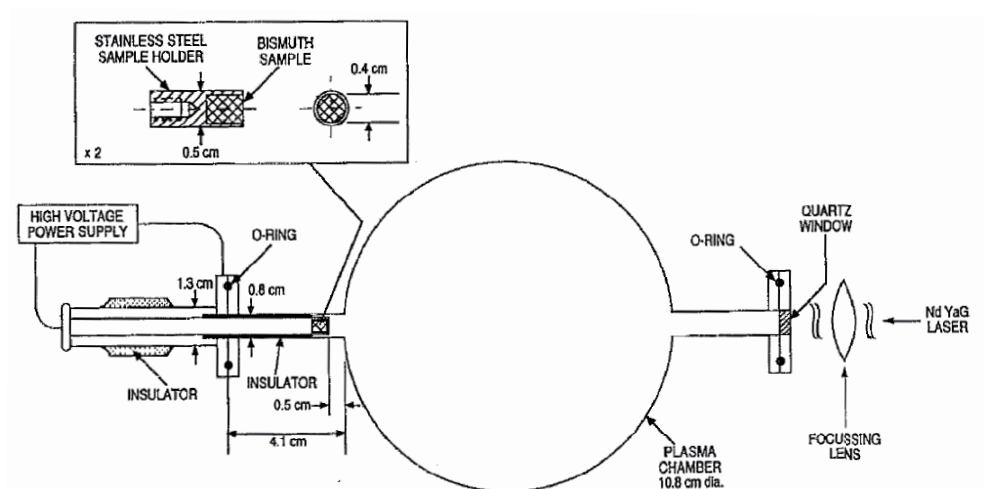


Figure 7.1: Schéma du premier dispositif utilisant la méthode de sputtering. Il était associé à la source d'ions ATLAS PII-ECR [Hark95].

*Plan of the first device using the sputtering method. It was associated to the ion ATLAS PII-ECR source [Hark95].*

est de l'ordre de  $10^{-5}$  mbar. La consommation de matière est de l'ordre de plusieurs centaines de microgrammes de matériel par heure pour un faisceau de quelques  $\mu\text{A}$  en sortie de source [Hark95].

## 7.2.2 Penning Ion Gauge

La production de faisceau par la méthode Penning Ion Gauge (PIG) a été développée pour alimenter l'accélérateur linéaire Unilac au GSI (Darmstadt, Allemagne) [Mul83, Wol90].

Un échantillon métallique d'un élément donné est placé dans une chambre soumise au vide. Cette méthode exploite une décharge électrique qui est projetée sur un échantillon métallique d'un élément donné. Les atomes d'intérêt sont alors ionisés. Les ions sont extraits dans une direction qui est parallèle à celle du champ magnétique appliqué pour produire le faisceau.

La méthode PIG permet d'atteindre des intensités de faisceaux de plusieurs centaines de microampères en sortie de source. Elle est adaptée pour les ions de rapport charge sur masse supérieur à 0.05.

## 7.2.3 Four à induction

La méthode du four à induction a été mise au point au LBNL, Berkeley. Un des objectifs principaux était de réaliser un faisceau de  $^{50}\text{Ti}$  [Zav06, Von07].

Comme indiqué dans le Tableau 7.1, l'oxyde de titane possède une température de fusion de  $1668\text{ }^\circ\text{C}$  et une température d'ébullition d'environ  $3000\text{ }^\circ\text{C}$ . Il est donc nécessaire d'utiliser un four à induction pour pouvoir atteindre la température nécessaire à l'obtention du faisceau à partir de la forme métallique de cet élément. Un autre argument en la faveur de cette mé-

thode est que, d'après [Von07], un échantillon enrichi en  $^{50}\text{Ti}$  se comporte différemment d'un de titane naturel avec la méthode de sputtering.

Un four à induction typique permet d'atteindre une puissance de 1 kW et des températures de chauffe allant jusqu'à 3000 °C. Le fonctionnement à haute température peut induire des réactions entre l'échantillon et le creuset qui doit le contenir. Le creuset idéal diffère en fonction de l'élément d'intérêt. C'est le graphite qui a présenté les meilleures caractéristiques lors de l'utilisation du titane métallique [Von07].

Un échantillon métallique est placé dans le creuset entouré par un système de chauffage inductif. Ce dernier permet de contrôler précisément la température. Lors de son fonctionnement, le four est chauffé sous l'influence des courants induits pour atteindre le point d'ébullition du matériau. Cela entraîne la vaporisation du métal. La vapeur est ensuite amenée dans la chambre à plasma de la source ECR pour être ionisée.

Lors du test avec des ions de  $^{50}\text{Ti}$  présenté dans [Von07], le four a été chauffé jusqu'à une température de 1600 °C. Un faisceau d'ions de  $^{50}\text{Ti}^{12+}$  de 5.5  $\mu\text{A}$  a été obtenu avec une consommation de 0.70  $\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ .

Le GSI et l'Université de Jyväskylä ont également développé chacun une tête de four à induction avec le même principe. Des développements sont toujours en cours dans ces différents laboratoires.

Dans le cadre de sa thèse de doctorat, J. Piot a réalisé une étude de cette méthode en vue de la production d'un faisceau isotopique de titane [Pio10]. Le titane métallique a été obtenu à l'IPHC par réduction du  $\text{TiO}_2$ . Différentes pastilles de titanes métalliques ont été réalisées avec des diamètres et des compositions différentes. Pour cela, les composants initiaux sous forme de pastille sont pressés avant de chauffer celle-ci dans un creuset en molybdène. L'opération se réalise à 900 °C sous atmosphère d'argon. Des détails sont données dans [Pio10].

Plusieurs tests ont été réalisés à Jyväskylä avec du titane naturel sous forme d'oxyde et de métal. Un faisceau d'une intensité de 6  $\mu\text{A}$  a été produit en sortie de la source ECRIS2. Lors de cette première série de tests, la consommation d'atomes de titane a été estimée à 3.2  $\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$ . Cette valeur est élevée comparée aux standards des différentes méthodes de production, mais ces tests n'étaient pas optimisés.

Cette étude a également permis de montrer qu'il est possible de produire un faisceau à partir d'oxyde de titane (ici non enrichi) à très haute température (environ 1600 °C). De plus, elle a permis d'obtenir des informations sur l'intensité du faisceau en fonction de la température du four ainsi que sur la consommation de titane [Pio10]. Ces résultats ont ouvert des portes pour l'avenir, d'autres développements sont en cours.

## 7.2.4 MIVOC

La méthode MIVOC (pour Metal Ion from Volatile Compounds) a été inventée par M. Nurmi et développée à l'Université de Jyväskylä [Arj93, Koi94, Koi98] pour répondre à la demande croissante de faisceaux d'éléments métalliques. Elle est en fonction sur les sources du JYFL depuis 1993. Grâce à sa simplicité et son efficacité, elle a ensuite été adoptée par plusieurs autres laboratoires internationaux tels que le GANIL ou le FLNR. Cette méthode est basée sur l'utilisation de composés organométalliques volatiles et sur le fait qu'une source ECR

a besoin d'une très petite quantité de gaz pour fonctionner. Une photographie de la source ECRIS2 constitue la Figure 7.2.

Les échantillons requis pour produire un faisceau avec cette méthode sont constitués de molécules organométalliques volatiles. Ces dernières doivent présenter une pression de vapeur saturante d'au moins  $10^{-3}$  mbar à température ambiante. Il s'agit de la pression à laquelle la phase gazeuse d'une substance est en équilibre avec sa phase solide (ou liquide) à une température donnée dans un système fermé. Elle est liée à la tendance des molécules à passer de l'état solide ou liquide à l'état gazeux. Ainsi, une substance qui possède une valeur de pression de vapeur saturante élevée à température ambiante est considérée comme volatile.

Par exemple, deux des molécules parmi les plus utilisées pour la méthode MIVOC sont celles de ferrocène de formule  $(C_5H_5)_2Fe$  et de nickelocène de formule  $(C_5H_5)_2Ni$ . Les molécules utilisées sont typiquement composées d'un atome du métal d'intérêt lié à plusieurs cycles organiques tel que le cyclopentadienyl  $\eta^5-C_5H_5$ . Les échantillons se présentent généralement sous la forme d'une poudre ou d'un ensemble de cristaux.

La procédure pour produire un faisceau est la suivante : il faut déposer un échantillon de composé organométallique dans la chambre MIVOC dédiée ; celle-ci étant placée à température ambiante. L'atmosphère de la chambre est évacuée par pompage pour atteindre une pression proche de celle de vapeur saturante du composé. Une fois cette condition atteinte, le pompage est stoppé et une vanne de contrôle est ouverte par l'utilisateur. La vapeur du composé se diffuse à travers un tuyau pour atteindre la chambre à plasma de la source à ions ECR par le seul effet de la pression. Les aimants, la puissance micro-onde, la pression et les autres paramètres associés sont réglés de manières similaires à l'utilisation d'éléments gazeux. Dans la chambre à plasma, les molécules sont brisées et chaque atome est ionisé

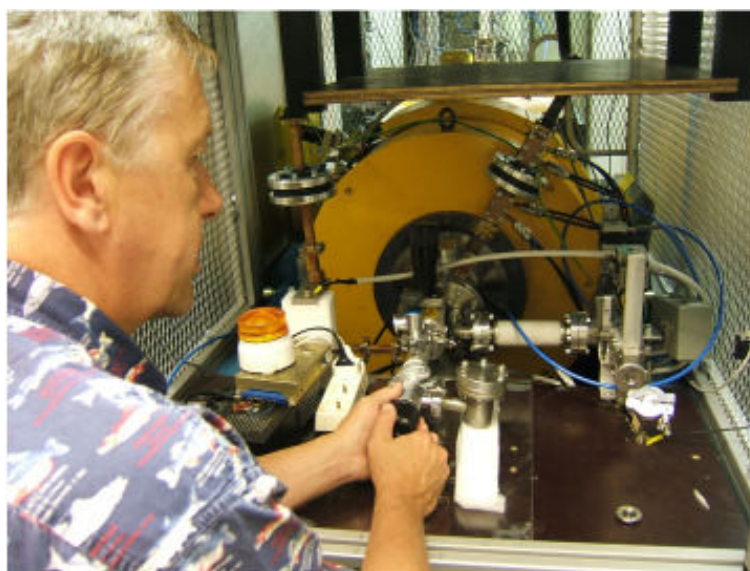


Figure 7.2: Photographie de la source ECRIS2 du JYFL lors de la mise en place d'un échantillon au niveau de l'injection.

*Photography of the JYFL ECRIS2 source during the placement of a sample at the injection spot.*

individuellement par les électrons chauds de la source. Cette procédure permet la production d'un faisceau d'ions métalliques fortement chargés à la sortie de la source. Il est possible de gérer, dans une certaine gamme de pression, le flux de molécules organométalliques grâce à la valve de contrôle en fonction de l'intensité requise en sortie de source. L'utilisateur peut également optimiser l'intensité des ions en sortie en réglant la puissance micro-onde de la source.

Cette méthode autorise l'utilisation d'un *buffer gas*. Il s'agit généralement d'un élément gazeux à température ambiante et non neutre tel que l'azote ou l'oxygène. Il peut être injecté dans le plasma, à partir d'une entrée dédiée, pour se mélanger avec les vapeurs des composés MIVOC. L'interaction des atomes du *buffer gas* avec les ions métalliques améliore la production de hauts états de charge et réduit la consommation de composé comme cela a été observé pour le ferrocène [Tar04]. En effet, l'ajout du gaz augmente les possibilités d'échanges de charges électriques à l'intérieur de la chambre. L'effet de ce gaz est caractéristique du composé MIVOC, il peut être nul ou multiplier considérablement l'intensité du faisceau. Un test dédié est donc nécessaire pour chaque composé et pour chaque gaz.

L'inconvénient majeur de cette méthode réside dans la quantité importante de polluants introduits par les chaînes organiques de la molécule (atomes d'hydrogène et surtout de carbone). Ces éléments polluants peuvent se déposer progressivement sur les parois de la chambre. Au fur et à mesure de l'évolution de ce dépôt, l'efficacité de la source diminue car c'est la paroi qui fournit les électrons du plasma. Ainsi, il est préférable d'utiliser les molécules les plus simples possibles étant donné que les ions produits sont tous accélérés hors de la source. Selon la molécule utilisée, il est nécessaire de procéder à un nettoyage manuel de l'intérieur de la source régulièrement (typiquement toutes les une à deux semaines). Cette manipulation est un inconvénient majeur car elle requiert de briser le vide de la source et de prévoir le temps nécessaire.

Le rapport masse sur charge  $A/q$  permet de sélectionner les ions en sortie de source. Si les rapports de deux ions différents sont très proches voire identiques, il ne sera pas possible de les discriminer en sortie de source. Il faut donc tenir compte de cette contrainte lors du choix des molécules utilisées et de leur conditionnement, spécialement en terme de solvant.

La méthode MIVOC possède plusieurs avantages. Elle permet l'obtention de faisceaux stables sur le long terme et sa mise en place est peu coûteuse. La réalisation de tels faisceaux mène à des consommations de matière raisonnables, typiquement de l'ordre de quelques dixièmes de milligrammes par heure, ce qui réduit fortement le coût de matériel nécessaire. Cela ouvre la voie à l'utilisation d'isotopes naturels de faibles abondances. Elle nécessite typiquement un changement d'échantillons que toutes les une à deux semaines ce qui réduit le temps mort lors d'une expérience. Toutefois, la difficulté est principalement reportée sur l'aspect chimie car elle requiert des développements complexes pour la synthèse et la connaissance des composés organométalliques. Elle demande ainsi une collaboration serrée et des échanges réguliers entre chimistes et physiciens. Cette nécessité réduit considérablement le nombre d'unités de recherche pouvant réaliser de tels travaux au niveau international.

## 7.3 Résumé des résultats antérieurs

Lors de la thèse de doctorat de J. Piot [Pio10], un comparatif a été réalisé entre deux méthodes pour produire le faisceau de titane : la méthode MIVOC et celle du four à induction. C'est la méthode MIVOC qui a été choisie car elle propose un meilleur rendement et requiert une quantité de matériel dix fois inférieure à celle du four à induction. Ces aspects sont primordiaux surtout dans un contexte où le titane enrichi est extrêmement onéreux : environ 20 US\$ par milligramme de  $\text{TiCl}_4$  enrichi à 92% en  $^{50}\text{Ti}$ . De ce fait, la méthode MIVOC a été développée durant ma thèse. On note que les développements réalisés par J. Piot sur la méthode du four à induction sont mentionnés dans la Sous-section 7.2.3.

Cette section résume les différents travaux et résultats obtenus avant le début de ma thèse avec la méthode MIVOC. La plupart d'entre eux sont discutés dans [Pio10]. Durant ma deuxième année de Master, j'ai été impliqué dans cette phase à travers les tracés et l'interprétation des spectres de masse qui sont présentés dans cette section.

Suite à la mise en place de la méthode MIVOC au début des années 1990, l'obtention d'un faisceau intense d'ions de titane par cette technique n'a pas été couronnée de succès lors de la première vague de tests. En effet, il n'existe pas de composé simple à synthétiser et à manipuler comme par exemple le ferrocène  $\text{Cp}_2\text{Fe}$ . Au milieu des années 1990, des premiers essais ont été réalisés durant lesquels plusieurs composés ont été testés avec la méthode MIVOC [Koi97b]. Un faisceau d'un courant de 200 nA de  $\text{Ti}^{10+}$  a été extrait du cyclotron K130 en utilisant un échantillon de tétrachlorure de titane ( $\text{TiCl}_4$ ), un liquide corrosif. Ce succès était limité car il ne permettait pas d'obtenir une intensité d'ions suffisamment importante sur cible.

En 2001, tous les composés organométalliques de titane prometteurs disponibles commercialement ont été étudiés à l'Université de Jyväskylä par J. Ärje et R. Seppälä [Koi02]. En premier lieu, ils ont tous été testés avec un spectromètre de masse gazeux. L'utilisateur branche une chambre dédiée contenant l'échantillon à étudier à l'entrée du spectromètre. Un vide primaire puis secondaire est alors obtenu par pompage à l'intérieur de la chambre. Après l'ouverture d'une valve, les molécules volatiles s'évaporent puis passent par un filament électrique qui va fragmenter les molécules. Les fragments passent alors par un analyseur qui balaye une plage de masse. Il mesure, à chaque pas de masse, une intensité électrique proportionnelle au nombre de fragments détectés à cette masse donnée. Cela permet d'obtenir, en un temps de l'ordre de la minute, un spectre de masse des différents constituants de la molécule injectée pouvant être l'ion de l'atome d'intérêt, une partie de molécule ou un polluant. Plus un composé est volatil, plus le spectre de masse obtenu présente une intensité élevée aux pics d'intérêt. Au contraire, une molécule non volatile ne présente peu ou pas de signature.

Si le spectre obtenu contient plusieurs pics intenses et bien définis à la masse de l'atome d'intérêt et des différents fragments de la molécule de départ, le produit est considéré comme un potentiel bon composé MIVOC et est testé sur une source ECR. En effet, la pratique a montré que les molécules n'étant pas validées par spectroscopie de masse ne fonctionnent pas sur source. Après une batterie de test, le seul composé organométallique de titane commercialisé possédant les bonnes caractéristiques était la molécule de (triméthyl)pentaméthylcyclopentadiénitane de formule  $\text{C}_5(\text{CH}_3)_5\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ . Il s'agit d'un composé,

produit à échelle industrielle, utilisé dans les catalyseurs des automobiles.

Ce composé a permis de fournir un faisceau de  $^{48}\text{Ti}^{11+}$  de 45  $\mu\text{A}$  en sortie de source, soit environ 100 particule nanoAmpères (pA) sur cible. Toutefois, le  $\text{C}_5(\text{CH}_3)_5\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  est synthétisé à partir d'un mélange isotopique naturel de titane. Il présente donc majoritairement l'isotope de  $^{48}\text{Ti}$  et uniquement 5.2% de  $^{50}\text{Ti}$  (voir le Tableau 7.2). L'utilisation de ce composé ne permet donc pas d'obtenir une intensité de faisceau de  $^{50}\text{Ti}$  suffisante avec les technologies existantes [Koi02]. En effet, il faudrait un faisceau de plusieurs centaines de pA de titane naturel pour obtenir le seuil minimum d'intensité de  $^{50}\text{Ti}$  permettant de réaliser une expérience de spectroscopie d'éléments très lourds ou superlourds dont les sections efficaces de production sont très faibles.

On note que, les liaisons atomiques de ce type de molécule étant très fragiles, elles ne peuvent pas forcément supporter un enrichissement par centrifugation. Il est donc nécessaire de faire appel à la chimie. De ces faits, il est primordial de démarrer la production d'échantillons avec du matériel enrichi. Le titane enrichi est disponible commercialement sous deux formes : l'oxyde de titane ( $\text{TiO}_2$ ) et le tétrachlorure de titane ( $\text{TiCl}_4$ ). Ces deux molécules ne peuvent pas servir à obtenir un faisceau isotopique. Le premier n'est pas volatil et le second n'est pas adapté à l'accélération du  $^{50}\text{Ti}^{10+}$  qui présente un rapport masse sur charge équivalent à celui du  $^{35}\text{Cl}^{7+}$ . Ils ne peuvent donc pas être séparés en sortie de source ou au niveau du cyclotron.

En se basant sur ce constat et avec pour objectif principal l'étude spectroscopique du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ , le groupe de Strasbourg sous l'impulsion de B. Gall s'est attelé au développement de solutions en vue de synthétiser et d'utiliser des faisceaux intenses de  $^{50}\text{Ti}$  dès 2004 à l'IReS. La méthode MIVOC requiert des compétences à la fois dans le domaine de la physique et celui de la chimie. Cette collaboration entre physiciens et chimistes était en avance sur le caractère pluridisciplinaire de ce qui deviendra l'IPHC quelques années plus tard. De multiples synthèses ont été réalisées à Strasbourg grâce à l'expérience de deux chimistes : A. Ouadi pour les premières synthèses puis Z. Asfari pour les suivantes.

Après plusieurs essais préliminaires, le projet a pris son envol en 2007 lors de la thèse de J. Piot. Des recherches bibliographiques et dans les catalogues de chimie ont été effectuées pour rechercher des molécules candidates pour être un bon composé MIVOC. Quatre molécules organométalliques potentiellement intéressantes ont été identifiées. Leur nom, ainsi que leur formule et masse molaire sont renseignés dans le Tableau 7.3. Une modélisation de chacun de ces candidats est présentée sur la Figure 7.3.

On note que le symbole Cp correspond au cycle organique cyclopentadienyl  $\eta^5\text{-C}_5\text{H}_5$  et le symbole Cp\* au cycle pentaméthylcyclopentadiène  $\eta^5\text{-C}_5(\text{CH}_3)_5$ . Le groupe organique méthyle  $\text{CH}_3$  est souvent retranscrit par le symbole Me. Ces trois notations sont régulièrement utilisées dans la suite du document.

Les quatre molécules listées peuvent être toutes synthétisées à partir du tétrachlorure de titane  $\text{TiCl}_4$ . Deux étapes successives de synthèse sont nécessaires. La première consiste à implanter le ou les deux cycles organiques Cp ou Cp\* en retirant autant d'atome(s) de chlore. La seconde étape a pour objectif de remplacer les atomes de chlore restants par des groupes méthyles  $\text{CH}_3$ . Ces quatre molécules ont été obtenues par synthèse à l'IPHC. Ces étapes se réalisent dans la phase d'étude à partir de produits commerciaux non enrichis.

Nom de la molécule	Formule chimique	Masse molaire (g·mol <sup>-1</sup> )	
		<sup>48</sup> Ti	<sup>50</sup> Ti
(Triméthyl)cyclopentadiénetitane	CpTi(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	158	160
(Diméthyl)bis-cyclopentadiénetitane	Cp <sub>2</sub> Ti(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	208	210
(Triméthyl)pentaméthylcyclopentadiénetitane	Cp <sup>*</sup> Ti(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	228	230
(Diméthyl)bis-pentaméthylcyclopentadiénetitane	Cp <sup>*</sup> <sub>2</sub> Ti(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	348	350

Tableau 7.3: Première liste des composés organométalliques d'intérêt en vue de la production d'un faisceau de titane en utilisant la méthode MIVOC (d'après [Pio10]). Leurs masses molaires sont indiquées pour les deux isotopes de titane d'intérêt.

*First list of the organometallic compounds of interest with the aim of producing a titanium beam using the MIVOC method (based on [Pio10]). Their molar masses are indicated for the two titanium isotopes of interest.*

Des tests de ces quatre molécules ont été réalisés grâce à un spectromètre de masse gazeux Pfeiffer-QME200 disponible au JYFL (voir la photo sur la Figure 7.4). On note que cet instrument possède une limitation d'analyse à 200 unités de masse atomique. Par exemple, un spectre de Cp<sup>\*</sup>Ti(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub> constitue la Figure 7.4. On observe des pics aux masses correspondantes aux fragments de la molécule : CH<sub>3</sub>, Ti, TiCH<sub>3</sub>, Cp<sup>\*</sup>Ti et Cp<sup>\*</sup>TiCH<sub>3</sub>. Comme ces pics sont bien définis et que le bruit de fond est faible, il s'agit d'une signature d'un bon produit MIVOC.

Ce spectre, ainsi que les suivants dans cette thèse, sont tracés à partir d'un ensemble de programmes dédiés. Je les ai développés durant le Traitement Informatique de Projet de Physique que j'ai réalisé, avec L. Sengele, lors de mon Master 2 [Rub10] pour analyser les résultats obtenus à Jyväskylä par J. Piot, R. Seppälä et B. Gall. Il consiste à utiliser les données brutes binaires (format dit "Pfeiffer") disponibles en sortie du spectromètre pour en tirer des informations comme des spectres de masse ou des suivis temporels. J'ai écrit plusieurs codes pouvant réaliser cette conversion en utilisant le logiciel ROOT [Bru97]. Ces programmes et leurs options ont été améliorés au fur et à mesure des besoins de ces travaux durant mon

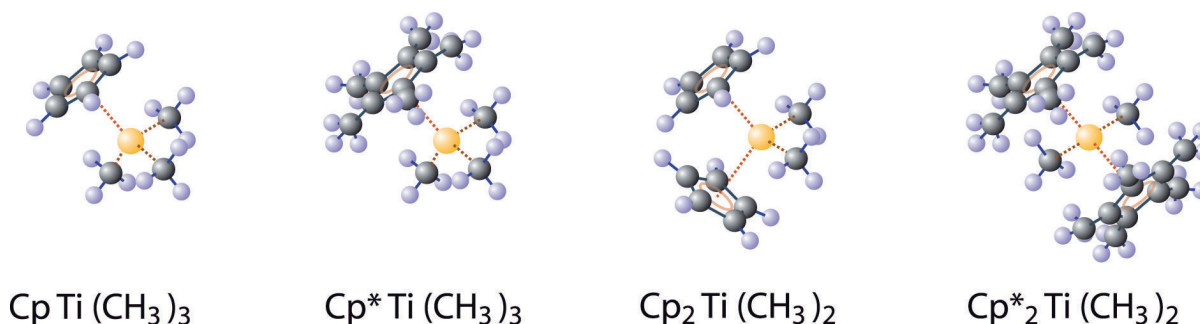


Figure 7.3: Modélisations des quatre molécules organométalliques de titane candidates pour la production d'un faisceau en utilisant la méthode MIVOC [Pio10].

*Modelling of the four candidate organometallic molecules of titanium for the production of a beam using the MIVOC method [Pio10].*



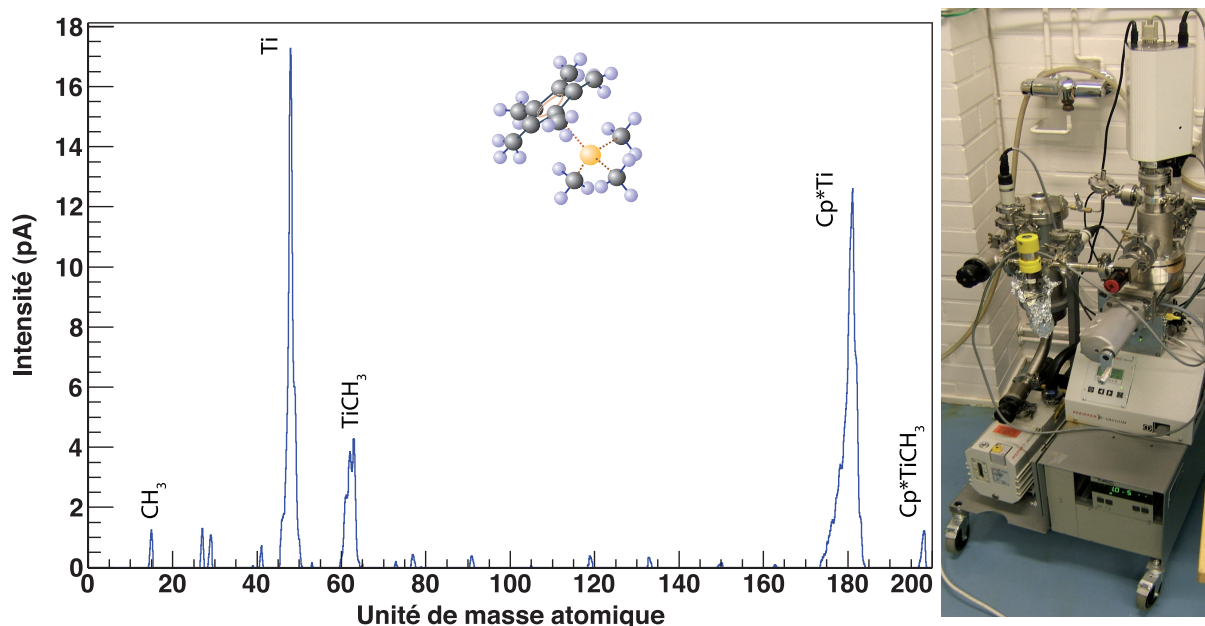


Figure 7.4: Spectre de masse du composé  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  commercial. La modélisation de la molécule étudiée a été ajoutée. Le spectre a été réalisé avec le spectromètre de masse Pfeiffer QME200 dont la photographie est présentée.

*Mass spectrum of the commercial  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  compound. The modelling of the studied molecule was added. The spectrum was obtained thanks to the mass spectrometer Pfeiffer QME200 of which a photograph is presented.*

Master puis ma thèse.

Après les tests des molécules candidates, seuls le  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  synthétisé et le  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  commercial donnèrent une pression de vapeur suffisante. Le  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  a été choisi pour la suite car le  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  synthétisé à Strasbourg n'a, dans un premier temps, pas présenté de pression de vapeur. Des travaux plus poussés sur cette molécule ont été réalisés durant la présente thèse et seront décrits dans les Sections 7.5 et 7.6.

Les différents tests ont montré que le  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  semblait être très sensible à l'environnement. C'est pour cela qu'il doit être protégé de l'environnement dans un solvant. Le chloroforme (de formule  $\text{CHCl}_3$ ) a été identifié comme un solvant de conservation adéquat. Lors des tests sous spectromètre ou source, le solvant est d'abord évaporé avant de laisser place au composé de titane. Cependant, ce produit-ci semble ne pas être protégé de manière idéale. En effet, après quelques dizaines de minutes, le produit poudreux semble se dégrader.

Pour contourner ce problème, il a été montré lors de la thèse de J. Piot que le liquide ionique, un solvant sans pression de vapeur, protège le composé lors d'un pompage. Si on ajoute du liquide ionique au composé organométallique d'intérêt, ce solvant ne va pas, par définition, s'évaporer et va permettre au composé de titane de s'évaporer progressivement tout en restant protégé de l'air et de l'humidité. Cette solution possède toutefois un inconvénient : si un échantillon de composé organométallique est plongé dans ce solvant, il ne pourra plus en être extrait par la suite.

En décembre 2009, une synthèse de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  a été réalisée à partir de  $\text{TiCl}_4$  enrichi

en  $^{50}\text{Ti}$  en vue de réaliser l'étude spectroscopique du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  au JYFL. Ce composé a été enrichi par centrifugation gazeuse et livré dans un conteneur en inox sous vide par la compagnie URENCO. Pour pouvoir en extraire le composé, un système d'évaporation sous vide a été mis en place dans le cadre de la thèse de J. Piot. La phase d'extraction a présenté un très bon rendement massique de 98%. La synthèse a été réalisée à l'IPHC par Z. Asfari. Pour le transport jusqu'au JYFL, le produit était conservé sous chloroforme.

L'analyse par spectrométrie de masse au JYFL a montré que le bon composé a été synthétisé avec un enrichissement de 92%, conforme au chiffre annoncé par l'entreprise. Le spectre de masse obtenu constitue la Figure 7.5. Cependant, cet échantillon se présentait sous une forme d'un dépôt non sec, mélangé avec du chloroforme et possédant une pression de vapeur saturante faible. Cette observation a montré que le processus de conservation nécessitait d'autres travaux. Aucun faisceau de titane n'a été obtenu en sortie de source, seuls des ions de chlore y ont été observés. En effet, un atome de  $^{50}\text{Ti}^{10+}$  ionisé avec un état de charge  $10^+$  présente le même rapport masse sur charge que les ions de  $^{35}\text{Cl}^{7+}$ . Ni la source, ni le cyclotron ne permet de séparer les deux ions ! A partir de cette observation, l'utilisation de chloroforme et plus généralement de tout produit comportant au moins un atome de chlore a été prohibée dans le cadre de l'obtention d'un faisceau de  $^{50}\text{Ti}$ . Le temps expérimental accordé a alors donné lieu à l'étude spectroscopique du noyau de  $^{246}\text{Fm}$  [Pio12a].

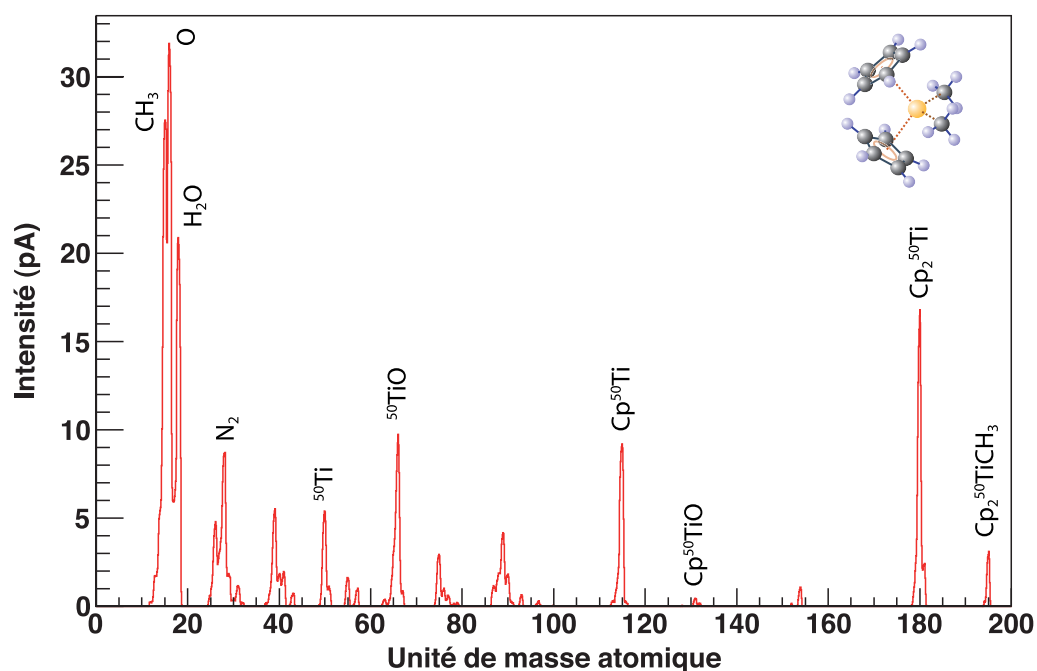


Figure 7.5: Spectre de masse du composé de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  enrichi à 92% en  $^{50}\text{Ti}$  qui a été synthétisé à l'IPHC.

