HAL
open science

Production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL pour SPIRAL

F. Landre-Pellemoine

To cite this version:

F. Landre-Pellemoine. Production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL pour SPIRAL. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Caen, 2001. Français. NNT : . tel-00008873

HAL Id: tel-00008873

https://theses.hal.science/tel-00008873v1

Submitted on 25 Mar 2005

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.

GANIL T 01 03

Université de Caen / Basse-Normandie
U.F.R. : Sciences

ÉCOLE DOCTORALE SIMEM :
Sciences des Structures, de l'Information, de la Matière Et des Matériaux

THESE

présentée par

Mme Frédérique LANDRÉ - PELLEMOINE

et soutenue

le 23 octobre 2001

en vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN
Spécialité : Constituants élémentaires

Titre :

Production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL pour SPIRAL

JURY

Directeur de thèse : Mme Marie Geneviève SAINT LAURENT

M. Oscar NAVILIAT – CUNCIC (Président)
M. Pierre BRICAULT (Rapporteur)
M. Alex C. MUELLER (Rapporteur)
M. Dominique GOUTTE
M. Marcel TOULEMONDE

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier tout d'abord la direction du GANIL : Messieurs D. Guerreau, J.Fouan, D. Goutte et M. Lewitowicz ainsi que le chef du projet SPIRAL : M. Lieuvin pour m'avoir accueillie au sein du laboratoire GANIL et permis d'effectuer ma thèse dans les meilleures conditions.

Je remercie P. Bricault et A. C. Mueller qui ont bien voulu examiner mes travaux et en être les rapporteurs malgré un emploi du temps chargé. J'exprime également ma reconnaissance à O. Naviliat-Cuncic qui a présidé le jury de ma thèse ainsi qu'à Messieurs D. Goutte, et M. Toulemonde qui ont accepté de faire partie de ce jury.

J'aimerais remercier tout particulièrement M. G. Saint Laurent, qui a dirigé ma thèse, pour m'avoir fait confiance tout au long de ces trois années de thèse et d'avoir suivi avec le plus grand intérêt l'avancement de ce travail. Encore un grand merci pour ses encouragements, son aide, ses idées et les discussions nombreuses qui m'ont permis d'aller au fond des réflexions.

Je remercie vivement L. Maunoury pour tout le temps qu'il a passé sur mon rapport et toutes les discutions et les remarques constructives qu'il a émises.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à l'équipe de développement des cibles-sources sans qui ce travail ne serait pas réalisé : R. Leroy, N. Lecesne, G. Gaubert, P. Jardin, J. Y. Pacquet, A. C. C. Villari, S. Gibouin, C. Barué, P. Leherissier, J. P. Rataud. Leur bonne humeur, leurs connaissances et l'efficacité dans leur travail ont été la base de cette thèse.

Je remercie toutes les personnes qui ont participé, de près ou de loin à ce travail de thèse et aux nombreuses collaborations : Y. Huguet qui a "planché" pour moi pendant tout ce temps, C. Marry pour sa disponibilité sur SIRa, D. Simeone (Laboratoire d'études des matériaux absorbants du CEA Saclay) pour ses nombreuses informations sur le Carbure de Bore, Monsieur Metivet (Quartz et Silice) pour ses échantillons de Carbure de Bore, F. Osterstock et M. Gomina (Equipe structure et comportement thermomécanique des matériaux du Laboratoire de CRIstallographie et Sciences des MATériaux de CAEN) pour le temps joyeux passé sur le microscope électronique, G. Dhilly, C. Troude et le service radioprotection, J. C. Angélique, C. Stodel, J. M. Casandjian, O. Bajeat et C. Lau (IPN Orsay), M. Ozille et S. Le Noël.

De nombreuses personnes du GANIL ont contribué à l'avancement de ce travail, notamment toutes les personnes des services techniques, informatiques et administratifs et plus particulièrement l'atelier mécanique, le groupe acquisition et le groupe opération des accélérateurs et tous les efforts qu'ils ont fournis tout au long de cette thèse.

Merci à mes compagnons de route et amis pour leur bonne humeur : S. Kandri Rody (pour les "vacances" à Marrakech), D. Nayak (thank you for your english lessons), S. Rastello (pour les quelques brasses en sa compagnie), V. Duflot-Flandrois (pour tous les bons moments passés à vulgariser les sciences), J. Guillot.

Enfin je garde une dernière pensée toute particulière pour mes parents sans qui je ne serai arrivée jusque là, merci à ma famille et à toi Laurent pour ton soutien inconditionnel, ta patience et ta compréhension pour toutes mes absences.

Table des Matières

Introduction.....9

CHAPITRE I

La méthode ISOL : de la production à l'ionisation……...13

I–1 La production d'ions radioactifs 14
I-1-1 Paramètre d'impact et section efficace 14
I-1-2 Les mécanismes de réaction aux énergies élevées..... 15
I-1-3 Les mécanismes de réaction à basse énergie (E_{proj} < 10 MeV/A)..... 15
I-1-4 Les mécanismes de réaction aux énergies intermédiaires 17
I-1-5 La production à GANIL 18
I–2 Problème de diffusion - effusion 18
I-2-1 Les mécanismes élémentaires de la diffusion 18
I-2-1-1 Diffusion à basse température..... 19
I-2-1-2 Diffusion à moyenne température..... 19
I-2-1-3 Diffusion à haute température..... 19
I-2-2 Principe de diffusion pure 19
I-2-3 Principe d'effusion pure..... 22
I-2-4 Efficacité de diffusion effusion..... 23
I–3 L'ionisation..... 24
I-3-1 L'ensemble dédié aux gaz rares radioactifs : source ECR..... 24
I-3-1-1 Le confinement magnétique..... 25
I-3-1-2 Le chauffage des électrons..... 26
I-3-1-3 Les ensembles cible source Nanogan II et Nanogan III..... 27
I-3-2 L'ensemble dédié aux alcalins : MONOLITHE 29
I-3-2-1 Principe de fonctionnement d'une source à ionisation de surface..... 29
I-3-2-2 Choix du matériau du ioniseur 30
I-4 Quel matériau pour les cibles ? 33
I-4-1 Le Cahier des charges des cibles..... 33
I-4-2 Le carbone..... 36
I-4-2-1 Fabrication du graphite artificiel polygranulaire 36
I-4-2-2 Structure du graphite..... 37
I-4-2-3 Caractéristiques du graphite 1 et 4 µm 38
I-4-3 Le carbure de bore..... 40
I-4-3-1 Fabrication du B_4C..... 40

I-4-3-2 Structure du B_4C 41
I-4-3-3 Propriétés du B_4C 41
I-4-3-4 Caractéristiques du B_4C 43
I-5 Le banc de tests SIRa 43
I-6 SPIRAL 45
Conclusion 47

CHAPITRE II

La thermique des cibles.....49

II-1 Les principes de base 52
II-1-1 La conduction 52
II-1-1-1 Loi de Fourier 52
II-1-1-2 Equation de la chaleur 53
II-1-2 La convection 53
II-1-2-1 La convection naturelle 54
II-1-2-2 La convection forcée 55
II-1-3 Le rayonnement 56
II-2 La modélisation 57
II-2-1 Logiciel SYSTUS et options de calculs 58
II-2-1-1 Principe des éléments finis 58
II-2-1-2 Schéma d'intégration – cas linéaire 58
II-2-1-3 Schéma d'intégration – cas non linéaire 59
II-2-1-4 La géométrie 60
II-2-2 Programme GANIL 62
II-2-3 comparaison des codes de calculs 63
II-3 Tests et simulations sur le diagnostic THI 67
II-3-1 Définition du problème 67
II-3-1-1 Diagnostic THI 67
II-3-1-2 Rappel des tests sur le prototype 68
II-3-2 Expérience et simulations : mesures de conductivité thermique 68
II-3-2-1 Principe des mesures 68
II-3-2-2 Mesures expérimentales 69
II-3-2-3 Simulations SYSTUS 71
II-3-3 Simulations thermiques du diagnostic 2 71
II-3-4 En résumé 73
Conclusion 74

CHAPITRE III

La cible pour la production d'Argons et de Néons radioactifs.....77

III–1 Fiabilité des cibles pour la production d'argon et de néon 78
III-1-1 Premières modifications apportées 78
III-1-2 Tests de tenue en température 82
III-2 Simulations thermiques sur la cible - Abaques 84

III-3 La diffusion dans la cible 86
III-3-1 Principe de la mesure 86
III-3-2 Résultats expérimentaux 87
III-3-2-1 Changement de source 90
III-3-2-2 Changement de fabricant de carbone 90
III-3-2-3 Changement de régime de diffusion 92
III-3-2-4 Effet labyrinthe 94
III-3-2-5 Changement de système de chauffage de la cible 95
III-3-3 En résumé 95
III-4 Production des Argons radioactifs avec la cible 97
III-4-1 Distribution d'état de charge 97
III-4-2 Les taux de production 98
III-4-3 Production de l'^{31}Ar 99
III-5 Production des Néons radioactifs avec la cible 101
III-5-1 les taux de production 101
III-5-2 Temps de montée du ^{17}Ne 101
III-5-2-1 Principe de la mesure 101
III-5-2-2 Résultats expérimentaux 103
III-5-3 Taux de production des isotopes du Néon riches en neutron 104
Conclusion 104

CHAPITRE IV

La cible pour la production d'Héliums radioactifs ……107

IV-1 Diffusion de l'^{6}He dans le carbone 1µm 109
IV-2 Utilisation du carbure de Bore B_4C 110
IV-2-1 Conception de la cible 110
IV-2-2 Diffusion dans le B_4C et dans un bloc de carbone 111
IV-2-2-1 Diffusion dans un bloc de carbone 113
IV-2-2-2 Diffusion dans le B_4C 116
IV-2-3 Les taux de production d'^{6,8}He avec la cible dite B_4C 117
IV-3 Cible en carbone 119
IV-3-1 Cahier des charges 119
IV-3-2 Problèmes de thermique 121
IV-3-2-1 Abaques de température 122
IV-3-2-2 Etude en transitoire 124
IV-3-2-3 Tests de tenue thermique de la cible hors-ligne 126
IV-3-3 Taux de production 126
IV-3-4 Mesure de temps de montée 127
IV-4 Vérification des cibles avant l'installation sur SPIRAL 131
IV-4-1 Les Contrôles Non Destructifs 131
IV-4-2 Tests des cibles pour SPIRAL 132
Conclusion 132

CHAPITRE V

La cible pour la production d'alcalins radioactifs : MONOLITHE……135

V-1 La production de faisceau de ^{11}Li. 136
V-1-1 Equipements pour la production "en vol" 136
V-1-2 Equipement utilisant la méthode ISOL 137
V-1-3 Taux de ^{11}Li auprès des différentes installations 139
V-1-3-1 Méthode en vol 140
V-1-3-2 Méthode ISOL 140
V-1-4 A GANIL 141
V-2 Premiers tests 144
V-2-1 Tests hors ligne 144
V-2-2 Mesure du travail de sortie. 145
V-2-3 Mesure d'efficacité de l'ensemble sur une cible "cheveux". 146
V-3 Version cavité chaude 148
V-3-1 Cahier des charges 148
V-4-2 Principe de fonctionnement d'une source à cavité chaude 149
V-4-3 Faisabilité thermique de l'ensemble MONOLITHE 150
V-4-4 Les problèmes de diffusion et d'effusion 153
V-4-4-1 Première approche 154
V-4-4-2 Deuxième approche 154
V-5 Perspectives 156
Conclusion 157

Conclusion Générale……..……159

Bibliographie ……..……..163

Annexe A : Caractéristiques des matériaux.……171

Annexe B : Mode de détection pour les faisceaux radioactifs Ar et He.…175

Annexe C : Taux de production attendus pour SPIRAL…….185

Annexe D : Efficacité de diffusion effusion des isotopes d'Argon……..….187

Annexe E : Résultats des simulations SYSTUS pour les cibles Hélium…193

Annexe F : Résultats des simulations SYSTUS pour MONOLITHE……203

Annexe G : Code de calcul d'effusion……209

INTRODUCTION

La physique des noyaux exotiques (isotope d'un élément ayant un nombre de neutrons différent de leurs isotopes stables) est la continuité naturelle de l'étude de la radioactivité démarrée par Henri Becquerel, en 1896, en observant la radioactivité naturelle de l'Uranium, puis par Pierre et Marie Curie, en 1898, en isolant le Polonium et le Radium. Dès 1934, Irène et Frederic Joliot furent les premiers physiciens à créer en laboratoire des noyaux instables. Depuis, la physique nucléaire expérimentale s'est très fortement développée, grâce notamment aux progrès technologiques des accélérateurs de particules légères et de noyaux d'ions lourds.

Depuis 1983, avec la mise en route de GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) à Caen, la communauté des physiciens tant français qu'étrangers, venant y réaliser des expériences, est dans la course à l'étude des noyaux exotiques. Le domaine des noyaux dits "exotiques" produits par cassure de noyaux lourds, est devenu un des thèmes majeurs de recherche au GANIL. Les principales observables étudiées sont, entre autre, l'existence des noyaux et leur masse qui nous renseignent sur la cohésion des forces nucléaires, les caractéristiques de leur désintégration (période, type de radioactivité mise en jeu…). Les informations données par ces études sont autant de renseignements pour vérifier les prédictions des théories, dont les fondements ont été élaborés à partir de la connaissance acquise avec l'étude des noyaux stables. Actuellement, les principaux sites dont le nom vient rapidement à l'esprit, quand on pense "noyaux exotiques", sont GANIL pour la France, GSI pour l'Allemagne, ISOLDE au CERN, MSU aux Etats-Unis, RIKEN au Japon, TRIUMF au Canada … Pour une description plus complète, on pourra se référer aux références suivantes : [Dup-98] [Mue-00 a] [Nol-98] [Tan-98].

Si les faisceaux radioactifs de très basse énergie sont réalisés depuis longtemps, dès l985, c'est I. Tanihata et al., probablement pour la première fois, qui ont utilisé des faisceaux

radioactifs accélérés à haute énergie pour induire des réactions nucléaires, dites secondaires, sur des cibles. Ces faisceaux dit "secondaires", ont permis d'ouvrir des possibilités de physique intéressante, comme par exemple d'étudier les noyaux à halos de neutrons ou de protons. I. Tanihata et al. [Tan-85] [Tan-85b], à Berkeley, ont mesuré que la section efficace totale d'interaction du ^{11}Li avec d'autres noyaux était beaucoup plus importante que pour les autres noyaux. En 1987, P. G. Hansen et B. Jonson [Han-87] proposaient alors le modèle du noyau à halo : les neutrons et les protons excédentaires forment un nuage diffus appelé halo. Ils s'aventurent loin du "cœur" habituel de nucléons, bien au delà des dimensions nucléaires habituelles : le ^{11}Li correspond à un cœur de ^{9}Li, avec trois protons et six neutrons, et à un halo de deux neutrons. Depuis, la physique des noyaux exotiques est devenue très à la mode et la compétition autour de l'étude de la structure des noyaux exotiques a été et est toujours très importante auprès des accélérateurs GANIL (France), RIKEN (Japon), MSU (USA), GSI (Allemagne) …De nombreuses études concernent :

- la physique des noyaux à halos (mesure de rayon, structure des nucléons dans le halo, densité, corrélation entre nucléons …),
- la déformation des noyaux et fermeture des couches, loin de la stabilité (mesure des premiers niveaux excités des noyaux exotiques par excitation coulombienne, mesure de masse et des caractéristiques de décroissance…).