*Mass spectrum of the  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  molecule with an enrichment of 92% in  $^{50}\text{Ti}$ . It was synthesized at the IPHC.*

## 7.4 Etude détaillée du $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$

Le développement du faisceau a été continué au début de ma thèse en partant des résultats présentés dans la Section 7.3. A ce stade, le  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  était la molécule candidate pour la production du faisceau. C'est dans cette optique que j'ai mené plusieurs séries de tests dans le but de mieux comprendre le comportement de cette molécule.

Les échantillons de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  utilisés pour cette partie ont tous été synthétisés à l'IPHC par Z. Asfari. La procédure complète de synthèse nécessite deux étapes successives qui sont discutées dans [Wil54, Pay04]. Il est possible de synthétiser le composé organométallique d'intérêt à partir du  $\text{TiCl}_4$  ou du  $\text{Cp}_2\text{TiCl}_2$  commercial. La seconde solution a été utilisée pour les tests présentés dans cette section.

On note que les composés dont les résultats sont présentés dans cette section ont chacun été conservés au réfrigérateur (à environ 4 °C) entre les phases de synthèse et de manipulation.

### 7.4.1 Etude de la conservation

Dans le cadre de l'étude du  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ , j'ai testé plusieurs solvants dans l'optique de trouver la solution optimale pour la conservation de la molécule. Pour ce faire, une liste de solvants à étudier a été établie. Ils sont référencés, ainsi que certaines de leurs caractéristiques, dans le Tableau 7.4.

Ces molécules ont été choisies en considérant plusieurs contraintes. Elles ne devaient pas posséder d'atome de chlore pour les raisons discutées dans la Section 7.3. On note cependant que le chloroforme a été testé pour servir de point de référence étant donné qu'il était bien connu grâce aux travaux précédents. Le deuxième critère est de ne pas posséder d'atome d'oxygène peu liant car le titane s'oxyde très facilement. Les atomes d'oxygène du diéthyl éther et du diphenyl éther sont eux très liants.

Solvant	Formule chimique	Pression de vapeur (kPa)	Température de fusion (°C)	Température d'ébullition (°C)
Pentane	$\text{C}_5\text{H}_{12}$	53.3	-129	36.1
Hexane	$\text{C}_6\text{H}_{14}$	19.9	-95.3	68.7
Cyclohexane	$\text{C}_6\text{H}_{12}$	12.7	6.5	80.7
Toluène	$\text{C}_6\text{H}_5\text{-CH}_3$	2.9	-95	110.6
Xylène	$\text{CH}_3\text{-C}_6\text{H}_4\text{-CH}_3$	0.8	-25	144.4
Diéthyl éther	$\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-O-CH}_2\text{-CH}_3$	58.6	-116	35
Diphényl éther	$\text{C}_6\text{H}_5\text{-O-C}_6\text{H}_5$	0.008	26.9	258
Chloroforme	$\text{CHCl}_3$	21.2	-64	62
Liquide ionique	$\text{C}_{10}\text{H}_{15}\text{F}_6\text{NO}_4\text{S}_2$	$\approx 0$	-50	-

Tableau 7.4: Liste et caractéristiques des différents solvants utilisés lors des tests de conservation.

*List and characteristics of all the solvents used during the preservation tests.*

Pour réaliser une étude comparative des solvants, plusieurs échantillons secs de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  ont subi un traitement identique. Quelques dizaines de milligrammes ont été solubilisés dans un flacon pour chaque test. La concentration de produit est de  $0.8 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  (voir la discussion sur la concentration dans la Sous-section 7.4.2). S'il y a solubilisation, un liquide orangé est obtenu. Le flacon est alors scellé par un bouchon et par du parafilm. Ce processus a été réalisé à température ambiante. Les échantillons ont été laissés durant trois mois au réfrigérateur (à environ  $4 \text{ }^\circ\text{C}$ ).

Après cette période, l'aspect des échantillons a été observé. Certains d'entre eux ont changé d'aspect ce qui a prouvé une non-conservation du produit dans le solvant utilisé. Ceux qui n'ont pas subi de modification ont été placés sous pompage pour évaporer le solvant et vérifier l'aspect du composé sec grâce au dispositif présenté dans la Sous-section 7.4.3. S'il est inchangé, la conservation est considérée comme acceptable. La qualité et la vitesse de l'évaporation du solvant sont également des critères importants à prendre en compte. En effet, une évaporation difficile ou incomplète est contraignante et peut causer des pertes de matériaux.

Les conclusions des observations effectuées sur chacun des échantillons sont résumées dans le Tableau 7.5. La Figure 7.6 présente l'aspect, pour plusieurs solvants testés, du produit après trois mois.

Les bons solvants de conservation déduits de cette batterie de tests sont le toluène et le diéthyl éther. Il s'agit des deux seuls solvants qui conservent longuement le produit et qui s'évaporent facilement. Le chloroforme est un bon solvant de conservation comme cela a été prouvé dans les tests antérieurs à ma thèse. Cependant, ce solvant possède des atomes de chlore qui sont à exclure. Le liquide ionique ne permet pas de conserver le composé sur le long terme. Toutefois, il a été testé comme solvant d'utilisation sous source comme discuté dans la Sous-section 7.4.3.

Il est à noter que certains solvants, comme le pentane, permettent d'obtenir des cristaux de composés de titane. Ce processus se réalise par cristallisation lente à température ambiante.

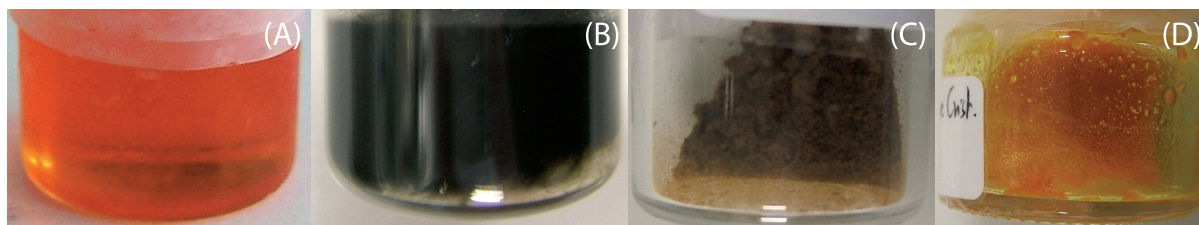


Figure 7.6: Photographies d'échantillons de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  après un période de conservation de trois mois sous différents solvants (A) : Toluène, (B) : Pentane, (C) : Hexane et (D) : Cyclohexane

*Photographies of  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  samples after a preservation period of three months under several solvents (A): Toluene, (B): Pentane, (C): Hexane and (D): Cyclohexane.*

Solvant	Conclusion après 3 mois
Pentane	Ne conserve pas le produit.
Hexane	Ne conserve pas le produit.
Cyclohexane	Conserve le produit mais ne solubilise pas entièrement.
Toluène	Bon solvant de conservation. S'évapore facilement.
Xylène	Bon solvant de conservation. S'évapore facilement.
Diéthyl éther	Bon solvant de conservation. Possède un atome d'oxygène.
Diphényl éther	Conserve bien mais est trop difficile à évaporer. Non utilisable.
Chloroforme	Bon solvant de conservation. Possède des atomes de chlore.
Liquide ionique	Ne conserve pas le produit.
Pas de solvant	Ne conserve pas le produit.

Tableau 7.5: Conclusions des tests de conservation sous solvant réalisés sur la molécule de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ .

*Conclusions of the preservation tests under solvent done on the  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  molecule.*

## 7.4.2 Tests de concentration

Durant les travaux antérieurs à ma thèse, la valeur de concentration du  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  dans le solvant conservateur était de  $0.8 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ . Cette concentration a été exploitée lors des tests précédents car elle semblait être un bon compromis pour une évaporation rapide et une bonne conservation. Elle permettait de recouvrir tout le volume de composé de titane.

J'ai effectué des tests plus poussés pour tenter de définir une concentration de produit adéquate pour la phase de conservation. Pour comparer l'influence de la valeur de la concentration, cinq échantillons de 50 mg de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  ont été utilisés. Chacun d'entre eux a été solubilisé avec un volume différent de solvant en vue de tester différentes concentrations. Les valeurs exploitées sont référencées dans le Tableau 7.6. Le solvant-test choisi était le diéthyl éther. En effet, sa bonne tenue en terme de conservation était déjà connue (voir la Sous-section 7.4.1). Suite à leur production, les cinq échantillons ont été placés trois mois dans le réfrigérateur.

Après cette période de conservation, les deux échantillons de concentrations de produit les plus élevées ont changé d'aspect. Ils sont passés d'une couleur orange à noire charbon (voir la Figure 7.7.A). Le produit est devenu sec et s'est accumulé sur les parois du flacon. Par contre, les trois échantillons de concentrations les moins élevées n'ont pas changé d'aspect.

Cette étude démontre que le produit doit être protégé par une quantité minimale de solvant pour être conservé dans de bonnes conditions. Parmi les trois concentrations dont le résultat est positif, celle nominale de  $0.8 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  est conservée pour la suite des travaux. Elle permet de minimiser la quantité de solvant à évaporer tout en préservant le composé.

Volume de solvant ( $\mu\text{L}$ )	Concentration ( $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ )	Observation
62.5	2.12	Sec et noir
125	1.37	Sec et noir
250	0.80	Liquide et orange
375	0.56	Liquide et orange
500	0.44	Liquide et orange

Tableau 7.6: Conclusions des tests de concentration après trois mois de conservation sous diéthyl éther.

*Conclusions of the concentration tests for the  $Cp_2Ti(CH_3)_2$  molecule after three months of preservation under diethyl ether.*

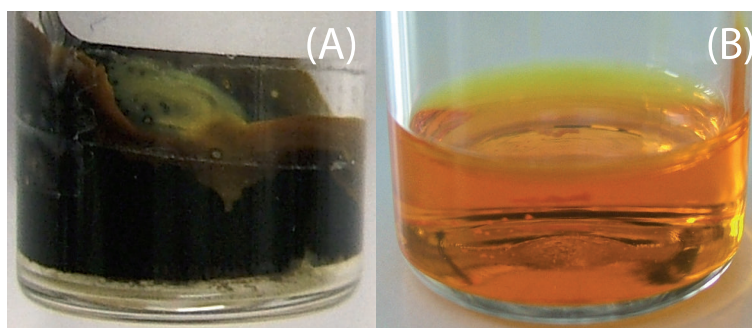


Figure 7.7: Photographies de  $Cp_2Ti(CH_3)_2$ , après trois mois sous diéthyl éther, à des valeurs de concentrations respectives de (A) :  $1.37 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  et (B) :  $0.56 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ .

*Photographies of  $Cp_2Ti(CH_3)_2$ , after three months under diethyl ether, at concentration values of (A) :  $1.37 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  and (B) :  $0.56 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ .*

### 7.4.3 Tests de l'influence du vide

Pour tester l'influence du vide sur le composé, un dispositif expérimental a été monté au département de Chimie Nucléaire de l'IPHC. Il était centré autour d'un système de pompage composé d'une pompe primaire et d'une pompe secondaire. Elles permettent respectivement d'atteindre des pressions minimales de 0.5 mbar et de  $1.2 \cdot 10^{-8}$  mbar. Ce système permet d'imposer un vide sur un circuit composé de verreries adaptées. Il se termine par un emplacement où l'on peut fixer un tube contenant un échantillon de composé organométallique. La pression dans le système peut être mesurée par un manomètre au niveau des pompes.

Un piège refroidi à l'azote liquide est placé entre le système de pompage et la partie principale de la rampe à vide. Ce piège peut recueillir la plupart des gaz et des liquides qui s'évaporent au cours de l'expérience, afin d'empêcher d'endommager par des composés organométalliques, des éléments polluants ou de l'air en cas de fuite la pompe secondaire qui est très sensible.

Ce montage permet ainsi de suivre l'évolution temporelle de l'aspect et de la pression induite par un échantillon. Toutefois, il ne donne pas accès à des informations sur la composition chimique ou sur l'intensité de faisceau contrairement à un spectromètre de masse.

Trois tests ont été réalisés : sur un composé sec, un composé conservé sous solvant et

un composé conservé sous solvant testé sous liquide ionique. Ces cas sont discutés ci-après.

#### 7.4.3.1 Test du composé sec

En premier lieu, le comportement d'un échantillon de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  sec a été testé avec le dispositif expérimental mis en place. L'évolution temporelle de l'aspect de ce dernier est présentée sur la Figure 7.8.

Non dilué dans du solvant, un échantillon de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  sec est une poudre de couleur orange clair (voir la Figure 7.8.A). Lorsqu'on lui impose un vide de type primaire ou secondaire, la poudre noircit rapidement. En parallèle, la pression mesurée augmente rapidement (voir la Figure 7.8.B). En moins de deux heures, le produit devient de couleur noire avec quelques grains résiduels orangés (voir la Figure 7.8.C). En quelques dizaines de minutes, le composé sec est d'aspect noir charbon (voir la Figure 7.8.D).

La Figure 7.9 correspond au suivi temporel de la pression associée à l'échantillon sec. Les lettres de (A) à (D) correspondent à celles des photographies de la Figure 7.8. Lors du démarrage, la pression diminue naturellement étant donné que les dernières traces de solvants et certaines impuretés s'évaporent en premier lieu. La pression atteint un plateau en environ 30 minutes. Puis la pression augmente brusquement en même temps que le processus de brunissement débute. Au pic de pression, le composé est noir. Puis la pression diminue rapidement pour devenir quasiment nulle moins de trois heures après le début du test. Il n'y a donc plus de molécule volatile à ce moment-là. Laissé à l'air libre, le composé noir se transforme en un produit marron.

Ce test indique que, conservée dans sa forme sèche, cette molécule se dégrade lorsqu'elle est soumise au vide.

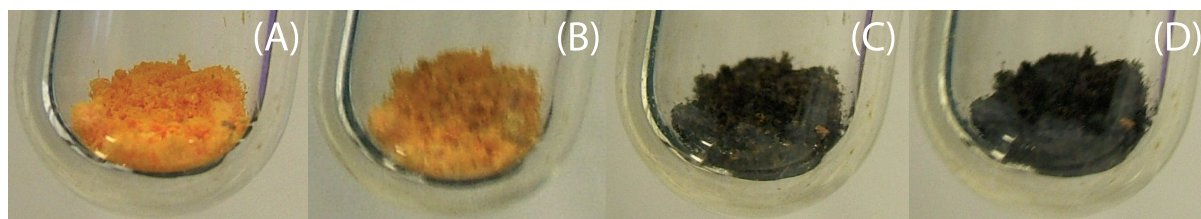


Figure 7.8: Photographies de l'évolution temporelle de l'aspect physique d'un échantillon de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  sous forme sèche lors d'un pompage sous vide secondaire.

*Photographies of the aspect temporal evolution of a dry  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  sample during a high vacuum pumping.*

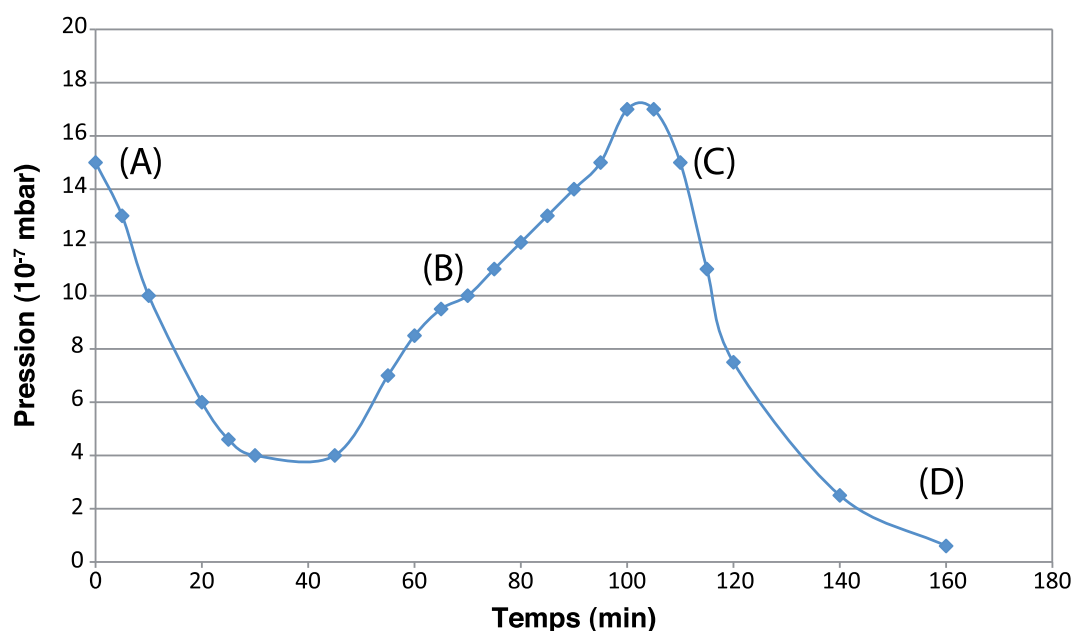


Figure 7.9: Evolution temporelle de la pression mesurée d'un échantillon de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  sous forme sèche lors d'un pompage sous vide secondaire.

*Temporal evolution of the measured pressure of a dry  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  sample during a high vacuum pumping.*

#### 7.4.3.2 Test du composé sous solvant

En second lieu, le comportement d'un échantillon de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  conservé sous solvant a été étudié avec le système de pompage. L'évolution temporelle de l'aspect de ce dernier est présentée sur la Figure 7.10.

Sous solvant, comme le toluène sur la Figure 7.10.A, le composé apparaît sous une forme orange liquide. Un échantillon conservé sous ce solvant (à une concentration de  $0.8 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ ) a été testé avec le dispositif de pompage. En vue d'évaporer le toluène, le produit a été gelé grâce à de l'azote liquide (voir la Figure 7.10.B) afin de permettre une évaporation progressive du solvant. Cette méthode est nécessaire pour éviter toute perte induite par une évaporation trop violente qui entrainerait du produit vers le piège à azote. Après évaporation, on obtient un produit sec orangé gelé sur les parois de la fiole.

Lorsqu'on applique un vide secondaire à ce composé, une structure solide collée aux parois se forme (voir la Figure 7.10.C). Au fur et à mesure du pompage, des traces vertes puis noires apparaissent (voir les Figures 7.10.D et 7.10.E) et la pression mesurée augmente. Après deux heures, le composé devient noir charbon (voir la Figure 7.10.F). Il ne possède plus de pression de vapeur.

L'évolution de la pression et de l'aspect du composé est similaire au test réalisé avec du produit initialement sec. En conclusion, la conservation de ce composé sous solvant avant la phase de pompage ne permet pas de le protéger lors de son évaporation.



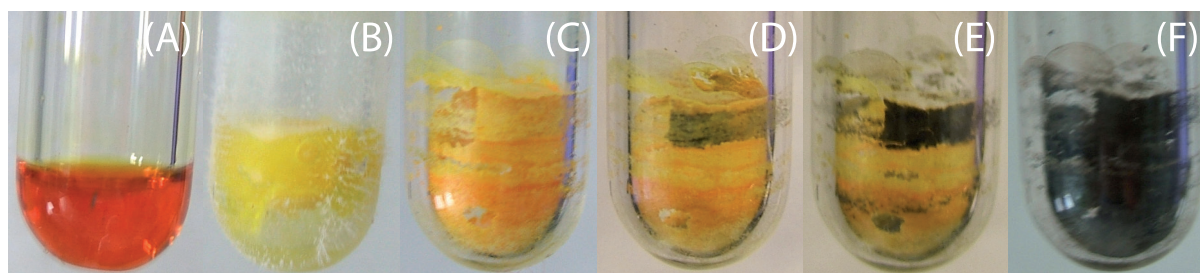


Figure 7.10: Photographies de l'évolution de l'aspect d'un échantillon de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  conservé sous solvant (ici le toluène) lors d'un pompage sous vide secondaire : (A) : aspect initial. (B) : le produit est gelé à l'azote liquide. (C) : le solvant est évaporé. (D) : le produit commence à verdir. (E) : des traces noires apparaissent. (F) : le produit est noir charbon et présente une pression quasi-nulle.

*Photographies of the aspect evolution of a  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  sample preserved under solvent (toluene in this case) during a high vacuum pumping: (A): initial aspect. (B): the product is frozen by liquid nitrogen. (C): the solvent is evaporated. (D): the product started to become green. (E): black traces appeared. (F): the product is fully black and do not longer have a pressure.*

#### 7.4.3.3 Test du composé protégé sous liquide ionique

Après le test du produit sec et conservé sous solvant, l'influence du liquide ionique sur la préservation a été testée. Du liquide ionique a été ajouté, à une concentration de  $0.80 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ , dans un échantillon de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  qui a été conservée plusieurs semaines sous toluène.

On note que le liquide ionique a été conditionné avant utilisation. C'est un composé qui a tendance à capter facilement l'humidité, l'oxygène et d'autres impuretés. Il faut donc pomper ce solvant pendant plusieurs heures pour le purifier. Le liquide ionique doit ensuite être manipulé sous atmosphère contrôlée.

Au démarrage du pompage, le toluène s'est évaporé en premier car il possède la plus grande volatilité des trois constituants de l'échantillon. Une photographie du composé dans le liquide ionique à ce moment-là constitue la Figure 7.11.A.

Le suivi temporel de la pression associée à cette échantillon est représenté sur la Figure 7.12. En premier lieu, la pression a diminuée rapidement en quelques heures signe que le toluène, l'humidité et d'autres polluants ont été évaporés en premier. Par la suite, durant deux semaines, le composé organométallique a présenté une pression significative. On note que les valeurs de pression mesurées étaient en décroissance très lente. Cependant, l'aspect visuel du produit n'a pas changé. Après deux semaines, son aspect était identique à celui du départ (voir la Figure 7.11.B) et une pression de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  est toujours recueillie.

Ce test a démontré que l'on pouvait utiliser le produit sous liquide ionique pendant des périodes longues. Cependant, lors des tests de conservation, il a été montré que le liquide ionique ne conserve pas le composé plus de quelques jours à pression ambiante (voir la Section 7.4.1). En effet, le composé est devenu brun et s'est asséché (voir la Figure 7.11.C).

En conclusion, le liquide ionique est un solvant de préservation du composé durant utilisation sous vide. Il ne doit pas être utilisé en tant que solvant de conservation. Ces

constatations sont concordantes avec les résultats préliminaires obtenus durant la thèse de J. Piot.



Figure 7.11: Photographies de l'évolution de l'aspect d'un échantillon de  $Cp_2Ti(CH_3)_2$  sous liquide ionique lors d'un pompage sous vide secondaire. Il ne change pas d'aspect en deux semaines de pompage entre (A) et (B). (C) montre l'aspect du produit après trois mois de conservation dans le liquide ionique qui ne permet pas de le préserver sur le long terme.

*Photographies of the aspect evolution of a  $Cp_2Ti(CH_3)_2$  sample under ionic liquid during a high vacuum pumping. It does not change in two weeks of pumping between (A) and (B). (C) shows the result of product preservation during three months in ionic liquid which does not allow to preserve it on the long term.*

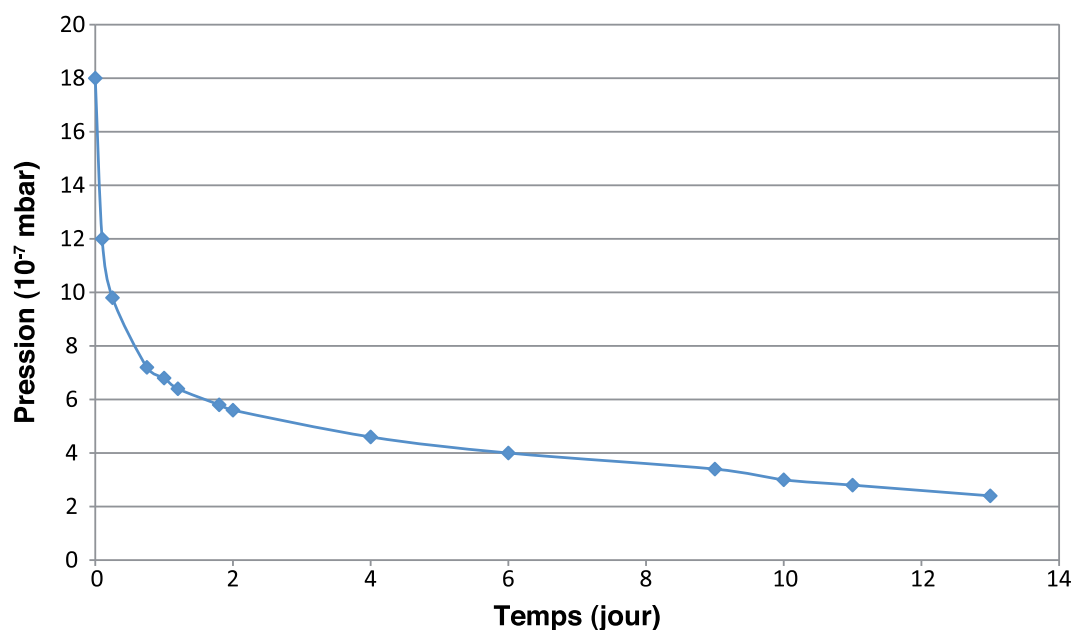


Figure 7.12: Evolution temporelle de la pression mesurée d'un échantillon de  $Cp_2Ti(CH_3)_2$  sous liquide ionique lors d'un pompage sous vide secondaire.

*Temporal evolution of the measured pressure of a  $Cp_2Ti(CH_3)_2$  sample under ionic liquid during a high vacuum pumping.*

#### 7.4.4 Etude de l'évolution temporelle sur spectromètre de masse

En complément des tests réalisés à l'IPHC, des études de la molécule de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  ont été réalisées au JYFL. Le spectromètre de masse QME200 permet d'obtenir un spectre complet en environ une minute en balayant la plage de 200 unités de masse atomique. La Figure 7.13 est un exemple d'évolution temporelle du spectre de masse d'un échantillon réalisée en exploitant cette possibilité que j'ai mise en place en la programmant. Lors de cette étude, l'échantillon a été retiré du spectromètre vers le temps  $t = 35$  min (voir l'arrêt des mesures sur la figure) pour y ajouter du liquide ionique à une concentration de  $0.80 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ .

J'ai également écrit une fonction permettant d'afficher l'évolution temporelle du maximum de certains pics d'intérêts dont la liste est définie par l'utilisateur. La Figure 7.14 permet de suivre des pics vu sur la Figure 7.13, elles sont donc issues de la même mesure. Cette seconde figure suit l'évolution des quatre fragments contenant du titane et des groupements méthyles  $\text{CH}_3$ .

On peut obtenir plusieurs informations grâce à ces deux figures. Les fragments de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  sont présents ce qui signe clairement la présence et la volatilité de la molécule. Les intensités de ces pics sont quasiment constantes avant et après ajout du liquide ionique. Elles ne diminuent que légèrement l'intensité totale (environ 5%). Cela montre que le liquide ionique ne limite pas la volatilité du composé.

On observe un comportement spécifique des pics de  $\text{CH}_3$  à 15 uma (groupements méthyles) et de  $\text{CH}_4$  à 16 uma (molécule de méthane). Après l'évaporation initiale de l'humidité résiduelle (pic de  $\text{H}_2\text{O}$  à 18 uma), ces pics voient leurs intensités augmenter. Après l'ajout de liquide ionique, cette augmentation est stoppée et la quantité de molécules émises diminue fortement. Ce test est une nouvelle preuve que le liquide ionique est un bon solvant de protection. Il permet d'empêcher la dislocation de la molécule lors d'une expérience. On note qu'une partie des groupes  $\text{CH}_3$  observés proviennent de la fragmentation de la molécule dans le séparateur et non de sa dislocation.

#### 7.4.5 Discussion

En conclusion, chacun des tests présentés dans cette section a permis de mieux comprendre la molécule de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ . La conservation du produit dans plusieurs solvants a été étudiée. Le toluène et le diéther permettent de conserver le produit durant plusieurs mois au réfrigérateur. La concentration optimale pour conserver un composé a été définie à  $0.80 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  grâce à des tests dédiés. Il a été observé que le composé subit une réaction s'il n'est pas protégé durant la phase de pompage. Les études ont montré que l'ajout du liquide ionique permet de le préserver de cette dégradation durant cette phase.

Lors des tests à l'IPHC, la molécule d'intérêt a émis des particules en passant rapidement d'un aspect orange à noire. Au JYFL, l'émission de groupements  $\text{CH}_3$  ou  $\text{CH}_4$  a été observée par spectrométrie de masse. Cette émission est probablement le résultat de la dégradation observée.

Une réaction de la molécule de  $\text{Cp}_2^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ , qui possède une structure similaire à celle d'intérêt, est décrite dans [Sco09]. De manière analogue à la réaction schématisée sur la Figure 7.15, on pourrait poser l'hypothèse que la molécule de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  émette un groupe

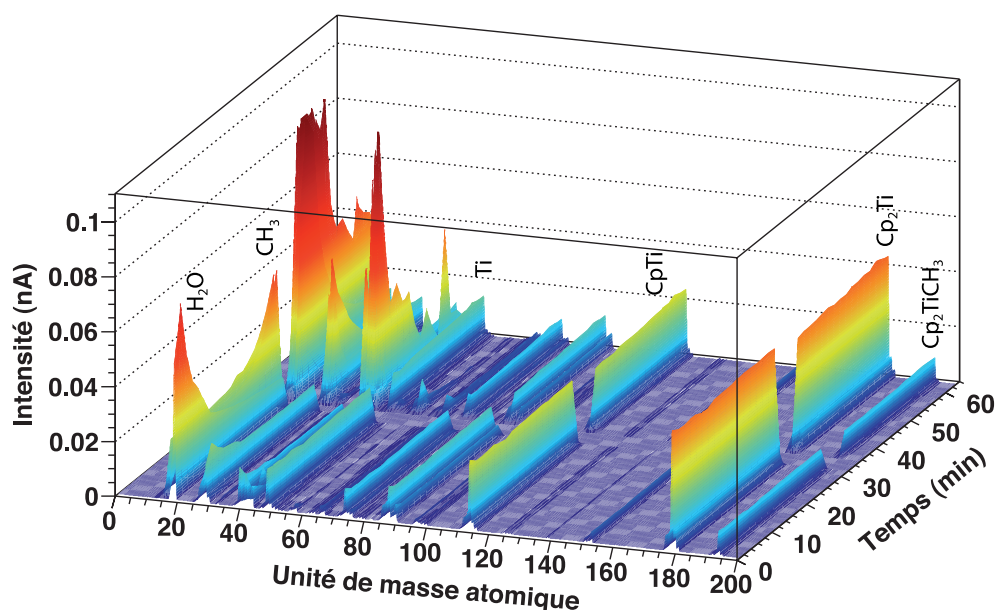


Figure 7.13: Evolution temporelle d'un spectre de masse de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ . Un volume de liquide ionique a été ajouté au milieu de la prise de données (vers  $t = 35$  min).