La qualité des résultats, obtenus lors des expériences, dépend fortement de l'abondance des noyaux produits ainsi que du développement d'outils expérimentaux mieux adaptés. Des efforts constants ont été réalisés pour élargir la palette des noyaux exotiques produits et ainsi explorer des zones de plus en plus éloignées de la stabilité. Du fait que les faisceaux radioactifs "secondaires" sont directement issus d'une réaction nucléaire par fragmentation en vol, ils possèdent une grande énergie (>30MeV/A) et sont souvent de qualités optiques médiocres. De nombreuses expériences nécessitent des faisceaux radioactifs de plus basse énergie, de meilleures qualités optiques et ayant des intensités aussi grandes que possible. Les accélérateurs de faisceaux radioactifs sont basés sur la méthode ISOL (Isotopic Separation On Line). Les pionniers de cette méthode sont O. Kofoed-Hansen et al. [Kof-51] et S. Borg et al. [Bor-65]. ISOLDE (CERN) a amélioré la technique et ouvert son utilisation à presque tous les noyaux. Dans cette méthode, l'atome radioactif produit par réaction nucléaire est arrêté dans la cible, diffuse hors de celle ci grâce à l'énergie thermique. Une fois arrivé à la surface de la cible, l'atome va effuser jusqu'à une source d'ionisation. Généralement, les cibles sont portées à haute température afin de faciliter ces processus de diffusion effusion. Enfin, les atomes seront ionisés dans la source d'ions. Louvain-la-Neuve est le premier laboratoire à avoir réaccéléré des faisceaux radioactifs basés sur le principe ISOL.

Historiquement, GANIL a développé des faisceaux radioactifs par la fragmentation du projectile en vol avec les installations LISE (Ligne d'Ions Super Epluchés) [Ann-87][Ann-92] en 1984 et SISSI (Source d'Ions à Solénoïdes Supraconducteurs Intenses) [Jou-91] en 1994. Le projet SPIRAL (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne), basé sur la méthode ISOL et qui démarrera en septembre 2001, offre à GANIL, une complémentarité

avec des faisceaux radioactifs dont la gamme d'énergie s'étend de 1.7 à 25MeV/A. Cette installation, est constituée d'un système de production d'ions radioactifs (ensemble cible source) suivi d'un post accélérateur : CIME (Cyclotron pour Ions de Moyenne Energie).

La construction de telles machines nécessite de nombreuses études de recherche et développement, et fait intervenir des domaines de physique et de technologie très variés : technique des accélérateurs, du vide, des sources d'ions, transfert de chaleur, étude des matériaux et processus de diffusion dans les matériaux, physique du solide, radioprotection, physique nucléaire, informatique, robotique…

De tels projets réclament des compétences de plus en plus diverses et des collaborations importantes. En particulier, les accélérateurs de moindre dimension peuvent jouer un rôle important au niveau de la R&D, nécessaire au développement de ces machines, ceci du fait de leur plus grande disponibilité en temps de faisceaux et leur moindre coût. On citera à titre d'exemple le laboratoire de Jyväskylä où a été développé le premier système IGISOL (Ion Guide Isotope Separator On-Line) qui permet de fournir des noyaux exotiques sans sélectivité chimique et ayant de très court temps de vie, et l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay (France) où le dispositif PARRNe2 (Production d'Atome Radioactif Riche en Neutron) [Cot-00] [Ibr-00] [Lau-00] permet, entre autre, de développer des ensembles cible-source pour les machines nécessaires à l'avenir de cette physique, dans le cadre de contrats européens tels que SPIRAL phase II [Sai-01] à moyen terme ou EURISOL [EUR] à plus long terme.

L'objet de cette thèse est axé sur le développement de ces systèmes de production (ensemble cible source) d'ions radioactifs. Il est basé sur l'étude des différentes étapes de la production des faisceaux radioactifs : la production par fragmentation de la cible et/ou du projectile, la diffusion hors du matériau cible, l'effusion jusqu'à la source d'ionisation et enfin l'ionisation des atomes radioactifs. Chaque étape doit être étudiée pour optimiser au mieux les taux de production et donc les intensités des faisceaux radioactifs pour SPIRAL.

La première partie de ce travail, essentiellement descriptive, répond aux objectifs suivants :

- le premier chapitre pose les bases de la théorie pour chaque étape de la production de faisceaux radioactifs : de la production par la méthode ISOL à l'ionisation. Une recherche bibliographique a permis de faire un choix entre les différents matériaux candidats pour la fabrication des cibles de production. Ce chapitre présente SPIRAL dans son ensemble avec le cyclotron CIME. Le banc de tests SIRa (Séparateur d'Ions Radioactifs) y est décrit pour situer dans quel contexte les expériences de ce travail ont été réalisées.

- le deuxième chapitre présente les différents modes de transfert de chaleur qui est la base des simulations thermiques effectuées tout au long de cette thèse.

La seconde partie est divisée en trois chapitres. Dans chacun d'eux, le travail effectué au cours de cette thèse sur trois ensembles cible source différents y sont exposé :

- le troisième chapitre présente les modifications apportées sur la cible du premier ensemble cible source dédié à la production des gaz rares et plus particulièrement des Argons et des Néons radioactifs.

- le quatrième chapitre, quant à lui, décrit toutes les étapes de la conception de la cible dédiée à la production d'Héliums radioactifs : de la définition du cahier des charges à la réalisation de tests en ligne (sous faisceau de 400W sur SIRa) et hors ligne (tests thermiques sur le banc de chauffage).

- enfin, le cinquième chapitre s'articule sur l'étude d'un nouvel ensemble cible source dédié à la production d'alcalins radioactifs et plus particulièrement du ^{11}Li qui présente un grand intérêt d'un point de vue de la physique (noyau à halo) mais aussi par sa difficulté technologique à le produire sous forme de faisceau.

Dans les chapitres III et IV, nous développerons les études réalisées sur les mesures de l'efficacité de diffusion effusion qui est un point crucial quant à l'amélioration des taux de production. Ces derniers seront mesurés sur le banc de tests SIRa. A partir de ces taux obtenus avec un faisceau primaire de 400W (que nous normaliserons systématiquement à 1µAp de faisceau primaire), les intensités attendues pour SPIRAL y seront extrapolées.

Enfin, une brève conclusion rappellera les principaux résultats de cette thèse ainsi que les améliorations pouvant être encore apportées pour augmenter les intensités pour SPIRAL.

CHAPITRE I

La méthode ISOL : de la production à l'ionisation

L'installation SPIRAL utilise la méthode ISOL (Isotopic Separation On-Line) pour la production et la séparation des faisceaux radioactifs : un faisceau stable d'ions accélérés par GANIL bombarde une cible épaisse. Une grande variété d'atome radioactif est ainsi produite par réactions nucléaires Dans cette méthode, l'atome radioactif produit par réaction nucléaire est arrêté dans la cible, diffuse hors de celle ci grâce à l'énergie thermique. Une fois arrivé à la surface de la cible, l'atome va effuser jusqu'à la source d'ionisation. Généralement, les cibles sont portées à haute température afin de faciliter ces processus de diffusion effusion. Enfin, les atomes seront ionisés dans une source d'ions, puis séparés avant d'êtres accélérés.

Dans un premier temps, nous exposerons les différentes étapes de la méthode ISOL (la production, la diffusion, l'effusion et l'ionisation). Une recherche bibliographique nous a permis de sélectionner des matériaux pouvant être utilisés pour les cibles. Nous présenterons ces résultats dans ce chapitre. Nous décrirons le banc de tests SIRa (Séparateur d'Ions Radioactifs) utilisé pour tester les ensembles cible source prévus pour SPIRAL et pour développer de nouveaux systèmes de production. Enfin, nous présenterons l'installation SPIRAL. Dans ce chapitre, les ensembles cible source seront décrits succinctement, puis détaillés dans les chapitres suivants faisant partie du travail de cette thèse.

D'un point de vue des ensembles cible source, pour maximiser les taux de production d'ions radioactifs, il faut d'une part, optimiser la production et la diffusion qui sont les deux processus important à prendre en compte au niveau de la cible, et d'autre part, il faut optimiser l'efficacité d'ionisation et de transport au niveau de la source d'ionisation.

I–1 La production d'ions radioactifs

La production d'ions radioactifs se fait principalement par bombardement d'une cible par un faisceau d'ions stables que nous appellerons projectiles. Suivant l'énergie, la nature du projectile et de la cible, les mécanismes rentrant en jeu sont différents en fonction du degré de dégradation. Les collisions vont être gouvernées, soit par des effets de champ moyen (interaction générée par l'ensemble des constituants du noyau sur un des constituants) principalement aux basses énergies, soit par des effets de collisions nucléon-nucléon (aux hautes énergies) qui sont liés à l'énergie des noyaux et au paramètre d'impact $\vec{b}$.

I-1-1 Paramètre d'impact et section efficace

Pour un paramètre d'impact $\vec{b}$, le nombre de projectiles N interagissant avec la cible peut s'écrire de la façon suivante :

$$dN = N_o db = N_o \frac{2\pi b db}{\pi R^2} \qquad \textbf{(I- 1)}$$

avec b le paramètre d'impact, N_o le nombre de particules incidentes et R le rayon de la cible.

$$\text{soit } \frac{dN}{db} \propto b \qquad \textbf{(I- 2)}$$

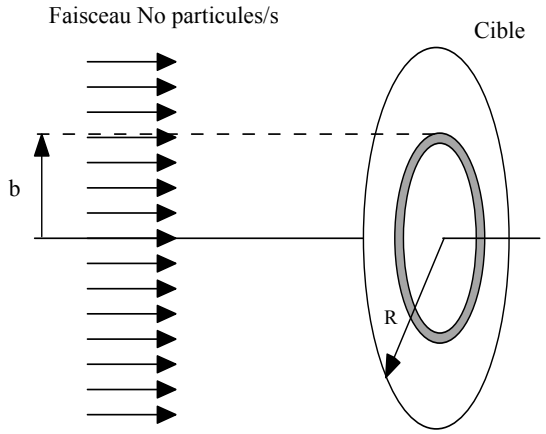


Fig. I-1 – *Définition du paramètre d'impact*

La section efficace totale de réaction σ peut être associée à un modèle géométrique et s'écrit sous la forme :

$N = \phi_o \sigma$ avec ϕ_o le flux de projectile

et $\sigma = \pi(b_2^{\,2} - b_1^{\,2})$ en barn **(I- 3)**

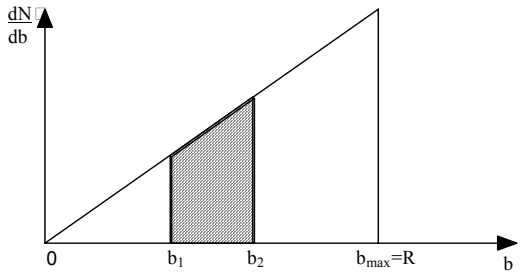


Fig. I-2 - *Nombre de projectiles interagissant avec la cible en fonction du paramètre d'impact* $\vec{b}$.

Suivant l'énergie du faisceau primaire et la valeur du paramètre d'impact, les mécanismes de réaction vont varier. Nous présentons ici une classification des principaux processus.

I-1-2 Les mécanismes de réaction aux énergies élevées

Typiquement, lorsque l'on utilise un couple noyau cible - noyau projectile où il y a une forte asymétrie de masse entre les deux partenaires, à des énergies comprises entre quelques centaines de MeV/A et quelques GeV/A, on provoque une émission de particules légères par évaporation de neutrons principalement : il s'agit de la spallation de la cible. La violence du processus dépend alors du nombre de collisions et donc du paramètre d'impact $\vec{b}$ entre le noyau léger et les constituants du noyau lourd. La spallation de la cible induite par des protons est utilisée par exemple à ISOLDE [ISO] et à TRIUMF [TRI-a] pour produire des éléments exotiques.

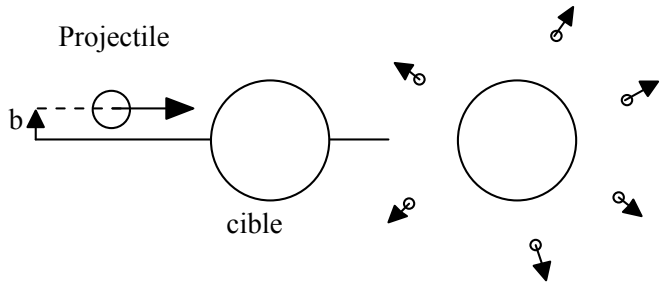


Fig. I- 3–*Processus de spallation de la cible*

Au-delà de 100MeV/A, suivant la valeur du paramètre d'impact $\vec{b}$, la zone de recouvrement sera plus ou moins importante. Cette zone appelée zone "participante" est un mélange d'une partie des noyaux cibles et des noyaux projectiles. Elle peut être très fortement excitée, voir comprimée. Cette zone émet des particules plus ou moins énergétiques qui vont interagir avec les noyaux projectiles et cibles "spectateurs".

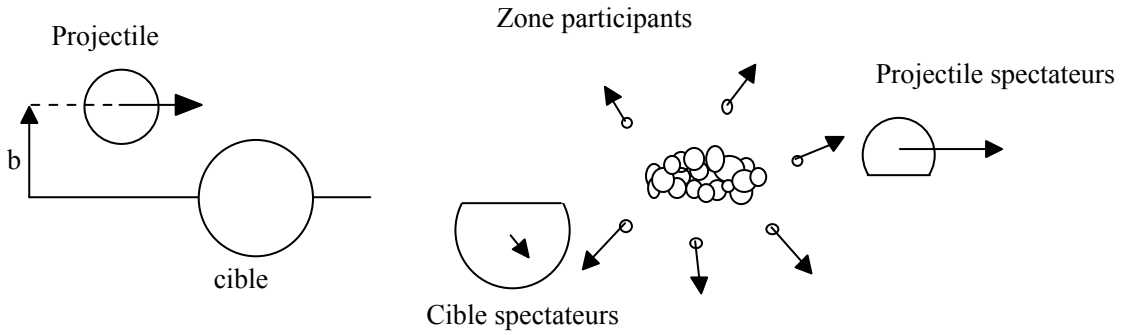


Fig. I-4 – *Processus spectateurs - participants*

I-1-3 Les mécanismes de réaction à basse énergie ($E_{proj} < 10$ MeV/A)

Les réactions apparaissent dès que l'énergie est au voisinage de la barrière coulombienne ou un peu supérieure. Pour un paramètre d'impact grand, les collisions seront périphériques avec des réactions de transfert d'un ou plusieurs nucléons. Le projectile cède des protons au noyau cible (appelé "stripping"), absorbe des neutrons de la cible (le "pick-up") ou échange plusieurs nucléons avec la cible. Dans ce processus, nous conservons le caractère binaire de l'ensemble cible projectile (les noyaux produits en finals sont très peu

différents de l'état initial). Ce mécanisme de réaction est typiquement réalisé à Louvain la Neuve [Gae-98].

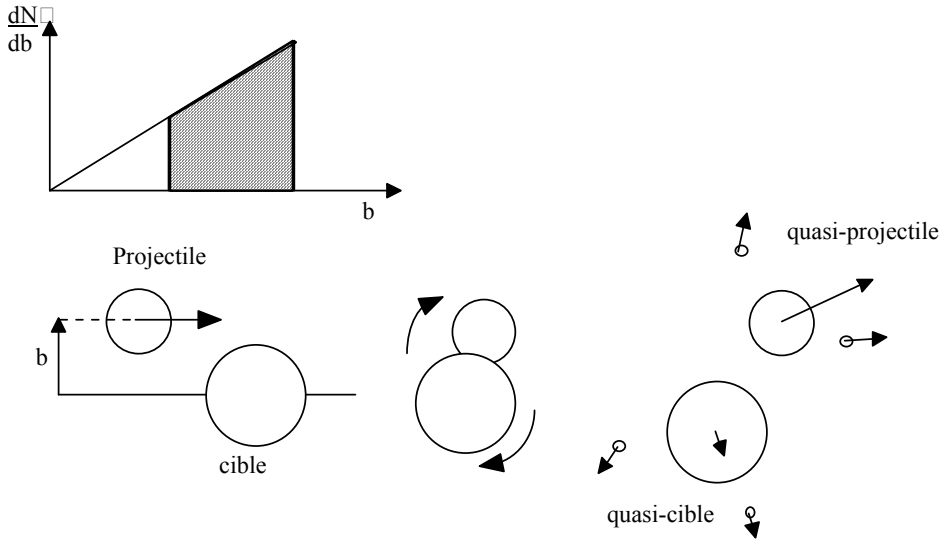


Fig. I-5 – *Collision périphérique – transfert d'un ou plusieurs nucléons.*

Par contre, si le paramètre d'impact est petit, la collision du projectile avec la cible sera plus centrale. Un noyau composé excité est formé. Sa désexcitation peut entraîner deux processus :

- la fission : le noyau composé va se rompre en deux fragments égaux (dans le cas de la fission symétrique) ou en deux fragments différents (dans le cas de la fission asymétrique). Ce mécanisme utilisé, entre autre, à ISOLDE [ISO] avec des protons incidents, sera utilisé à MAFF [MAF] avec des neutrons thermiques et à SPIRAL II [Sai-01], soit par la fission induite par des neutrons rapides, soit par la photo-fission.

- la fusion - évaporation : lorsqu'un noyau projectile fusionne avec un noyau cible, il forme un noyau composé qui va se refroidir par émission de particules légères puis de rayonnement γ. Ces réactions sont utilisées par exemple au séparateur ISOL de GSI [GSI] et à Oak Rige [ORNL].

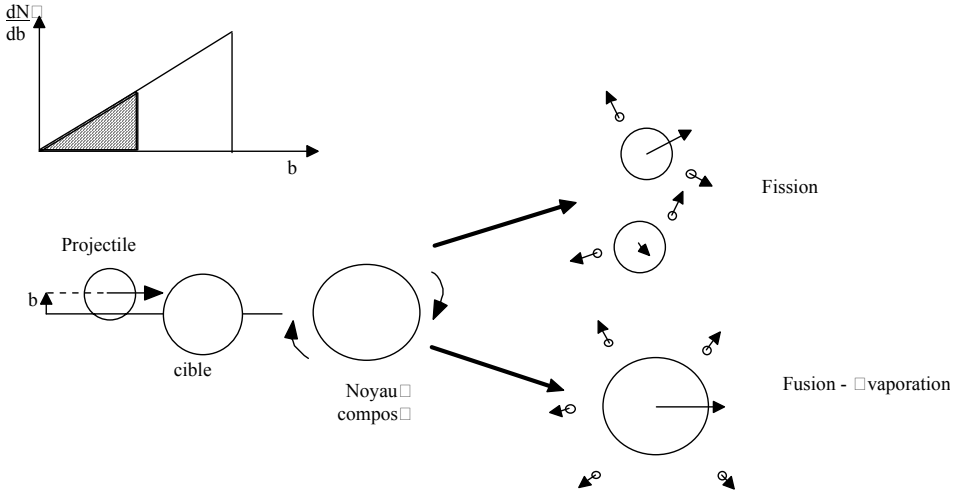


Fig. I-6 – *Collision centrale – Fission ou fusion – évaporation*

I-1-4 Les mécanismes de réaction aux énergies intermédiaires (10MeV/A< E_{proj} <100MeV/A)

Pour les énergies intermédiaires, les deux effets de champ moyen et de collisions nucléon-nucléon jouent.

Si le paramètre d'impact est grand, nous sommes en présence d'une collision dissipative et d'une fragmentation rapide conduisant à deux fragments proches (Fig. I-7) du projectile et de la cible (similitude avec les collisions périphériques et les réactions de transfert à basse énergie).

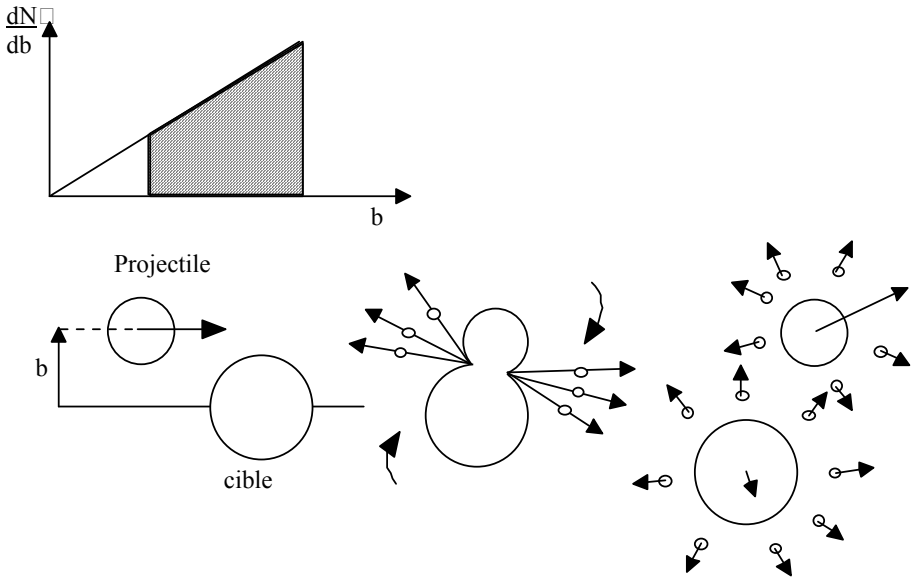


Fig. I-7 – *Processus de fragmentation dans le cas d'un paramètre d'impact grand.*

Si le paramètre d'impact est petit, le processus majoritaire est la multifragmentation. Le projectile et la cible se rompent alors en plusieurs fragments plus légers.

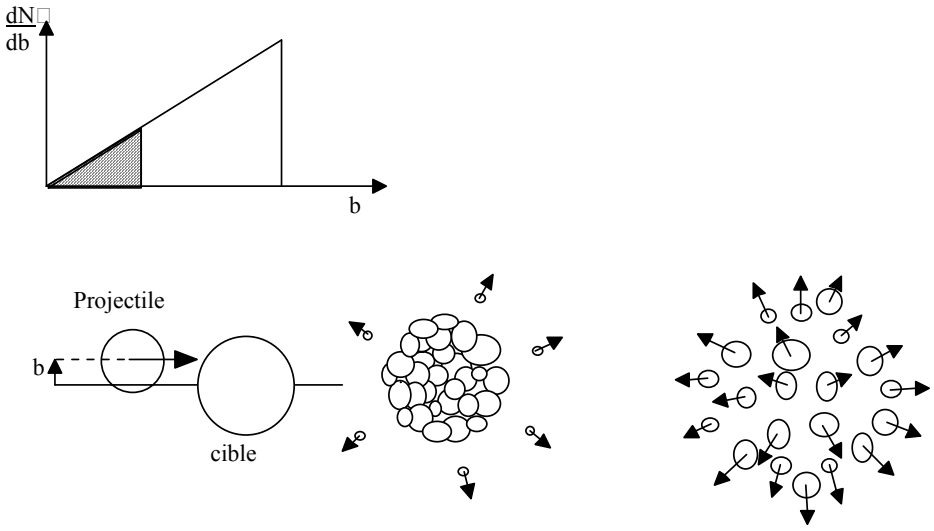


Fig. I-8 – *Processus de multifragmentation dans le cas d'un paramètre d'impact petit.*

I-1-5 La production à GANIL

GANIL accélère des faisceaux primaires d'ions stables dans une gamme d'énergie allant de 25 à 100 MeV/A. Le mécanisme le plus efficace pour la production de noyaux exotiques est alors la fragmentation. Dans ce cas, le taux de production total dans la cible est :

$$\tau_{production} = \Phi_p \sigma(A,Z) N_c$$
$$\sigma(A,Z) = \sigma_R P(A_c) e^{\left[-P(A_c)(A_c - A)\right]} n e^{\left[-R|Z_p - Z|^U\right]} \quad \textbf{(I- 4)}$$

avec Φ_p le flux incident (projectile), N_c le nombre de noyaux cibles, σ_R la section efficace totale de réaction, A_c la masse du noyau cible, les variations des paramètres R, U et P peuvent être trouvés dans les références de Sümmerer et al. [Süm-90] (EPAX1) [Süm-00] (EPAX2). Le taux de production sera d'autant plus grand que le nombre de nucléons projectiles est d'autant plus proche de celui du noyau d'intérêt. Ce taux est amélioré par un parcours du projectile important dans la cible et donc par le choix d'une cible ayant un Z petit.

Par contre, les faisceaux d'ions très lourds fournis par GANIL ont des énergies par nucléons faibles et sont peu intenses. Dans ce cas, la fission ou la spallation d'une cible de Z élevé sont les processus les plus efficaces pour la production de noyaux radioactifs de nombre de masse supérieur à 100.

Pour améliorer les intensités du faisceau primaire et donc les taux de production, le groupe du projet THI (Transport Haute Intensité) [Bar-95] [And-98] travaille, au GANIL, sur une série d'actions [Bar-98] pour augmenter et transporter les hautes intensités. Le cahier des charges du projet est d'augmenter les intensités actuelles avec 400W de puissance par un facteur 15 afin d'atteindre une puissance maximale de 6 kW pour les faisceaux légers (du Carbone à l'Argon). Une première étape permettra d'avoir une puissance faisceau de 2 kW.

Une fois produit par réaction nucléaire, l'atome va devoir sortir de la cible. Le processus qui va lui permettre de s'en échapper est le principe de diffusion.

I–2 Problème de diffusion - effusion

Deux processus vont intervenir : la diffusion et l'effusion. Les phénomènes de diffusion dans un solide correspondent à des sauts effectués par les atomes dans les défauts du cristal, sous l'effet de l'agitation thermique. On appelle effusion, le processus de transport d'un atome qui va aller en ligne droite jusqu'à une paroi de l'ensemble où il va rester coller un certain temps avant d'aller sur une autre paroi, et ce, jusqu'à atteindre la source d'ionisation.

I-2-1 Les mécanismes élémentaires de la diffusion

La diffusion d'un atome dans un milieu cristallin infini se traduit par un déplacement aléatoire de défaut en défaut. Dans le cas d'un solide polycristallin, plusieurs phénomènes peuvent coexister dans des plages de températures différentes [Dif-94].

I-2-1-1 Diffusion à basse température

Lorsque le solide est à basse température (loin de la température de fusion T_f), il n'y a pas de mouvement atomique, à part dans les zones les plus libres du cristal, c'est-à-dire en surface où les liaisons sont coupées.

Nous sommes alors en présence de diffusion superficielle où intervient généralement le mécanisme lacunaire : un atome va se déplacer de proche en proche en se substituant à une lacune voisine, si celui-ci a une énergie suffisante pour quitter sa position d'équilibre et sauter dans une lacune voisine.

I-2-1-2 Diffusion à moyenne température

Si la température du solide est comprise entre 0.3 et 0.5 fois la température de fusion T_f, un deuxième phénomène apparaît. La diffusion se fait alors dans les zones les plus perturbées du cristal, au niveau des joints de grain.

On parle alors de diffusion inter granulaire où les atomes migrent préférentiellement en échangeant leur position avec les défauts du joint de grain.

I-2-1-3 Diffusion à haute température

Lorsque la température augmente au-delà de 0.7 T_f, la diffusion dans le volume des grains prend de plus en plus d'importance par croissance exponentielle du nombre de défauts et se superpose aux autres phénomènes de diffusion : il s'agit alors de la diffusion en volume.

I-2-2 Principe de diffusion pure

En régime permanent et sans gradient de température, la première loi de Fick [Fic-85] stipule que le flux d'atome J par unité de temps parcourant une distance x est proportionnel au gradient de la concentration C de cet élément à travers le volume considéré :

$$J = -D.\mathrm{Grad}(C) \qquad \textbf{(I- 5)}$$

où D est le coefficient de diffusion (en $m^2.s^{-1}$) défini par l'équation :

$$D = D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{kT}\right)} \qquad \textbf{(I- 6)}$$

avec D_0 et E_a les coefficients d'Arrhenius. La constante de diffusion D_0 est exprimée en $m^2.s^{-1}$ et est reliée aux paramètres de la maille cristalline ainsi qu'à la fréquence de vibration de l'atome diffusant. E_a est l'énergie d'activation (en eV) que doit fournir l'atome ou la molécule pour aller de site en site à travers le solide.

En régime transitoire, c'est la deuxième loi de Fick qui intervient : la concentration varie en fonction du temps. Elle est proportionnelle à la variation du flux d'atomes à travers le volume considéré en l'absence de terme source, soit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\mathrm{div}(J) = \mathrm{div}(D.\mathrm{Grad}(C)) \qquad \textbf{(I- 7)}$$

En associant à l'équation (I- 7) un terme de taux de production d'atomes radioactifs et de pertes d'atomes par décroissance radioactive $-\lambda C(r,t)$, on obtient l'équation suivante :

$$\frac{\partial C}{\partial t} - \mathrm{div}(D.\mathrm{Grad}(C)) + \lambda C = q \qquad \textbf{(I- 8)}$$

Où q est le taux de production d'atomes radioactifs, C la concentration dans le solide et λ le temps de demi-vie de l'atome, $\lambda = \ln 2/T_{1/2}$. Résoudre cette équation revient à déterminer C(r,t) afin d'en déduire le flux d'atomes radioactifs qui sort de la cible, et donc l'efficacité de diffusion d'un atome dans un matériau donné.