*Temporal follow-up of a mass spectrum of  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ . A volume of ionic liquid was added during the data taking (at  $t = 35$  min).*

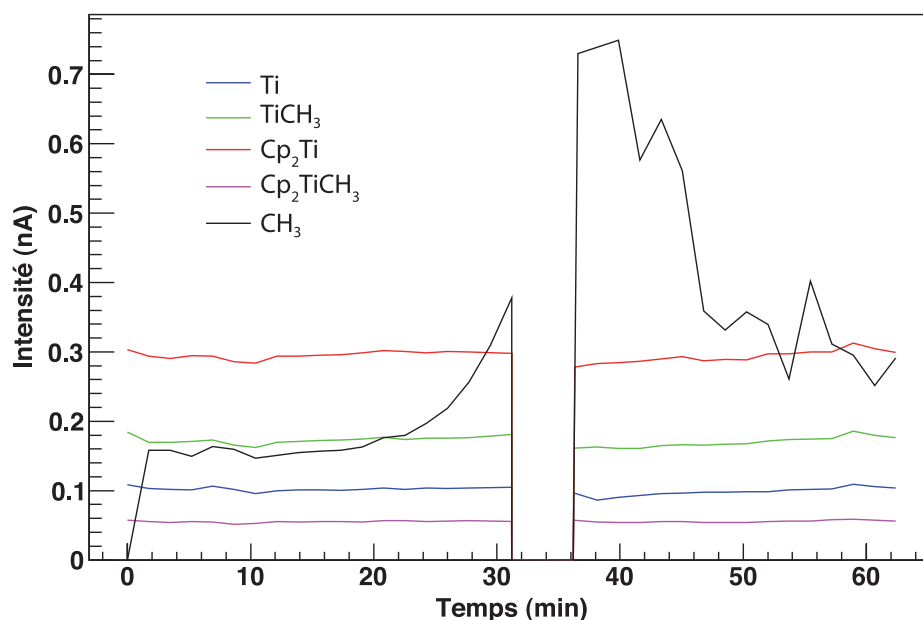


Figure 7.14: Suivi temporel de l'intensité mesurée pour certaines masses d'un échantillon de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  (le même que celui de la Figure 7.13). On observe la stabilité des pics de titane et l'effet du liquide ionique sur la quantité de groupes  $\text{CH}_3$  mesurés.

*Temporal follow-up of the intensity measured at certain masses of a sample of  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  (the same as that of the Figure 7.13). One observes the stability of the titanium peaks the effect of the ionic liquid on the quantity of emitted  $\text{CH}_3$  groups.*

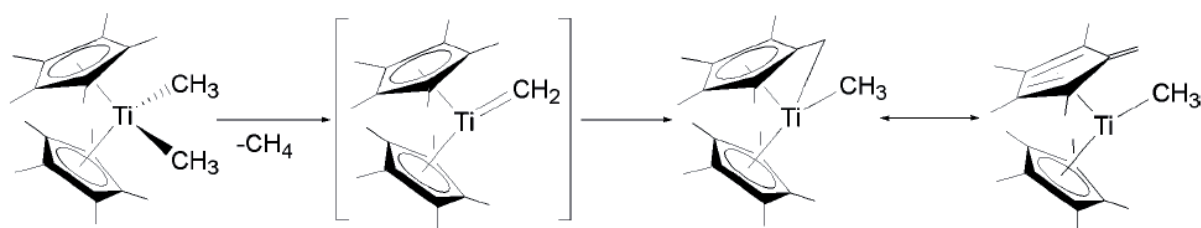


Figure 7.15: Schéma de l'activation de la liaison intermoléculaire C-H du  $\text{Cp}_2^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  [Sco09].  
*Intramolecular C-H bond activation of the  $\text{Cp}_2^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  [Sco09].*

$\text{CH}_3$  ou  $\text{CH}_4$ . On obtient alors une molécule qui est certainement non volatile. Par analogie, il s'agirait d'une molécule de formule  $\text{CpC}_5\text{H}_4\text{TiCH}_3$ . Ce phénomène est expliqué comme résultant de l'activation intermoléculaire C-H des groupes méthyles lorsque la molécule est thermalisée.

On a observé que cette molécule devenait noire après être passée par un vide poussé. Au contraire, lorsqu'elle subit un vide "moins poussé" comme celui lors d'une sèche par un instrument comme l'évaporateur rotatif, elle conserve son aspect d'origine. Il est possible qu'elle doive être protégée par une quantité minimum de solvant pour ne pas subir cette réaction.

La solution de protection déduite des tests semble permettre l'obtention d'un faisceau. Cependant, ce produit présente des instabilités. Il ne se comporte pas exactement de la même manière en fonction des synthèses. Ainsi, une auto combustion d'un échantillon d'environ 2 grammes laissé à l'air libre s'est déroulée. De plus, il est nécessaire de le protéger par liquide ionique lors d'une utilisation sous pompage ce qui condamne toute extraction ultérieure. Il s'agit donc d'une option potentiellement dangereuse pour un produit enrichi très onéreux. Ce constat nous a alors lancé sur une nouvelle vague de tests de différentes molécules candidates MIVOC avec pour objectif de trouver une solution plus stable et éventuellement plus efficace.

## 7.5 Etude comparative de différents composés organométalliques

Avec les connaissances acquises précédemment, une deuxième vague de synthèses a été réalisée pour comparer un ensemble de molécules. Le but était de définir, parmi une liste de composés organométalliques, lesquelles peuvent être de bons candidats MIVOC. Si plusieurs molécules candidates se présentent, il faut alors définir laquelle possède le meilleur compromis entre intensité de faisceau et stabilité. Une attention particulière a été mise sur le rapport entre la masse de titane et celle de carbone au sein de la molécule. En effet, une faible quantité de carbone favorise un meilleur rendement dans une source à ions de type ECR.

Les différentes molécules comparées dans cette étude sont celles de  $\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$ , de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ , de  $\text{Cp}_2^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ , de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  et de  $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$ . Les tests présentés dans cette section ont été réalisés avec des molécules de titane naturel. Les échantillons nécessaires à cette batterie de tests ont été synthétisés par Z. Asfari à l'IPHC (ou achetés dans le cas de

la molécule de  $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$ ).

### 7.5.1 Etude du $\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$

Parmi les quatre molécules originellement envisagées pour la production du faisceau d'ions de  $^{50}\text{Ti}$  (voir la Section 7.3), la plus légère d'entre elles est le  $\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$  (triméthyl)cyclopentadiénetitane. En premier lieu, cette molécule semble particulièrement intéressante car elle possède le plus petit nombre d'atomes de carbone : seulement 8.

Une synthèse de cette molécule a été réalisée à l'IPHC et un composé jaune-orange a été obtenu. Il n'a pas donné de signature MIVOC sur le spectromètre de masse. Il s'agit de la même observation que lors des études présentées dans la Section 7.3.

Ce résultat négatif pourrait provenir d'une sensibilité caractéristique de ce composé. En effet, d'après [Gom88], le  $\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$  est un composé instable qui se décompose à température ambiante ( $\approx 20^\circ\text{C}$ ). Pour pouvoir protéger cette molécule, il serait nécessaire de la refroidir durant tout le processus : synthèse, conservation et potentiellement lors de l'utilisation sous source. Comme ces contraintes induisent un risque de détérioration très important et nécessiteraient un travail de développement important, ce composé n'a donc pas été envisagé pour la suite.

### 7.5.2 Etude du $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$

Le composé organométallique (triméthyl)pentaméthylcyclopentadiénetitane de formule  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ , présente dans sa version commerciale une pression élevée et a permis d'obtenir un faisceau intense de titane naturel au JYFL (voir la Section 7.3). De nouvelles recherches ont donc été effectuées avec succès dans le but de le synthétiser à l'IPHC et de le tester.

Le composé de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  commercial est vendu dans un tube scellé sous atmosphère d'argon. Si un échantillon de ce produit entre en contact avec l'air ambiant, il change d'aspect tout en émettant une fumée provoquée par une réaction du composé avec l'environnement. C'est une indication forte que le composé doit être protégé de l'air. Le produit commercial est de couleur verte-brune et semble posséder des impuretés, il est ainsi complexe de réaliser une comparaison visuelle.

En tenant compte de cette sensibilité, une synthèse a été réalisée à l'IPHC avec la même réaction mais sous atmosphère contrôlée. L'ensemble du processus de synthèse a été modifié pour tenir compte de cette contrainte. Tous les solvants exploités ont été séchés et distillés pour minimiser le risque de contact du composé avec des molécules d'eau ou d'oxygène. L'argon a été choisi comme gaz de travail au détriment de l'azote, gaz plus couramment utilisé en chimie. En effet, un atome d'argon est plus lourd (40 uma) qu'une molécule de  $\text{N}_2$  (28 uma) qui est elle-même moins lourde que celle de  $\text{O}_2$  (32 uma). De ce fait, l'argon se positionne plus bas que l'oxygène dans un volume donné. Cette caractéristique permet de chasser l'oxygène par le haut.

Le composé obtenu, après évaporation du solvant, avec cette nouvelle technique est de couleur jaune verdâtre (voir la Figure 7.16.B). Un test sur spectromètre de masse a prouvé que ce produit possède une pression de vapeur compatible avec la méthode MIVOC.

L'échantillon synthétisé à l'IPHC a été comparé par spectrométrie de masse avec un

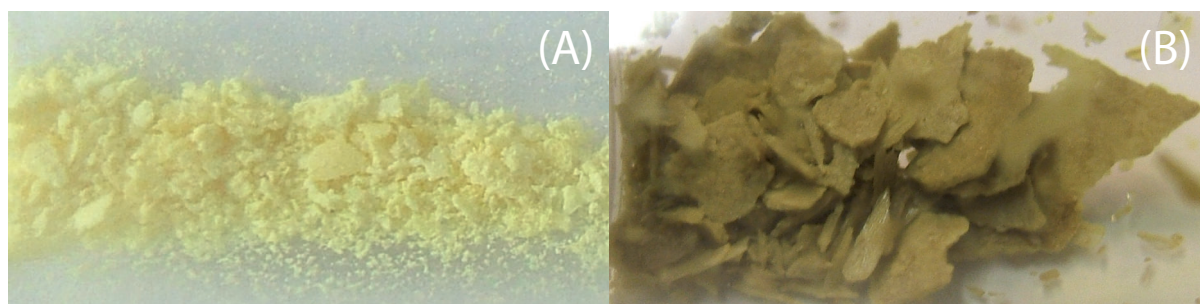


Figure 7.16: Photographies d'un échantillon de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  placé (A) : à l'air libre (jaune canari) et (B) : sous argon (jaune-vert).

*Photographies of a  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  sample (A): in the open air (canary yellow) and (B): under argon (yellow-green).*

échantillon commercial (de la compagnie STREM Chemical Inc.) dans les mêmes conditions (voir la Figure 7.17). On observe que ces deux produits possèdent des pics aux mêmes masses ce qui prouve que les molécules étudiées sont identiques. Toutefois, le produit synthétisé à l'IPHC possède une intensité plus élevée que le produit commercial. Cela est une indication que le produit de Strasbourg est plus pur que le commercial.

Plusieurs tests de consommation ont été réalisés pour étudier la tenue en temps de cette molécule. L'évolution temporelle de la pression émise par cette molécule a été suivie pour plusieurs échantillons. La Figure 7.18 présente ce suivi pour un échantillon de 300 mg. On observe sur cette dernière que la pression diminue rapidement au démarrage. Cela est dû à l'évacuation des molécules d'eau, des traces de solvant et autres impuretés. En une heure, le système entre dans un régime stable représenté par un plateau. Cette caractéristique prouve la bonne stabilité et la constance de consommation du  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ . On observe des fluctuations journalières sur le plateau qui proviennent certainement de l'environnement de la salle d'expérience. Après plusieurs jours de fonctionnement, la pression chute drastiquement vers une valeur très faible en l'espace de quelques heures. A ce moment-ci, il ne reste quasiment plus de produit volatile disponible.

Après plusieurs tests, il a été observé que la durée du plateau est proportionnelle à la masse de l'échantillon. Ce comportement temporel est idéal car il permet d'obtenir un faisceau stable durant toute la période du plateau. On note que l'on peut ajouter du liquide ionique à un échantillon sans que cela ait le moindre effet, bon ou mauvais, en terme de consommation.

Pour tester l'influence de l'atmosphère sur le composé, plusieurs synthèses ont été réalisées sous différents gaz : l'oxygène, l'azote et l'argon.

Sous oxygène, la molécule change d'aspect. On obtient une poudre fine de couleur jaune canari. Dans ce cas, l'échantillon perd ses propriétés volatiles.

Un échantillon, protégé sous argon, a été étudié par spectrométrie de masse rapidement après sa synthèse. Une bonne signature MIVOC a été observée. Il a ensuite été conservé sous  $\text{N}_2$  pendant quelques jours. Une seconde étude spectroscopique de ce dernier a alors été effectuée. L'intensité des pics d'intérêt obtenue a été divisée par un facteur 15 entre le premier et le second test. Ce test a démontré que l'azote ne permet pas une conservation satisfaisante de ce composé. Il est probable que l'azote ne soit pas assez lourd pour protéger le produit de

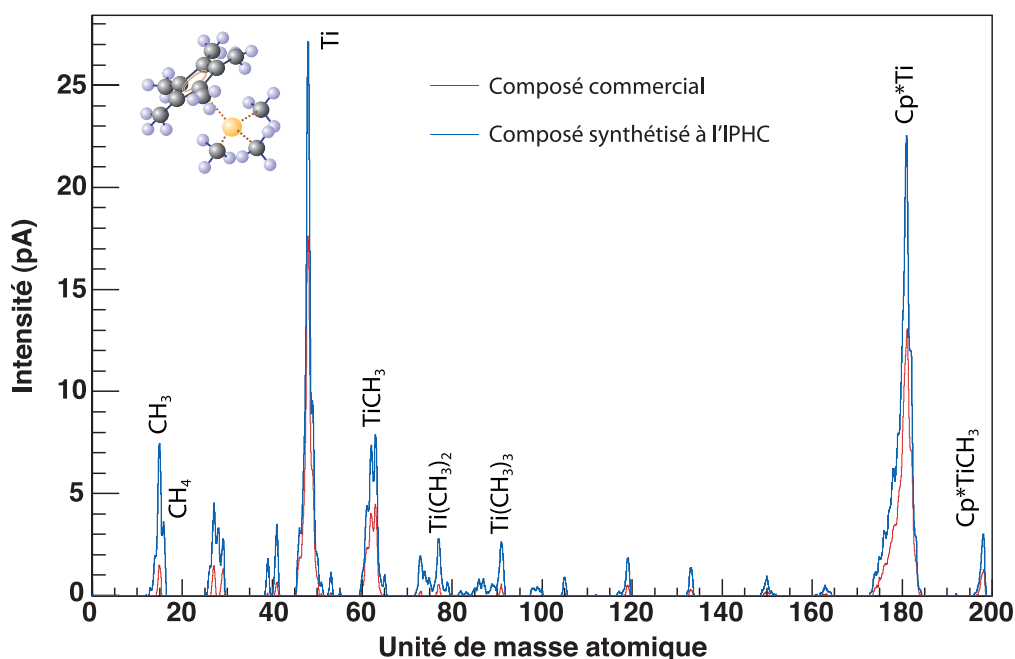


Figure 7.17: Comparaison entre deux spectres de masse du composé de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  : en rouge, le produit commercial et en bleu, le produit synthétisé à l'IPHC.

*Comparison between two mass spectra of the  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  compound : the commercial product in red and the synthesized at the IPHC in blue.*

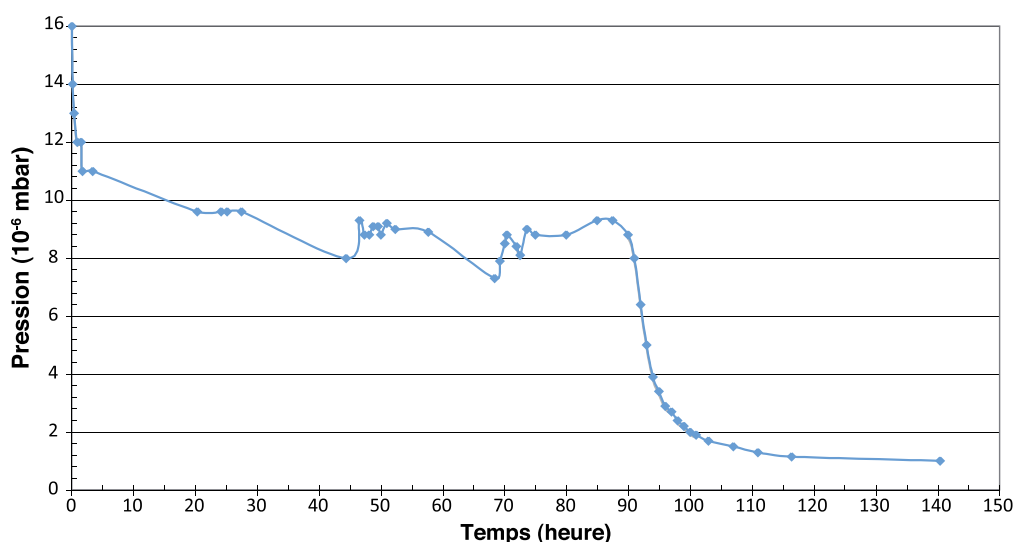


Figure 7.18: Evolution temporelle de la pression mesurée pour un échantillon de 300 mg de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ . La courbe présente un plateau avant de s'effondrer rapidement lorsqu'il n'y a presque plus de produit à disposition. Les fluctuations journalières observées sur le plateau peuvent provenir de l'environnement de la salle d'expérience.

*Temporal evolution of a 300 mg- $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  sample pressure. The curve presents a plateau before a sudden dropping when there is almost no longer available product. The daily fluctuations of the plateau could come from the environment of the experience room.*



l'oxygène qui peut s'introduire par des micro-fuites.

Un test similaire a été réalisé en conservant l'échantillon sous argon durant l'ensemble du processus. Après plusieurs jours de conservation, les intensités obtenues sur spectre de masse sont similaires à celles des tests réalisés rapidement après la synthèse. Cette étude a été répliquée plusieurs fois pour confirmer que l'argon conserve bien ce composé.

Ces différents tests montrent que le  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  est une molécule stable qui conserve sa volatilité à l'abri strict de l'oxygène. Elle a besoin d'être protégée par un gaz plus lourd que l'oxygène tel que l'argon. L'azote, plus léger que l'oxygène, ne permet pas de la protéger. Ce composé de titane est un candidat prometteur pour l'obtention d'un faisceau. Il possède cependant un total de 13 atomes de carbone ce qui est relativement élevé pour une molécule MIVOC.

### 7.5.3 Etude complémentaire du $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$

Les études du  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  ont démontré qu'il était nécessaire de produire et de conserver cette molécule sous argon. Plusieurs synthèses de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  ont été réalisées en utilisant le même mode opératoire que celui du  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ , c'est-à-dire sous atmosphère contrôlée, composée d'argon.

Lorsqu'un échantillon est séché à l'aide d'un évaporateur rotatoire, on obtient une poudre jaune-orangée. Puis, après une dizaine de minutes, il brunit pour devenir de couleur noire charbon. Cela signifie que le produit change de forme spontanément.

Avec une conservation du composé sous toluène ou diéther et une mesure sur spectromètre de masse sous liquide ionique, un spectre présentant des pics d'intensité satisfaisante a été obtenu. Cette méthode d'utilisation fonctionne également dans le cas de la conservation sous argon. Les intensités des pics étaient environ deux fois plus faibles que celles obtenues avec le  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  dans des conditions équivalentes.

Les observations sur ce produit sont similaires à celles effectuées dans la Section 7.4. La synthèse sous argon ne présente donc pas d'avantage à celle réalisée à l'air libre. Les instabilités de cette molécule sont donc toujours à prendre en compte pour le choix du composé. Le  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  possède 12 atomes de carbone, soit un de moins que le  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ .

Après une autre série de tests, une sensibilité importante du composé a été découverte. Lorsqu'il est soumis à une température supérieure à  $\approx 15^\circ\text{C}$ , le composé peut démarrer une réaction exothermique qui entraîne une combustion totale. Ce phénomène ne s'observe que pour des échantillons de taille importante (de l'ordre du gramme). Les petits échantillons ne semblent pas subir le même sort. Il semble que plus la proportion de composé en contact avec le récipient (ici en verre) est élevée, moins ce phénomène est important. La chaleur induite par la réaction est certainement évacuée partiellement via le verre ce qui peut éviter la réaction dans le cas de petits échantillons. Le composé doit donc être soit refroidi constamment, soit conservé en échantillons de l'ordre de quelques dizaines de milligrammes. Ce phénomène a été vérifié à l'aide d'un système permettant de suivre l'évolution du composé en fonction de la température. Il a été mis en place par M. Filliger à l'IPHC.

### 7.5.4 Etude du $\text{Cp}^*_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$

Le cycle pentaméthylcyclopentadienyl  $\text{Cp}^*$  semble apporter aux composés organométalliques de titane une stabilité plus importante. En effet, d'après [Gom88], ce cycle permet une plus grande stabilité vis-à-vis de la température et de l'environnement. De ce fait, une étude de la plus lourde des molécules envisagées au début des recherches, le  $\text{Cp}^*_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ , a donc été effectuée.

La synthèse a été réalisée en démarrant d'un composé chloré commercial  $\text{Cp}^*_2\text{TiCl}_2$  (acheté chez STREM Chemical Inc.). Comme pour la molécule de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ , la synthèse a été réalisée entièrement en anaérobie, sous argon.

Le produit obtenu est une poudre sèche de couleur orange (voir la photographie de la Figure 7.19). Un échantillon a été testé sur le spectromètre QME200. Il n'a pas présenté de pression de vapeur. En effet, aucun pic correspondant aux fragments possibles de la molécule n'est observable sur le spectre de la Figure 7.19. Seules des traces d'eau et d'azote sont observables.

En tenant compte de la différence entre le  $\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$  et le  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ , on peut émettre l'hypothèse que l'apport de la somme de deux cycles  $\text{Cp}^*$  apporte un poids et une stabilité assez importante. Cela pourrait ne pas permettre à la molécule d'être caractérisée par une volatilité suffisante. Le  $\text{Cp}^*_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  possède d'ailleurs le plus important nombre d'atomes de carbone par titane des molécules testées, soit 22. Sans signal positif par spectrométrie de masse, cette molécule n'a pas été retenue pour la production du faisceau de titane.

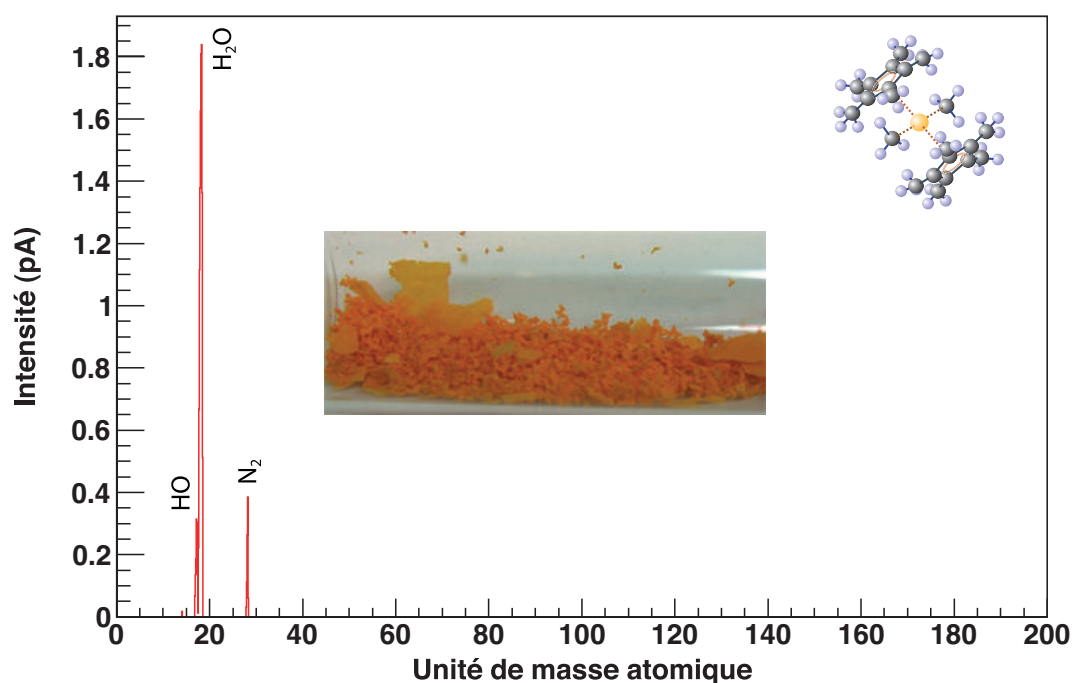


Figure 7.19: Spectre de masse et photographie du composé de  $\text{Cp}^*_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ .

*Mass spectrum and photography of the  $\text{Cp}^*_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  compound.*

### 7.5.5 Etude du $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$

Lors de la recherche de composés organométalliques de titane possédant une bonne pression de vapeur, une molécule non encore étudiée dans le cadre de la collaboration et potentiellement intéressante a été testée. Il s'agit du cyclopentadienylcycloheptatrienyltitane de formule  $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$  [Dem82]. Le symbole Ch correspond au cycle organique cycloheptatriène de formule  $\eta^7\text{-C}_7\text{H}_7$ . La masse molaire de cette molécule est de  $204 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  pour un composé naturel et de  $206 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$  pour un composé enrichi en  $^{50}\text{Ti}$ .

Ce composé est utilisé dans l'industrie pour déposer des films fins de titane sur des surfaces. Cette opération est réalisée par méthode de Dépôt Chimique en phase Vapeur (Chemical Vapour Deposition, procédé CVD) réalisée à haute température [Char94]. D'après cette publication, il semblerait que les deux cycles de cette molécule ( $\eta^5\text{-C}_5\text{H}_5$  et  $\eta^7\text{-C}_7\text{H}_7$ ) forment, lors du processus, deux cycles de benzène ( $\text{C}_6\text{H}_6$ ). Le benzène est une molécule très stable qui peut efficacement prévenir l'incorporation d'atomes de carbone dans les dépôts ; par exemple sur les parois d'une source.

Un échantillon commercial de ce composé organométallique a été testé sur le spectromètre de masse QME200. Il a été acheté à l'entreprise STREM Chemical Inc.. Il s'agit d'un composé poudreux de couleur bleue. Le spectre de masse obtenu est représenté sur la Figure 7.20. Les intensités mesurées sont 10 à 20 fois inférieures à celles obtenues lors des tests de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  ou de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$ . On observe des pics aux masses des cycles cyclopentadienyl (65 uma) et cycloheptatrienyl (91 uma) ainsi qu'à la masse du  $^{48}\text{Ti}$  ce qui confirme que la molécule attendue a été évaporée. Un pic notable est présent à 126 uma. Cette masse correspond à celle d'un fragment de  $\text{TiC}_6\text{H}_6$ . Cette observation est une forte indication de la

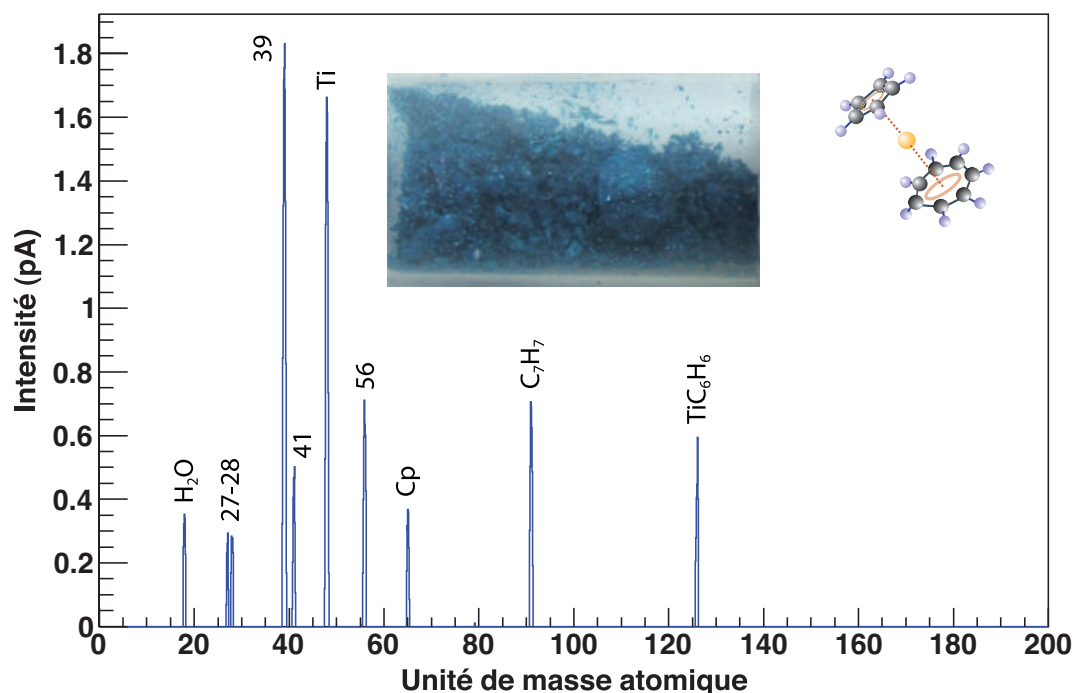


Figure 7.20: Spectre de masse et photographie du composé de  $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$ .

*Mass spectrum and photography of the  $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$  compound.*

formation des cycles de benzène comme précisé dans la Référence [Char94].

Un échantillon a été testé sur spectromètre de masse. Il a nécessité l'utilisation d'un dispositif de chauffe. L'échantillon a été porté progressivement de la température ambiante de la salle ( $\approx 20$  °C) à 50 °C. L'intensité des pics d'intérêt a doublé. Il est probable que, grâce à la chaleur, plus de fragments ont atteint l'analyseur du spectromètre. Cependant, cette augmentation ne permet pas d'atteindre des valeurs suffisantes pouvant mener à l'obtention d'un faisceau intense de titane sur source.

D'après [Char94], ces molécules ont tendance à se déposer sur les parois si elles ne sont pas amenées à une température d'environ 600 °C. Il est probable que la majorité des molécules d'intérêt se déposent directement à l'intérieur des tuyaux du spectromètre sans pouvoir atteindre la zone de mesure. Il faudrait pour être efficace chauffer à plusieurs centaines de degrés Celsius les tuyaux par lesquels les molécules passent. Cela n'est pas envisageable avec les installations existantes telles que celles du JYFL, GANIL ou FLNR dont les dispositifs ne sont pas conçus pour une telle utilisation.

La contrainte de température exclut de fait la molécule de la liste des candidates pour la production du faisceau dans ce cadre de travail.

### 7.5.6 Choix du composé

Le Tableau 7.7 liste les différentes molécules étudiées ainsi qu'un commentaire sur les résultats obtenus lors de cette batterie de tests.

Deux molécules, celles de  $\text{CpTiC}_7\text{H}_7$  et de  $\text{Cp}_2^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  ne peuvent pas être exploitées pour la production d'un faisceau car elles possèdent une pression de vapeur à température ambiante respectivement trop faible et nulle. Le  $\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$ , pauvre en carbone, possède l'inconvénient de se décomposer à température ambiante ce qui rend son utilisation trop contraignante pour être envisagée.

Le  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  possède une bonne pression. Cependant, c'est une molécule présentant des instabilités, notamment vis-à-vis de la température, et qui ne peut pas être soumis à un vide poussé. Elle nécessite ainsi un solvant de conservation (diéther ou toluène) et un solvant de protection non évaporable lors de la manipulation (liquide ionique). Il faudrait également mettre au point un système de refroidissement du composé de la synthèse à l'utilisation. Cela

Molécule	Observation
$\text{CpTiC}_7\text{H}_7$	Pression trop faible. Nécessite un apport de chaleur.
$\text{CpTi}(\text{CH}_3)_3$	Molécule très sensible se décomposant à $\approx 20$ °C.
$\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$	Molécule instable. Nécessite des solvants. Bonne pression.
$\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$	Processus entièrement sous argon. Excellente pression.
$\text{Cp}_2^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$	Pas de pression de vapeur.

Tableau 7.7: Tableau résumant les conclusions principales des différents composés organométalliques de titane testés.

*Summary table of the main observations on the different tested titanium organometallic compounds.*

nécessiterait un lourd investissement en terme de développement.

La molécule de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  présente une bonne volatilité, est stable en fonction du temps et nécessite des précautions de manipulation qui passe par la protection du composé par l'argon. Elle a été choisie comme molécule pour la production du faisceau isotopique en particulier pour son comportement stable en fonction du temps et car ses sensibilités sont bien comprises. Une étude plus approfondie en vue de l'utilisation sur source de cette molécule est présentée dans la Section 7.6.

## 7.6 Etude approfondie du $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$

Suite aux tests présentés dans la Section 7.5, la molécule de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  a été choisie pour produire le faisceau. A l'issue de cette phase, la seconde étape de la synthèse de la molécule était connue. Des études ont été menées pour maîtriser l'extraction sous vide du produit isotopique et la première étape de la synthèse à partir du tétrachlorure de titane. Des tests approfondis de sensibilité du produit ont été effectués afin de pouvoir optimiser son conditionnement. Cette section présente donc ces différentes études nécessaires à la production du faisceau isotopique de  $^{50}\text{Ti}$ .