On ramène alors cette équation à un problème mixte de Cauchy-Dirichlet, elle a déjà été résolue dans la référence [Mau-98]. On obtient comme solution, la concentration des atomes radioactifs en fonction du temps en un point r.

$$C(r,t) = 2q\sum_{k=1}^{\infty}\frac{(-1)^{(k+1)}}{\mu_k + \lambda}\frac{\sin\left(\frac{k\pi r}{\rho}\right)}{\frac{k\pi r}{\rho}}\left(1 - e^{-(\mu_k+\lambda)t}\right) \qquad \textbf{(I- 9)}$$

En utilisant la deuxième loi de Fick (équation I-7), le flux recherché a pour expression :

$$\tau_{diff} = -D\frac{\partial C(\rho,t)}{\partial r}4\pi\rho^2 = \frac{6Q}{\pi^2}\sum_{k=1}^{\infty}\frac{\mu_0}{\mu_k + \lambda}\left(1 - e^{-(\mu_k+\lambda)t}\right) \qquad \textbf{(I- 10)}$$

où $Q = q\frac{4}{3}\pi\rho^3$ est le nombre total d'ions radioactifs créés dans le grain. L'efficacité de diffusion est alors la limite pour t tendant vers l'infini de l'expression $\xi_{diff} = \frac{\tau_{diff}}{Q}$.

Finalement, à partir de l'équation I-10, l'efficacité de diffusion s'écrit :

a/ pour une sphère :

$$\xi_{diff} = \frac{6}{\pi^2}\sum_{k=1}^{\infty}\frac{1}{k^2 + \frac{\lambda}{\mu_0}} = 3\frac{\left(\sqrt{\frac{\pi^2\lambda}{\mu_0}}\coth\sqrt{\frac{\pi^2\lambda}{\mu_0}} - 1\right)}{\frac{\pi^2\lambda}{\mu_0}} \qquad \textbf{(I- 11)}$$

avec $\mu_0 = \frac{\pi^2 D}{a^2}$, qui est l'équivalent de l'inverse d'un temps caractéristique de diffusion et a le rayon du grain (équation I-11) ou demi épaisseur dans le cas d'une feuille (équation I-12).

b/ pour une feuille :

$$\xi_{diff} = \frac{8}{\pi^2}\sum_{k=0}^{\infty}\frac{1}{(2k+1)^2 + \frac{\lambda}{\mu_0}} = \frac{\tanh\sqrt{\frac{\pi^2\lambda}{\mu_0}}}{\sqrt{\frac{\pi^2\lambda}{\mu_0}}} \qquad \textbf{(I- 12)}$$

L'efficacité de diffusion est supérieure pour une sphère que pour une fibre ou une feuille dans un même matériau, comme le montre Fujioka [Fuj-81] dans la figure I-9 :

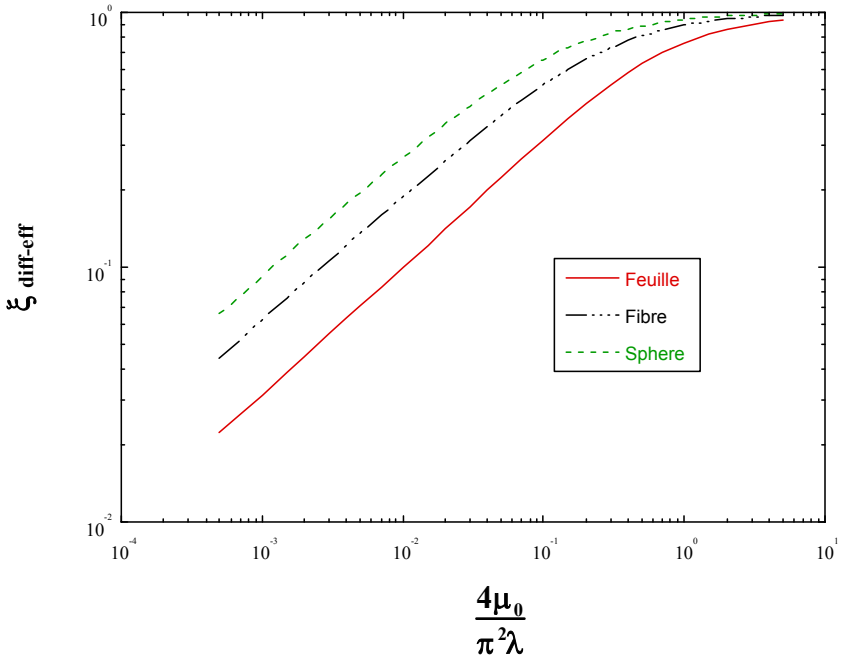


Fig. I- 9- *Comparaison de l'efficacité de diffusion d'un atome dans une sphère, une feuille ou une fibre en fonction du paramètre $4\mu_o/\pi^2\lambda$ où μ_o et λ sont l'inverse, respectivement d'un temps caractéristique de diffusion et de la période radioactive.*

Il sera donc judicieux de choisir une structure en poudre ou en grains pour les cibles plutôt qu'une structure sous forme de cheveux ou de feuilles empilées, ceci à condition que l'effusion entre les grains soit négligeable.

La diffusion D [Alt-92] dans un solide est voisine des valeurs dans un liquide lorsque la température du solide est proche du point de fusion du solide, mais diminue rapidement quand la température devient plus basse suite à une baisse de l'énergie cinétique nécessaire pour passer la barrière de potentiel. Ainsi, une température élevée entraîne un temps de sortie plus rapide des atomes hors du solide.

Il est donc intéressant d'utiliser des matériaux réfractaires n'ayant pas une valeur de pression de vapeur importante à haute température, évitant ainsi une forte évaporation qui serait néfaste pour le bon fonctionnement de la source d'ionisation et raccourcierait la durée de vie de la cible.

En résumé, la diffusion d'un atome radioactif est donc dictée par cinq paramètres (équation I-11) :

- les deux coefficients d'Arrhenius E_a et $LogD_0$ qui sont liés au couple atome diffusant-cible

- le diamètre des grains d est un des paramètres principaux qui gouverne la diffusion et l'effusion dans la cible : la diffusion sera d'autant plus rapide que la taille de grain est petite, la distance pour sortir du grain sera plus courte.
- la température T qui intervient dans le terme du coefficient de diffusion D (équation I-6). La figure I-10 montre l'importance d'avoir une température élevée au sein de la cible (de l'ordre de 2000 K) afin d'améliorer l'efficacité de diffusion effusion.
- le temps de vie $T_{1/2}$ de l'atome diffusant qui apparaît sous la forme $\lambda=\ln 2/T_{1/2}$, ce temps limite l'efficacité $\xi_{diff\ eff}$ pour les atomes de $T_{1/2}$ court car ils risquent de se désintégrer avant de sortir du grain.

I-2-3 Principe d'effusion pure

Par analogie avec la sortie d'un volume à travers un orifice, Kirchner [Kir-92] décrit la fonction retard d'effusion sous la forme :

$$p_\nu(t) = \nu e^{-\nu t} \qquad \textbf{(I- 13)}$$

où ν est la constante de temps telle que le temps moyen d'effusion est :

$$\tau_\nu = \frac{1}{\nu} = \chi(\tau_a + \tau_v) \qquad \textbf{(I- 14)}$$

Dans cette équation, χ représente le nombre moyen de collisions avec les surfaces de l'ensemble jusqu'à la source d'ionisation. τ_a est le temps moyen de collage sur la surface. Il est dépendant de la température T (en K), et de l'enthalpie d'adsorption H_a (en eV) selon la loi I-15 définie par Frenkel [Boe-69]. Cette enthalpie est fortement dépendante du choix du couple atome adsorbé/adsorbant. τ_v est le temps de vol moyen entre deux collages [Car-78] [Alt-92].

$$\tau_a = \tau_0 e^{\frac{H_a}{kT}} \qquad \textbf{(I- 15)}$$

Pour la théorie de Frenkel, τ_0 est une constante de l'ordre de 10^{-13} s. Kirchner a mesuré un temps de collage τ_0 de 2.54 10^{-15} s pour le Tantale.

L'efficacité d'effusion est calculée en prenant en compte la durée de vie du noyau selon l'expression I-16 :

$$\begin{aligned} \xi_{eff} &= \int_{t=0}^{\infty} \nu e^{-\nu t} e^{-\lambda t} dt = \frac{\nu}{\nu + \lambda} \\ &\approx \frac{\nu}{\lambda} = 1{,}44\, \nu T_{1/2} \ \text{ pour } \nu T_{1/2} \leq 0.2 \end{aligned} \qquad \textbf{(I- 16)}$$

L'effusion dépend donc de la période radioactive $T_{1/2}$, alors que la diffusion dépend de la racine de cette période $\sqrt{T_{1/2}}$. L'effusion sera donc plus pénalisante que la diffusion pour des éléments de courte période radioactive.

Ainsi pour les condensables, dont l'enthalpie d'adsorption est élevée, la transmission à travers un tube froid est quasiment nul, alors qu'il y a très peu de perte pour les gaz rares dont

l'enthalpie d'adsorption est considérée comme négligeable. Cette propriété va définir une des caractéristiques des ensembles cible source utilisés pour SPIRAL.

I-2-4 Efficacité de diffusion effusion

À partir de la théorie précédente sur la diffusion et l'effusion, nous pouvons exprimer l'efficacité de diffusion effusion de la cible jusqu'à la chambre de la source d'ionisation sous la forme :

$$\xi_{diff-eff} = \frac{6}{\pi^2}\left(\frac{\nu}{\nu+\lambda}\right)\sum_{k=1}^{\infty}\left(\frac{1}{k^2+\frac{\lambda}{\mu_o}}\right) = 3\frac{\left(\sqrt{\frac{\pi^2\lambda}{\mu_o}}\coth\sqrt{\frac{\pi^2\lambda}{\mu_o}}-1\right)}{\frac{\pi^2\lambda}{\mu_o}}\left(\frac{\nu}{\nu+\lambda}\right) \quad \textbf{(I- 17)}$$

$$\text{soit } \xi_{diff-eff} = \xi_{diff}\xi_{eff} \quad \textbf{(I- 18)}$$

La figure I-10 [Mau-98], représentant l'efficacité de diffusion effusion $\xi_{diff-eff}$ de l'^{35}Ar pour différentes tailles de grain de carbone souligne l'importance d'utiliser des grains de petite taille, ainsi qu'une température élevée au sein de la cible.

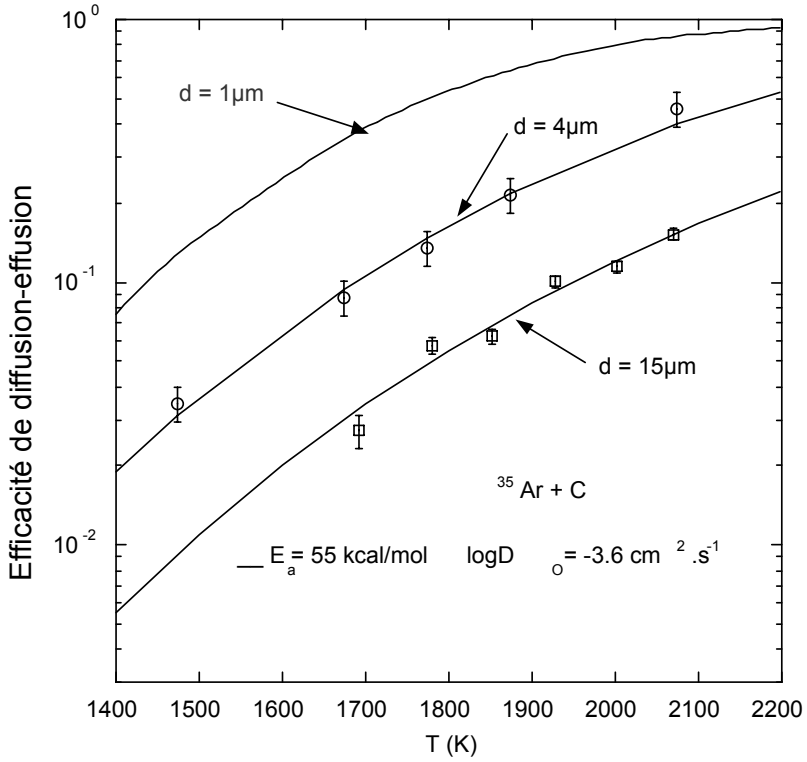


Fig. I- 10 – *Efficacité de diffusion effusion de l'^{35}Ar dans des carbones composés de grains de diamètre d différents. Les points correspondent aux valeurs expérimentales et les traits aux courbes calculées avec les coefficients d'Arrhenius extrait des données expérimentales. La courbe 1µm est une extrapolation à partir des valeurs des coefficients d'Arrhenius des carbones 4 et 15 µm* [Mau-98].

Une fois diffusés hors de la cible, les atomes radioactifs vont être ionisés. Suivant la nature de l'élément, l'ensemble cible - source ne sera pas le même.

I–3 L'ionisation

Nous venons de voir qu'il était possible d'optimiser au mieux la production d'atomes radioactifs. Il faut maintenant faire un choix judicieux quant à la source d'ionisation, afin de minimiser les pertes dans cette dernière étape avant l'extraction du faisceau.

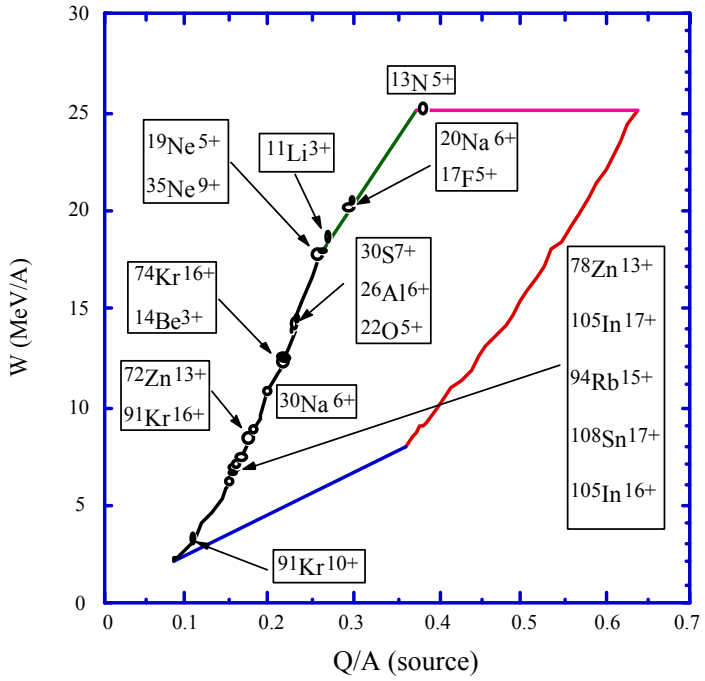


Fig. I- 11 – *Diagramme de fonctionnement de CIME : énergie en sortie du cyclotron en fonction du rapport charge sur masse Q/M des ions de la source.*

La figure I-11 représente le diagramme de fonctionnement du cyclotron CIME (Cyclotron pour Ions de Moyenne Energie) de SPIRAL. Il faut injecter dans CIME des ions multichargés pour atteindre la gamme d'énergie élevée de 2.5 à 25 MeV/A.

I-3-1 L'ensemble dédié aux gaz rares radioactifs : source ECR

Pour sa mise en route, SPIRAL fonctionnera avec un ensemble cible source Nanogan III, dédié aux gaz rares. La cible utilisée pour la production de faisceaux radioactifs d'Argon et de Néon a été développée par L. Maunoury et al. [Mau-98].Nous présenterons plus en détail dans le chapitre III cette cible, dont le travail de fiabilité fait partie de cette présente thèse.

Le principal processus pour avoir des ions multichargés est l'ionisation pas à pas par collisions électroniques. D'autres processus interviennent en même temps, comme l'échange de charge entre un neutre et un ion, ou la recombinaison radiative qui peuvent être néfaste pour l'ionisation. Il est donc important que les atomes à ioniser soient dans un milieu favorable à l'ionisation multiple, i.e. une forte densité électronique et un confinement pendant un temps donné au sein de ce nuage d'électrons. Une source ECR (à Résonance Cyclotronique Electronique) remplie ces conditions.

Le principe d'une telle source est basé sur l'existence d'un plasma dense (mélange d'ions et d'électrons) confiné par un champ magnétique et chauffé par une onde électromagnétique grâce à la résonance cyclotronique électronique [Wol-95].

I-3-1-1 Le confinement magnétique

Dans une source ECR, le confinement magnétique du plasma est la résultante de la superposition d'un champ axial et d'un champ radial. Dans le cas de Nanogan III, le champ axial est créé par trois couronnes d'aimants permanents (une couronne à l'injection, une couronne à l'extraction et une couronne centrale). Il comporte deux maxima et un minimum comme le montre la figure I-12.

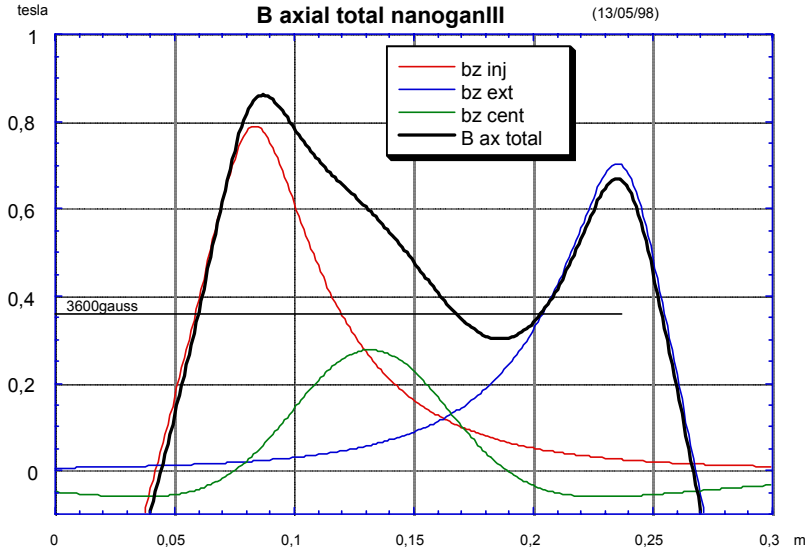


Fig. I- 12– *Structure magnétique du champ axial de la source ECR Nanogan III*

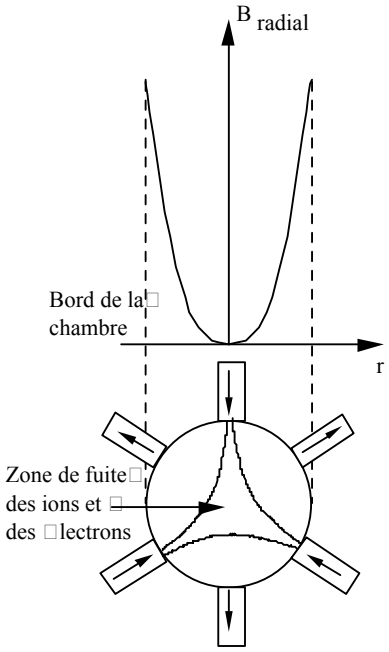


Fig. I- 13 – *Champ magnétique radial d'une source ECR avec un hexapôle.*

Le champ magnétique radial, quant à lui, permet de confiner radialement les électrons, et est crée par un multipôle. Plus le nombre de multipôles est grand et plus la zone où sont extraits les ions est grande.

Nanogan III utilise donc un hexapôle. Le champ magnétique créé a un minimum au centre et croit jusqu'aux parois de la source (Figure I-13).

La combinaison de ces deux champs, radial et axial, permet d'avoir une structure appelée à minimum de champ magnétique B.

Le confinement des électrons résulte alors des lois de conservation de l'énergie cinétique des électrons E_e , et du moment magnétique μ_e avec :

$$E_e = E_{//} + E_{\perp} = \frac{1}{2} m_e (v_{//} + v_{\perp}) \qquad \textbf{(I- 19)}$$

$$m_e = \frac{E_{\perp}}{B} \qquad \textbf{(I- 20)}$$

$E_{//}$ et $E_{\perp}$ sont les composantes parallèles et perpendiculaires de l'énergie cinétique des électrons. La vitesse parallèle $v_{//}$ guide le déplacement des électrons le long des lignes de champ magnétique, alors que la vitesse perpendiculaire $v_{\perp}$ provoque un mouvement de giration autour de ces mêmes lignes de champ.

Lorsqu'un électron se déplace le long d'une ligne dont le champ est croissant, $E_{\perp}$ augmente (conservation de l'équation I-20), et donc $E_{//}$ diminue (conservation de l'équation I-19). Lorsque $E_{//}$ devient nul, l'électron est alors repoussé en sens inverse le long des lignes de champ décroissant : l'électron va donc "osciller" entre les deux maxima du champ axial (fig. I-12) qui joue le rôle de miroir magnétique. On définit alors le rapport miroir par :

$$R = \frac{B_{max}}{B_{min}} \qquad \textbf{(I- 21)}$$

Ce rapport, dont la valeur est de l'ordre de 2 pour les sources ECR, doit être le plus grand possible pour augmenter les temps de confinement des électrons dans le plasma.

I-3-1-2 Le chauffage des électrons

Pour qu'un atome soit ionisé, les électrons du plasma doivent avoir une énergie supérieure au potentiel d'ionisation de l'atome à ioniser.

En présence d'un champ magnétique, un électron a un mouvement hélicoïdal et sa fréquence de giration ν en fonction du champ magnétique B est :

$$\nu_e = \frac{q_e B}{2\pi m_e} \qquad \textbf{(I- 22)}$$

où q_e et m_e sont la charge et la masse de l'électron.

Si une onde électromagnétique d'hyper fréquence ν_{HF} est injectée dans le plasma, les électrons ayant la même fréquence vont voir leur énergie $E_{\perp}$ augmenter ou diminuer selon qu'ils sont en phase ou non avec l'onde.

Cependant, globalement les électrons seront accélérés du fait du confinement miroir, car ils vont passer plusieurs fois dans la zone de champ ayant pour valeur :

$$B_{res} = \frac{2\pi m_e}{q_e} \nu_{HF} \qquad \textbf{(I- 23)}$$

où B_{res}, est le champ magnétique de résonance pour une valeur de ν_{HF} donnée. B_{res} doit être inférieur à la valeur de B_{radial} au niveau des parois de la chambre de la source tel que $B_{axial\ min} < B_{res} < B_{axial\ max}$.

I-3-1-3 Les ensembles cible source Nanogan II et Nanogan III

Au départ, la source prévue pour l'ensemble dédié à la production d'Argon et de Néon radioactifs était une source Nanogan II, avec quatre couronnes d'aimants permanents et fonctionnant à 14.5 GHz (figue I-14).

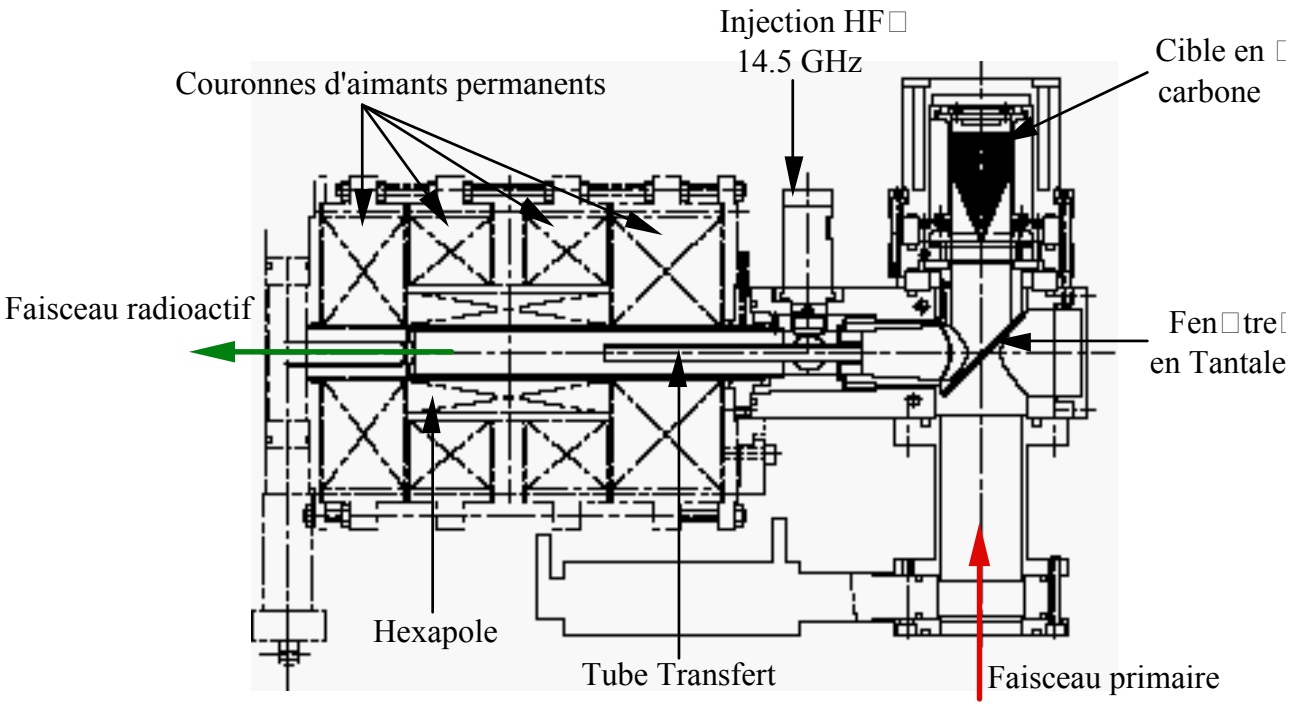


Fig. I- 14 - *Ensemble cible –source avec la source ECR Nanogan II*

En raison d'indisponibilité d'émetteur HF, le champ de Nanogan II a été modifié afin d'avoir une résonance à 10GHz.

Cette modification a entraîné la suppression d'une couronne d'aimants permanents. Il en résulte un coût et un poids de la source moindre et par conséquent, une minimisation des déchets radioactifs.

La nouvelle source Nanogan III est présentée sur le schéma I-15 et ses caractéristiques dans le tableau I-1

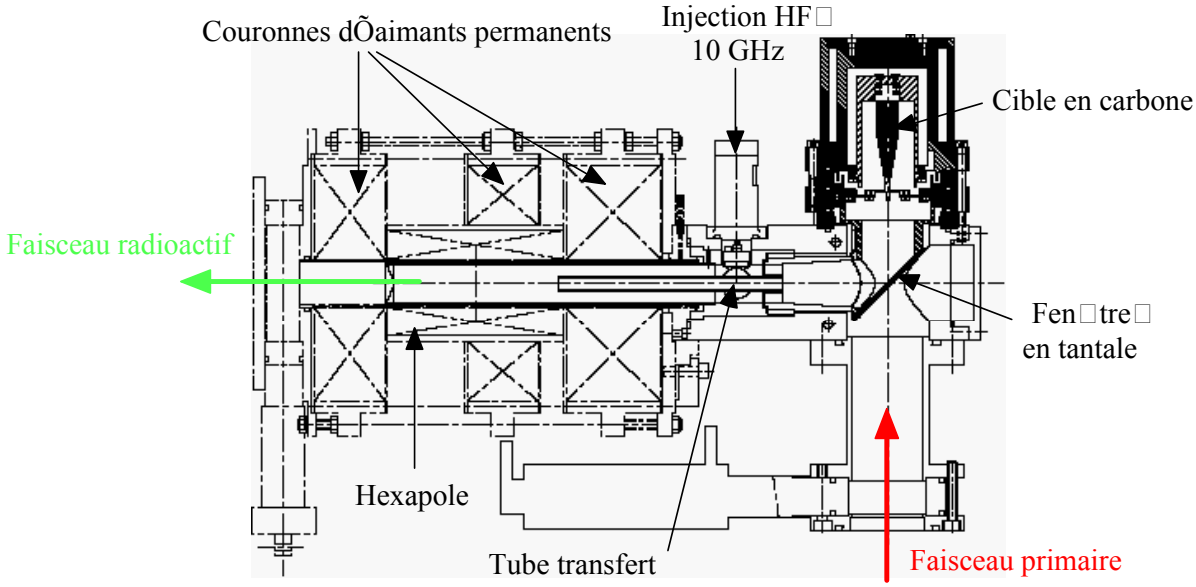


Fig. I- 15 - *Ensemble cible – source avec la source ECR Nanogan III*

Le faisceau primaire d'^{36}Ar ou de ^{20}Ne est totalement arrêté dans la cible. Les atomes produits vont sortir par diffusion (§I-2), puis par effusion jusqu'à la chambre de la source à travers un tube transfert qui est froid (Fig. I-15). Ainsi, tous les éléments autres que les gaz (i.e. les condensables) vont se coller sur les parois froides de l'ensemble et être irrémédiablement perdus. Ce tube transfert est un premier tri avant ionisation.

La cible de production est séparée de la ligne haute énergie (ligne où arrive le faisceau primaire) par une fenêtre en Tantale de 4µm d'épaisseur pour éviter que les atomes radioactifs ne s'échappent vers cette ligne.