### 7.6.1 Synthèse à partir de $\text{TiCl}_4$

Les échantillons de  $\text{TiCl}_4$  isotopiques, fournis par la compagnie URENCO, sont envoyés au client sous vide dans un conteneur en inox à vanne. Comme il est placé sous vide, le tétrachlorure de titane nécessite de subir une différence de pression pour être extrait du conteneur. En plus de cette contrainte, il s'agit d'une molécule très sensible à l'oxygène. Au moindre contact, le titane s'oxyde en émettant une vapeur blanchâtre. De ces faits, il est nécessaire de mettre au point et de fiabiliser un montage d'évaporation sous vide adapté à l'extraction du composé. Ce montage a été principalement mis en place par J. Piot et utilisé lors de la synthèse du produit isotopique.

Des synthèses en deux étapes ont été réalisées à partir du  $\text{TiCl}_4$  à l'IPHC. Il existe plusieurs méthodes pour réaliser la première étape de synthèse : [Lli88, Kin67, Zha06]. Le produit obtenu était d'aspect similaire à celui obtenu avec une seule étape de synthèse présentée dans la section précédente.

Des analyses par Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) de type proton ont été réalisées sur le composé organométallique en utilisant du chloroforme déshérisé  $\text{CDCl}_3$  comme solvant. Cette méthode permet d'analyser les liaisons hydrogènes d'une molécule. Des études ont été réalisées sur des échantillons de  $\text{Cp}^*\text{TiCl}_3$  et de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  à l'IPHC.

Le spectre RMN du  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  constitue la Figure 7.21. On y observe les deux pics correspondant aux deux types de liaison hydrogène de la molécule, c'est-à-dire aux atomes d'hydrogène des trois groupes méthyles  $\text{CH}_3$  (à 0.73 ppm) et du cycle  $\text{Cp}^*$  (à 1.93 ppm). Les valeurs mesurées correspondent à celles publiées dans [Mena89]. L'analyse d'un échantillon commercial de cette molécule donne un résultat similaire. De la même façon, la molécule de  $\text{Cp}^*\text{TiCl}_3$  synthétisée à l'IPHC a été validée par RMN. Cela confirme le bon déroulement de la synthèse en deux étapes.

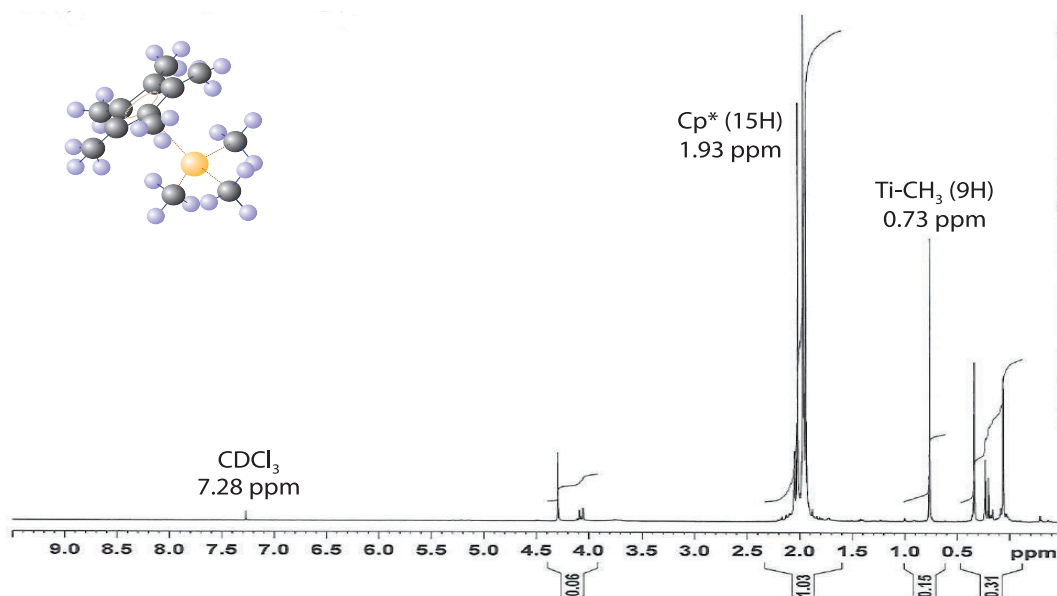


Figure 7.21: Spectre de Résonance Magnétique Nucléaire réalisé au DSA d'un échantillon de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  synthétisé à l'IPHC à partir de  $\text{TiCl}_4$ .

*Nuclear Magnetic Resonance spectrum made at DSA of a  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  sample synthesized at the IPHC from  $\text{TiCl}_4$ .*

## 7.6.2 Tests de sensibilité

En vue de mieux comprendre le comportement du  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ , plusieurs tests de sensibilité ont été effectués. Les premières synthèses (voir la Sous-section 7.5.2) ont permis de mettre en évidence une dégradation du composé lorsqu'il est soumis à l'air ambiant.

J'ai testé le comportement du produit vis-à-vis de plusieurs contraintes en vue d'optimiser sa protection par la suite. Pour réaliser cet objectif, plusieurs échantillons dédiés d'environ 15 mg de produit ont été préparés. Chaque échantillon a été conditionné dans une bouteille à visser (voir la Sous-section 7.6.3).

Chacun des tests a été conçu pour ne prendre en compte qu'une seule contrainte à la fois et protéger l'échantillon des autres. Les échantillons étaient, en outre, protégés de la lumière par des feuilles d'aluminium et de l'air par de l'argon sauf lorsque la contrainte l'exigeait. La liste des différents tests réalisés, ainsi que l'aspect du composé après le test, constitue le Tableau 7.8. Ces études sont décrites une à une ci-après.

Sous l'action de la lumière, le produit change rapidement d'aspect. En quelques heures, le composé devient vert-brun auréolé d'une phase visqueuse très adhérente. En quelques semaines, il devient d'aspect jaune-orangé. Il s'avère être très rapidement sensible à l'exposition au soleil. A la lumière artificielle "standard", c'est-à-dire blanche, il subit une modification similaire. Soumis à la lumière artificielle acrylique (de couleur rouge), le composé ne subit pas de modification notable.

Laisse à température ambiante durant plusieurs semaines, un échantillon n'a pas changé d'aspect. Au réfrigérateur, la même observation a été réalisée.

Des tests de chauffe ont été réalisés grâce à un bain d'huile thermostaté dans lequel

Contrainte	Observation
Lumière naturelle	Devenu visqueux et orange.
Lumière artificielle blanche	Devenu visqueux et orange.
Lumière artificielle rouge	Pas de modification notable.
Température ambiante	Pas de modification notable.
Température réfrigérateur	Pas de modification notable.
Chauffe à 50 °C	Resté solide et s'est légèrement verdi.
Chauffe à 75 °C	Devenu liquide et brun.
Chauffe à 100 °C	Devenu liquide et brun.
Oxygène	Une partie s'est évaporé. Le reste est visqueux et brun.
Eau	Devenu jaune canari.
Isotherme	S'est légèrement verdi.

Tableau 7.8: Tableau résumant les observations réalisées après les différents tests de sensibilité effectués sur la molécule de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$ .

*Summary of the observations made after the different stability tests done on the  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  molecule.*

l'échantillon a été plongé durant 30 minutes à des températures de 50 °C, 75 °C et 100 °C. A 50 °C, le composé est devenu verdâtre. A 75 °C et 100 °C, le composé est passé d'un état solide à liquide. Après refroidissement, on obtient un composé brun visqueux, différent de l'aspect originel. Ce n'est donc pas un processus réversible.

Pour le test de sensibilité à l'oxygène, une entrée de dioxygène en bouteille a été réalisée à l'intérieur d'une boîte à gants sous flux d'argon pour protéger l'échantillon de l'humidité. Le composé est devenu jaune-brun visqueux. Il semble qu'une partie ait été évaporée dans le processus.

De l'eau distillée a été ajoutée goutte à goutte sur un échantillon à l'intérieur d'une boîte à gants sous flux d'argon. Le composé est resté poudreux et est devenu jaune canari.

Le test d'isothermie consiste à placer un échantillon dans une enceinte scellée d'une épaisseur de plusieurs centimètres de polystyrène. Cela permet de fortement limiter les contraintes de l'extérieur, en particulier les variations de température. Ainsi, le composé peut être considéré comme isolé. Après un mois de conservation, le composé s'est légèrement verdi.

Ces tests ont permis de tirer les conclusions suivantes :

- ◇ Le produit est sensible à plusieurs contraintes environnementales : à l'humidité, à l'oxygène et à la lumière blanche. Il doit être protégé impérativement de ces trois contraintes.
- ◇ Le  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  fusionne à une température de 75 °C. Il perd alors son aspect cristallin. Ce résultat est cohérent avec la Référence [Gom88] qui annonce une température de fusion à 75-76 °C. Il est ainsi préférable de garder cette molécule à température ambiante ou à température fraîche (quelques degrés Celcius) régulée comme par exemple au réfrigérateur.
- ◇ Il semble que ce soit spécifiquement l'humidité qui provoque le changement d'aspect de la molécule qui prend une couleur jaune canari.

- ◇ Après le test dit "isotherme", on peut en déduire que la température du composé doit être régulée par l'extérieur (air ambiant, réfrigérateur,..) lors de sa conservation.

En conclusion, la seule solution observée qui préserve le composé est la conservation à température ambiante ou "fraîche" (quelques degrés Celcius) à l'abri des fortes variations de température, de l'humidité, de l'oxygène et de la lumière.

### 7.6.3 Conditionnement

En tenant compte des conclusions des tests présentés dans la Sous-section 7.6.2, une méthode de conditionnement du composé, à appliquer après la fin de la seconde partie de la synthèse, a été mise en place. Les différents points de cette méthode sont discutés dans cette sous-section.

En premier lieu, deux types de bouchons pour fermer les flacons contenant le composé ont été comparés. Les premiers étaient des bouchons à sertir grâce à un appareil dédié et les seconds étaient des bouchons à visser manuellement. Des tests d'étanchéité ont été réalisés, grâce à un solvant coloré, qui permet de mettre facilement des fuites en évidence. Cet aspect est particulièrement important pour la phase de transport du composé de l'IPHC au JYFL. En effet, le produit subit une différence de pression importante lors de son trajet en avion.

Des fuites ont été mises à jour avec le premier type de bouchon. Le pas de vis et l'action du joint permettent une meilleure étanchéité pour la seconde solution. De plus, un bouchon à sertir est à usage unique contrairement à la seconde solution. Le bouchon à visser est également plus simple à manipuler pour l'utilisateur.

Une solution de bouteilles en verre de 20 mL fermées par un bouchon à visser a donc été choisie. Après fermeture, plusieurs couches de parafilm sont ajoutées au niveau de la jonction entre le bouchon et le flocon. Elles permettent d'ajouter une protection supplémentaire à l'échantillon.

Après le choix des bouchons à visser, des adaptateurs à vide pour ce type de flacon ont été développés à l'IPHC. Ils ont pour objectif de faire le lien entre la bouteille et la source ou le spectromètre de masse tout en garantissant un niveau de fuite minimal. Ces adaptateurs ont été usinés à l'Atelier de Mécanique de l'IPHC sous l'impulsion de B. Gall. J'ai testé plusieurs matériaux différents de composition de l'adaptateur. Pour cela, j'ai utilisé le système de pompage, présenté dans la Sous-section 7.4.3, pour étudier la pression en fonction du temps pour chacun des matériaux. C'est finalement l'adaptateur en plastique qui a présenté la pression la plus basse, c'est-à-dire les fuites les moins importantes. Il a été utilisé lors des mesures sur spectromètre de masse ainsi que sur source durant l'étude du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Ces adaptateurs ont l'avantage d'être simple d'utilisation.

Des méthodes ont été mises en place pour protéger le composé de l'oxygène, de l'humidité et de la lumière durant tout le processus, de la synthèse à l'utilisation sous source. La description de ces méthodes a donné lieu à un rapport interne à l'IPHC.

En appliquant les différentes procédures décrites dans cette section, plusieurs échantillons ont été synthétisés. En étant conservé à température ambiante durant plusieurs semaines ou mois, aucun d'entre eux n'a subi de changement. Cette solution a donc été exploitée pour les échantillons utilisés pour produire les faisceaux présentés dans la section suivante.



## 7.7 Dispositif de production de faisceau au JYFL

A l'Université de Jyväskylä, un faisceau d'ions peut être produit grâce à deux sources de type Electron Cyclotron Resonance Ion Source. Elles sont nommées ECRIS1 et ECRIS2 d'après leur ordre de construction. Chacune d'entre elles peut alimenter la ligne de faisceau centrée autour du cyclotron K130 [Liuk92]. Un schéma de cette ligne de faisceau entre la source ECRIS2 et la salle de détection comprenant le séparateur RITU (voir la Section 3.2.2) constitue la Figure 7.22.

Le choix de la source ECRIS1 ou ECRIS2 dépend du type de faisceau et de l'intensité demandée pour une expérience donnée. La disponibilité de deux sources dans le laboratoire augmente les possibilités de travail de recherche et de développement de nouveaux faisceaux. Les caractéristiques des deux sources ainsi que du cyclotron sont décrites dans cette section.

On note qu'une troisième source, la source d'ions légers LIISA, est également disponible au JYFL. Elle est principalement exploitée pour la production de faisceaux de protons  $\text{H}^+$ .

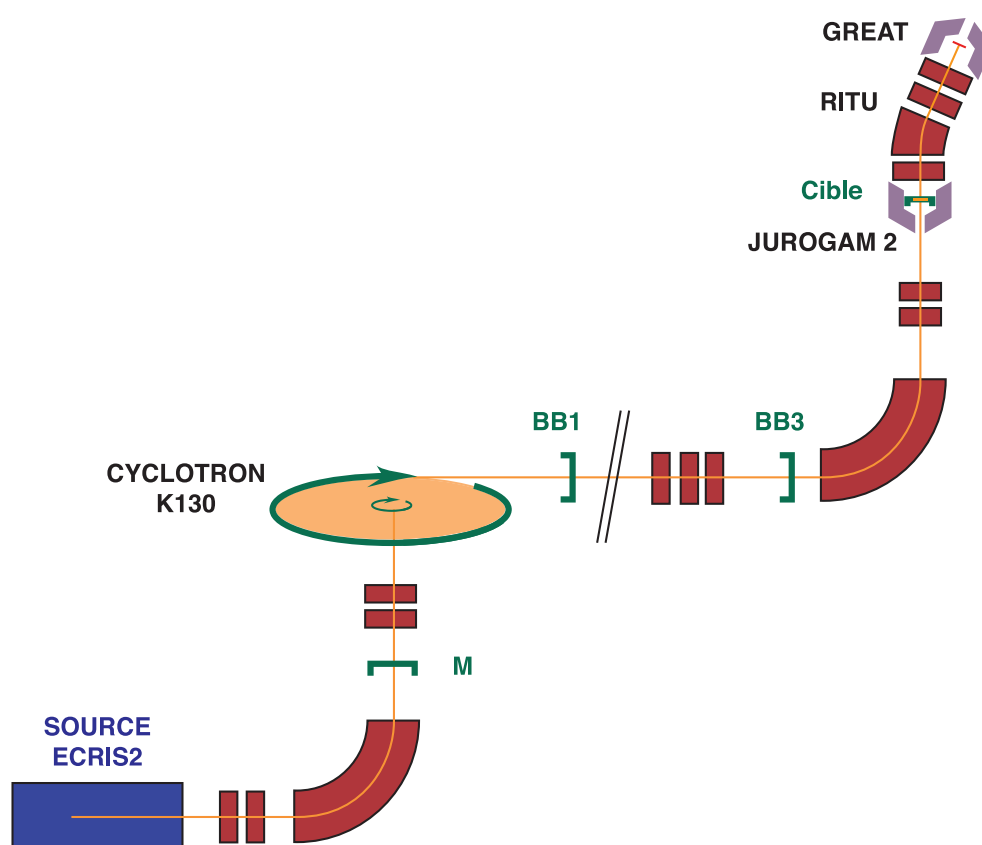


Figure 7.22: Schéma de la ligne de faisceau entre la source ECRIS2 et la salle de détection de RITU (d'après [Pio10]).

*Plan of the beam line between the ECRIS2 source and the detection room (based on [Pio10]).*

### 7.7.1 Cyclotron K130

Le cyclotron K130 peut accélérer à une énergie donnée les ions provenant des trois sources du JYFL. Le champ magnétique moyen appliqué par ses aimants est de 1.77 T. Le vide en son sein est de  $5.0 \cdot 10^{-8}$  mbar.

Comme son nom l'indique, le cyclotron du JYFL possède une constante  $K = 130$  MeV. Les ions chargés produits dans une des sources sont injectés dans le cyclotron et l'énergie cinétique maximale par nucléon  $E/A$  pouvant être atteinte est de :

$$\frac{E}{A} = K \cdot \frac{q^2}{A^2} \quad (7.1)$$

où  $A$  est le nombre de nucléons et  $q$  est l'état de charge des ions composant le faisceau.

L'énergie cinétique par nucléon dépend quadratiquement de l'état de charge  $q$  et seulement linéairement de  $K$ . De ce fait, la création d'ions de hauts états de charge dans une source est primordiale pour l'accès à des faisceaux de haute énergie. L'énergie du faisceau produite a une précision d'environ 1%.

Pour un faisceau de  $^{50}\text{Ti}^{11+}$ , l'énergie cinétique maximale d'un ion est de 314.6 MeV ce qui est équivalent à 6.3 A·MeV. Ce maximum est largement suffisant étant donnée l'énergie nécessaire pour la synthèse du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ , c'est-à-dire 239 MeV.

### 7.7.2 ECRIS1

La source ECRIS1 a été construite en 1990 [Arj90]. Elle est basée sur la source RT-ECRIS du National Superconducting Cyclotron Laboratory, Michigan State University [Ant86]. Elle a été utilisée durant ma thèse pour tester différents composés de titane et pour caractériser le faisceau isotopique.

Elle exploite un transmetteur micro-onde d'une fréquence micro-onde d'opération de 6.4 GHz, avec une puissance maximale de 400 W. Le diamètre et la longueur de la chambre de plasma sont respectivement de 40 et 14 cm pour un volume de 7.7 litres. Deux pompes permettent de maintenir un vide : à l'injection et à l'extraction pour des débits respectifs de  $330 \text{ L}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $500 \text{ L}\cdot\text{s}^{-1}$ . Le vide atteint dans la chambre à plasma est d'environ  $10^{-7}$  mbar.

Cette source a fourni plusieurs milliers d'heures de faisceau sur cible pendant les années 1990. En 1997, le système d'alimentation en gaz de la source a été modifié pour améliorer la stabilité de l'intensité des faisceaux délivrés [Koi97a]. En 2002, la configuration des champs magnétiques axiaux et radiaux a été optimisée [Koi03]. Ces modifications ont permis d'améliorer l'intensité en sortie de cyclotron de plusieurs facteurs selon la nature du faisceau (jusqu'à 50 pour un faisceau de  $\text{O}^{7+}$ ). En 2005, les forces des champs magnétiques radiaux ont été augmentées [Suo06].

Cette source est régulièrement utilisée pour des développements liés aux sources et pour les expériences requérant une faible intensité. Elle dispose d'un panel de capteurs et de logiciels permettant de balayer les différents rapports masse sur charge. L'utilisateur obtient ainsi un spectre de l'intensité en sortie de source en fonction de ce rapport. Cette possibilité autorise de tester un composé en vue de trouver un point de fonctionnement et un état de charge optimal.

### 7.7.3 ECRIS2

L'ECRIS2 a été construite en 2001 [Koi01] pour répondre à la demande de faisceaux plus intenses pour réaliser de nouvelles expériences impossibles auparavant. Son design est basé sur la source AECR-U du LBNL de l'Université de Californie [Xie97, Xie98]. Il s'agit de la source utilisée lors de mon expérience de thèse.

Sa structure est présentée sur la Figure 7.23. Elle exploite un transmetteur micro-onde d'une fréquence d'opération de 14.1 GHz, pour une puissance maximale de 1000 W. Le diamètre et la longueur de la chambre de plasma sont respectivement de 7.7 et 30 cm pour un volume de 1.3 litre. Sa fréquence plus importante et son volume réduit permettent à ECRIS2 d'avoir une densité de plasma plus importante qu'ECRIS1. Ainsi, les intensités de faisceaux obtenues sont plus élevées pour cette seconde source.

Le système d'extraction est composé de trois électrodes et a été conçu pour un voltage maximal de 30 kV. Trois pompes permettent de maintenir un vide : à l'injection, dans la chambre à plasma et à l'extraction pour des débits respectifs de  $60 \text{ L}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $240 \text{ L}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $500 \text{ L}\cdot\text{s}^{-1}$ . Le vide atteint dans la chambre à plasma est d'environ  $3 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$ .

Cette source permet d'obtenir une multitude de faisceaux allant du bore au krypton et des états de charges allant de  $3^+$  à  $17^+$ . Ainsi, par exemple, des faisceaux en sortie de source de  $145 \mu\text{A}$  de  $\text{O}^{7+}$  et de  $115 \mu\text{A}$  de  $\text{Fe}^{11+}$  ont été obtenus. Les intensités de certains faisceaux comme le  $\text{Kr}^{17+}$  ont été multipliées par un facteur 50 par rapport à celle obtenue

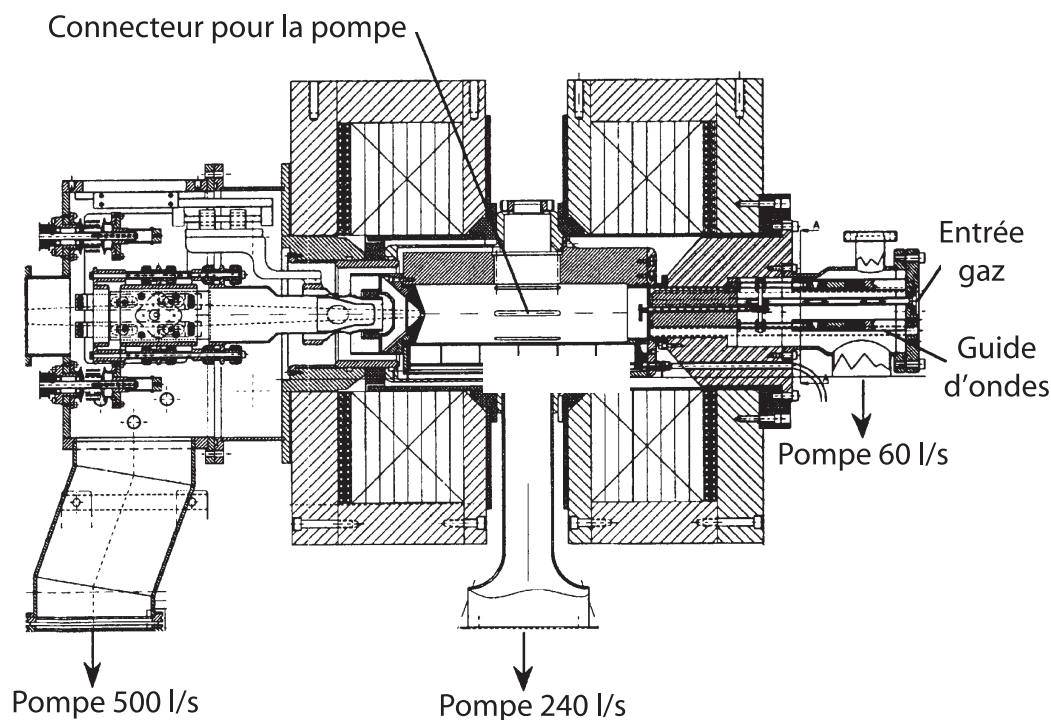


Figure 7.23: Dessin en coupe de la chambre de la source ECRIS2 de fréquence 14.1 GHz (d'après [Koi01]).

*Cross section diagram of the 14.1 GHz ECRIS2 chamber (from [Koi01]).*

avec ECRIS1 6.4 GHz.

Au courant 2012 (après l'étude spectroscopique du  $^{256}\text{Rf}$ ), l'extraction d'ECRIS2 a été remplacée pour améliorer le rapport de transmission jusqu'au cyclotron [JYF12]. D'après les simulations, l'extraction est capable de supporter un courant total de 3 emA au lieu de 1 emA et de produire un faisceau dont 90% (au lieu de 50%) de l'intensité est comprise dans l'acceptance du cyclotron. Pour des faisceaux-tests de  $\text{Ar}^{8+}$  et de  $\text{Kr}^{16+}$ , l'efficacité de transmission a été quasiment améliorée d'un facteur 2.

## 7.8 Faisceaux de titane intense au JYFL

Grâce aux méthodes de synthèse et de conditionnement de la molécule de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  présentées dans la Section 7.6, des faisceaux d'ions de titane ont été produits à plusieurs reprises au JYFL. Les sources ECRIS1 et ECRIS2 (présentées dans la Section 7.7) ont été utilisées. Les faisceaux obtenus à partir de composés naturels et enrichis sont présentés dans cette section. L'ensemble de ces résultats a donné lieu à une publication [Rub12a].

Tous les résultats discutés ont été mesurés sur des échantillons ayant subi une période de conditionnement. C'est-à-dire qu'un pompage d'au moins une heure a été réalisé sur chacun d'entre eux afin d'extraire un maximum d'impuretés. Des tests ont montré que ce traitement est nécessaire pour diminuer la pollution dans la source et minimiser le temps nécessaire à l'obtention de l'intensité maximale sur source.

### 7.8.1 Faisceau de titane naturel

Suite à la maîtrise du processus de la synthèse et du conditionnement, des tests ont été réalisés avec des échantillons à base de titane naturel sur les sources du JYFL.

Chaque échantillon a été fixé à un système de valve micrométrique spécialement dédié au travail sous contrainte importante de vide. Comme indiqué dans la documentation associée à la valve, son ouverture ne suit pas une loi linéaire en fonction de la graduation de celle-ci. L'ouverture commence à être notable vers une valeur d'environ 700 graduations sur une échelle de 1000.

Des échantillons ont été testés sur ECRIS2. L'intensité du faisceau produite a été mesurée par une cage de Faraday en sortie de source. L'ouverture de la valve micrométrique a été modifiée itérativement pour trouver le point de fonctionnement optimal. La Figure 7.24 présente les premiers résultats obtenus avec un échantillon de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  synthétisé à Strasbourg. On y observe l'intensité en fonction de l'ouverture de la valve. Le maximum est atteint pour une ouverture à la graduation 780. L'intensité a été optimisée en modifiant la puissance micro-onde pour atteindre une valeur mesurée de 13.5  $\mu\text{A}$ .

Si l'ouverture de la valve est trop importante, l'intensité du faisceau diminue rapidement. En effet, si une trop grande quantité de molécules d'intérêt atteignent le plasma, ce dernier sature. En particulier, on observe que la pression induite par les atomes de carbone augmente très rapidement passé un certain niveau d'ouverture de la valve (voir la Figure 7.24). Ces atomes limitent l'efficacité de la source. Plus l'ouverture est importante, plus la proportion de molécules ne contribuant pas au faisceau augmente. Il faut donc veiller lors des expériences à

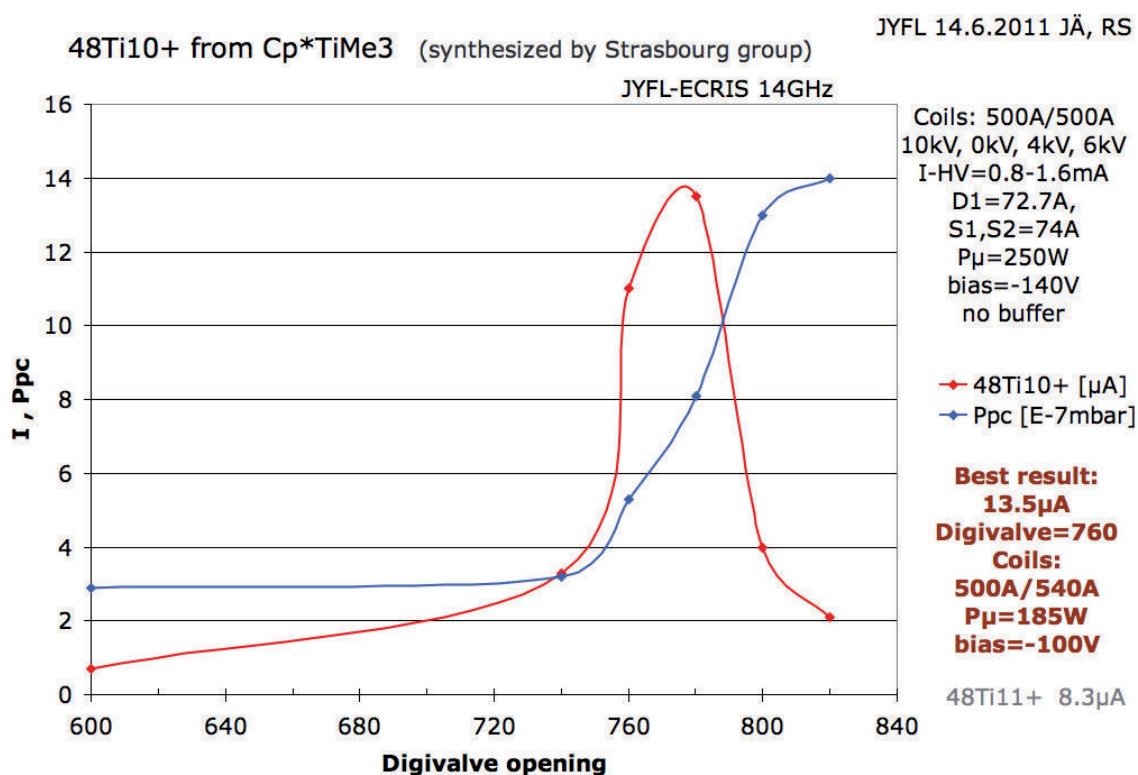


Figure 7.24: Evolution de l'intensité du faisceau de  $^{48}\text{Ti}^{10+}$  à la sortie d'ECRIS2 en fonction de l'ouverture de la valve micrométrique [Arj13]. La pression induite par les atomes de carbone est tracée en bleu.

*Evolution of the  $^{48}\text{Ti}^{10+}$  beam intensity out of ECRIS2 as a function of the digivalve opening [Arj13]. The induced pressure from the carbon atoms is plotted in blue.*

choisir une ouverture qui optimise l'efficacité d'utilisation du composé de titane.

Lors de cette phase de test, il n'était pas possible d'amener le faisceau jusqu'à la cible située dans la salle expérimentale. Pour estimer l'intensité sur cible, on doit tenir compte de deux facteurs. Premièrement, le rapport de transmission sur l'intégralité de la ligne de faisceau est d'environ 2.5%. Deuxièmement, le rapport entre la proportion de  $^{50}\text{Ti}$  dans le composé enrichi et celle de  $^{48}\text{Ti}$  dans le composé naturel est environ de 1.24. On a ainsi pu estimer que l'intensité du faisceau sur cible serait d'environ 40 pA pour un état de charge de  $10^+$ . Cette valeur était amplement suffisante pour donner le feu vert à la réalisation de l'expérience spectroscopique.

Après ce test concluant réalisé en juin 2011, un échantillon identique a été testé sur la source ECRIS1. Les différents états de charge accessibles ont été analysés. L'intensité maximale obtenue, après optimisation, pour chacun d'entre eux a été mesurée en sortie de source par une cage de Faraday. Les résultats sont répertoriés dans le Tableau 7.9. Aucune valeur n'est donnée si l'état de charge se chevauche trop fortement avec un contaminant ou est hors du domaine d'étude. C'était la première fois que cette source délivrait un faisceau d'ions de titane. C'était très prometteur !

La valeur maximale est de 1.7  $\mu\text{A}$  pour un état de charge de  $^{48}\text{Ti}^{10+}$ . Comme attendu,

Etat de charge du $^{48}\text{Ti}$	5 <sup>+</sup>	6 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	9 <sup>+</sup>	10 <sup>+</sup>	11 <sup>+</sup>	12 <sup>+</sup>
Intensité ( $\mu\text{A}$ )	0.24	-	2.0	-	-	1.7	0.6	-

Tableau 7.9: Distribution en intensité (en  $\mu\text{A}$ ) issue des mesures effectuées avec la cage de Faraday en sortie d'ECRIS1 pour un faisceau d'ions de  $^{48}\text{Ti}$ . Aucune indication (-) n'est donnée si l'état de charge se chevauche trop fortement avec un contaminant ou est hors du domaine d'étude. On peut noter que le  $^{48}\text{Ti}^{7+}$  est couvert partiellement par le  $\text{N}_2$  [Arj13].

*Intensity distribution (in  $\mu\text{A}$ ) out of ECRIS1 analysing Faraday-cup for a  $^{48}\text{Ti}$  ion beam. No indication (-) is given when the charge state overlaps too strongly with a contaminant or is out of the study range. One can note that  $^{48}\text{Ti}^{7+}$  is partially covered by  $\text{N}_2$  [Arj13].*

ce chiffre est faible comparé au maximum atteint avec ECRIS2. La source ECRIS1 ne permettrait pas d'obtenir un faisceau suffisamment intense. En effet, elle n'est pas optimisée pour des états de charge aussi élevés. Elle n'a donc pas été utilisée pour produire le faisceau lors de mon expérience de thèse.

L'évolution de l'intensité en fonction de la pression dans la source a été étudiée dans ECRIS1. Le résultat est présenté sur la Figure 7.25. Il montre que la meilleure pression opérationnelle pour un faisceau de titane MIVOC, sans l'ajout de gaz de mélange (*buffer gas*), est de  $4.4 \cdot 10^{-7}$  mbar. Il est intéressant de noter qu'il s'agit également du point d'opération d'ECRIS2. Lors d'une expérience, il est nécessaire d'optimiser les réglages pour atteindre une pression proche de cette valeur. On observe également un maximum local à  $6.5 \cdot 10^{-7}$  mbar qui n'est pas expliqué. On observe également un plateau qui diminue rapidement à environ  $12 \cdot 10^{-7}$  mbar, ce qui semble montrer qu'à cette pression la chambre est saturée par des polluants tel que le carbone. Cette valeur semble cohérente avec la variation de la pression présentée sur la Figure 7.24.

A la suite de ces résultats, d'autres tests ont été réalisés en source afin de les confirmer. Les résultats obtenus avec le produit enrichi sont discutés dans la sous-section suivante.

## 7.8.2 Faisceau de titane enrichi

Suite aux résultats prometteurs obtenus avec un composé naturel, les méthodologies optimales ont été appliquées pour produire un faisceau de  $^{50}\text{Ti}$ . En août 2011, deux échantillons de tétrachlorure de titane correspondant à 750 et 500 mg de titane ont été reçus à l'IPHC. Plusieurs synthèses ont été réalisées à partir de ceux-ci afin d'avoir suffisamment de composés pour produire un faisceau isotopique au JYFL sur plusieurs semaines. Les échantillons ont été testés sur spectromètre de masse avant d'être utilisés pour réaliser l'étude spectroscopique du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  (voir la Partie II).

Un spectre de masse d'un de ces échantillons a été réalisé au JYFL (voir la Figure 7.26). Il possède un bruit de fond très faible. La signature est identique à celle d'un composé naturel excepté que les pics correspondants à l'atome (Ti) ou à un fragment de la molécule ( $\text{TiCH}_3$ ,  $\text{Cp}^*\text{Ti}$  et  $\text{Cp}^*\text{TiCH}_3$ ) sont décalés de deux unités de masse (du  $^{48}\text{Ti}$  au  $^{50}\text{Ti}$ ). La contribution majeure observable provient du pic de  $\text{Cp}^*\text{Ti}$ . A la limite du domaine d'étude, on observe un pic correspondant au  $\text{Cp}^*\text{TiCH}_3$  à la masse 200 uma. Ce spectre a confirmé que le bon

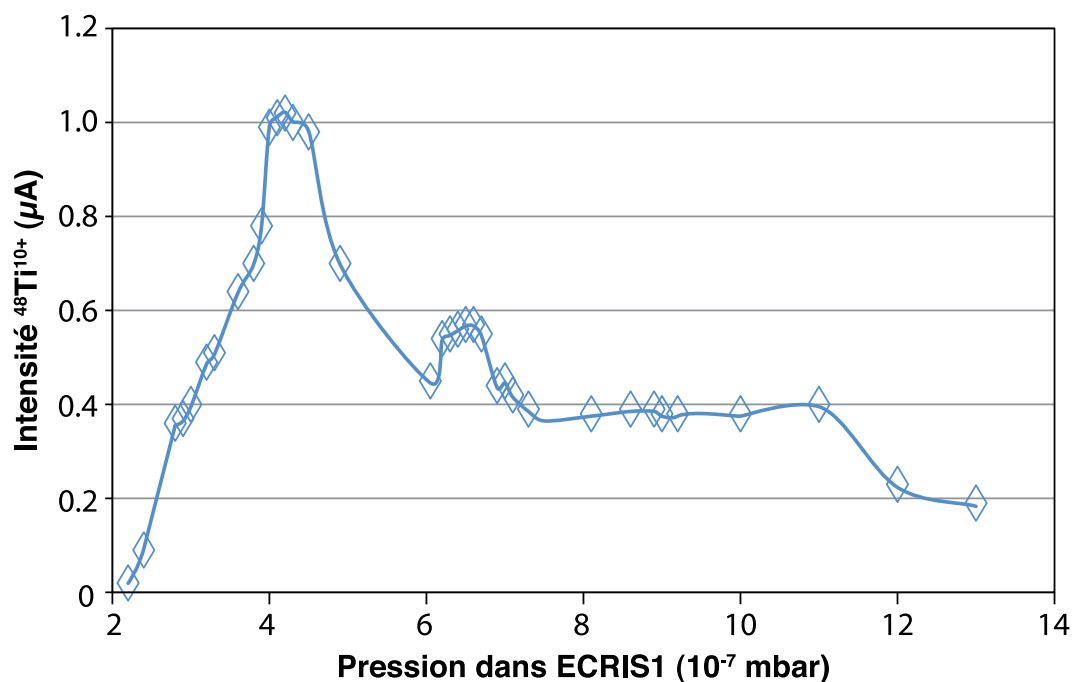


Figure 7.25: Evolution de l'intensité du faisceau de  $^{48}\text{Ti}^{10+}$  en fonction de la pression dans ECRIS1 [Arj13].

*Evolution of the  $^{48}\text{Ti}^{10+}$  beam intensity as a function of ECRIS1 pressure [Arj13].*

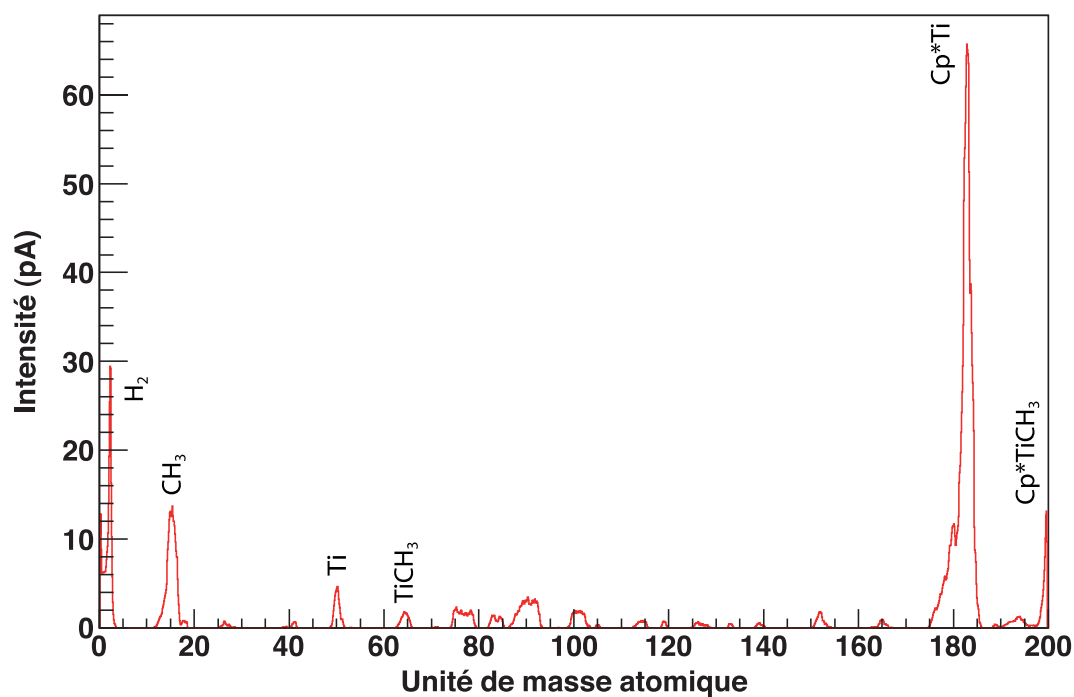


Figure 7.26: Spectre de masse du composé de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  enrichi à 92% en  $^{50}\text{Ti}$ .

*Mass spectrum of the  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  compound enriched at 92% in  $^{50}\text{Ti}$ .*

composé a été synthétisé. Aucune photographie du composé n'a été prise pour ne pas risquer sa détérioration par la lumière.

### 7.8.2.1 Résultats avec ECRIS1

En premier lieu, le composé enrichi a été testé sur ECRIS1. Après une heure de conditionnement, les intensités en sortie de source ont été analysées.

Une gamme d'états de charge allant de  $5^+$  à  $12^+$  a pu être étudiée avec cette source. Les intensités maximales obtenues pour chaque état de charge sont référencées dans le Tableau 7.10. Si la contribution d'un état de charge de l'atome d'intérêt en chevauche une correspondante à l'état de charge d'un atome de carbone, d'azote, d'oxygène ou d'argon, les valeurs ne sont pas renseignées.

La source ECRIS1 permet de mesurer l'intensité des différents faisceaux et états de charge en fonction de leur rapport masse sur charge. Une plage de ce dernier peut être balayée en modifiant le courant de l'aimant d'analyse situé en sortie de source. Le spectre obtenu constitue la Figure 7.27. Les résultats provenant de l'analyse de l'échantillon de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  et du bruit de fond sont superposés. Ceux-ci permettent d'étudier l'effet des contributions provenant du bruit de fond. Ainsi, certains états de charge du titane ne sont pas utilisables pour produire un faisceau car ils possèdent le même rapport masse sur charge qu'un élément

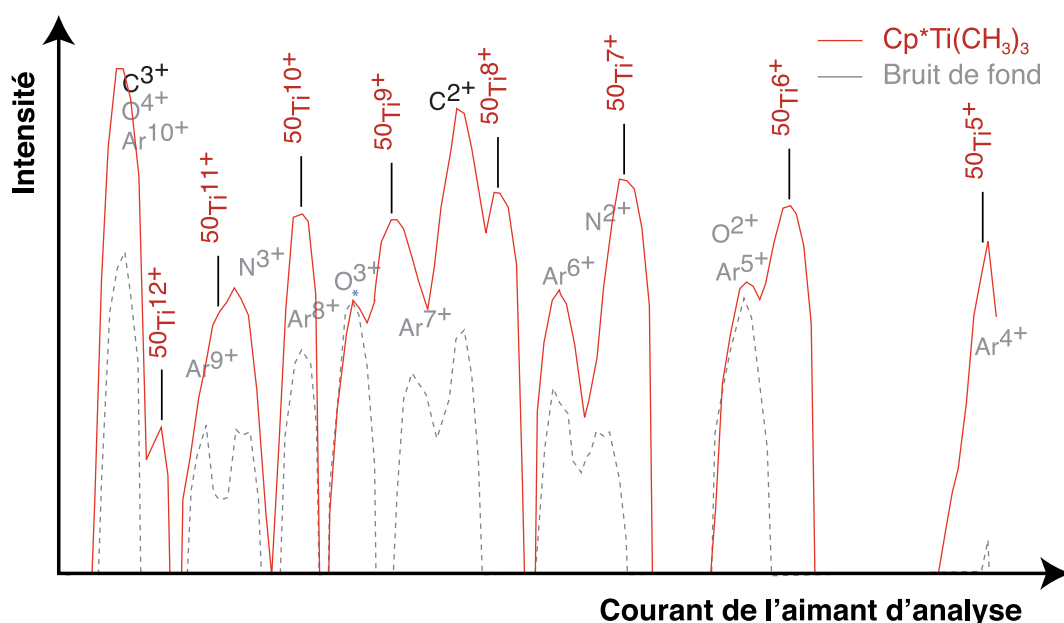


Figure 7.27: Spectre de ECRIS1 obtenu avec un échantillon de  $^{50}\text{Ti}$ . L'intensité est affichée en échelle logarithmique. Elle est réglée pour les spectres du composé organométallique (ligne pleine rouge) et du bruit de fond (ligne pointillée grise) de telle façon à avoir une intensité similaire pour le pic de  $\text{O}^{3+}$  et le composé.

*ECRIS1 spectrum obtained with a  $^{50}\text{Ti}$  sample. Intensity displayed in log scale is set for both organometallic titanium compound (red full line) and background (grey dotted line) spectra in order to have the same peak height for the  $\text{O}^{3+}$  peak and the compound one.*



du bruit de fond. Par exemple, le  $^{50}\text{Ti}^{10+}$  et le  $^{40}\text{Ar}^{8+}$  partagent un rapport  $A/q = 5$ . Ainsi, contrairement au cas de la production d'un faisceau de  $^{48}\text{Ti}$ , l'état de charge  $10^+$  ne peut pas être exploité. Les états de charge  $9^+$  et  $11^+$  sont eux moins pollués.

Après optimisation, le faisceau le plus intense obtenu avec ECRIS1 était un faisceau de  $^{50}\text{Ti}^{9+}$  d'une intensité de  $3.3 \mu\text{A}$ . Cette valeur est trop faible pour obtenir une intensité suffisante sur cible pour l'étude du  $^{256}\text{Rf}$ . Comme planifié, le faisceau a été produit avec ECRIS2.

Etat de charge de $^{50}\text{Ti}$	$5^+$	$6^+$	$7^+$	$8^+$	$9^+$	$10^+$	$11^+$	$12^+$
Intensité ( $\mu\text{A}$ )	-	0.85	0.9	2.3	3.3	-	1.6	0.85

Tableau 7.10: Distribution en intensité (en  $\mu\text{A}$ ) issue des mesures effectuées avec la cage de Faraday de ECRIS1 pour un faisceau de  $^{50}\text{Ti}$ . Aucune valeur (-) n'est donnée si l'état de charge se chevauche trop fortement avec un contaminant ou est hors du domaine d'étude.

*Intensity distribution (in  $\mu\text{A}$ ) on the ECRIS1 analysing Faraday-cup for a  $^{50}\text{Ti}$  beam. No indication (-) is given when the charge state overlaps too strongly with a contaminant or is out of the study range.*

### 7.8.2.2 Résultats avec ECRIS2

Pour synthétiser des résidus d'évaporation de  $^{256}\text{Rf}$ , un faisceau d'ions  $^{50}\text{Ti}^{11+}$  produit dans ECRIS2 a été accéléré pendant un total de 25 jours. L'énergie cinétique de chaque ion était amenée à 242 MeV par le cyclotron K130.

Lorsqu'il était connecté sur ECRIS2, le flux de composé de titane évaporé a été limité par réglage de la valve digitale. Lors de la dernière semaine de l'expérience, elle a été réglée à  $209 \text{ mbar}\cdot\text{L}\cdot\text{s}^{-1}$ . Le composé était maintenu à une température constante de  $25^\circ\text{C}$  soit un peu au-dessus de la température légèrement fluctuante de la salle. Cela assure la diffusion stable du composé dans la source ECRIS2.

Après une période de conditionnement, la pression dans la source était comprise entre 4.0 et  $5.0 \cdot 10^{-7}$  mbar. La valeur opérationnelle sur le long terme était d'environ  $4.1 \cdot 10^{-7}$  mbar. Cette pression correspond à la conclusion réalisée sur ECRIS1 à partir de la Figure 7.25. Cette valeur est similaire à celle publiée dans [Koi02]. Un flux constant était assuré tant que la quantité de composé était au-dessus de quelques dizaines de milligrammes. Aucun gaz de mélange (*buffer gas*) n'a été utilisé.

Un cycle d'opération stable a été observé durant cette période avec une intensité de faisceau constante jusqu'à ce que l'échantillon soit consommé. A partir de ce moment-là, l'intensité du faisceau décroît fortement à un niveau très faible. Ce phénomène s'observe en quelques heures.

Au fur et à mesure des échantillons utilisés durant l'expérience, de meilleurs protocoles expérimentaux et conditionnements ont été effectués. La source a été nettoyée entre la deuxième et troisième semaine de l'étude spectroscopique. Cela a permis d'atteindre une intensité deux fois plus élevée pour le dernier échantillon.

Dans ces conditions, cet échantillon de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  de 576 mg a duré plus de 7 jours.

L'intensité a été mesurée à 15.5  $\mu\text{A}$  en sortie de source par un cage de Faraday lorsque l'optique du faisceau était focalisée sur la cible. La transmission de l'ensemble de la ligne du faisceau est environ de 3%. L'intensité mesurée au niveau de la cible a atteint 45 pA (soit 490 eA). Cette valeur était proche de l'intensité limite que peuvent gérer les cartes digitales Lyrtech instrumentant les détecteurs de JUROGAM II au niveau de la cible.

La consommation de composé de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  était d'environ  $2.9 \text{ mg}\cdot\text{h}^{-1}$ . Cela correspond à une consommation de  $0.63 \text{ mg}\cdot\text{h}^{-1}$  en terme d'atomes de titane. Cette valeur est faible mais elle reste relativement élevée comparée à celle de  $0.06 \text{ mg}\cdot\text{h}^{-1}$  obtenue avec du *buffer gas* [Koi02]. Il restait donc une grande marge d'amélioration potentielle.

Ce résultat est comparable avec la consommation de  $0.70 \text{ mg}\cdot\text{h}^{-1}$  enregistrée pour un faisceau de  $^{50}\text{Ti}^{12+}$  d'une intensité de  $5.5 \mu\text{A}$  en sortie de source obtenue avec un four à induction au ANL [Von07]. Toutefois, l'intensité obtenue ici avec la méthode MIVOC est trois fois plus élevée.

Au total, la cible a été bombardée durant 450 heures par un faisceau de  $^{50}\text{Ti}^{11+}$ . L'intensité moyenne de ce faisceau sur cette période était de 28.8 pA. La dose totale d'ions de titane isotopique projetés était de  $2.9 \cdot 10^{17}$ .

A la fin de l'étude du  $^{256}\text{Rf}$ , du temps a été dédié à l'optimisation du faisceau de  $^{50}\text{Ti}$ . Les intensités mesurées avec le faisceau spécifiquement focalisé sur la cage de Faraday d'analyse d'ECRIS2 sont présentées dans le Tableau 7.11. Une valeur optimale de  $19.4 \mu\text{A}$  a ainsi été atteinte avec un faisceau de  $^{50}\text{Ti}^{11+}$ , soit 12 fois plus qu'avec ECRIS1.

Etat de charge de $^{50}\text{Ti}$	5 <sup>+</sup>	6 <sup>+</sup>	7 <sup>+</sup>	8 <sup>+</sup>	9 <sup>+</sup>	10 <sup>+</sup>	11 <sup>+</sup>	12 <sup>+</sup>	13 <sup>+</sup>	14 <sup>+</sup>
Intensité ( $\mu\text{A}$ )	1.0	3.5	7.1	10.8	14.9	16.8	19.4	14.8	4.3	0.7

Tableau 7.11: Distribution en intensité (en  $\mu\text{A}$ ) issue des mesures effectuées avec la cage de Faraday de ECRIS2 pour un faisceau d'ions de  $^{50}\text{Ti}$ .

*Intensity distribution (in  $\mu\text{A}$ ) on the ECRIS2 analysing Faraday-cup for a  $^{50}\text{Ti}$  ion beam.*

Ces résultats ont mené à une publication [Rub12a] et un rapport interne confidentiel à l'IPHC. L'objectif premier de ce développement était de réaliser l'étude spectroscopique du noyau de  $^{256}\text{Rf}$ . Cette dernière est présentée dans la Partie II. Après mon expérience de thèse, des faisceaux de titane naturel plus intenses ont été obtenus en sortie de source dans trois laboratoires internationaux : au JYFL, au GANIL et au FLNR. Des expériences utilisant un faisceau de  $^{50}\text{Ti}$  y sont prévues fin 2013. Elles seront évoquées dans les perspectives de cette thèse.



# Conclusions et perspectives

Réalisée un siècle après la découverte du noyau atomique par E. Rutherford, l'étude par spectroscopies prompt et retardé du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  au JYFL en 2011 a permis d'obtenir des informations détaillées sur sa structure. Elle a en outre mené à la première spectroscopie de rayonnements  $\gamma$  prompts d'un isotope d'un élément superlourd. Ces travaux ont été réalisés grâce à une collaboration étroite entre le JYFL et l'IPHC. Très importants dans le domaine, les résultats obtenus marquent à la fois la conclusion d'un long travail réparti sur trois thèses successives à l'IPHC (F. Khalfallah, J. Piot et ce travail) ainsi qu'une ouverture vers de multiples possibilités d'études à court et à long termes.

L'analyse par technique de Recoil-Fission Tagging de mon expérience de thèse a mis en exergue 2210 événements correspondants à des noyaux de  $^{256}\text{Rf}$ . Son temps de demi-vie de fission a été mesuré à 6.9 ms et sa section efficace de production à 16.7 nb. A partir de cet ensemble de noyaux, un spectre de rayonnements  $\gamma$  prompts a été mis en évidence pour la première fois. Huit transitions régulièrement espacées y sont observées : il s'agit de la bande de rotation basée sur l'état fondamental du noyau, une première mondiale pour un noyau superlourd. Cette structure est observée jusqu'à un spin de  $20 \hbar$ . Une comparaison des moments d'inertie cinématique et dynamique obtenus avec ceux d'autres noyaux pair-pairs de la région a été réalisée. Cela suggère fortement l'influence de gaps déformés importants à  $Z = 100$  et  $N = 152$  ainsi qu'il n'y ait pas de gap significatif à  $Z = 104$ .

Grâce à une étude par spectroscopie retardée, une recherche d'états isomériques de haut- $K$  a également été réalisée sur les noyaux d'intérêt. Trois états isomériques en cascade ont été mis en évidence grâce aux signaux d'électrons situés entre l'implantation et la fission des noyaux. Leurs temps de demi-vie ont été mesurés à 23, 18 et 27  $\mu\text{s}$  en partant de l'état de plus basse énergie d'excitation. Cette analyse confirme des résultats antérieurs à ma thèse. Un rapport de peuplement des états isomériques total de 30 à 40% a été estimé pour les noyaux de  $^{256}\text{Rf}$ . Une transition de 900 keV a été observée en coïncidence avec ces états isomériques. Observée pour la première fois, un potentiel pic à 683 keV, présentant une faible statistique, est également discuté dans le cadre de la décroissance des états isomériques. Des photopics  $\gamma$  ont été associés aux états isomériques par techniques de spectroscopies prompt et retardée. Des simulations et des calculs théoriques ont été réalisés puis confrontés avec les résultats expérimentaux afin d'assigner les trois états isomériques observés. Il est proposé qu'il s'agisse, en partant de l'état de plus basse énergie d'excitation, d'un état 2-qp  $K^\pi = 5^-$  placé à 1048 keV, d'un état 2-qp  $K^\pi = 8^-$  à environ 1350 keV et d'un état 4-qp à environ 2.2 MeV. Cependant, la statistique, insuffisante pour pouvoir conclure fermement, met en exergue la nécessité pour ce noyau d'une expérience dédiée et optimisée pour la recherche d'états isomériques. Cette perspective est discutée ci-après.

La spectroscopie de ce noyau superlourd a été rendue possible grâce à plusieurs développements techniques réalisés à l'IPHC et au JYFL. Nécessaires à cette étude, ces derniers ont donné naissance entre autres à un système de détection plus efficace, à un mécanisme de cible rotative et à l'avènement de l'électronique digitale pour ce type d'étude. Le développement d'un faisceau intense isotopique de  $^{50}\text{Ti}$  était primordial pour la production du

noyau d'intérêt. Le premier faisceau de ce type a été obtenu lors de cette thèse grâce à la méthode MIVOC. En me basant sur les résultats antérieurs à ma thèse, j'ai testé et comparé plusieurs composés candidats MIVOC. Parmi eux, deux molécules ont été étudiées en détails pour mettre en évidence leurs caractéristiques, des méthodes de conservation sur le long terme et d'utilisation sous source. C'est le composé de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  qui a finalement été utilisé pour obtenir un faisceau de titane naturel puis isotopique. Une intensité maximale de 19  $\mu\text{A}$  d'ions de  $^{50}\text{Ti}^{11+}$ , soit 490 enA sur cible, a été atteinte durant mon expérience de thèse.

Suite aux résultats présentés dans ma thèse et aux avancées dans le domaine, de nombreuses perspectives s'ouvrent à la communauté. Certaines d'entre elles sont discutées ci-après.

En terme d'étude en faisceauologie, des consolidations des connaissances sur la molécule de  $\text{Cp}^*\text{Ti}(\text{CH}_3)_3$  sont en cours depuis mon expérience de thèse. La possibilité d'utiliser celle de  $\text{Cp}_2\text{Ti}(\text{CH}_3)_2$  en travaillant le mode opératoire est envisagée. J'ai également réalisé une bibliographie en vue de mettre en évidence une méthode pour transformer de l'oxyde de titane en tétrachlorure de titane : la méthode de carbochloration. Elle permettrait de recycler le titane enrichi qui n'a pas irradié la cible. Une installation dédiée est en train d'être mise en place à l'IPHC.

Après mon expérience de thèse, le faisceau de titane a été testé sous forme naturelle dans plusieurs laboratoires internationaux. Des intensités respectives de 28  $\mu\text{A}$  [Lem11, Jar12] et de 67  $\mu\text{A}$  ont été obtenues en sortie de source au GANIL (Caen, France) et au FLNR (Dubna, Russie) ; ces valeurs sont très prometteuses. D'autres études ont été réalisées au niveau de la source au JYFL. Un point de fonctionnement à plus haute intensité ainsi qu'une consommation plus basse ont été mis en évidence. D'autres tests sont prévus dans un futur proche auprès de ces différentes installations. L'obtention de ce faisceau dans plusieurs laboratoires ouvre de nombreuses perspectives pour l'étude spectroscopique d'autres noyaux superlourds et pour la production de nouveaux isotopes. Certaines des possibilités envisagées sont détaillées ci-après. On peut également penser à l'utilisation de  $^{50}\text{Ti}$  ou d'autres isotopes de titane, comme celui riche en protons de  $^{46}\text{Ti}$ , pour produire des noyaux dans d'autres régions de masse.

Le développement du faisceau de  $^{50}\text{Ti}$  a permis de mettre en place des compétences pluridisciplinaires fortes dans ce domaine à l'IPHC. Il est prévu de les utiliser pour produire d'autres faisceaux intenses isotopiques. Pour synthétiser des noyaux encore plus lourds, l'étape suivante serait un faisceau de  $^{54}\text{Cr}$  ( $Z = 24$ ) pour lequel j'ai pu réaliser des tests préliminaires. Un faisceau de vanadium ( $Z = 23$ ) est également envisagé. Des réflexions sur la possibilité de produire un faisceau de  $^{48}\text{Ca}$  en utilisant la méthode MIVOC sont en cours. Les différents tests nécessaires à ces développements pourraient bénéficier de la disponibilité récente d'un spectromètre de masse dédié à l'IPHC.

A la suite de la spectroscopie  $\gamma$  prompt de  $^{256}\text{Rf}$ , une question naturelle s'imposait : est-il possible de réaliser une étude similaire d'un autre noyau superlourd avec le dispositif actuel du JYFL ? Après une recherche bibliographique et des estimations de nombres de noyaux produits de  $Z = 104$  à  $Z = 107$ , j'ai mis en avant qu'il est potentiellement possible de réaliser ce type d'étude sur le noyau de  $^{257}\text{Rf}$ . Cependant, la section efficace de production de ce dernier varie dans la littérature de 10 à 40 nb (voir [Hes97, Pat02, Drag08, Berr10, Berr11]). Fin 2012, j'ai donc proposé de tester la faisabilité de la spectroscopie prompt de ce noyau en mesurant plusieurs points de sa fonction d'excitation lors d'une expérience-test de 4 jours au

PAC de JYFL [Rub12b]. Cette dernière a été acceptée en étant considérée comme “stratégique pour le laboratoire” et est prévue pour l’année 2013. Cette expérience sera également l’occasion de tester le faisceau de  $^{50}\text{Ti}$  une fois les travaux en cours sur la ligne du faisceau terminés (comme, par exemple, la récente amélioration de l’injection de la source ECRIS2 [JYF12]). Une expérience plus longue pourrait être envisagée si la faisabilité est prouvée.

Nous avons envisagé la possibilité d’étudier le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  par spectroscopie simultanée  $\gamma$  et électron prompt avec le multidétecteur SAGE [Pap09, Pap10, Pap11, Pap12] au JYFL. J’ai estimé la probabilité d’observer les électrons de conversion interne des deux premières transitions de la bande de rotation et les états au-dessus des états isomériques en 2 à 3 semaines d’expérience. Etant donné que l’intensité du faisceau doit être actuellement limitée à environ 15 pA avec SAGE en place, il serait très difficile d’observer la transition de 104 keV. La transition de 44 keV convertie ne peut pas être observée à cause de la barrière haute-tension qui impose un seuil en énergie. De plus, les transitions au-dessus des états isomériques sont trop peu peuplées pour espérer les observer avec une statistique satisfaisante. Cette expérience n’est pas envisageable actuellement mais devra être reconsidérée dès qu’une amélioration de mesure de transitions de basse énergie sera réalisée avec SAGE. Pour pouvoir accéder aux transitions de faible énergie à plus court terme, il faudrait les étudier par spectroscopie retardée.

Les isotopes des éléments plus lourds que celui de rutherfordium possèdent des sections efficaces plus faibles que la limite d’observation de 10 nb reconnue pour JUROGAM II couplé à RITU et GREAT. Il n’est donc pas possible de les étudier par spectroscopie prompte actuellement. Cependant, il est envisagé de descendre cette limite aux environs du nanobarn en optimisant les intensités de faisceau et l’électronique, et en bénéficiant de l’efficacité de détection d’un spectromètre  $\gamma$  de dernière génération tel que AGATA [Akk12]. L’étude du noyau de  $^{257}\text{Db}$  ( $Z = 105$ ) serait alors envisageable avec cette technique.

Plusieurs possibilités sont envisageables en terme de spectroscopie retardée, en particulier avec l’apport du faisceau de titane.

La spectroscopie retardée du noyau de  $^{257}\text{Db}$  ( $Z = 105$ ) a été proposée au PAC du GANIL en octobre 2012 par J. Piot [Pio12b]. Elle a été acceptée avec une haute priorité. Ce noyau est situé sur la systématique  $N = 152$  comme celui de  $^{256}\text{Rf}$  et l’étude de son isomérisme pourrait apporter des informations intéressantes dans la région. Cette expérience sera également la première à utiliser un faisceau de titane isotopique au GANIL. Elle utilisera le séparateur LISE [Ann92] pour trois semaines d’expérience lors du mois d’octobre 2013.

Au FLNR à Dubna, le séparateur VASSILISSA a été modernisé, grâce à l’apport de l’ANR SHELS [SHE06], afin d’augmenter son rapport de transmission. J’ai participé à son commissioning qui s’est déroulé en mai et en juillet 2013. Il a été vu dans cette thèse qu’une étude des états isomériques dans le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  avec plus de statistique était nécessaire. Une campagne d’expériences, auquel je participerais, se déroula en octobre-novembre 2013 afin d’étudier l’isomérisme dans ce noyau et celui de  $^{257}\text{Rf}$ . Le système de détection au plan focal GABRIELA a été utilisé [Hau06]. Cette expérience sera la première à utiliser un faisceau de titane isotopique au FLNR. D’autres expériences similaires sur des noyaux de la région seront réalisées dans les années suivantes. Elles pourront bénéficier de l’apport d’un nouveau détecteur germanium de type trèfle de haute efficacité financé par l’ANR CLODETTE [CLO12].

L'élément le plus lourd jamais synthétisé, avec 118 protons, a été mis en évidence au FLNR. Grâce au faisceau de  $^{50}\text{Ti}$ , il est envisagé de tenter de synthétiser l'élément  $Z = 120$  dans ce laboratoire. Ceci est en discussion et dépend de plusieurs critères tels que l'intensité maximale du faisceau qu'il est possible d'obtenir. L'expérience se réalisera certainement avec la nouvelle installation dédiée à la production des noyaux les plus lourds, nommée "SHE Factory" [Oga13b], dont la construction a démarré au FLNR. Par la suite, il pourrait être intéressant d'envisager la synthèse de l'élément  $Z = 119$  qui pourrait également être formé grâce au faisceau de  $^{50}\text{Ti}$ .

A plus long terme, il est nécessaire de réfléchir au futur de l'étude des noyaux superlourds par spectroscopie. Nous avons vu que la technique de spectroscopie prompt est limitée pour ces derniers, principalement à cause de l'électronique d'acquisition. Cependant, il est envisageable de pouvoir étudier l'isomérisme de noyaux plus lourds dans les prochaines années. Grâce aux performances de dispositifs de nouvelles générations tels que le séparateur  $S^3$  [Dro10, Dec12], et sa détection au plan focal SIRIUS [Gal11], couplé avec un faisceau de très haute intensité délivré par SPIRAL2 [SPI00] au GANIL, il est prévu de pouvoir accéder à l'étude de l'isomérisme des isotopes de la région  $Z = 106-110$ . De nombreuses informations sur les orbitales mises en jeu pourraient ainsi être obtenues.