La cible de production est située en recul par rapport à l'axe de la source, car la production de neutrons au sein de la cible est importante et risquerait de détériorer les aimants de la source. Ces derniers constitués de FeNdB sont sensibles à l'irradiation neutronique due à la présence de Bore dont la section efficace de réaction est de l'ordre de la centaine de mbarn.

Champ axial	
Champ maximum à l'extraction	0.67 T
Champ maximum à l'injection	0.86 T
Champ minimum	0.301 T
Dimensions et éléments composant la source	
Φ chambre	36 mm
Φ tube coaxial	10 mm
Φ externe de la source	260 mm
Longueur de la source	400 mm
Émetteur onde HF	
Fréquence HF	10 GHz
Puissance maximal	200 W
Système d'extraction	
F trou de l'électrode plasma	7 mm
F trou de l'électrode d'extraction	11 mm
Gap inter électrodes	20-40 mm
Domaine de la tension source	7-34 kV

Tab.I- 1– *Caractéristiques techniques de la source ECR Nanogan III*

I-3-2 L'ensemble dédié aux alcalins : MONOLITHE

Cet ensemble appelé MONOLITHE (MONOchargés de Lithium Exotiques) est dédié à la production de lithium radioactif. Il entre dans le cadre du projet 1+/n+ qui consiste à produire des ions monochargés puis à les transformer en ions multichargés, initié par l'Institut des Sciences Nucléaires de Grenoble [Tam-96] faisant l'objet d'une R&D Européenne [Cha-99].

Un ensemble cible source dédié aux alcalins a été ébauché par L. Maunoury et al. [Mau-98]. Les alcalins ont la particularité d'être condensables ; ils vont se coller sur toutes les parois froides rencontrées sur leur chemin.

Cette caractéristique va imposer le choix et la géométrie de l'ensemble cible – source : le chemin entre la cible et la source doit être minimisé et chaud, la source devra donc être intégrée à la cible. Par contre, l'avantage des alcalins est qu'ils possèdent un potentiel de première ionisation faible : une source à ionisation de surface semble donc la mieux adaptée.

I-3-2-1 Principe de fonctionnement d'une source à ionisation de surface

Ces sources sont principalement utilisées pour produire des ions monochargés, soit positifs, soit négatifs. Les atomes sont ionisés au contact d'une surface métallique chaude.

La production d'alcalins positifs est régie par la loi de Saha-Langmuir [Kin-23] [Wol-95] :

$$\frac{N^+}{N_o + N^+} = \left(1 + \frac{g_o}{g_+} e^{\frac{e(I-\phi)}{kT}}\right)^{-1} \qquad \textbf{(I- 24)}$$

T et ϕ sont la température et le travail de sortie du ioniseur, k la constante de Boltzmann, e la charge électrique, I le potentiel d'ionisation. Les poids statistiques g_o et g_+ associés aux atomes et aux ions sont dans le rapport $g_o / g_+ = 2$ pour les alcalins.

Si ϕ est plus grand que le potentiel d'ionisation I de l'atome adsorbé, le puit de potentiel de l'atome est déformé par les électrons du ioniseur et un électron de valence peut être transféré par effet tunnel vers le ioniseur, un ion positif est alors créé. Si ϕ est inférieur, l'inverse se produit et un ion négatif est créé.

L'intérêt de ces sources est de pouvoir s'adapter facilement à des géométries complexes de cible et d'avoir une efficacité proche de 1 si ϕ est supérieur à I avec une différence de 1 eV seulement. La dispersion en énergie est très faible et permet d'avoir une bonne émittance.

Par contre, un des inconvénients de ces sources est d'être très sensible aux contaminants environnants de travail de sortie ϕ faible qui se déposent sur la surface chaude du ioniseur. Ce processus est appelé l'activation des sources thermoélectroniques.

I-3-2-2 Choix du matériau du ioniseur

L'avantage de pouvoir mettre la source proche de la cible entraîne une restriction quant au choix du matériau, car il devra résister aux mêmes températures que la cible. Or, nous avons vu dans le § I-2-1 que la diffusion implique une température de cible de l'ordre de 2000 K.

En résumé, nous devons choisir un matériau ayant un travail de sortie élevé qui résiste aux hautes températures. Le tableau I-2 donne les valeurs du travail de sortie de plusieurs matériaux, ainsi que le potentiel d'ionisation des alcalins.

Eléments	I (eV) ([Stö99])	ϕ (eV) ([Stö99])	Température de fusion (K)
Li	5.392		
Na	5.139		
K	4.341		
Rb	4.177		
Cs	3.893		
Ni		4.61	1726
W		4.55	3680
W-Ox		6.24	-
Ta		4.8	3269
Ir		5.4	2716
Pt		5.65	2045
Re		4.96	3453
C		5.0 ([Rob-74])	3773

Tab. I- 2– *Potentiel de 1ère ionisation, I, des alcalins et travail de sortie, ϕ, de quelques matériaux.*

À ISOLDE [ISO], l'ionisation est obtenue par un tube en Tantale ou en Tungstène. Si ces matériaux donnent de bons résultats pour les Césium et Rubidium, ils ne sont pas adaptés pour le Lithium.

Le matériau le plus efficace pour ioniser le lithium sera celui qui aura le plus grand travail de sortie, c'est-à-dire le tungstène oxydé W-Ox avec ϕ = 6.24 eV. Avec ce matériau, l'efficacité d'ionisation pour tous les alcalins est de 100 %.

D'autres matériaux (Fig. I-16) comme l'Iridium ou le Platine donnent de bons résultats d'ionisation à 2000K pour les alcalins, avec une efficacité de 20 à 30 % pour le lithium. Mais ces matériaux restent chers.

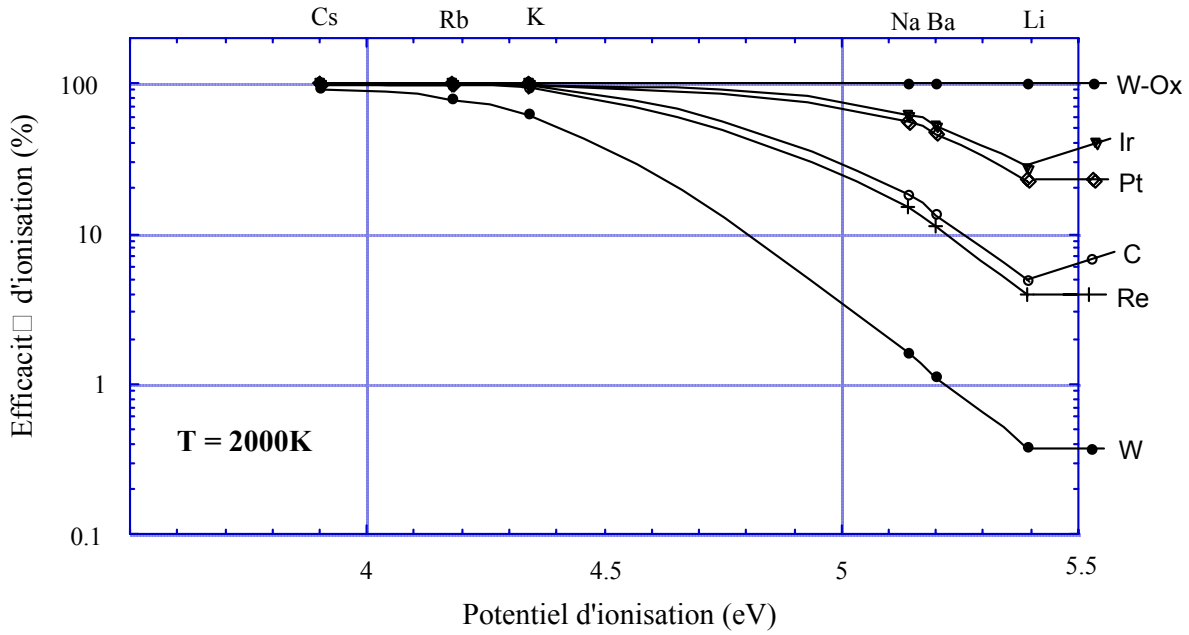


Fig. I- 16 – *Efficacité d'ionisation d'une source à ionisation de surface pour les alcalins en fonction de leur potentiel d'ionisation pour plusieurs matériaux.*

Pour la production des alcalins radioactifs tel que le ^{9}Li et ^{11}Li, l'ensemble cible source se différentie des ensembles dédiés aux gaz rares pour diverses raisons :

- le potentiel de première ionisation des alcalins est faible, de l'ordre de 4eV pour le Rubidium et le Césium. Il est cependant relativement élevé pour le Lithium (5.39eV) si on le compare au travail de sortie des différents matériaux indiqués dans le tableau I-2.
- les alcalins sont des condensables et ne doivent pas voir de parois froides avant d'être ionisé.
- le temps de vie du ^{11}Li est seulement de 8.7 ms : le temps de sortie et le parcours entre la cible et la source doivent être minimisés.

- le parcours du Lithium est grand : les atomes radioactifs produits vont s'arrêter dans une zone à l'arrière de la cible, loin de la zone chauffée par le dépôt de puissance du faisceau primaire. Une cible en deux parties est donc utilisée : une cible de production où le faisceau s'arrête et une cible de diffusion où sont arrêtés les produits de la fragmentation du projectile. Ces deux cibles seront décrites plus en détail dans le chapitre suivant.

Au vue de ces contraintes, une source à ionisation de surface semble la mieux adaptée : la géométrie du premier ensemble développé en 1998 par L. Maunoury et al. [Mau-98] est présentée en figure I-17.

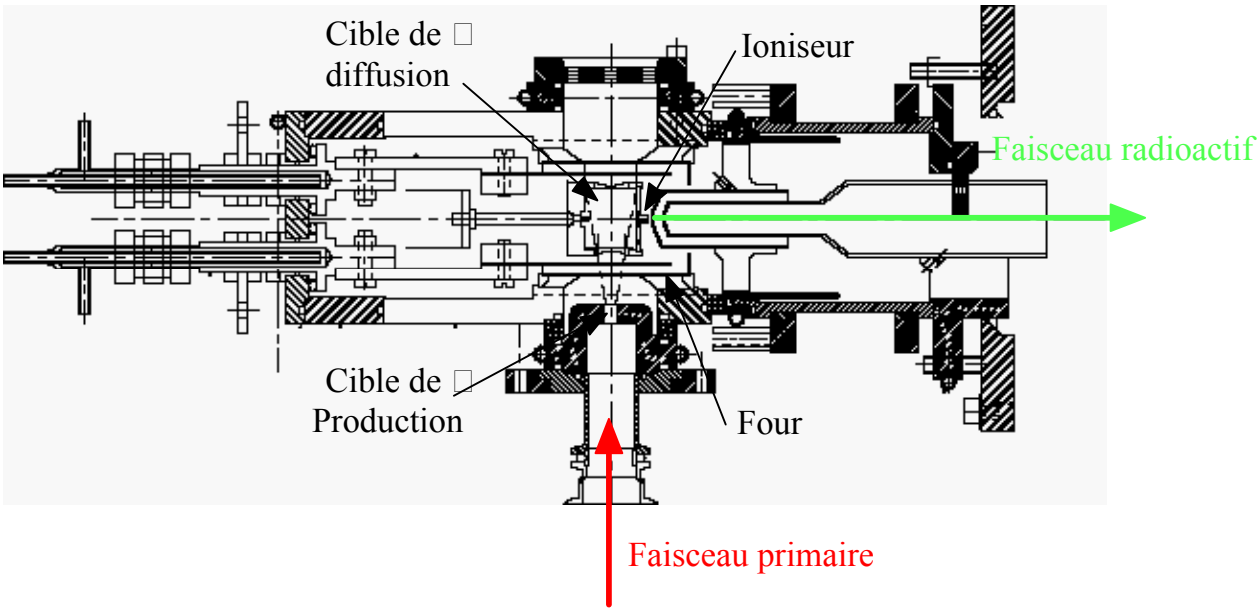


Fig. I- 17 – *Premier ensemble cible source MONOLITHE (MONOchargé de LITHium Exotique) pour la production d'alcalins radioactifs.*

La production se fait par fragmentation d'un faisceau primaire d'^{18}O à 75MeV/A qui est totalement arrêté dans la première cible. Cette dernière (cible de production) est refroidie pour dissiper la puissance du faisceau, et la seconde cible (cible de diffusion), où vont être arrêtés les atomes de lithium produits par fragmentation du projectile, est un bloc de carbone, maintenu à une température de 2300K par un four externe. L'ioniseur utilisé est un tube en tungstène oxydé (W-Ox) collé en bout de la cible de diffusion.

Nous venons de décrire les principales étapes de la méthode ISOL (la production, la diffusion et l'ionisation) permettant de faire des choix judicieux quant aux ensembles cible source utilisés pour le projet SPIRAL.

Une étude bibliographique a été réalisée dans le cadre de cette thèse pour la recherche de différents matériaux utilisables pour les cibles de production.

I-4 Quel matériau pour les cibles ?

I-4-1 Le Cahier des charges des cibles

Pour la production d'atomes radioactifs, le processus utilisé pour le projet SPIRAL est la fragmentation du projectile. D'après l'équation I - 4, le taux de production est amélioré par le choix d'une cible dont le numéro atomique Z est petit.

La diffusion d'un atome radioactif hors de la cible, dans le cas de sphère, donc de grains, est gouvernée par cinq paramètres (équation I-11 §I-2-2) :

- les deux coefficients d'Arrhenius : Log (D_o) et E_a
- la température T de la cible
- le temps de demi-vie $T_{1/2}$
- le rayon du grain ρ

Comme nous l'avons vu sur la figure I-9, il sera judicieux de choisir, pour un même matériau, une structure en poudre ou en grains pour les cibles, plutôt qu'une structure sous forme de cheveux ou de feuilles empilées.

Nous ne pouvons pas jouer sur les deux coefficients d'Arrhenius Log(D_0) et E_a car ils sont liés aux caractéristiques physico-chimiques du couple cible-atome diffusant. L'efficacité de diffusion est améliorée d'autant plus que la température est élevée : on choisira donc un matériau réfractaire.

La diffusion sera également plus rapide si la taille des grains est petite. Le temps de vie de l'atome diffusant limite l'efficacité de diffusion car si ce dernier est court, l'atome risque de se désintégrer avant de sortir du grain, d'où l'intérêt une fois de plus d'avoir un grain le plus petit possible.

L'effusion intervient dès la sortie du grain et ce, jusqu'à la chambre de la source d'ionisation. Il est donc utile de choisir un matériau dont la porosité ouverte n'est pas nulle pour faciliter la sortie des grains hors de la cible. Par contre, un compromis est à trouver, car si cette porosité est trop grande, l'atome aura plus de chance de rediffuser à l'intérieur du matériau s'il est collé à nouveau sur sa surface. De plus, une porosité grande entraîne une densité de matériau plus petite et donc une taille de cible plus importante pour arrêter les noyaux d'intérêts et par conséquent le temps de sortie hors de la cible et du container va augmenter.