Ce travail de thèse a permis de faire un pas supplémentaire significatif vers l'îlot de stabilité superlourd. Cependant, il reste encore beaucoup de choses à découvrir dans cette région et la route semble encore longue. De nombreuses perspectives prometteuses vont s'ouvrir dans les prochaines années et vont permettre de continuer l'exploration de cette région. Cela démontre que ce domaine d'étude a encore un bien bel avenir devant lui.

# Bibliographie

- [Afa03] A.V. Afanasjev, T.L. Khoo, S. Frauendorf, G.A. Lalazissis and I. Ahmad. “Cranked relativistic Hartree-Bogoliubov theory: Probing the gateway to superheavy nuclei”, *Physical Review C*, **67**, 024309, 2003.
- [Afa11] A.V. Afanasjev, H. Abusara, E. Litvinova and P. Ring. “Spectroscopy of the heaviest nuclei (theory)”, *Journal of Physics: Conference Series*, **312**, 092004, 2011.
- [Ago03] S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrand et al.. “GEANT4—a simulation toolkit”. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **506**, 250-303, 2003.
- [Akk12] S. Akkoyun, A. Algora, B. Alikhani, F. Ameil, G. de Angelis, L. Arnold, A. Astier, A. Ataç, Y. Aubert, C. Aufranc et al.. “AGATA—Advanced GAMMA Tracking Array”. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **668**, 0, 26-58, 2012.
- [AIK09] F. Al-Khudair, G.-L. Long and Y. Sun. “Competition in rotation-alignment between high- $j$  neutrons and protons in transfermium nuclei”, *Physical Review C*, **79**, 034320, 2009.
- [All06] J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce Dubois, M. Asai, G. Barrand, R. Capra, S. Chauvie, R. Chytracsek et al.. “Geant4 developments and applications”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, **53**, 1, 270-278, 2006.
- [And04] A.N. Andreyev, P.A. Butler, R.D. Page, D.E. Appelbe, G.D. Jones, D.T. Joss, R.-D. Herzberg, P.H. Regan, J. Simpson and R. Wadsworth. “GEANT Monte Carlo simulations for the GREAT spectrometer”. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **533**, 422-434, 2004.
- [Ann92] R. Anne and A.C. Mueller. “LISE 3: a magnetic spectrometer—Wien filter combination for secondary radioactive beam production”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **70**, 1-4, 276-285, 1992.
- [Ant86] T.A. Antaya and Z.Q. Xie. “Initial results with a vertical, full iron yoke,  $2 \times 6.4$  GHz ECR source for the NSCL heavy ion cyclotrons”, *Proceedings of the 7<sup>th</sup> International Workshop on ECRIS, Jülich, Germany*, 72-102, 1986.
- [Anta13] S. Antalic, F.P. Heßberger, D. Ackermann, M. Block, S. Heinz, S. Hofmann, Z. Kalaninová, B. Kindler, M. Leino, B. Lommel, R. Mann, K. Nishio, S. Sáro and B. Sulignano. “Nuclear structure of heavy  $N = 153$  isotones”, *Acta Physica Polonica*, **44**, 3, 387-390, 2013.
- [Arj90] J. Ärje, V. Nieminen, J. Choinski and T.A. Antaya. “Status of JYFL-ECRIS at University of Jyväskylä”, *Proceedings of the 10<sup>th</sup> International Workshop on ECR Ion Sources*, CONF-9011136, ORNL, 343-352, 1990.



- [Arj93] J. Ärje, H. Koivisto and M. Nurmiä. "Operation of the JYFL-ECR ion source", *Proceedings of the 11<sup>th</sup> International Workshop on ECR Ion Sources*, KVI Groningen, 1993.
- [Arj13] J. Ärje, B. JP Gall et R. Seppälä. Communication privée, Première mesure de l'intensité en sortie de source d'un faisceau de titane issu d'un composé MIVOC produit à l'IPHC.
- [Arm12] P. Armbruster and G. Münzenberg. "An experimental paradigm opening the world of superheavy elements", *The European Physical Journal H - Historical Perspectives on Contemporary Physics*, **37**, 237-309, 2012.
- [Arn06] 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 Transactions on Nuclear Science*, **53**, 3, 723-728, 2006.
- [Asa11] M. Asai, K. Tsukada, H. Haba, Y. Ishii, T. Ichikawa, A. Toyoshima, T. Ishii, Y. Nagame, I. Nishinaka, Y. Kojima and K. Sueki. "Neutron one-quasiparticle states in  $^{251}\text{Fm}_{151}$  populated via the  $\alpha$  decay of  $^{255}\text{No}$ ", *Physical Review C*, **83**, 014315, 2011.
- [Bac96] B.B. Back, D.J. Blumenthal, C.N. Davids, D.J. Henderson, R.H. Hermann, C.L. Jiang, H.T. Penttilä and A.H. Wuosmaa. "Transport efficiency of the Argonne fragment mass analyzer", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **379**, 206-211, 1996.
- [Bar74] H. Bartsch, K. Huber, U. Kneißl and H. Sattler. "Method for data reduction at energy-lifetime measurements", *Nuclear Instruments and Methods in Physics*, **121**, 185-189, 1974.
- [Bas74] R. Bass. "Fusion of heavy nuclei in a classical model", *Nuclear Physics A*, **231**, 45-63, 1974.
- [Bas77] R. Bass. "Nucleus-nucleus potential deduced from experiment fusion cross sections", *Physical Review Letters*, **39**, 5, 265-268, 1977.
- [Bea92] C.W. Beausang, S.A. Forbes, P. Fallon, P.J. Nolan, P.J. Twin, J.N. Mo, J.C. Lisle, M.A. Bentley, J. Simpson, F.A. Beck, D. Curien, G. de France, G. Duchêne and D. Popescu. "Measurements on prototype Ge and BGO detectors for the Eurogam array", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **313**, 1-2, 37-49, 1992.
- [Beck92] 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  $A = 194$ ", *Physical Review C*, **46**, 3, 889-905, 1992.
- [Becq96] H. Becquerel. "Sur les radiations invisibles émises par les corps phosphorescents", *Comptes-rendus de l'Académie des sciences*, 501-502, 1896.

- [Bel03] A.V. Belozerov, M.L. Chelnokov, V.I. Chepigin, T.P. Drobinina, 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 S. Sáro. "Spontaneous-fission decay properties and production cross-sections for the neutron-deficient nobelium isotopes formed in the  $^{44,48}\text{Ca} + ^{204,206,208}\text{Pb}$  reactions", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **16**, 447-456, 2003.
- [Ben99] M. Bender, K. Rutz, P.-G. Reinhard, J.A. Maruhn and W. Greiner. "Shell structure of superheavy nuclei in self-consistent mean-field models", *Physical Review C*, **60**, 034304, 1999.
- [Ben01] M. Bender, W. Nazarewicz and P.-G. Reinhard. "Shell stabilization of super- and hyperheavy nuclei without magic gaps", *Physical Letters B*, **515**, 42-48, 2001.
- [Ben03a] M. Bender, P. Bonche, T. Duguet and P.-H. Heenen. "Skyrme mean-field study of rotational bands in transfermium isotopes", *Nuclear Physics A*, **723**, 354-364, 2003.
- [Ben03b] M. Bender, P.-H. Heenen and P.-G. Reinhard. "Self-consistent mean-field models for nuclear structure", *Review of Modern Physics*, **75**, 1, 121-180, 2003.
- [Ben13] M. Bender and P.-H. Heenen. "Structure of superheavy nuclei", *Journal of Physics: Conference Series*, **420**, 012002, 2013.
- [Berr10] J.S. Berryman, R.M. Clark, K.E. Gregorich, J.M. Allmond, D.L. Bleue, M. Cromaz, I. Dragojević, J. Dvorak, P.A. Ellison, P. Fallon, M.A. Garcia, S. Gros, I.Y. Lee, A.O. Macchiavelli, S. Paschalis, M. Petri, J. Qian, M.A. Stoyer and M. Wiedeking. "Electromagnetic decays of excited states in  $^{261}\text{Sg}$  ( $Z = 106$ ) and  $^{257}\text{Rf}$  ( $Z = 104$ )", *Physical Review C*, **81**, 064325, 2010.
- [Berr11] J.S. Berryman, R.M. Clark, K.E. Gregorich, J.M. Allmond, D.L. Bleuel, R.J. Cooper, M. Cromaz, M.A. Deleplanque, I. Dragojević, J. Dvorak, P.A. Ellison, P. Fallon, M.A. Garcia, J.M. Gates, S. Gros, O. Gothe, H.B. Jeppesen, D. Kaji, I.Y. Lee, A.O. Macchiavelli, K. Morimoto, H. Nitsche, S. Paschalis, M. Petri, J. Qian, L. Stavsetra, F.S. Stephens, M.A. Stoyer, T.J. Ross, H. Watanabe and M. Wiedeking. "Nuclear spectroscopy of the heaviest elements: studies of  $^{254}\text{No}$ ,  $^{257}\text{Rf}$ , and  $^{261}\text{Sg}$ ", *Physical Review C*, **312**, 092017, 2011.
- [Bert04] C.A. Bertulani and P. Danielewicz. "Introduction to Nuclear Reactions", *Institute of Physics Publishing*, 2004.
- [Boh36] N. Bohr. "Neutron capture and nuclear constitution", *Physical Review*, **137**, 344-348, 1936.
- [Boh39] N. Bohr and J.A. Wheeler. "The mechanism of nuclear fission", *Physical Review*, **56**, 426-450, 1939.
- [Boh41] N. Bohr. "Velocity-range relation for fission fragments", *Physical Review*, **59**, 270-275, 1941.
- [Boh55] A. Bohr and B.R. Mottelson. "Moments of inertia of rotating nuclei", *Matematisk-fysiske Meddeleser*, **30**, 1, 1955.

- [Boh81] A. Bohr and B.R. Mottelson. "Single-particle and collective aspects of nuclear rotation", *Physica Scripta*, **24**, 71-76, 1981.
- [Bricc] Brlcc v2.3S : Logiciel de calcul du facteur de conversion interne.  
<http://physics.anu.edu.au/nuclear/bricc/>
- [Bru97] R. Brun and F. Rademakers. "ROOT - An object oriented data analysis framework", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **389**, 81-86, 1997.
- [Bur57] E.M. Burbidge, G.R. Burbidge, W.A. Fowler and F. Hoyle. "Synthesis of the elements in stars", *Reviews of Modern Physics*, **29**, 4, 547-654, 1957.
- [But96] 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", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **381**, 433-442, 1996.
- [Chad32] J. Chadwick. "Possible existence of a neutron", *Nature*, **129**, 312-312, 1932.
- [Char94] R.M. Charatan, M.E. Gross and D.J. Eaglesham. "Plasma enhanced chemical vapor deposition of titanium nitride thin films using cyclopentadienyl cycloheptatrienyl titanium", *Journal of Applied Physics*, **76**, 7, 4377-4382, 1994.
- [Chat05] A. Chatillon. "Spectroscopie des transfertmiums impairs en proton : la structure du noyau de  $^{251}\text{Md}$ ", *Thèse de doctorat*, Université Claude Bernard - Lyon 1, IPNL Lyon, France, 2005.
- [Chat07] A. Chatillon, Ch. Theisen, E. Bouchez, P.A. Butler, E. Clément, O. Dorvaux, S. Eeckhaudt, B.J.-P. Gall, A. Görgen, T. Grahn, P.T. Greenlees, R.-D. Herzberg, F. Heßberger, A. Hürstel, G.D. Jones, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, H. Kettunen, F. Khalfallah, W. Korten, Y. Le Coz, M. Leino, A.-P. Leppänen, P. Nieminen, J. Pakarinen, J. Perkowski, P. Rahkila, M. Rousseau, C. Scholey, J. Uusitalo, J.N. Wilson, P. Bonche, and P.-H. Heenen. "Observation of a rotational band in the odd-Z transfermium nucleus  $^{251}_{101}\text{Md}$ ", *Physical Review Letters*, **98**, 132503, 2007.
- [Cho10] P. Chowdhury, S. Hota, S. Lakshmi, S.K. Tandel, T. Harrington, E. Jackson, K. Moran, U. Shirwadkar, I. Ahmad, M.P. Carpenter, C.J. Chiara, J. Greene, C.R. Hoffman, R.V.F. Janssens, T.L. Khoo, F.G. Kondev, T. Lauritsen, C.J. Lister, E.A. McCutchan, D. Seweryniak, I. Stefanescu and S. Zhu. "Spectroscopy of neutron-rich Pu nuclei", *AIP Conference Proceedings*, **1377**, 13-17, 2010.
- [Cla10] R.M. Clark, K.E. Gregorich, J.S. Berryman, M.N. Ali, J.M. Allmond, C.W. Beausang, M. Cromaz, M.A. Deleplanque, I. Dragojević, J. Dvorak, P.A. Ellison, P. Fallon, M.A. Garcia, J.M. Gates, S. Gros, H.B. Jeppesen, D. Kaji, I.Y. Lee, A.O. Macchiavelli, K. Morimoto, H. Nitsche, S. Paschalis, M. Petri, L. Stavsetra, F.S. Stephens, H. Watanabe and M. Wiedeking. "High-K multi-quasiparticle states in  $^{254}\text{No}$ ", *Physics Letters B*, **690**, 19-24, 2010.
- [CLO12] Fiche du projet de l'ANR CLODETTE.  
[http://www.agence-nationale-recherche.fr/projet-anr/?tx\\_lwmsuivibilan\\_pi2%5BCODE%5D=ANR-12-BS05-0013](http://www.agence-nationale-recherche.fr/projet-anr/?tx_lwmsuivibilan_pi2%5BCODE%5D=ANR-12-BS05-0013)

- [Cwi94] S. Ćwiok, S. Hofmann and W. Nazarewicz. "Shell structure of the heaviest elements", *Nuclear Physics A*, **573**, 356-394, 1994.
- [Cwi96] S. Ćwiok, J. Dobaczewski, P.-H. Heenen, P. Magierski and W. Nazarewicz. "Shell structure of the superheavy elements", *Nuclear Physics A*, **611**, 211-246, 1996.
- [Dal08] J. Dalton. "A new system of chemical philosophy", 1808.
- [Dav89] C.N. Davids and J.D. Larson. "The Argonne Fragment Mass Analyzer", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **40-41**, 1224, 1989.
- [Dec12] F. Dechery. "Simulations optiques pour le projet  $S^3$  - Super Spectromètre Séparateur - Première spectroscopie  $\gamma - e^-$  en coïncidence d'un noyau transfert-mium : le  $^{251}\text{Md}_{101}$ ", *Thèse de doctorat*, Université Paris Diderot (Paris 7), CEA Saclay, France, 2012.
- [Dec13] F. Dechery, Calculs de cinématique de réaction, communication privée, 2013.
- [Dem82] B. Demerseman, P.H. Dixneuf, J. Douglade and R. Mercier. "A novel organometallic phosphine ligand containing titanium(II),  $(\eta^5\text{-C}_5\text{H}_5)\text{Ti}(\eta^7\text{-C}_7\text{H}_6\text{PPh}_2)$ , and related heterobimetallic complexes: X-ray structure of  $(\eta^5\text{-C}_5\text{H}_5)\text{Ti}(\eta^7\text{-C}_7\text{H}_6\text{PPh}_2)\text{Mo}(\text{CO})_5\cdot\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_3$ ", *Inorganic Chemistry*, **21**, 3942-3947, 1982.
- [DeV83] M.J.A. de Voigt, J. Dudek and Z. Szymański. "High-spin phenomena in atomic nuclei", *Reviews of Modern Physics*, **55**, 4, 949-1045, 1983.
- [Dob84] J. Dobaczewski, H. Flocard and J. Treiner. "Hartree-Fock-Bogolyubov description of nuclei near the neutron-drip line", *Nuclear Physics A*, **422**, 1, 103-139, 1984.
- [Don64] E.D. Donets, V.A. Shchegolets and V.A. Ermakov. "Synthesis of the element 102 of mass number 256", *Atomic Energy*, **16**, 3, 195-207, 1964.
- [Don65] E.D. Donets, V.A. Shchegolets and V.A. Ermakov. "Synthesis of the isotope of element 103 with mass number 256", *Atomic Energy*, **19**, 2, 109-113, 1965.
- [Drac13] G.D. Dracoulis. "Isomers, nuclear structure and spectroscopy", *Physica Scripta*, **T152**, 014015, 2013.
- [Drag08] I. Dragojević, K.E. Gregorich, Ch.E. Düllmann, M.A. Garcia, J.M. Gates, S.L. Nelson, L. Stravsetra, R. Sudowe and H. Nitsche. "Influence of projectile neutron number in the  $^{208}\text{Pb}(^{48}\text{Ti},n)^{255}\text{Rf}$  and  $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti},n)^{256}\text{Rf}$  reactions", *Physical Review C*, **78**, 024605, 2008.
- [Dro10] A. Drouart, A.M. Amthor, D. Boutin, O. Delferrière, M. Duval, S. Manikonda, J.A. Nolen, J. Payet, H. Savajols, M.-H. Stodel and D. Uriot. "The Super Separator Spectrometer ( $S^3$ ) for SPIRAL2 stable beams", *Nuclear Physics A*, **834**, 747c-750c, 2010.
- [Duc99] G. Duchêne, F.A. Beck, P.J. Twin, G. de France, D. Curien, L. Han, C.W. Beausang, M.A. Bentley, P.J. Nolan and J. Simpson. "The Clover: a new generation of composite Ge detectors", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **432**, 90-110, 1999.

- [Dud81] J. Dudek, Z. Szymánski and T. Werner. "Woods-Saxon potential parameters optimized to the high spin spectra in the lead region", *Physical Review C*, **23**, 2, 920-925, 1981.
- [Dud92] J. Dudek. "Nuclear superdeformation at high spins", *Progress in Particle and Nuclear Physics*, **28**, 131-185, 1992.
- [Dug01] T. Duguet, P. Bonche and P.-H. Heenen. "Rotational properties of  $^{252,253,254}\text{No}$ : influence of pairing correlations", *Nuclear Physics A*, **679**, 427-440, 2001.
- [Eec05] S. Eeckhauudt, N. Amzal, J.E. Bastin, E. Bouchez, P.A. Butler, A. Chatillon, K. Eskola, J. Gerl, T. Grahn, A. Görgen, P.T. Greenlees, R.-D. Herzberg, F.P. Heßberger, A. Hürstel, P.J.C. Ikin, G.D. Jones, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, H. Kettunen, T.L. Khoo, W. Korten, P. Kuusiniemi, Y. Le Coz, M. Leino, A.-P. Leppänen, P. Nieminen, J. Pakarinen, J. Perkowski, A. Pritchard, P. Reiter, P. Rahkila, C. Scholey, Ch. Theisen, J. Uusitalo, K. Van der Vel, J. Wilson and H.J. Wollersheim. "In-beam gamma-ray spectroscopy of  $^{254}\text{No}$ ", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **25**, s01, 605-607, 2005.
- [Eec06] S. Eeckhauudt. "Spectroscopy in the transfermium region: probing rotational, non-yrast and isomeric structure in  $^{253,254}\text{No}$ ", *Thèse de doctorat*, Université de Jyväskylä, Finlande, 2006.
- [Erl12] J. Erler, N. Birge, M. Kortelainen, W. Nazarewicz, E. Olsen, A.M. Perhac and M. Stoitsov. "The limits of the nuclear landscape", *Nature*, **486**, 509-512, 2012.
- [Fau15] H. Faure, communication privée. Thèse de l'Université de Strasbourg ; soutenance prévue en 2015.
- [Fir96] R.B. Firestone, V.S. Shirley, C.M. Baglin, S.Y.F. Chu and J. Zipkin. "Table of Isotopes", 8<sup>th</sup> edition, John Wiley & Sons, New York, 1996.
- [Fle40] G.N. Flerov and K.A. Petrzhak. *Journal of Physics USSR*, **3**, 275, 1940.
- [Fle64] G.N. Flerov, Yu.Ts. Oganesyán, Yu.V. Lobanov, V.L. Kuznetsov, V.A. Druin, V.P. Pereygin, K.A. Gavrilov, S.P. Tretiakova and V.M. Plotko. "Synthesis and physical identification of the isotope of element 104 with mass number 260", *Physics Letters*, **13**, 1, 73-75, 1964.
- [Fle81] G.N. Flerov and G.M. Ter-Akopian. "The physical and chemical aspects of the search for superheavy elements", *Pure and Applied Chemistry*, **53**, 5, 909-923, 1981.
- [Fle85] G.N. Flerov and G.M. Ter-Akopian. "Treatise on heavy-ion science", **4**, 333, Plenum press, 1985.
- [Fol04] C.M. Folden III. "Development of odd- $Z$  projectile reactions for transactinide elements synthesis", *Thèse de doctorat*, Université de Californie, LBNL, Etats-Unis d'Amérique, 2004.
- [Gall99] B.J.-P. Gall. "Super et hyper déformation du noyau atomique: du discret au continu", *Annales de Physique*, **24**, 6, 1999.

- [Gall10] B.J.-P. Gall. Calculs de différentes configurations de JUROGAM II, communication privée, 2010.
- [Gall11] B.J.-P. Gall, J. Piot, O. Dorvaux, K. Hauschild, A. Khouaja, M. Lambert, A. Lopez-Martens, R.L. Lozeva and J. Pancin for the  $^{246}\text{Fm}$  and the  $S^3$  Collaborations. "Pushing the limits of spectroscopy with  $S^3$ ", *Acta Physica Polonica*, **42**, 3-4, 597-604, 2011.
- [Gal58] C.J. Gallagher and S.A. Moszkowski., *Physical Review*, **111**, 1282, 1958.
- [Gal62] C.J. Gallagher. "Coupling of angular momenta in two-particles states in deformed even-even nuclei", *Physical Review*, **126**, 4, 1525-1531, 1962.
- [Gat08] J.M. Gates, S.L. Nelson, K.E. Gregorich, I. Dragojević, Ch.E. Düllmann, P.A. Ellison, C.M. Folden III, M.A. Garcia, L. Stavsetra, R. Sudowe, D.C. Hoffman and H. Nitsche. "Comparison of reactions for the production of  $^{258,257}\text{Db}$ :  $^{208}\text{Pb}(^{51}\text{V},xn)$  and  $^{209}\text{Bi}(^{50}\text{Ti},xn)$ ", *Physical Review C*, **78**, 034604, 2008.
- [Geo93] A. Georgiev and W. Gast. "Digital pulse processing in high resolution, high throughput gamma-ray spectroscopy", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, **40**, 4, 770-779, 1993.
- [Ghi55a] 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", *Physical Review*, **99**, 1048-1049, 1955.
- [Ghi55b] A. Ghiorso, B.G. Harvey, G.R. Choppin, S.G. Thompson and G.T. Seaborg. "New element mendelevium, atomic number 101", *Physical Review*, **98**, 1518-1519, 1955.
- [Ghi58] A. Ghiorso, T. Sikkeland, J.R. Walton and G.T. Seaborg. "Element No. 102", *Physical Review Letters*, **1**, 1, 18-21, 1958.
- [Ghi61] A. Ghiorso, T. Sikkeland, A.E. Larsh and R.M. Latimer. "New element, lawrencium, atomic number 103", *Physical Review Letters*, **6**, 9, 473-475, 1961.
- [Ghi69] A. Ghiorso, M. Nurmia, J. Harris, K. Eskola and P. Eskola. "Positive identification of two alpha-particle-emitting isotopes of element 104", *Physical Review Letters*, **22**, 24, 1317-1320, 1969.
- [Ghi70] A. Ghiorso, M. Nurmia, K. Eskola, J. Harris and P. Eskola. "New element hahnium, atomic number 105", *Physical Review Letters*, **24**, 26, 1498-1503, 1970.
- [Ghi73] A. Ghiorso, K. Eskola, P. Eskola and M. Nurmia. "Isomeric states in  $^{250}\text{Fm}$  and  $^{254}\text{No}$ ", *Physical Review C*, **7**, 5, 2032-2036, 1973.
- [Ghi74] A. Ghiorso, J.M. Nitschke, J.R. Alonso, C.T. Alonso, M. Nurmia, G.T. Seaborg, E.K. Hulet and R.W. Lougheed. "Element 106", *Physical Review Letters*, **33**, 25, 1490-1493, 1974.
- [Ghi88] A. Ghiorso, S. Yashita, M.E. Leino, L. Frank, J. Kalnins, P. Armbruster, J.-P. Dufour and P.K. Lemmertz. "Sassy, a gas-filled magnetic separator for the study of fusion reaction product". *Nuclear Instruments and Methods in*

- Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **269**, 1, 192-201, 1988.
- [Gom88] M.P. Gómez-Sal, M. Mena, P. Royo and R. Serrano. "Structural and chemical aspects of electron deficient pentamethylcyclopentadienyltitanium halides, alkyls and oxides", *Journal of Organometallic Chemistry*, **358**, 147-159, 1988.
- [Gor10] A. Gorshkov. "A new focal plane detector for the gas-filled separator TASCA", *Thèse de doctorat*, Technische Universität München, Allemagne 2010.
- [Gra07] C. Granja, Z. Vykydal, Y. Kopatch, J. Jakubek, S. Pospíšil and S.A. Telezhnikov. "Position-sensitive spectroscopy of  $^{252}\text{Cf}$  fission fragments", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **574**, 472-478, 2007.
- [Gre08] P.T. Greenlees, R.-D. Herzberg, S. Ketterhuth, P.A. Butler, P. Chowdhury, T. Grahn, C. Gray-Jones, G.D. Jones, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, T.-L. Khoo, M. Leino, S. Moon, M. Nyman, J. Pakarinen, P. Rahkila, D. Rostron, J. Sarén, C. Scholey, J. Sorri, S.K. Tandel, J. Uusitalo and M. Venhart. "High- $K$  structure in  $^{250}\text{Fm}$  and the deformed shell gaps at  $N = 152$  and  $Z = 100$ ", *Physical Review C*, **78**, 021303(R), 2008.
- [Gre10] 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, J. Ljungvall, A. Lopez-Martens, R. Lozeva, N. Nieminen, P. Papadakis, E. Parr, P. Peura, M. Piiparinen, J. Piot, P. Rahkila, P. Reiter, S. Rinta-Antila, M. Rousseau, J. Rubert, P. Ruotsalainen, J. Sarén, C. Scholey, B. Sulignano, J. Sorri, Ch. Theisen and J. Uusitalo. "In-beam gamma-ray spectroscopy of heavy elements:  $^{256}\text{Rf}$ ", *JYFL Proposal JR111*, 2010.
- [Gre12] P.T. Greenlees, J. Rubert, J. Piot, B.J.-P. Gall, L.L. Andersson, M. Asai, Z. Asfari, D.M. Cox, F. Dechery, O. Dorvaux, T. Grahn, K. Hauschild, G. Henning, A. Herzan, R.-D. Herzberg, F.P. Heßberger, U. Jakobsson, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, T.-L. Khoo, M. Leino, J. Ljungvall, A. Lopez-Martens, R. Lozeva, P. Nieminen, J. Pakarinen, P. Papadakis, E. Parr, P. Peura, P. Rahkila, S. Rinta-Antila, P. Ruotsalainen, M. Sandzelius, J. Sarén, C. Scholey, D. Seweryniak, J. Sorri, B. Sulignano, Ch. Theisen, J. Uusitalo and M. Venhart. "Shell-structure and pairing interaction in superheavy nuclei: rotational frequency properties of the  $Z = 104$  nucleus  $^{256}\text{Rf}$ ", *Physical Review Letters*, **109**, 012501, 2012.
- [Gre13] P.T. Greenlees. "Understanding the nuclear structure of heavy elements", *Physica Scripta*, **T152**, 014016, 2013.
- [Gro67] J.R. Grover. "Shell-Model calculations of the lowest-energy nuclear excited states of very high angular momentum", *Physical Review*, **157**, 4, 832-847, 1967.

- [Hark95] R. Harkewicz, P.J. Billquist, J.P. Greene, J.A. Nolen and R.C. Pardo. "Ion plasma sputtering as a method of introducing solid material into an electron cyclotron resonance ion source", *Review of Scientific Instruments*, **66**, 2883-2887, 1995.
- [Harr64] S.M. Harris. "Large-spin rotational states of deformed nuclei", *Physical Review Letters*, **13**, 22, 663-665, 1964.
- [Harr65] S.M. Harris. "High order corrections to the Cranking Model", *Physical Review Second Series*, **138**, 3B, B509-B513, 1965.
- [Harv76] B.G. Harvey, G. Hermann, R.W. Hooff, D.C. Hoffman, E.K. Hyde, J.J. Katz, O.L. Keller, M. Lefort and G.T. Seaborg. "Criteria for the discovery of chemical elements", *Science*, **193**, 4259, 1271-1272, 1976.
- [Hau06] K. Hauschild, A.V. Yeremin, O. Dorvaux, A. Lopez-Martens, A.V. Belozero, Ch. Briançon, M.L. Chelnokov, V.I. Chepigin, S.A. Garcia-Santamaria, V.A. Gorshkov, F. Hanappe, A.P. Kabachenko, A. 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  $\gamma$ -ray and conversion electron spectroscopy of transfermium elements", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **560**, 388-394, 2006.
- [Hau08] K. Hauschild, A. Lopez-Martens, A. V. Yeremin, O. Dorvaux, S. Antalic, A. V. Belozero, Ch. Briançon, M. L. Chelnokov, V. I. Chepigin, D. Curien, B. Gall, A. Görgen, V. A. Gorshkov, M. Guttormsen, F. Hanappe, A. P. Kabachenko, F. Khalfallah, A. C. Larsen, O. N. Malyshev, A. Minkova, A. G. Popeko, M. Rousseau, N. Rowley, S. Saro, A. V. Shutov, S. Siem, L. Stuttgé, A. I. Svirikhin, N. U. H. Syed, Ch. Theisen, and M. Venhart, "High-K,  $t_{1/2} = 1.4(1)$  ms, isomeric state in  $^{255}\text{Lr}$ ", *Physical Review C* **78**, 021302(R), 2008.
- [Hax49] O. Haxel, J.H.D. Jensen and H.E. Suess. "On the "Magic Numbers", in Nuclear Structure", *Physical Review*, **75**, 1766-1766, 1949.
- [Hen12] G. Henning. "Stability of transfermium elements at high spin: measuring the fission barrier of  $^{254}\text{No}$ ", *Thèse de doctorat*, Université Paris Sud - CSNSM, Orsay, France, 2012.
- [Herr74] G. Herrmann. "The search for superheavy elements in nature", *Physica Scripta*, **10A**, 71-76, 1974.
- [Herz01] R.-D. Herzberg, N. Amzal, F. Becker, P.A. Butler, A.J.C. Chewter, J.F.C. Cocks, O. Dorvaux, K. Eskola, J. Gerl, P.T. Greenlees, N.J. Hammond, K. Hauschild, K. Helariutta, F. Heßberger, M. Houry, G.D. Jones, P.M. Jones, R. Julin, S. Juutinen, H. Kankaanpää, H. Kettunen, T.L. Khoo, W. Korten, P. Kuusiniemi, Y. Le Coz, M. Leino, C.J. Lister, R. Lucas, M. Muikku, P. Nieminen, R.D. Page, P. Rahkila, P. Reiter, Ch. Schlegel, C. Scholey, O. Stezowski, Ch. Theisen, W.H. Trzaska, J. Uusitalo and H.J. Wollersheim. "Spectroscopy of transfermium nuclei:  $^{252}_{102}\text{No}$ ", *Physical Review C*, **65**, 014303, 2001.
- [Herz06] 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. Sarén, 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**, 896-899, 2006.
- [Herz08] R.-D. Herzberg and P.T. Greenlees. "In-beam and decay spectroscopy of transfermium nuclei", *Progress in Particle and Nuclear Physics*, **61**, 674-720, 2008.
- [Herz09] R.-D. Herzberg, S. Moon, S. Eeckhauudt, P.T. Greenlees, P.A. Butler, T. Page, A.V. Afanasjev, N. Amzal, J.E. Bastin, F. Becker, M. Bender, B. Bruyneel, J.F.C. Cocks, I.G. Darby, O. Dorvaux, K. Eskola, J. Gerl, T. Grahn, C. Gray-Jones, N.J. Hammond, K. Hauschild, P.-H. Heenen, K. Helariutta, A. Herzberg, F. Heßberger, M. Houry, A. Hürstel, R.D. Humphreys, G.D. Jones, P.M. Jones, R. Julin, S. Juutinen, H. Kankaanpää, H. Kettunen, T.L. Khoo, W. Korten, P. Kuusiniemi, Y. Le Coz, M. Leino, A.-P. Leppänen, C.J. Lister, R. Lucas, M. Muikku, P. Nieminen, M. Nyman, R.D. Page, T. Page, J. Pakarinen, A. Pritchard, P. Rahkila, P. Reiter, M. Sandzelius, J. Saren, Ch. Schlegel, C. Scholey, Ch. Theisen, W.H. Trzaska, J. Uusitalo, A. Wiens and H.J. Wollersheim. "Structure of rotational bands in  $^{253}\text{No}$ ", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **42**, 333-337, 2009.
- [Herz11] R.-D. Herzberg and D.M. Cox. "Spectroscopy of actinide and transactinide nuclei", *Radiochemica Acta*, **99**, 411-457, 2011.
- [Hes85] 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  $^{207, 208}\text{Pb}$  with  $^{50}\text{Ti}$ ", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **321**, 317-327, 1985.
- [Hes97] F.P. Heßberger, S. Hofmann, V. Ninov, P. Armbruster, H. Folger, G. Münzenberg, H.J. Schött, A.G. Popeko, A.V. Yeremin, A.N. Andreyev and S. Saro. "Spontaneous fission and alpha-decay properties of neutron deficient isotopes  $^{257-253}104$  and  $^{258}106$ ", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **359**, 415-425, 1997.
- [Hes01] F.P. Heßberger, S. Hofmann, D. Ackermann, V. Ninov, M. Leino, G. Münzenberg, S. Saro, A. Lavrentev, A.G. Popeko, A.V. Yeremin and Ch. Stodel. "Decay properties of neutron-deficient isotopes  $^{256, 257}\text{Db}$ ,  $^{255}\text{Rf}$ ,  $^{252, 253}\text{Lr}$ ", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **12**, 57-67, 2001.
- [Hes10] F.P. Heßberger, S. Antalic, D. Ackermann, S. Heinz, S. Hofmann, J. Khuyagbaatar, B. Kindler, I. Kojouharov, B. Lommel and R. Mann. "Alpha-decay properties of  $^{261}\text{Bh}$ ", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **43**, 175-180, 2010.
- [Hes13] F.P. Heßberger. "Discovery of the heaviest elements", *ChemPhysChem*, **14**, 483-489, 2013.
- [Hof71] D.C. Hoffman, F.O. Lawrence, J.L. Mewherter and F.M. Rourke. "Detection of plutonium-244 in nature", *Nature*, **234**, 132-134, 1971.
- [Hof95a] S. Hofmann, V. Ninov, F.P. Heßberger, P. Armbruster, H. Folger, G. Münzenberg, H.J. Schött, A.G. Popeko, A.V. Yeremin, A.N. Andreyev, S. Saro, R. Janik

- and M. Leino. "Production and decay of  $^{269}110$ ", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **350**, 277-278, 1995.
- [Hof95b] S. Hofmann, V. Ninov, F.P. Heßberger, P. Armbruster, H. Folger, G. Münzenberg, H.J. Schött, A.G. Popeko, A.V. Yeremin, A.N. Andreyev, S. Saro, R. Janik and M. Leino. "The new element 111", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **350**, 281-282, 1995.
- [Hof96] S. Hofmann, V. Ninov, F.P. Heßberger, P. Armbruster, H. Folger, G. Münzenberg, H.J. Schött, A.G. Popeko, A.V. Yeremin, S. Saro, R. Janik and M. Leino. "The new element 112", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **354**, 229-230, 1996.
- [Hof04] S. Hofmann, F.P. Heßberger, D. Ackermann, S. Antalic, P. Cagarda, B. Kindler, P. Kuusiniemi, M. Leino, B. Lommel, O.N. Malyshev, R. Mann, G. Münzenberg, A.G. Popeko, S. Saro, B. Streicher and A.V. Yeremin. "Properties of heavy nuclei measured at the GSI SHIP", *Nuclear Physics A*, **734**, 93-100, 2004.
- [Hol68] P. Holmberg and P.O. Lipas. "A new formula for rotational energies", *Nuclear Physics A*, **117**, 552-560, 1968.
- [Jar12] P. Jardin, O. Bajeat, C. Barué, C. Canet, P. Delahaye, M. Dubois, M. Dupuis, J.L. Flambard, R. Frigot, C. Leboucher, P. Lehérissier, F. Lemagnen, L. Maunoury, B. Osmond, J. Piot, E. Traykov, C. Peaucelle, T. Thuillier, O. Tuske, B. Gall and J. Rubert. "ECRISs at GANIL today and tomorrow", *20<sup>th</sup> International Workshop on Electron Cyclotron Resonance Ion Sources (ECRIS-2012)*, oai:hal.in2p3.fr:in2p3-00737301, 2012.
- [Jep09] H.B. Jeppesen, I. Dragojević, R.M. Clark, K.E. Gregorich, M.N. Ali, J.M. Allmond, C.W. Beausang, D.L. Bleuel, M. Cromaz, M.A. Deleplanque, P.A. Ellison, P. Fallon, M.A. Garcia, J.M. Gates, J.P. Greene, S. Gros, I.Y. Lee, H.L. Liu, A.O. Macchiavelli, S.L. Nelson, H. Nitsche, J.R. Pavan, L. Stavsetra, F.S. Stephens, M. Wiedeking, R. Wyss and F.R. Xu. "Multi-quasiparticle states in  $^{256}\text{Rf}$ ", *Physical Review C*, **79**, 031303(R), 2009.
- [Jep09b] H.B. Jeppesen, R.M. Clark, K.E. Gregorich, A.V. Afanasjev, M. N. Ali, J. M. Allmond, C. W. Beausang, M. Cromaz, M. A. Deleplanque, I. Dragojević, J. Dvorak, P. A. Ellison, P. Fallon, M. A. Garcia, J. M. Gates, S. Gros, I. Y. Lee, A. O. Macchiavelli, S. L. Nelson, H. Nitsche, L. Stavsetra, F. S. Stephens, and M. Wiedeking "High-K multi-quasiparticle states and rotational bands in  $^{255}\text{Lr}$ ", *Physical Review C*, **80**, 034324, 2009.
- [Jon95] P.M. Jones, L. Wei, F.A. Beck, P.A. Butler, T. Byrski, G. Duchêne, G. de France, F. Hannachi, G.D. Jones and B. Kharraja. "Calibration of the new composite "clover" detector as a Compton polarimeter for the EUROGAM array", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **362**, 556-560, 1995.
- [Jon02] G.D. Jones. "Detection of long-lived isomers in super-heavy elements", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **488**, 471-472, 2002.

- [JYF12] JYFL Accelerator News, "New extraction improves the ECR beam properties", **20**, 2, 2, Septembre 2012.
- [Kan04] H. Kankaanpää, P.A. Butler, P.T. Greenlees, J.E. Bastin, R.-D. Herzberg, R.D. Humphreys, G.D. Jones, P. Jones, R. Julin, A. Keenan, H. Kettunen, M. Leino, L. Miettinen, T. Page, P. Rahkila, C. Scholey and J. Uusitalo. "In-beam electron spectrometer used in conjunction with a gas-filled recoil separator", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **534**, 503-510, 2004.
- [Kete09] S. Ketelhut, P.T. Greenlees, D. Ackermann, S. Antalic, E. Clément, I.G. Darby, O. Dorvaux, A. Drouart, S. Eeckhaudt, B.J.-P. Gall, A. Görgen, T. Grahn, C. Gray-Jones, K. Hauschild, R.-D. Herzberg, F.P. Heßberger, U. Jakobsson, G.D. Jones, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, T.-L. Khoo, W. Korten, M. Leino, A.-P. Leppänen, J. Ljungvall, S. Moon, M. Nyman, A. Obertelli, J. Pakarinen, E. Parr, P. Papadakis, P. Peura, J. Piot, A. Pritchard, P. Rahkila, D. Rostron, P. Ruotsalainen, M. Sandzelius, J. Sarén, C. Scholey, J. Sorri, A. Steer, B. Sulignano, Ch. Theisen, J. Uusitalo, M. Venhart, M. Zielinska, M. Bender and P.-H. Heenen. " $\gamma$ -ray spectroscopy at the limits: First observation of rotational bands in  $^{255}\text{Lr}$ ", *Physical Review Letters*, **102**, 212501, 2009.
- [Kete10] S. Ketelhut. "Rotational structures and high- $K$  isomerism in  $^{248,250}\text{Fm}$ ", *Thèse de doctorat*, Université de Jyväskylä, P.O. Box 35 (YFL) Finlande, 2010.
- [Kett01] H. Kettunen, P.T. Greenlees, K. Helaritutta, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, P. Kuusiniemi, M. Leino, M. Muikku, P. Nieminen and J. Uusitalo. "Towards higher sensitivity at the RITU focal plane", *Acta Physica Polonica B*, **32**, 3, 989-992, 2001.
- [Kett03] H. Kettunen. "Decay spectroscopy of heavy nuclei beyond the proton drip line", *Thèse de doctorat*, Université de Jyväskylä, Finlande, 2003.
- [Kha07] F. Khalfallah. "Spectroscopie des éléments très lourds en vue de l'étude des éléments superlourds", *Thèse de doctorat*, Université Louis Pasteur, IPHC/DRS UMR7178, 23 rue du loess, 67037 Strasbourg, France, 2007.
- [Kib08] T. Kibédi, T.W. Burrows, M.B. Trzhaskovskaya, P.M. Davidson and C.W. Nestor Jr. "Evaluation of theoretical conversion coefficients using  $BrIcc$ ", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **589**, 202-229, 2008.
- [Kin67] R.B. King and M.B. Bisnette. "Organometallic chemistry of the transition metals XXI. Some  $\pi$ -pentamethylcyclopentadienyl derivatives of various transition metals", *Journal of Organometallics Chemistry*, **8**, 2, 287-297, 1967.
- [Koi94] H. Koivisto, J. Ärje and M. Nurmiä. "Metal ion beams from an ECR ion source using volatile compounds", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **94**, 291-296, 1994.
- [Koi97a] H. Koivisto, M. Hendolin and J. Ärje. "New gas feeding system at the JYFL electron cyclotron resonance ion source", *Review of Scientific Instruments*, **68**, 7, 2707-2710, 1997.

- [Koi97b] H. Koivisto, R. Harkewicz, J. Ärje and M. Nurmia. "Metal ion beams at the JYFL-ECR ion source", *Proceedings of the 13<sup>th</sup> International Workshop on Electron Cyclotron Resonance Ion Sources, TAMU, College Station*, 167, 1997.
- [Koi98] H. Koivisto, J. Ärje and M. Nurmia. "Metal ions from the volatile compounds method for the production of metal ions beams", *Review of Scientific Instruments*, **69**, 785-787, 1998.
- [Koi01] 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", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **174**, 379-384, 2001.
- [Koi02] H. Koivisto, J. Ärje, R. Seppälä and M. Nurmia. "Production of titanium ion beams in an ECR ion source", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **187**, 111-116, 2002.
- [Koi03] H. Koivisto, E. Liukkonen, M. Moisio, V. Nieminen and P.A. Suominen. "The modification of the JYFL 6.4 GHz ECR ion source", *Nukleonika*, **48**, (Supplement 2), S81-S84, 2003.
- [Kon13] F. Kondev. *Calculs des états de quasi-particules avec la méthode Woods-Saxon Universal*, communication privée, 2013.
- [Kor99] W. Korten for the JUROSPHERE collaboration. "In-beam spectroscopy of exotic nuclei using Recoil-Decay Tagging", *Nuclear Physics A*, **654**, 677c-682c, 1999.
- [Kran88] K.S. Krane. "Introductory nuclear physics", *John Wiley and Sons*, 1988.
- [Krau79] M.O. Krause. "Atomic radiative and radiationless yields for *K* and *L* shells", *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, **8**, 2, 307-327, 1979.
- [Kru00] A.T. Kruppa, M. Bender, W. Nazarewicz, P.-G. Reinhard, T. Vertse and S. Cwiok. "Shell corrections of superheavy nuclei in self-consistent calculations", *Physical Review C*, **61**, 034313, 2000.
- [Lac02] D. Lacroix. "Macroscopic approaches for fusion reactions", *Cours de l'Ecole Joliot-Curie*, 2002.
- [Lal97] G.A. Lalazissis, J. König and P. Ring. "New parametrization for the Lagrangian density of relativistic mean field theorys", *Physical Review C*, **55**, 1, 540-543, 1997.
- [Lav89] A. Lavoisier. "Traité élémentaire de chimie, présenté dans un ordre nouveau, et d'après des découvertes modernes", 1789.
- [Laz01] 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. Joss, S.C. Letts, R.D. Page, V.F.E. Pucknell, P.H. Regan, J. Sampson, J. Simpson, J. Thornhill and R. Wadsworth. "The GREAT triggerless total data readout method", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, **48**, 3, 567-569, 2001.
- [Lei95] 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”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **99**, 653-656, 1995.
- [Lei99] M. Leino, H. Kankaanpää, R.-D. Herzberg, A.J. Chewter, F.P. Heßberger, Y. Le Coz, F. Becker, P.A. Butler, J.F.C. Cocks, O. Dorvaux, K. Eskola, J. Gerl, P.T. Greenlees, K. Helariutta, M. Houry, G.D. Jones, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, H. Kettunen, T.L. Khoo, A. Kleinböhl, W. Korten, P. Kuusiniemi, R. Lucas, M. Muikku, P. Nieminen, R.D. Page, P. Rahkila, P. Reiter, A. Savelius, Ch. Schlegel, Ch. Theisen, W.H. Trzaska and H.-J. Wollersheim. “In-beam study of  $^{254}\text{No}$ ”, *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **6**, 63-69, 1999.
- [Lei03] M. Leino. “Gas-filled separators - An overview”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **204**, 129-137, 2003.
- [Lei04] M. Leino and F.P. Heßberger. “The nuclear structure of heavy-actinide and transactinide nuclei”, *Annual Reviews Nuclear and Particle Science*, **54**, 175-215, 2004.
- [Lem11] F. Lemagnen, C. Canet, C. Barué, M. Dupuis, P. Lehérissier, B. Osmond, J.-L. Flambard and R. Frigot. “Essais PFI1.ECR4/C01 du 29/09 au 05/10/11 - Titanocène”, *Rapport de test GPI-2011-109*, GANIL, 2011.
- [Lep05] A.-P. Leppänen. “Alpha-decay and decay-tagging studies of heavy elements using the RITU separator”, *Thèse de doctorat*, University of Jyväskylä, Department of Physics, 2005.
- [Lid12] D.R. Lide. “CRC handbook of chemistry and physics”, CRC Press Inc., 93<sup>th</sup> edition, 2012.
- [Liu11] H.L. Liu, F.R. Xu, P.M. Walker and C.A. Bertulani. “Effects of high-order deformation on high- $K$  isomers in superheavy nuclei”, *Physical Review C*, **83**, 011303(R), 2011.
- [Liuk92] E. Liukkonen. Talk about the K130 cyclotron. *13<sup>th</sup> International Conference on Cyclotron*, Vancouver, 22, 1992.
- [Lli88] G.H. Llinás, M. Mena, F. Palacios, P. Royo and R. Serrano. “ $(\text{C}_5\text{Me}_5)\text{SiMe}_3$  as a mild and effective reagent for transfer of the  $\text{C}_5\text{Me}_5$  ring: an improved route to monopentamethylcyclopentadienyl trihalides of the group 4 elements”, *Journal of Organometallic Chemistry*, **340**, 37-40, 1988.
- [Lob68] K.E.G. Löbner. “Systematics of absolute transition probabilities of K-Forbidden gamma-ray transitions”, *Physics Letters B*, **26B**, 369-370, 1968.
- [Lop07] A. Lopez-Martens, K. Hauschild, A.V. Yeremin, O. Dorvaux, A.V. Belozarov, Ch. Briançon, M.L. Chelnokov, V.I. Chepigin, D. Curien, P. Désesquelles, B.J.-P. Gall, V.A. Gorshkov, M. Guttormsen, F. Hanappe, A.P. Kabachenko, F. Kalfallah, A. Korichi, A.C. Larsen, O.N. Malyshev, A. Minkova, Yu.Ts. Oganessian, A.G. Popeko, M. Rousseau, N. Rowley, R.N. Sagaidak, S. Sharo, A.V. Shutov, S. Siem, L. Stuttgé, A.I. Svirikhin, N.U.H. Syed

- and Ch. Theisen. "Isomeric states in  $^{253}\text{No}$ ", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **32**, 245-250, 2007.
- [Los12] R.D. Loss and J. Corish. "Names and symbols of the elements with atomic numbers 114 and 116", (IUPAC Recommendations 2012). *Pure and Applied Chemistry*, **84**, 7, 1669-1672, 2012.
- [Lyr10] Specifications des cartes Lyrtech VHS-ADC, 2010. [www.lyrtech.com](http://www.lyrtech.com)
- [Mal00] 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", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **440**, 86-94, 2000.
- [Mar69] M.A.J. Mariscotti, G. Scharzp-Goldhaber and B. Buck. "Phenomenological analysis of ground-state bands in even-even nuclei", *Physical Review*, **178**, 4, 1864-1887, 1969.
- [May49] M.G. Mayer. "On closed shells in nuclei. II", *Physical Review*, **75**, 1969-1970, 1949.
- [May50a] M.G. Mayer. "Nuclear configurations in the spin-orbit coupling model. I. Empirical evidence", *Physical Review*, **78**, 1, 16-21, 1950.
- [May50b] M.G. Mayer. "Nuclear configurations in the spin-orbit coupling model. II. Theoretical considerations", *Physical Review*, **78**, 1, 22-23, 1950.
- [McM40] E. McMillan and P.H. Abelson. "Radioactive element 93", *Physical Review*, **57**, 1185-1186, 1940.
- [Mei39] L. Meitner and O.R. Frisch. "Desintegration of uranium by neutrons: a new type of nuclear reaction", *Nature*, **143**, 239-240, 1939.
- [Mena89] M. Mena, P. Royo and R. Serrano. "Electron-Deficient (Pentamethylcyclopentadienyl)titanium Trialkyls: Evidence of Ti...H-C and Ti...C-C Interactions. Crystal and Molecular Structure of  $\mu$ -[*o*-(CH<sub>2</sub>)C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>]{ $\eta^5$ -C<sub>5</sub>Me<sub>5</sub>}Ti[*o*-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>C<sub>6</sub>H<sub>4</sub>]}<sub>2</sub>", *Organometallics*, **8**, 476-482, 1989.
- [Mend69] D. Mendeleïev. "Über die Beziehungen der Eigenschaften zu den Atomgewichten der Elemente", *Zeitschrift für Chemie*, 405-406, 1869.
- [Mol95] P. Moller, J.R. Nix, W.D. Myers and W.J. Swiatecki. "Nuclear ground-state masses and deformations", *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **59**, 2, 185-381, 1995.
- [Mor92] K. Morita, A. Yoshida, T.T. Inamura, M. Koizumi, T. Nomura, M. Fujioka, T. Shinozuka, H. Miyatake, K. Sueki, H. Kudo, Y. Nagai and T. Toriyama. "RIKEN isotope separator on-line GARIS/IGISOL", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **70**, 220-225, 1992.
- [Mor04] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, T. Akiyama, S.-I. Goto, H. Haba, E. Ideguchi, R. Kanungo, K. Katori, H. Koura, H. Kudo, T. Ohnishi, A. Ozawa, T. Suda,

- K. Sueki, H.S. Xu, T. Yamaguchi, A. Yoneda, A. Yoshida and Y.L. Zhao. "Experiment on the synthesis of element 113 in the reaction  $^{209}\text{Bi}(^{70}\text{Zn},n)^{278}113$ ", *Journal of the Physical Society of Japan*, **73**, 2593-2596, 2004.
- [Mor07] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, T. Akiyama, S.-I. Goto, H. Haba, E. Ideguchi, K. Katori, H. Koura, H. Kikunaga, H. Kudo, T. Ohnishi, A. Ozawa, N. Sato, T. Suda, K. Sueki, F. Tokanai, T. Yamaguchi, A. Yoneda and A. Yoshida. "Observation of second decay chain from  $^{278}113$ ", *Journal of the Physical Society of Japan*, **76**, 045001, 2007.
- [Mor10] K. Morita. "Superheavy research at RIKEN", *Nuclear Physics A*, **834**, 338c-344c, 2010.
- [Mor12] K. Morita, K. Morimoto, D. Kaji, H. Haba, K. Ozeki, Y. Kudou, T. Sumita, Y. Wakabayashi, A. Yoneda, K. Tanaka, S. Yamaki, R. Sakai, T. Akiyama, S. Goto, H. Hasebe, M. Huang, T. Huang, E. Ideguchi, Y. Kasamatsu, K. Katori, Y. Kariya, H. Kikunaga, H. Koura, H. Kudo, A. Mashiko, K. Mayama, S. Mitsuoka, T. Moriya, M. Murakami, H. Murayama, S. Namai, A. Ozawa, N. Sato, K. Sueki, M. Takeyama, F. Tokanai, T. Yamaguchi and A. Yoshida. "New result in the production and decay of an isotope,  $^{278}113$ , of the 113<sup>th</sup> element", *Journal of the Physical Society of Japan*, **81**, 103201, 2011.
- [Mul83] M. Müller. "Application of multiply ions to small accelerators", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, **NS-30**, 2, 1499-1501, 1983.
- [Mun79] G. Münzenberg, W. Faust, S. Hofmann, P. Armbruster, K. Güttner and H. Ewald. "The velocity filter ship, a separator of unslowed heavy ion fusion products", *Nuclear Instruments and Methods*, **161**, 1, 65-82, 1979.
- [Mun81] G. Münzenberg, S. Hofmann, F.P. Heßberger, W. Reisdorf, K.H. Schmidt, J.H.R. Schneider, P. Armbruster, C.C. Sahn and B. Thuma. "Identification of element 107 by  $\alpha$  correlations chains", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **300**, 107-108, 1981.
- [Mun82] G. Münzenberg, P. Armbruster, F.P. Heßberger, S. Hofmann, K. Poppensieker, W. Reisdorf, J.H.R. Schneider, W.F.W. Schneider, K.-H. Schmidt, C.-C. Sahn and D. Vermeulen. "Observation of one correlated  $\alpha$ -decay in the reaction  $^{58}\text{Fe}$  on  $^{209}\text{Bi} \rightarrow ^{267}109$ ", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **309**, 89-90, 1982.
- [Mun84] G. Münzenberg, P. Armbruster, H. Folger, F.P. Heßberger, S. Hofmann, J. Keller, K. Poppensieker, W. Reisdorf, K.-H. Schmidt, H.-J. Schött, M.E. Leino and R. Hingmann. "The identification of element 108", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **317**, 235-236, 1984.
- [Mun87] G. Münzenberg, P. Armbruster, G. Berthes, F.P. Heßberger, S. Hofmann, W. Reisdorf, K.-H. Schmidt and H.-J. Schött. "The experimental work at the velocity filter SHIP — Results and plans", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **26**, 1-3, 294-300, 1987.
- [Nai07] R.S. Naik, W. Loveland, P.H. Sprunger, A.M. Vinodkumar, D. Peterson, C.L. Jiang, S. Zhu, X. Tang, E.F. Moore and P. Chowdhury. "Measurement of

- the fusion probability  $P_{CN}$  for the reaction of  $^{50}\text{Ti}$  with  $^{208}\text{Pb}$ ", *Physical Review C*, **76**, 054604, 2007.
- [Nil55] S.G. Nilsson. "Binding states of individual nucleons in strongly deformed nuclei", *Matematisk-fysiske Meddeleser*, **29**, 16, 1955.
- [Nil69] S.G. Nilsson, C.F. Tsang, A. Sobiczewski, Z. Szymański, S. Wycech, C. Gustafson, I.-L. Lamm, P. Möller and B. Nilsson. "On the nuclear structure and stability of heavy and superheavy elements", *Nuclear Physics A*, **131**, 1, 1-66, 1969.
- [Nin98] V. Ninov, K.E. Gregorich and C.A. Mcgrath. "The Berkeley Gas-filled Separator", *Proceedings of the Conference on Exotic Nuclei and Atomic Masses, ENAM98; AIP Conf. Proc.*, **455**, 704-707, 1998.
- [Nol94] P. Nolan, F. Beck and D. Fossan. "Large arrays of escape-suppressed gamma-ray detectors", *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, **44**, 561-607, 1994.
- [Nudat] NuDat v2.6: Nuclear structure & decay Data.  
<http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>
- [Oga75] Yu.Ts. Oganessian, A.G. Demin, A.S. Iljinov, S.P. Tretyakova, A.A. Plevé, Yu.E. Penionzhkevich, M.P. Ivanov and Yu.P. Tretyakov. "Experiments on the synthesis of neutron-deficient kurchatovium isotopes in reactions induced by  $^{50}\text{Ti}$  ions", *Nuclear Physics A*, **239**, 1, 157-171, 1975.
- [Oga84] Yu.Ts. Oganessian, A.G. Demin, M. Hyssonnois, S.P. Tretyakova, Yu.P. Kharitonov, V.K. Utyonkov, I.V. Shirokovsky, O. Constantinescu, H. Bruchertseifer and Yu.S. Korotkin. "On the stability of the nuclei of element 108 with  $A = 263-265$ ", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **319**, 215-217, 1984.
- [Oga99] Yu.Ts. Oganessian, V.K. Utyonkov, Yu.V. Lobanov, F.Sh. Abdullin, A.N. Polyakov, I.V. Shirokovsky, Yu.S. Tsyganov, G.G. Gulbekian, S.L. Bogomolov, B.N. Gikal, A.N. Mezentsev, S. Iliev, V.G. Subbotin, A.M. Sukhov, G.V. Buklanov, K. Subotic, M.G. Itkis, K.J. Moody, J.F. Wild, N.J. Stoyer, M.A. Stoyer and R.W. Loughheed. "Synthesis of superheavy nuclei in the  $^{48}\text{Ca} + ^{244}\text{Pu}$  reaction", *Physical Review Letters*, **83**, 16, 3154-3157, 1999.
- [Oga00] Yu.Ts. Oganessian, V.K. Utyonkov, Yu.V. Lobanov, F.Sh. Abdullin, A.N. Polyakov, I.V. Shirokovsky, Yu.S. Tsyganov, G.G. Gulbekian, S.L. Bogomolov, B.N. Gikal, A.N. Mezentsev, S. Iliev, V.G. Subbotin, A.M. Sukhov, O.V. Ivanov, G.V. Buklanov, K. Subotic, M.G. Itkis, K.J. Moody, J.F. Wild, N.J. Stoyer, M.A. Stoyer, R.W. Loughheed, C.A. Laue, Ye.A. Karelin and A.N. Tatarinov. "Observation of the decay of  $^{292}116$ ", *Physical Review C*, **63**, 011301(R), 2013.
- [Oga04a] Yu.Ts. Oganessian, V.K. Utyonkov, Yu.V. Lobanov, F.Sh. Abdullin, A.N. Polyakov, I.V. Shirokovsky, Yu.S. Tsyganov, G.G. Gulbekian, S.L. Bogomolov, A.N. Mezentsev, S. Iliev, V.G. Subbotin, A.M. Sukhov, A.A. Voinov, G.V. Buklanov, K. Subotic, V.I. Zagrebaev, M.G. Itkis, J.B. Patin, K.J. Moody, J.F. Wild, M.A. Stoyer, N.J. Stoyer, D.A. Shaughnessy, J.M. Kenneally and R.W. Loughheed. "Experiments on the synthesis of element 115 in the reaction  $^{243}\text{Am}(^{48}\text{Ca}, xn)^{291-x}115$ ", *Physical Review C*, **69**, 021601(R), 2004.



- [Oga04b] Yu.Ts. Oganessian. "Superheavy elements", *Physics World*, 25-29, July 2004.
- [Oga06] Yu.Ts. Oganessian, V.K. Utyonkov, Yu.V. Lobanov, F.Sh. Abdullin, A.N. Polyakov, R.N. Sagaidak, I.V. Shirokovsky, Yu.S. Tsyganov, A.A. Voinov, G.G. Gulbekian, S.L. Bogomolov, B.N. Gikal, A.N. Mezentsev, S. Iliev, V.G. Subbotin, A.M. Sukhov, K. Subotic, V.I. Zagrebaev, G.K. Vostokin, M.G. Itkis, K.J. Moody, J.B. Patin, D.A. Shaughnessy, M.A. Stoyer, N.J. Stoyer, P.A. Wilk, J.M. Kenneally, J.H. Landrum, J.F. Wild and R.W. Loughheed. "Synthesis of the isotopes of elements 118 and 116 in the  $^{249}\text{Cf}$  and  $^{245}\text{Cm} + ^{48}\text{Ca}$  fusion reactions", *Physical Review C*, **74**, 044602, 2006.
- [Oga07] Yu.Ts. Oganessian. "Heaviest nuclei from  $^{48}\text{Ca}$ -induced reactions", *Journal of Physics G: Nuclear and Particles Physics*, **34**, R165-R242, 2007.
- [Oga10] Yu.Ts. Oganessian, F.Sh. Abdullin, 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. Subbotin, 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  $Z = 117$ ", *Physical Review Letters*, **104**, 142502, 2010.
- [Oga13a] Yu.Ts. Oganessian, F.Sh. Abdullin, C. Alexander, J. Binder, R.A. Boll, S.N. Dmitriev, J. Ezold, K. Felker, J.M. Gostic, R.K. Grzywacz, J.H. Hamilton, R.A. Henderson, M.G. Itkis, K. Miernik, D. Miller, K.J. Moody, A.N. Polyakov, A.V. Ramayya, J.B. Roberto, M.A. Ryabinin, K.P. Rykaczewski, R.N. Sagaidak, D.A. Shaughnessy, I.V. Shirokovsky, M.V. Shumeiko, M.A. Stoyer, N.J. Stoyer, V.G. Subbotin, A.M. Sukhov, Yu.S. Tsyganov, V.K. Utyonkov, A.A. Voinov and G.K. Vostokin. "Experimental studies of the  $^{249}\text{Bk} + ^{48}\text{Ca}$  reaction including decay properties and excitation function for isotopes of element 117 and discovery of the new isotope  $^{277}\text{Mt}$ ", *Physical Review C*, **87**, 054621, 2013.
- [Oga13b] Yu.Ts. Oganessian. "Heaviest nuclei", *Nuclear Physics News*, **23**, 1, 15-21, 2013.
- [Pag03] 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. Simpson, J. Uusitalo, S.M. Vincent and R. Wadsworth. "The GREAT spectrometer", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **204**, 634-637, 2003.
- [Pap09] P. Papadakis, R.-D. Herzberg, J. Pakarinen, P.A. Butler, P.J. Coleman-Smith, J.R. Cresswell, P.T. Greenless, 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  $\gamma$ -ray and conversion electron spectroscopy", *AIP Conference Proceedings*, **1090**, 14-20, 2009.