Pour l'ionisation avec une source ECR, il ne faudra pas perturber le fonctionnement de la source en choisissant un matériau qui s'évapore facilement et qui augmenterait la pression dans la chambre de la source. On choisira donc un matériau dont la pression de vapeur à 2000°C est inférieure à 10^{-3} mbar.

En résumé, le matériau pour la cible devra répondre au cahier des charges suivant :

pour la production : - Z petit pour un bon taux de production (équation I – 4)

pour la diffusion : - sous forme de poudre
- Grain le plus petit possible
- Matériau réfractaire (T>2000°C)

pour l'effusion : - matériau poreux

pour l'ionisation : - matériau dont la pression de vapeur est faible

Matériaux	Z	T_{fusion} (°C)	Aspect	Remarques
Bore	5	2180	poudre	Très inflammable en poudre
Carbure de Bore		2450	Poudre pressée à chaud	Très dur
Carbone	6	3652	Poudre pressée à chaud	
Niobium	41	2468	poudre	Très inflammable en poudre
Molybdène	42	2617	Toute forme	Très oxydant et combustible en poudre
Technétium	43	2200		Utilisé en source radioactive pour le corps médical
Ruthénium	44	2250	Toute forme	Très dur et cassant, difficile à usiner
Hafnium	72	2227	Toute forme	Très oxydant et explosif en poudre
Tantale	73	2996	Toute forme	
Tungstène	74	3410	Toute forme	
Rhénium	75	3180	Toute forme	Très inflammable en poudre
Osmium	76	3027	poudre	
Iridium	77	2410	poudre	Très inflammable en poudre

Tab. I- 3– *Caractéristiques de matériaux dont la température de fusion est supérieure à 2000°C*

Le tableau I-3 présente un large éventail d'éléments sous diverses formes de matériaux, répondant aux critères exposés ci-dessus :

- un matériau pouvant être sous forme de poudre, ou de poudre pressée à chaud. Un matériau pressé à chaud est considéré équivalent à une poudre [Sch-90] s'il possède une certaine porosité. Ainsi, on fait implicitement l'hypothèse que d'un point de vue diffusion, seule la diffusion dans le grain est prise en compte et qu'il n'y a pas de "résistance" de transport à travers la porosité du matériau (i.e. l'effusion est négligée entre les grains).
- une température de fusion supérieure à 2000°C. On se place ainsi dans une zone de température proche du processus de diffusion en volume.

Tous les éléments de ce tableau ont des pressions de vapeur inférieure à 10^{-3} mbar à 2000°C. Ils n'imposent donc pas de restriction sur le choix du matériau quant au bon fonctionnement de la source d'ionisation à haute température.

Tous les éléments ayant un numéro atomique Z élevé ne sont pas optimisés d'un point de vue de la production des atomes radioactifs en cible épaisse. Le programme SIGMA_SIRa, disponible au GANIL, permet d'estimer les taux de production dans la cible par fragmentation du projectile. Ce code est basé sur le programme INTENSITY [Win-92] et utilise la paramétrisation d'EPAX. Les résultats sont exposés dans le tableau I-4.

	B	**C**	**Ru**	**W**	**Ir**
^{31}Ar	3151	2700	850	675	660
^{33}Ar	$1.1\ 10^{7}$	$9.2\ 10^{6}$	$2.9\ 10^{6}$	$2.3\ 10^{6}$	$2.26\ 10^{6}$
^{35}Ar	$1.24\ 10^{9}$	$1.1\ 10^{9}$	$3.4\ 10^{8}$	$2.7\ 10^{8}$	$2.6\ 10^{8}$

Tab. I- 4 – *Estimation des taux de production de l'^{31,33,35}Ar par fragmentation d'un faisceau primaire d'^{36}Ar à 95MeV/A de 2kW sur des cibles différentes.*

De plus, nous ne pourrons prendre comme matériau le Bore, le Niobium, ni le Molybdène, car ils sont très inflammables sous forme de poudre. Quant au Ruthénium, il est difficilement usinable en raison de sa grande dureté.

D'un point de vue effusion [Alt-92], nous avons vu que l'enthalpie d'adsorption H_a (équation I-15) dépend fortement du couple atome adsorbé/adsorbant. Le choix du matériau pour la cible et pour l'ensemble cible source est extrêmement important afin de minimiser les temps de collage de l'atome adsorbé sur toutes les surfaces allant de la cible jusqu'à la chambre de la source. Des matériaux inertes chimiquement sont préférables. Idéalement, il faudrait utiliser de l'Iridium pour tapisser toutes les parois, où un matériau moins cher comme le Tantale, le Tungstène ou le Rhénium. Dans le cas de l'ensemble cible source Nanogan III, cela ne pose aucun problème majeur car cet ensemble est dédié aux gaz rares pour lesquels le temps de collage est considéré nul.

Quant à la porosité du matériau, celle-ci est imposée par le fabricant et peu de choix subsistent.

Au regard de ces contraintes, nous avons ciblé notre recherche sur deux matériaux : le carbone et le carbure de bore B_4C. Ce dernier matériau est un bon candidat potentiel pour la production d'Hélium radioactif par fragmentation du Bore car il est plus proche du noyau d'intérêt et a une section efficace plus importante que celle du Carbone. Ils ont l'avantage de pouvoir être pressé à chaud, on peut alors utiliser les poudres sous forme solide. De plus, ils sont peu coûteux.

I-4-2 Le carbone

Le carbone sous sa forme cristalline graphite est un des éléments les plus réfractaires. Sa température de sublimation est à 3600°C, c'est-à-dire qu'il passe directement de l'état solide à l'état gazeux sans passer par une phase liquide.

Au départ, la cible pour la production d'Argon et de Néon radioactifs était faite avec un graphite de grain 4µm (PT2318 de Carbone Lorraine [Lor-95]). Nous avons vu que pour l'amélioration de l'efficacité de diffusion, le choix d'un grain le plus petit possible serait judicieux. Nous avons donc cherché des entreprises fournissant des graphites ultra fin. L'EDM-AF5 de POCO Graphite ([POCO-99]) est le seul matériau graphite disponible qui ait une dimension moyenne de grains de moins de 1 µm.

I-4-2-1 Fabrication du graphite artificiel polygranulaire

Les techniques d'élaboration des graphites artificiels polygranulaires suivent le même principe [Mil-68] [Lor-95] [POCO-99]. Les matières premières sont broyées puis tamisées pour obtenir les tailles de grains voulues, elles sont ensuite mélangées avec un liant. Cette pâte est alors travaillée et pressée, puis cuite à des températures de l'ordre de 1200°C (phase de cokéfaction) avant d'être graphitée.

I-4-2-1-1 les matières premières utilisées

Les principales matières premières de base sont :

- les noirs de carbone : il s'agit d'une forme de carbone obtenue à l'état divisée, en phase gazeuse par condensation des particules de carbone produites par décomposition ou combustion de matières carbonées. Ces noirs contiennent des impuretés telles que l'azote, le soufre, voir l'oxygène. Il faut dépasser des températures de combustion de l'ordre de 2000°C pour n'avoir que du carbone.
- les cokes : ils sont obtenus à partir de la carbonisation de résidus de la distillation du pétrole. Le soufre contenu dans les cokes peut être éliminé par traitement à 1200-1400°C en présence de vapeur d'eau.
- les graphites naturels ou artificiels.

I-4-2-1-2 les liants

Une fois broyées, tamisées et sélectionnées, ces matières premières sont mélangées avec un liant qui peut être du goudron, du brai ou des résines phénoliques ou furfuryliques. Le liant entre dans la composition des mélanges pour 15 à 30 %. Ainsi, suivant la matière utilisée, les caractéristiques des carbones fabriqués changent et dépendent des modifications apportées au liant pendant la phase de cokéfaction.

Ces liants sont tout le secret des fabricants, car c'est lui qui assure la cohésion des grains entre eux. Les caractéristiques de ces liants restent inconnues au grand public, et nous verrons par la suite que cela nous a posé quelques problèmes.

I-4-2-1-3 la cokéfaction

La pâte obtenue par mélange à chaud du liant avec la matière première est ensuite travaillée, malaxée. Cette pâte est mise en forme à l'aide de presse hydraulique exerçant une force de l'ordre d'une tonne par cm^2. On cuit alors la pâte dans des fours selon des cycles de refroidissement et d'échauffement bien définis suivant la matière fabriquée.

Cette opération permet d'évaporer les composants les plus volatiles du liant et de cokéfier les composants les plus lourds, ce qui a pour effet de lier les grains de carbone par des ponts de coke. Ainsi, chaque grain est recouvert d'un film de coke de liant qui le relie aux grains voisins. Selon les cycles de cuissons utilisés, les composants volatils peuvent craquer ou non. Les températures de cuisson sont de l'ordre de 1200°C. Après cette opération, on obtient un carbone "amorphe".

I-4-2-1-4 la graphitation

Les procédés de graphitation utilisés, découverts en 1893 par MM Girard et Street et en 1895 par Acheson, consistent à transformer le carbone amorphe obtenu par cokéfaction en graphite artificiel par chauffage à des températures comprises entre 2000 et 3000°C. Une fois de plus, les cycles et leur durée varient suivant la matière fabriquée.

Toutes ces étapes de fabrication sont une description générale, car les procédés exacts relèvent du secret de fabrication qui ne sont pas transmis à l'utilisateur.

I-4-2-1-5 la purification des graphites

Le procédé Carbone Lorraine consiste à purifier dans le chlore à 2500/2700°C et donne des résultats comparables à une purification thermique à 3000°C. Le carbone 4µm que nous utilisons est un carbone PT2318 (Pureté Totale) [Lor-95] avec un taux de cendres inférieur à 20 ppm, un taux de Bore de l'ordre de 0.5 ppm (garanti<2 ppm) et un taux de soufre inférieur à 2 ppm. Les graphites de POCO Graphite [POCO-99] ont un taux d'impuretés habituel d'environ 1000 voir 3000 ppm avec une dominance pour le Vanadium, et présence de Fer, aluminium, calcium, Nickel, Titane et Silice.

Les procédés de purification de POCO Graphite permettent d'obtenir des produits dont le taux d'impuretés est inférieur à 5 ppm. Nous utiliserons donc un graphite ZXF-5Q1 (carbone 1µm purifié).

I-4-2-2 Structure du graphite

Le graphite est composé de plans d'atomes de carbone disposés en réseau hexagonal comme présentée sur la figure I-18.

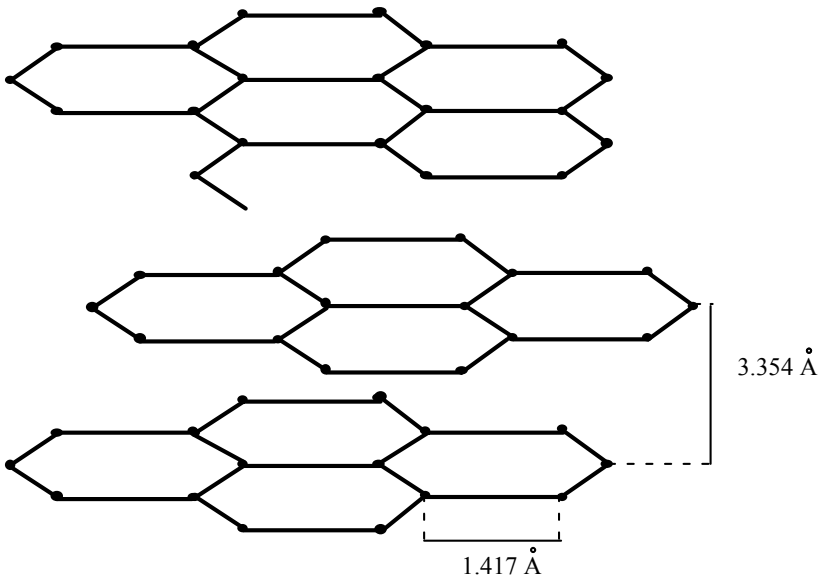


Fig. I- 18- *Structure du graphite sous forme de plans d'atomes de carbone.*

Chaque grain a une orientation préférentielle due à la microstructure du graphite (en plan, Fig-I-18). De plus, les grains peuvent avoir des tailles et des formes très différentes engendrant une structure non uniforme de l'échantillon de graphite. Ce sont ces grains qui sont responsables de l'anisotropie du graphite.

La structure du graphite POCO est unique. Tous les grains formant l'échantillon présentent une homogénéité dans la taille des grains, qui de plus sont sphériques. Par conséquent, il ne peut y avoir d'orientation préférentielle au niveau du grain. Le graphite est dit isotrope. Le carbone 4 µm, quant à lui, est moins homogène.

I-4-2-3 Caractéristiques du graphite 1 et 4 µm

La conductivité thermique du graphite décroît d'un facteur 5 entre la température ambiante et 2000K. Les résultats des simulations thermiques, que nous développerons par la suite, dépendent fortement de ces valeurs. Le coefficient de dilatation thermique varie suivant le type de graphite polygranulaire, mais reste relativement faible (annexe A)

Le graphite possède une excellente résistance au choc thermique permettant de subir de fortes variations de puissance du faisceau primaire, et possède une température de sublimation de 3500°C.

D'un point de vue électrique, le graphite a une faible résistivité. Elle décroît en fonction de la température, passe par un minimum pour augmenter ensuite à haute température.

Les courbes de variation de certaines caractéristiques du carbone sont présentées en annexe A.

Les tableaux I-5 et I-6 résument les caractéristiques des graphites 1 et 4µm.

Caractéristiques physiques	
Densité	1.78 g/cm^3
Taille des pores inter-grains	0.3 µm
Porosité ouverte	16%
Taux de cendres	<5ppm
Résistivité électrique	1950 µm.ohm.cm
Caractéristiques thermiques	
Chaleur spécifique à 25°C	700 J/K.kg
λ à 20°C	70 W/m.K
Expansivité thermique	8.1 µm/m.°C
Emissivité 300°C	0.75
Emissivité à 500°C	0.71
Caractéristiques mécaniques	
Dureté – SSH	86
Résistance à la flexion	115 N/mm^2
Résistance à la compression	195 N/mm^2

Tab. I- 5– *Caractéristiques techniques du graphite 1µm ZXF-5Q1 de POCO Graphite*

Caractéristiques physiques	
Densité	1.86 g/cm^3
Taille des pores inter-grains	Non connue
Porosité ouverte	7 %
Taux de cendres	<20 ppm
Résistivité électrique	1500 µm.ohm.cm
Caractéristiques thermiques	
Chaleur spécifique à 25°C	700 J/K.kg
λ à 20°C (à 1000°C)	70 W/m.K (20)
Expansivité thermique	6 µm/m.°C
Emissivité 300°C	0.75
Emissivité à 500°C	0.71
Caractéristiques mécaniques	
Dureté – SSH	70
Résistance à la flexion	65 N/mm^2
Résistance à la compression	167 N/mm^2

Tab. I- 6– *Caractéristiques techniques du graphite 4 µm PT2318 de Carbone Lorraine.*

L'avantage du carbone est qu'il est facilement usinable et peu coûteux.