- [Pap10] P. Papadakis. "Combining in-beam  $\gamma$ -ray and conversion electron spectroscopy - The SAGE spectrometer", *Thèse de doctorat*, Université de Liverpool, Royaume-Uni, 2010.
- [Pap11] P. Papadakis, R.-D. Herzberg, J. Pakarinen, P.T. Greenlees, J. Sorri, P.A. Butler, P.J. Coleman-Smith, D.M. Cox, J.R. Cresswell, K. Hauschild, P. Jones, R. Julin, I.H. Lazarus, S.C. Letts, E. Parr, P. Peura, V.F.E. Pucknell, P. Rahkila, J. Sampson, M. Sandzelius, D.A. Seddon, J. Simpson, J. Thornhill and D. Wells. "The SAGE spectrometer: a tool for combined in-beam  $\gamma$ -ray and conversion electron spectroscopy", *Journal of Physics: Conference Series*, **312**, 052017, 2011.
- [Pap12] P. Papadakis, D.M. Cox, J. Konki, P.A. Butler, P.T. Greenlees, K. Hauschild, R.-D. Herzberg, J. Pakarinen, P. Rahkila, M. Sandzelius and J. Sorri. "A Geant4 simulation package for the SAGE spectrometer", *Journal of Physics: Conference Series*, **381**, 012051, 2012.
- [Pat02] J.B. Patin. "Experimental cross sections for reactions of heavy ions and  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{209}\text{Bi}$ ,  $^{238}\text{U}$  and  $^{248}\text{Cm}$  targets", *Thèse de doctorat*, Université de Californie, LBNL, Etats-Unis d'Amérique, 2002.
- [Pau95] 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. "In-beam  $\gamma$ -ray spectroscopy above  $^{100}\text{Sn}$  using the new technique of recoil decay tagging", *Physical Review C*, **51**, 1, 78-87, 1995.
- [Pay04] J.F. Payack, D.L. Hughes, D. Cai, I.F. Cottrell and T.R. Verhoeven. "Dimethyltitanocene, [Titanium, bis( $\eta^5$ -2,4-cyclopentadien-1-yl)dimethyl- ]", *Organic Syntheses*, **10**, 355-358, 2004.
- [Pet12] I. Petermann, K. Langanke, G. Martínez-Pinedo, I.V. Panov, P.-G. Reinhard and F.-K. Thielemann. "Have superheavy elements been produced in nature ?", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **48**, 122, 2012.
- [Pio10] J. Piot. "Sur la route de l'îlot de stabilité superlourd. Spectroscopie prompt des noyaux  $^{246}\text{Fm}$  et  $^{256}\text{Rf}$ ", *Thèse de doctorat*, Université de Strasbourg, IPHC/DRS UMR7178, 23 rue du loess, 67037 Strasbourg, France, 2010.
- [Pio11] J. Piot, B.J.-P. Gall, O. Dorvaux, P.T. Greenlees, L.L. Andersson, D.M. Cox, F. Dechery, T. Grahn, K. Hauschild, G. Henning, A. Herzan, R.-D. Herzberg, F.P. Heßberger, U. Jakobsson, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, T.-L. Khoo, M. Leino, J. Ljungvall, A. Lopez-Martens, P. Nieminen, J. Pakarinen, P. Papadakis, E. Parr, P. Peura, P. Rahkila, S. Rinta-Antila, J. Rubert, P. Ruotsalainen, M. Sandzelius, J. Sarén, C. Scholey, D. Seweryniak, J. Sorri, B. Sulignano, Ch. Theisen and J. Uusitalo. "Investigation of  $^{246}\text{Fm}$ : in-beam spectroscopy at the limits", *AIP Conference Proceedings*, **1377**, 301-305, 2011.
- [Pio12a] J. Piot, B.J.-P. Gall, O. Dorvaux, P.T. Greenlees, N. Rowley, L.L. Andersson, D.M. Cox, F. Dechery, T. Grahn, K. Hauschild, G. Henning, A. Herzan,

- R.-D. Herzberg, F.P. Heßberger, U. Jakobsson, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, T.-L. Khoo, M. Leino, J. Ljungvall, A. Lopez-Martens, P. Nieminen, J. Pakarinen, P. Papadakis, E. Parr, P. Peura, P. Rahkila, S. Rinta-Antila, J. Rubert, P. Ruotsalainen, M. Sandzelius, J. Sarén, C. Scholey, D. Seweryniak, J. Sorri, B. Sulignano, Ch. Theisen and J. Uusitalo. "In-beam spectroscopy with intense ions beams: Evidence for a rotational structure in  $^{246}\text{Fm}$ ", *Physical Review C*, **85**, 041301(R), 2012.
- [Pio12b] J. Piot, P.T. Greenlees, H. Savajols, E. Clément, C. Stodel, B.J.-P. Gall, D. Ackermann, S. Antalic, B. Bastin, L. Caceres, F. Dechéry, O. Dorvaux, A. Drouart, H. Faure, J. Gibelin, K. Hauschild, G. Henning, R.-D. Herzberg, F.P. Heßberger, J. Konki, W. Korten, J. Ljungvall, A. Lopez-Martens, T. Roger, J. Rubert, M. Sandzelius, J. Sorri, B. Sulignano, Ch. Theisen, J.C. Thomas and J. Uusitalo. "Decay spectroscopy of  $^{257}\text{Db}$ ", *GANIL Proposal E656*, 2012.
- [Pio13] J. Piot, B. JP. Gall, O. Dorvaux, P. Medina et al., "Digital Signal Processing : a major step forward for  $\gamma$ -ray spectroscopy" *To be submitted*.
- [Pro15] W. Prout. "On the relation between the specific gravities of bodies in their gaseous state and the weights of their atoms", *Annals of Philosophy*, **6**, 321-330, 1815.
- [Pro16] W. Prout. "Correction of a mistake in the essay on the relation between the specific gravities of bodies in their gaseous state and the weights of their atoms", *Annals of Philosophy*, **7**, 111-113, 1816.
- [Qia09] J. Qian, A. Heinz, T.L. Khoo, R.V.F. Janssens, D. Peterson, D. Seweryniak, I. Ahmad, M. Asai, B.B. Back, M.P. Carpenter, A.B. Garnsworthy, J.P. Greene, A.A. Hecht, C.L. Jiang, F.G. Kondev, T. Lauritsen, C.J. Lister, A. Robinson, G. Savard, R. Scott, R. Vondrasek, X. Wang, R. Winkler and S. Zhu. "Spectroscopy of  $^{257}\text{Rf}$ ", *Physical Review C*, **79**, 064319, 2009.
- [Rac43] G. Racah. "Theory of complex spectra. III", *Physical Review*, **63**, 9-10, 367-382, 1943.
- [Rah08] P. Rahkila. "Grain - A Java data analysis system for Total Data Readout", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **595**, 637-642, 2008.
- [Rah10] P. Rahkila, D.G. Jenkins, J. Pakarinen, C. Gray-Jones, P.T. Greenlees, U. Jakobsson, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, H. Koivisto, M. Leino, P. Nieminen, M. Nyman, P. Papadakis, S. Paschalis, M. Petri, P. Peura, O.J. Roberts, T. Ropponen, P. Ruotsalainen, J. Sarén, C. Scholey, J. Sorri, A.G. Tuff, J. Uusitalo, R. Wadsworth, M. Bender and P.-H. Heenen. "Shape coexistence at the proton drip-line: First identification of excited states in  $^{180}\text{Pb}$ ", *Physical Review C*, **82**, 011303(R), 2010.
- [Rei99] P. Reiter, T.L. Khoo, C.J. Lister, D. Seweryniak, I. Ahmad, M. Alcorta, M.P. Carpenter, J.A. Cizewski, C.N. Davids, G. Gervais, J.P. Greene, W.F. Henning, R.V.F. Janssens, T. Lauritsen, S. Siem, A.A. Sonzogni, D. Sullivan, J. Uusitalo, I. Wiedenhöver, N. Amzal, P.A. Butler, A.J. Chewter, K.Y. Ding,

- N. Fotiades, J.D. Fox, P.T. Greenlees, R.-D. Herzberg, G.D. Jones, W. Korten, M. Leino and K. Vetter. "Ground-state band and deformation of the  $Z = 102$  Isotope  $^{254}\text{No}$ ", *Physical Review Letter*, **82**, 3, 509-512, 1999.
- [Rob08] A.P. Robinson, T.L. Khoo, I. Ahmad, S.K. Tandel, F.G. Kondev, T. Nakatsukasa, D. Seweryniak, M. Asai, B.B. Back, M.P. Carpenter, P. Chowdhury, C.N. Davids, S. Eeckhauudt, J.P. Greene, P.T. Greenlees, S. Gros, A. Heinz, R.-D. Herzberg, R.V.F. Janssens, G.D. Jones, T. Lauritsen, C.J. Lister, D. Peterson, J. Qian, U.S. Tandel, X. Wang and S. Zhu. " $K^\pi = 8^-$  isomers and  $K^\pi = 2^-$  octupole vibrations in  $N = 150$  shell-stabilized isotones", *Physical Review C*, **78**, 034308, 2008.
- [Rob11] A.P. Robinson, T.L. Khoo, D. Seweryniak, I. Ahmad, M. Asai, B.B. Back, M.P. Carpenter, P. Chowdhury, C.N. Davids, J. Greene, P.T. Greenlees, K. Hauschild, A. Heinz, R.-D. Herzberg, R.V.F. Janssens, D.G. Jenkins, G.D. Jones, S. Ketelhut, F.G. Kondev, T. Lauritsen, C.J. Lister, A. Lopez-Martens, P. Marley, E. McCutchan, P. Papadakis, D. Peterson, J. Qian, D. Rostron, U. Shirwadkar, I. Stefanescu, S.K. Tandel, X. Wang and S. Zhu. "Search for a 2-quasiparticle high- $K$  isomer in  $^{256}\text{Rf}$ ", *Physical Review C*, **83**, 064311, 2011.
- [Roh94] J.W. Rohlif. "Modern physics from A to Z", *John Wiley and Sons*, 1994.
- [Rou13] D. Rouvel and J. Dudek. Calculs des orbitales des particules individuelles du noyau de  $^{256}\text{Rf}$  en utilisant la méthode Woods-Saxon Universal, communication privée, 2013.
- [Rub10] J. Rubert and L. Sengele. "Etude de spectrométrie de masse de composés organo-métalliques destinés à la production de faisceaux isotopiques", *Rapport du Traitement Informatique d'un Projet de Physique*, Master 2 Physique Subatomique et Astroparticules, Université de Strasbourg, IPHC/DRS, 2010.
- [Rub12a] J. Rubert, J. Piot, Z. Asfari, B.J.-P. Gall, J. Ärje, O. Dorvaux, P.T. Greenlees, H. Koivisto, A. Ouadi and R. Seppälä. "First intense isotopic titanium-50 beam using MIVOC method", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **276**, 33-37, 2012.
- [Rub12b] J. Rubert, B.J.-P. Gall, O. Dorvaux, H. Faure, F. Le Blanc, P.T. Greenlees, K. Auranen, A. Herzán, T. Grahn, U. Jakobsson, R. Julin, S. Juutinen, J. Konki, M. Leino, J. Partanen, P. Peura, P. Rahkila, P. Ruotsalainen, M. Sandzelius, J. Sarén, C. Scholey, J. Sorri, S. Stolze and J. Uusitalo. "Letter of Intent: Feasibility study of the prompt in-beam  $\gamma$ -ray spectroscopy of  $^{257}\text{Rf}$ ", *JYFL Proposal R49*, 2012.
- [Rub13a] J. Rubert, O. Dorvaux, B.J.-P. Gall, P.T. Greenlees, Z. Asfari, J. Piot, L.L. Andersson, M. Asai, D.M. Cox, F. Dechery, T. Grahn, K. Hauschild, G. Henning, A. Herzan, R.-D. Herzberg, F.P. Heßberger, U. Jakobsson, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, T.-L. Khoo, M. Leino, J. Ljungvall, A. Lopez-Martens, R. Lozeva, P. Nieminen, J. Pakarinen, P. Papadakis, E. Parr, P. Peura, P. Rahkila, S. Rinta-Antila, P. Ruotsalainen, M. Sandzelius, J. Sarén, C. Scholey, D. Seweryniak, J. Sorri, B. Sulignano, Ch. Theisen, J. Uusitalo

- and M. Venhart. "First prompt in-beam  $\gamma$ -ray spectroscopy of a superheavy element: the  $^{256}\text{Rf}$ ", *Journal of Physics: Conference Series, 11<sup>th</sup> International Conference on Nucleus-Nucleus Collisions (NN2012)*, **420**, 012010, 2013.
- [Rub13b] J. Rubert, B.J.-P. Gall, O. Dorvaux, P.T. Greenlees, J. Piot, L.L. Andersson, M. Asai, Z. Asfari, D.M. Cox, F. Dechery, T. Grahn, K. Hauschild, G. Henning, A. Herzan, R.-D. Herzberg, F.P. Heßberger, U. Jakobsson, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, T.-L. Khoo, M. Leino, J. Ljungvall, A. Lopez-Martens, R. Lozeva, P. Nieminen, J. Pakarinen, P. Papadakis, E. Parr, P. Peura, M.G. Porquet, P. Rahkila, S. Rinta-Antila, D. Rouvel, P. Ruotsalainen, M. Sandzelius, J. Sarén, C. Scholey, D. Seweryniak, J. Sorri, B. Sulignano, Ch. Theisen, J. Uusitalo and M. Venhart. "High- $K$  isomeric states investigations in the  $^{256}\text{Rf}$  superheavy element", *to be submitted to Physical Review C*, 2013.
- [Rus61] L.I. Rusinov. "Nuclear isomerism", *Soviet Physics Uspekhi*, **4**, 2, 282-290, 1961.
- [Rut11] E. Rutherford. "The scattering of  $\alpha$  and  $\beta$  particles by matter and the structure of the atom", *Philosophical Magazine*, **21**, 669, 1911.
- [Sai02] N. Saito, P. Doornenbal, J. Gerl, I. Kojouharov, T.R. Saitoh and H. Schaffner. "Pulse shape analysis with a VEGA Ge-detector", *Rapport du GSI*, 2002.
- [San10] M. Sandzelius, K. Hauschild, A. Lopez-Martens, P.T. Greenlees, D. Ackermann, P.A. Butler, V. Chepigin, D. Curien, F. Dechery, O. Dorvaux, A. Drouart, G. Duchêne, B.J.-P. Gall, T. Grahn, G. Henning, R.-D. Herzberg, A. Herzan, 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, J. Ljungvall, O. Malyshev, P. Nieminen, P. Papadakis, P. Peura, A. Popeko, P. Rahkila, P. Ruotsalainen, J. Sarén, C. Scholey, J. Sorri, B. Sulignano, A. Svirikhin, Ch. Theisen, J. Uusitalo and A. Yeremin. "Complete spectroscopy of the transfermium nucleus  $^{255}\text{Lr}$ ", *JYFL Proposal S09*, 2010.
- [Sav03] H. Savajols for the VAMOS Collaboration. "VAMOS: A variable mode high acceptance spectrometer for identifying reaction products induced by SPIRAL beams", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **204**, 146-153, 2003.
- [Scha06] M. Schädel. "Chemistry of superheavy elements", *Angewandte Chemie International Edition*, **45**, 368-401, 2006.
- [Schm84] K.-H. Schmidt, C.C. Sahm, K. Pielenz and H.G. Clerc. "Some remarks on the error analysis in the case of poor statistics", *Zeitschrift für Physik A, Hadrons and Nuclei*, **316**, 19-26, 1984.
- [Schm86] 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  $^{90}\text{Zr} + ^{90}\text{Zr}$ ", *Physics Letters B*, **168**, 1-2, 39-42, 1986.
- [Schm00] K.-H. Schmidt. "A new test for random events of an exponential distribution", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **8**, 141-145, 2000.

- [Schm10] C. Schmitt, M. Rejmund, A. Navin, B. Lecornu, B. Jacquot, G. de France, A. Lemasson, A. Shrivastava, P. Greenlees, J. Uusitalo, K. Subotic, L. Gaudefroy, Ch. Theisen, B. Sulignano, O. Dorvaux and L. Stuttgé. "New gas-filled mode of the large-acceptance spectrometer VAMOS", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **621**, 558-565, 2010.
- [Sco09] J. Scott and D.J. Mindiola. "A tribute to Frederick Nye Tebbe. Lewis acid stabilized alkylidyne, alkylidene, and imides of 3d early transition metals", *Dalton Transactions*, 8463-8472, 2009.
- [Sea46] G.T. Seaborg, E.M. McMillan, J.W. Kennedy and A.C. Wahl. "Radioactive element 94 from deuterons on uranium", *Physical Review*, **69**, 7-8, 366-367, 1946.
- [Sea51] G.T. Seaborg. "The transuranium elements: present status", *Nobel Prize Lecture*, 1951.
- [Sed05] D. Seddon. Représentation tri-dimensionnelle du dispositif expérimental du JYFL composé de JUROGAM II-RITU-GREAT, 2005.
- [Sew10] D. Seweryniak, T.L. Khoo, I. Ahmad, F.G. Kondev, A. Robinson, S.K. Tandel, M. Asai, B.B. Back, M.P. Carpenter, P. Chowdhury, C.N. Davids, S. Eeckhaudt, J.P. Greene, P.T. Greenlees, S. Gros, K. Hauschild, A. Heinz, R.-D. Herzberg, R.V.F. Janssens, D.G. Jenkins, G.D. Jones, S. Ketelhut, T. Lauritsen, C.J. Lister, A. Lopez-Martens, P. Marley, E.A. Mc Cutchan, T. Nakatsukasa, P. Papadakis, D. Peterson, J. Qian, D. Rostron, I. Stefanescu, U.S. Tandel, X.F. Wang and S.F. Zhu "Bridging the nuclear structure gap between stable and super heavy nuclei", *Nuclear Physics A*, **834**, 357c-361c, 2010.
- [SHE06] Fiche du projet ANR SHELS.  
[http://www.agence-nationale-recherche.fr/projet-anr/?tx\\_lwmsuivibilan\\_pi2%5BCODE%5D=ANR-06-BLAN-0034](http://www.agence-nationale-recherche.fr/projet-anr/?tx_lwmsuivibilan_pi2%5BCODE%5D=ANR-06-BLAN-0034)
- [Shi09] U. Shirwadkar. "Spectroscopy of heavy elements:  $K$ -isomers in  $^{246, 248}\text{Cm}$ ", *Thèse de doctorat*, Université de Massachusetts Lowell, Etats-Unis d'Amérique, 2009.
- [Sie04] 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. Macchiavelli, E.F. Moore, D. Nisius and C. Schück. "Excitation energies and spins of the yrast superdeformed band in  $^{191}\text{Hg}$ ", *Physical Review C*, **70**, 014306, 2004.
- [Smo97] R. Smolańczuk. "Properties of the hypothetical spherical superheavy nuclei", *Physical Review C*, **56**, 2, 812-824, 1997.
- [Sob01] A. Sobiczewski, I. Muntian and Z. Patyk. "Problem of "deformed" superheavy nuclei", *Physical Review C*, **63**, 034306, 2001.
- [Som85] L.P. Somerville, M.J. Nurmia, J.M. Nitschke, A. Ghiorso, E.K. Hulet and R.W. Loughheed. "Spontaneous fission of rutherfordium isotopes", *Physical Review C*, **31**, 1801-1815, 1985.

- [SPI00] Site du projet SPIRAL2.  
<http://pro.ganil-spiral2.eu/spiral2/>
- [Ste83] F.S. Stephens. "Properties of nuclei at high-spins", *Physica Scripta T*, **5**, 5-9, 1983.
- [Str06] B. Streicher. "Synthesis and spectroscopic properties of transfermium isotopes with  $Z = 105, 106$  and  $107$ ", *Thèse de doctorat*, Université de Bratislava, Slovaquie, 2006.
- [Sub02] K. Subotic, Yu.Ts. Oganessian, V.K. Utyonkov, Yu.V. Lobanov, F.Sh. Abdullin, A.N. Polyakov, Yu.S. Tsyganov and O.V. Ivanov. "Evaporation residue collection efficiencies and position spectra of the Dubna gas-filled recoil separator", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **481**, 71-80, 2002.
- [Sul07a] B. Sulignano, S. Heinz, F.P. Heßberger, S. Hofmann, D. Ackermann, S. Antalic, B. Kindler, I. Kojouharov, P. Kuusiniemi, B. Lommel, R. Mann, K. Nishio, A.G. Popeko, S. Saro, B. Streicher, M. Venhart and A.V. Yeremin. "Identification of a  $K$  isomer in  $^{252}\text{No}$ ", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **33**, 327-331, 2007.
- [Sul07b] B. Sulignano. "Search for  $K$  isomers in  $^{252,254}\text{No}$  and  $^{260}\text{Sg}$  and investigation of their nuclear structure", *Thèse de doctorat*, GSI and Johannes Gutenberg-University, Allemagne, 2010.
- [Sul12] B. Sulignano, Ch. Theisen, J.-P. Delaroche, M. Girod, J. Ljungvall, D. Ackermann, S. Antalic, O. Dorvaux, A. Drouart, B.J.-P. Gall, A. Görgen, P.T. Greenlees, K. Hauschild, R.-D. Herzberg, F.P. Heßberger, U. Jakobsson, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, W. Korten, M. Leino, A. Lopez-Martens, M. Nyman, A. Obertelli, J. Pakarinen, P. Papadakis, E. Parr, P. Peura, J. Piot, P. Rahkila, D. Rostron, P. Ruotsalainen, J. Sarén, C. Scholey, J. Sorri, J. Uusitalo, M. Venhart and M. Zielińska. "Investigation of high- $K$  states in  $^{252}\text{No}$ ", *Physical Review C*, **86**, 044318, 2012.
- [Suo06] P. Suominen, O. Tarvainen and H. Koivisto. "First results with a modified multipole structure electron cyclotron resonance ion source", *Review of Scientific Instruments*, **77**, 03A332, 2006.
- [Svi12] A.I. Svirikhin, A.V. Andreev, V.N. Dushin, M.L. Chelnokov, V.I. Chepigin, M. Gupta, A.V. Isaev, I.N. Izosimov, D.E. Katrasev, A.N. Kuznetsov, O.N. Malyshev, S. Mullins, A.G. Popeko, E.A. Sokol and A.V. Yeremin. "The emission of prompt neutrons from the spontaneous fission of  $^{252}\text{No}$  and  $^{244}\text{Fm}$ ", *The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, **48**, 121-126, 2012.
- [Tan06] S.K. Tandel, T.L. Khoo, D. Seweryniak, G. Mukherjee, I. Ahmad, B. Back, R. Blinstrup, M.P. Carpenter, J. Chapman, P. Chowdhury, C.N. Davids, A.A. Hecht, A. Heinz, P. Ikin, R.V.F. Janssens, F.G. Kondev, T. Lauritsen, C.J. Lister, E.F. Moore, D. Peterson, P. Reiter, U.S. Tandel, X. Wang and S. Zhu. " $K$  isomers in  $^{254}\text{No}$ : Probing single-particle energies and pairing strengths in the heaviest nuclei", *Physical Review Letters*, **97**, 082502, 2006.

- [Tar04] O. Tarvainen, P. Suominen and H. Koivisto. "Effect of the gas mixing technique on the production efficiency of ion beams extracted from an electron cyclotron resonance ion source", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **217**, 136-142, 2004.
- [The08] Ch. Theisen, A. Lopez-Martens and Ch. Bonnelle. "Internal conversion and summing effects in heavy-nuclei spectroscopy", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **589**, 230-242, 2008.
- [The09] Ch. Theisen. "Spectroscopie du noyau : déformations et masses extrêmes", *Habilitation à Diriger les Recherches*, Université Paris-Sud 11, CEA Saclay, 2009.
- [The10] Ch. Theisen, P.T. Greenlees, R.-D. Herzberg, D. Ackermann, P.A. Butler, A. Chatillon, F. Dechery, O. Dorvaux, A. Drouart, B.J.-P. Gall, T. Grahn, K. Hauschild, G. Henning, A. Herzan, F.P. Heßberger, U. Jakobsson, F. Jeanneau, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, S. Ketelhut, W. Korten, M. Leino, J. Ljungvall, A. Lopez-Martens, R. Lozeva, P. Nieminen, A. Obertelli, P. Papadakis, P. Peura, M. Piiparinen, J. Piot, P. Rahkila, S. Rinta-Antila, J. Rubert, P. Ruotsalainen, M.-D. Salsac, M. Sandzelius, J. Saren, C. Scholey, J. Sorri, B. Sulignano and J. Uusitalo. "Spectroscopy of the odd-proton  $^{249,251}\text{Md}$ ", *JYFL Proposal S10*, 2010.
- [Tho97] J.J. Thomson. "Cathode rays", *Philosophical Magazine*, **44**, 293-316, 1897.
- [Tho99] J.J. Thomson. "On the masses of the ions in gases at low pressures", *Philosophical Magazine*, **48**, 547-567, 1899.
- [Tsy99] Yu.S. Tsyganov. "The Dubna gas-filled recoil separator: status and developments", *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*, **25**, 937-940, 1999.
- [Uus03] 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. Leppänen, P. Nieminen, R. Page, J. Pakarinen, C. Scholey and the JUROSPHERE Collaboration. "In-beam spectroscopy using the JYFL gas-filled magnetic recoil separator RITU", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, **204**, 638-643, 2003.
- [Van11] P. Van Isacker. "Seniority isomers in nuclei", *Journal of Physics: Conference Series, 34<sup>th</sup> Symposium on Nuclear Physics*, **322**, 012003, 2011.
- [Vio85] V.E. Viola, K. Kwiatkowski and M. Walker. "Systematics of fission fragment total kinetic energy release", *Physical Review C*, **31**, 1550-1552, 1985.
- [Von07] R. Vondrasek, R. Scott and R. Pardo. "Solid material development with the Argonne National Laboratory ECR ion sources", *High Energy Physics and Nuclear Physics*, **31**, Supp. I, 101-104, 2007.
- [Wal99] P. Walker and G. Dracoulis. "Energy traps in atomic nuclei", *Nature*, **399**, 35-40, 1999.



- [Wan12] M. Wang, G. Audi, A.H. Wapstra, F.G. Kondev, M. MacCormick, X. Xu and B. Pfeiffer. "The AME2012 atomic mass evaluation (II). Tables, graphs and references", *Chinese Physics C*, **36**, 1603-2014, 2012.
- [Wei35] C.F. von Weizsäcker, "Zur Theorie der Kernmassen", *Zeitschrift für Physik*, **96**, 431-458, 1935.
- [Wer58] F.G. Werner and J.A. Wheeler. "Superheavy nuclei", *Physical Review*, **109**, 1, 126-144, 1958.
- [Whe55] J.A. Wheeler. *Proceedings of the international conference on the peaceful uses of atomic energy*, Geneva, 8-20 August, United Nations 1956, **2**, 155.
- [Wie12] I. Wiedenhöver. "Viewpoint: Putting a spin on superheavy element", *Physics*, **5**, 73, 2012.
- [Wil54] G. Wilkinson and J.M. Birmingham. "Bis-cyclopentadienyl Compounds of Ti, Zr, V, Nb and Ta", *Journal of the American Chemical Society*, **76**, 4281-4284, 1954.
- [Wol90] B.H. Wolf, J. Bossler, H. Emig, K.D. Leible, M. Müller, D.M. Rück and P. Spädtke. "Development of heavy ions source at GSI", *Review of Scientific Instruments*, **61**, 1, 406-408, 1990.
- [Woo55] R.D. Woods and D.S. Saxon. "Diffuse surface optical model for nucleon-nuclei scattering", *Physical Review*, **95**, 577-578, 1955.
- [Wu92] C. Wu, J.Y. Zeng, Z. Xing, X.Q. Chen and J. Meng. "Spin determination and calculation of nuclear superdeformed bands in  $A \approx 190$  region", *Physical Review C*, **45**, 1, 261-274, 1992.
- [Xie97] Z.Q. Xie and C.M. Lyneis. *Proceedings of the 13<sup>th</sup> International Workshop on ECR Ion Sources*, Texas A&M, College Station, USA, 16, 1997.
- [Xie98] Z.Q. Xie. "Production of highly charged ion beams from electron cyclotron resonance ion sources", *Review of Scientific Instruments*, **69**, 2, 625-630, 1998.
- [Xu04] F.R. Xu, E.G. Zhao, R. Wyss and P.M. Walker. "Enhanced stability of superheavy nuclei due to high-spin isomerism", *Physical Review Letters*, **92**, 252501, 2004.
- [Yer89] A.V. Yeremin, A.N. Andreyev, D.D. Bogdanov, V.I. Chepigina, V.A. Gorshkov, A.I. Ivanenko, A.P. Kabachenko, L.A. Rubinskaya, E.M. Smirnova, S.V. Stepanov, E.N. Voronkov and G.M. Ter-Akopian. "The Vassilissa facility for electrostatic separation and study of complete fusion reaction products", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **274**, 3, 528-532, 1989.
- [Yer97] A.V. Yeremin, D.D. Bogdanov, V.I. Chepigina, 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 VASSILISSA. Performance and experimental results", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **126**, 1-4, 329-333, 1997.

- [Zav06] P.A. Zavodszky, B. Arend, D. Cole, J. DeKamp, G. Machicoane, F. Marti, P. Miller, J. Moskalik, J. Ottarson, J. Vincent, A. Zeller and N.Yu. Kazarinov. "Status report on the design and construction of the Superconducting Source for Ions at the National Superconducting Cyclotron Laboratory/Michigan State University", *Review of Scientific Instruments*, **77**, 03A334, 2006.
- [Zag04] V.I. Zagrebaev. "Fusion-fission dynamics of super-heavy element formation and decay", *Nuclear Physics A*, **734**, 164-167, 2004.
- [Zag13] V.I. Zagrebaev, A. Karpov and W. Greiner. "Future of superheavy element research: Which nuclei could be synthesized within the next few years?", *Journal of Physics: Conference Series*, *11<sup>th</sup> International Conference on Nucleus-Nucleus Collisions (NN2012)*, **420**, 012001, 2013.
- [Zha06] Y. Zhang and Y. Mu. "Highly efficient one-step direct synthesis of monocyclopentadienyltitanium complexes", *Organometallics*, **25**, 631-634, 2006.
- [Zha13a] Z.-H. Zhang, J. Meng, E.-G. Zhao and S.-G. Zhou. "Rotational properties of the superheavy nucleus  $^{256}\text{Rf}$  and its neighboring even-even nuclei in a particle-number-conserving cranked shell model", *Physical Review C*, **87**, 054308, 2013.
- [Zha13b] Z.Y. Zhang, L. Ma, Z.G. Gan, M.H. Huang, T.H. Huang, G.S. Li, X.L. Wu, G.B. Jia, L. Yu, H.B. Yang, Z.Y. Sun, X.H. Zhou, H.S. Xu and W.L. Zhan. "A gas-filled recoil separator, SHANS", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Material and Atoms*, available online doi: 10.1016/j.nimb.2013.05.062, in press on 19 June 2013.
- [Zhu02] X.K. Zhu, A. Makishima, Y. Guo, N.S. Belshaw and R.K. O'Nions. "High precision measurement of titanium isotope ratios by plasma source mass spectrometry", *International Journal of Mass Spectrometry*, **220**, 21-29, 2002.





## Résumé

La course internationale à la synthèse des éléments les plus lourds a permis de compléter la classification périodique de Mendeleïev jusqu'à l'élément  $Z = 118$ . Cette région étant très difficile d'accès expérimentalement, le tant recherché Îlot de Stabilité superlourd, ultime regain de stabilité prédit par différentes modélisations de la structure nucléaire, n'a pas été mis en évidence. Toutefois, les noyaux transfermia avec un  $Z$  entre 100 et 106 peuvent être actuellement étudiés par spectroscopie fine et apporter ainsi des informations sur la force nucléaire. Dans le cadre de ma thèse, j'ai abordé en ce sens le noyau de  $^{256}\text{Rf}$  ( $Z = 104$ ,  $N = 152$ ).

Un faisceau d'ions de  $^{50}\text{Ti}$  est nécessaire pour synthétiser ce noyau superlourd par réaction de fusion-évaporation dans une cible de  $^{208}\text{Pb}$ . Plusieurs composés organométalliques de titane ont été développés à l'IPHC puis testés et comparés en collaboration avec le JYFL (Jyväskylä, Finlande) afin de mettre en évidence la molécule la plus adaptée à la méthode MIVOC. Ces travaux d'optimisation et d'adaptation ont permis d'obtenir au JYFL un faisceau MIVOC isotopique intense de  $^{50}\text{Ti}$  pour la première fois au monde.

Grâce au spectromètre JUROGAM II, j'ai pu étudier par spectroscopie prompte les rayonnements gamma émis par les noyaux de  $^{256}\text{Rf}$ , eux-mêmes identifiés à l'aide du séparateur RITU et du système de détection GREAT. Cette analyse a permis de mettre en évidence une bande de rotation s'étendant jusqu'à un spin de  $20^+$ , la première jamais observée pour un noyau superlourd. Après la présentation des sélections effectuées, la caractérisation de ces transitions ainsi que les moments d'inertie associés sont discutés et comparés avec ceux de la région d'intérêt.

J'aborde également l'approche en spectroscopie retardée qui été réalisée sur ces noyaux afin d'étudier leurs états excités de longue durée de vie. Ce travail a mis en évidence trois états isomériques qui sont présentés, caractérisés en détails et comparés avec les résultats d'expériences antérieures. Les informations sur la structure quantique qui en découlent sont aussi présentées.

## Abstract

The international race to the synthesis of the heaviest elements allowed to extend the Mendeleev periodic table up until the element  $Z = 118$ . This region being very difficult to access experimentally, the long-sought superheavy Island of Stability, ultimate renewal of the stability predicted by various modelings of the nuclear structure, was not discovered. However, transfermium nuclei with  $Z$  from 100 to 106 can currently be studied by spectroscopic techniques and bring strong information on the nuclear force. Within this framework, I studied in particular the  $^{256}\text{Rf}$  ( $Z = 104$ ,  $N = 152$ ) nuclei during my thesis.

A beam of  $^{50}\text{Ti}$  ions is necessary to synthesize this superheavy nucleus by reaction of fusion-evaporation in a  $^{208}\text{Pb}$  target. Several organometallic compounds of titanium were developed at IPHC Strasbourg, tested and compared in collaboration with JYFL (Jyväskylä, Finland) in order to select the most adapted molecule to the MIVOC method. This optimization and adaptation work allowed to obtain for the first time in the world an intense isotopic MIVOC beam of  $^{50}\text{Ti}$  ions.

Thanks to the JUROGAM II spectrometer, I was able to study by in-beam prompt spectroscopy the gamma-rays emitted by the  $^{256}\text{Rf}$ , which were identified thanks to the RITU separator and of the GREAT detection system. This analysis revealed a rotational band extending up to a spin of  $20^+$ , the first one ever observed for a superheavy nucleus. After the presentation of the selection method, the characterization of these transitions and the associated moments of inertia are discussed in the framework of the region of interest.

I also discuss the approach by means of delayed spectroscopy which was done on these nuclei in order to study their long lifetime excited states. This work highlighted three isomeric states that are presented, characterized in detail and compared with the results of previous experiments. The information on the quantum structure, which can be obtained from it, is also presented.