I-4-3 Le carbure de bore

I-4-3-1 Fabrication du B_4C

À partir de poudres fabriquées selon diverses méthodes, la mise en forme du "B_4C solide" se fait suivant plusieurs procédés de frittage [B4C-1].

I-4-3-1-1 le frittage naturel

Le procédé par simple frittage est un problème délicat, car le carbure de bore possède une faible plasticité, une grande résistance de glissement aux joints de grains, et une faible tension superficielle à l'état solide, ce qui bloque les processus du frittage. À partir de constatations expérimentales, il faut pour obtenir des produits denses, remplir plusieurs conditions :

- utiliser des poudres de B_4C (le frittage réactif ne donne que des produits poreux).
- ces poudres doivent être les plus fines possibles : <3µm (les poudres dont la granulométrie est supérieure à 8 µm ne se densifient pratiquement pas).
- il faut chauffer le B_4C à haute température (2250-2280°C) proche du point de fusion du B_4C (2400°C).

I-4-3-1-2 le frittage sous charge

La compression à chaud est utilisée industriellement pour préparer directement des objets de formes diverses, ce qui est un avantage appréciable quand on connaît la difficulté que l'on rencontre pour usiner ce produit.

Il faut pour obtenir des produits très denses (sous vide ou en atmosphère protectrice) utiliser :- des poudres fines (<2µm)

- des hautes températures (2100-2200°C)
- des pressions de l'ordre de 300 à 400 kg/cm^2
- un maintien de la charge pendant 15 à 45 minutes.

I-4-3-1-3 le pressage à chaud réactif

La densification obtenue dans ce cas serait plus importante que pour le frittage sous charge de poudre de B_4C pour une même température. Une étude mécanique du frittage sous charge montre que la densification est la résultante de trois mécanismes successifs :

- réarrangement des atomes
- écoulement plastique
- diffusion en volume.

La résistance mécanique du B_4C fritté est inférieure de 15 à 20% à celle obtenue par compression à chaud, ce qui peut être attribué à des perturbations intercristallines pour le premier cas, et transcristalline dans le second cas.

I-4-3-2 Structure du B_4C

Actuellement, il est admis qu'il n'existe qu'une seule phase de carbure de bore B_4C dans l'intervalle de composition compris entre les teneurs de 8.8 % et 20 % en atomes de carbone. L'élaboration industrielle du B_4C conduit toujours à un produit proche de la limite de phase 20 % en atome de carbone. Pour cette composition, la maille cristalline élémentaire est de type rhomboédrique avec : A = 5.16 Å et α = 66.3 °

Ce qui donne en repère hexagonal : A_h = 5.59 Å et c_h = 12.07 Å

Les atomes de bore forment des icosaèdres $B_{11}C$ centrés au sommet de la maille. La diagonale principale est occupée par une chaîne de trois atomes : CBC comme illustrée sur la figure I-19 [Jim-98] [ISIS-97].

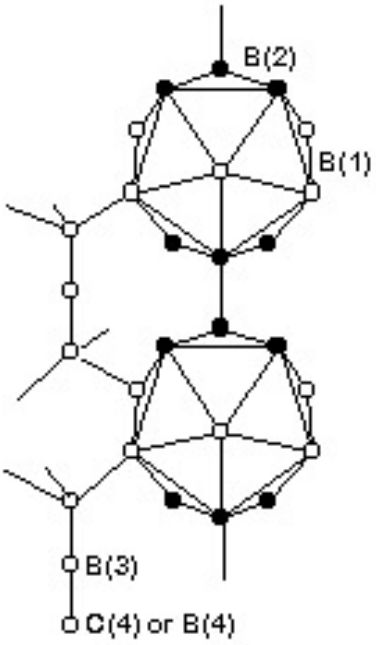


Fig.I- 19- *Structure du carbure de Bore B_4C.*

I-4-3-3 Propriétés du B_4C

Le carbure de bore synthétisé depuis le début du siècle est un matériau très intéressant aussi bien d'un point de vue technique que scientifique. C'est une céramique d'aspect gris noir ne possédant pas de domaine plastique aux températures inférieures à 1500 °C [B4C-1].

Cette céramique possède de nombreuses propriétés intéressantes :

a/ sa grande dureté alliée à sa résistance à l'usure, et à son faible coût (1000 F par kilo) de fabrication, en font un abrasif de choix pour les outils de coupe, et un guide-fil idéal dans les filatures. Dans notre cas, il sera difficile de faire des cibles de forme complexe.

b/ Le carbure de bore possède un fort pouvoir thermoélectrique (possibilité de transformer de l'électricité en chaleur vice-versa) à haute température. Cette propriété associée à sa faible masse volumique en fait un convertisseur d'énergie intéressant pour les sondes spatiales.

c/ Sa section efficace dans les réactions nucléaires de fragmentation de la cible et du projectile pour la production d' ^{6}He et ^{8}He comparée à celle du carbone en fait un candidat potentiel pour la fabrication de cible pour SPIRAL dédiée à la production d'Hélium radioactif.

Dans le tableau I-7, sont résumées les sections efficaces de production, suivant la paramétrisation d'EPAX [Win-92], avec un faisceau primaire de ^{13}C à 75 MeV/A sur un noyau de ^{12}C, de ^{10}B et ^{11}B pour l'^{6}He et ^{8}He.

	σ (mb) ^{12}C	**σ (mb) ^{10}B**	**σ (mb) ^{11}B**
^{6}He	10.58	10.65	12.23
^{8}He	$4.597\ 10^{-2}$	$4.43\ 10^{-2}$	$8.36\ 10^{-2}$

Tab. I- 7- *Sections efficaces de production pour l'^{6}He et ^{8}He dans le Carbone et le Bore. Les rapport isotopiques du ^{12}C et des ^{10,11}B sont respectivement 99 %, 20 % et 80 %.*

Le ^{11}B est présent à 80 % dans le Bore naturel. Avec cet élément, on a un facteur 2 sur les sections efficaces de production. On peut donc espérer un gain d'un facteur 2 environ sur les taux de production de l'^{8}He avec le Bore par rapport au Carbone.

d/ Sa faible activation sous irradiation [Sim-99 a] : il génère peu de tritium qui reste piégé jusqu'à 500 °C dans la matrice céramique. Dans le cas de ce matériau pour les cibles de production épaisses, ce dernier point n'est pas un avantage puisque nous travaillons à des températures bien supérieures à 500°C.

e/ Sa faible réactivité chimique. Le carbure de bore est inerte chimiquement. Il n'est pas attaqué par les acides minéraux (même oxydants) et les bases, à diverses concentrations ou en mélange. Le mélange d'acide nitrique, sulfurique, fluorhydrique concentré l'attaquerait. L'oxydation du carbure de bore par l'oxygène démarre à 800°C et a lieu par étapes : la formation d'un film de B_2O_3 limite ainsi la vitesse d'oxydation. Le B_4C est assez résistant à 1200°C. A cette température, il ne réagit pas sur le soufre, le phosphore et l'azote, mais réagit avec le chlore à 1000°C pour former le tri chlorure de bore et du graphite. (Le brome et l'iode ne réagissent pas avec le B_4C).

Par contre, il réagit avec tous les métaux de transition et transforme les oxydes en borures à haute température.

Par exemple : $M_2O_3 + 3\ B_4C \rightarrow 2\ MB_2 + 4\ CO$

$MO_2 + MC + B_4C \rightarrow 2\ MB_2 + 2\ CO$

Ces deux réactions ont lieu entre 1800 et 2000°C sous vide et à la pression atmosphérique.

f/ La température de fusion de 2400°C permet à ce matériau de résister à des températures élevées dans de nombreuses applications technologiques.

I-4-3-4 Caractéristiques du B_4C

Les différentes caractéristiques du carbure de bore sont résumées dans le tableau I-8.

Caractéristiques physiques	
Masse moléculaire	55,25 g
Densité	2,52 g/cm^3
Porosité	<3%
Teneur en bore	78,26%
Teneur en carbone	21,74%
Caractéristiques thermiques	
Chaleur spécifique à 25°C	950 J/K.kg
λ à 20°C	30-90 W/m.K
Expansivité thermique 20-1000°C	5.6 10 –6 K-1
Point de fusion	2400°C
Emissivité 800-1500°C	0.85
Emissivité à 1800°C	0.91
Caractéristiques mécaniques	
Dureté – Vickers	3200 kgf/mm2
Module de traction	440-470 Gpa
Résistance à la traction	350 Mpa

Tab. I- 8– *Caractéristiques du B_4C*

Seul le diamant et le nitrure de bore cubique sont plus durs.

Nous allons maintenant décrire SIRa, le banc permettant de développer et de tester ces ensembles, puis nous présenterons SPIRAL dans son ensemble.

I-5 Le banc de tests SIRa

SIRa (Séparateur d'Ions Radioactifs) [Ann-93] [Bri-92] est implanté dans la salle D2 des Aires expérimentales du GANIL (figure I-20). Il a pour but principal de tester et quantifier les ensembles cible source développés pour SPIRAL, entre autres Nanogan III et MONOLITHE.

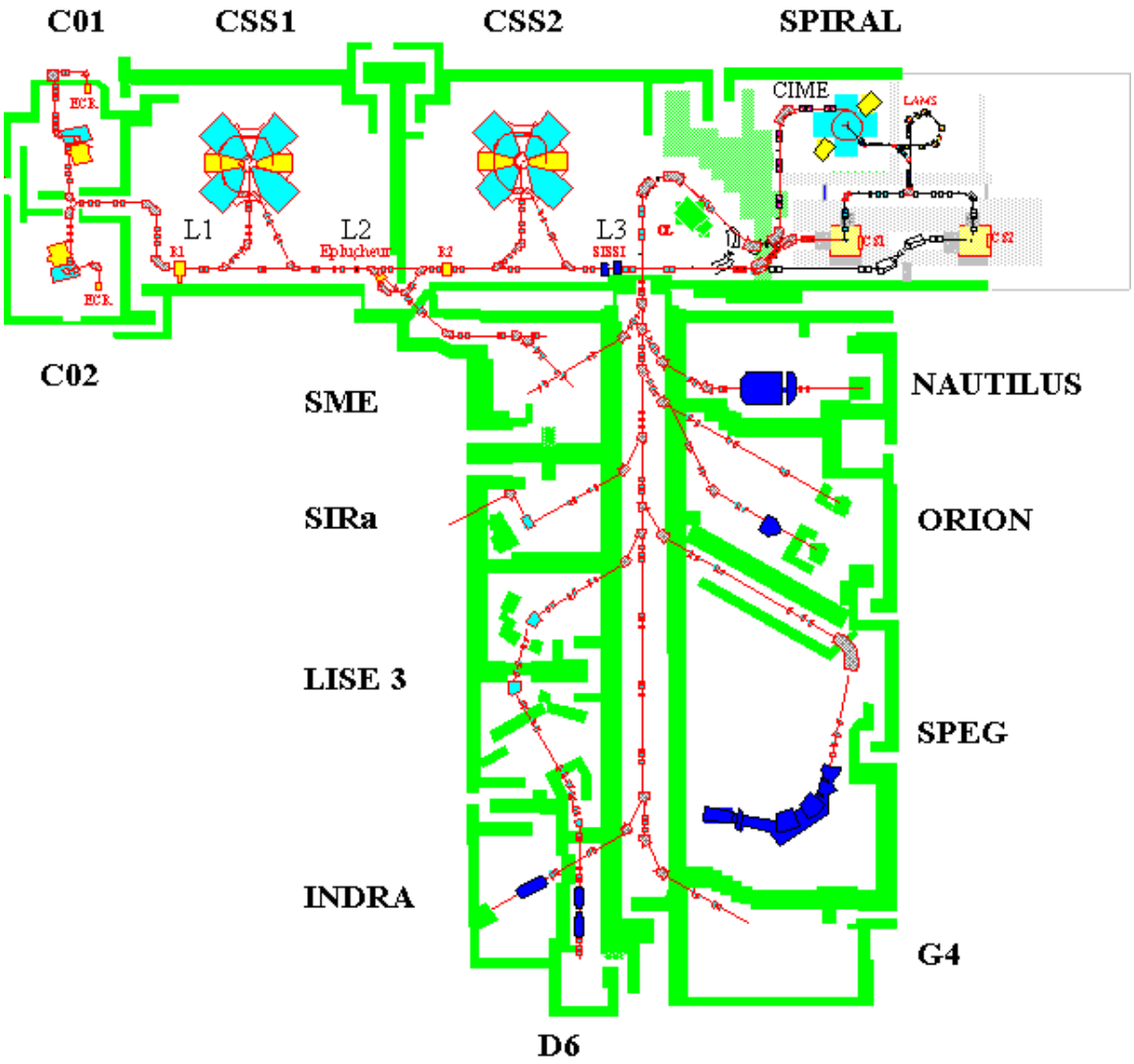


Fig.I- 20 – *Plan de l'accélérateur GANIL et des aires expérimentales*

SIRa se divise en quatre parties (figure I-21) :

- la ligne haute énergie transporte le faisceau primaire fournit par l'accélérateur GANIL, de l'arête de poisson jusqu'à la cible de production de l'ensemble cible source. Divers diagnostiques le long de cette ligne permettent de régler et de contrôler la taille et le centrage du faisceau primaire sur la cible.
- l'ensemble cible source et le solénoïde, enfermés dans une casemate permettant la protection des personnes, d'une part, contre la haute tension nécessaire au fonctionnement de la source d'ionisation (jusqu'à 20kV), et d'autre part, contre les irradiations en confinant l'air irradié. Cette casemate est en dépression à l'aide d'un système de ventilation nucléaire qui permet de filtrer les produits résultants de l'irradiation de l'air. Elle possède aussi un système de réfrigération qui maintient une température homogène autour de l'ensemble de production.

- la ligne d'analyse qui comprend une ligne magnétique adaptant le faisceau jusqu'au dipôle d'analyse où sont sélectionnés les noyaux d'intérêts par le rapport charge sur masse Q/M, puis une ligne électrostatique.
- la détection où le faisceau analysé est amené jusqu'au point de détection. Le faisceau est alors implanté dans une bande de mylar aluminisé. Plusieurs types de détecteurs sont disponibles afin d'avoir une détection adaptée selon les noyaux radioactifs produits et étudiés par le séparateur SIRa : deux cristaux de Germanium pour la détection γ, un plastique scintillant pour la détection β^-, et deux diodes Silicium pour la détection des particules chargées comme les protons. Les différents modes de détection sur SIRa sont décrits dans la thèse de N. Lecesne [Lec-97 a]

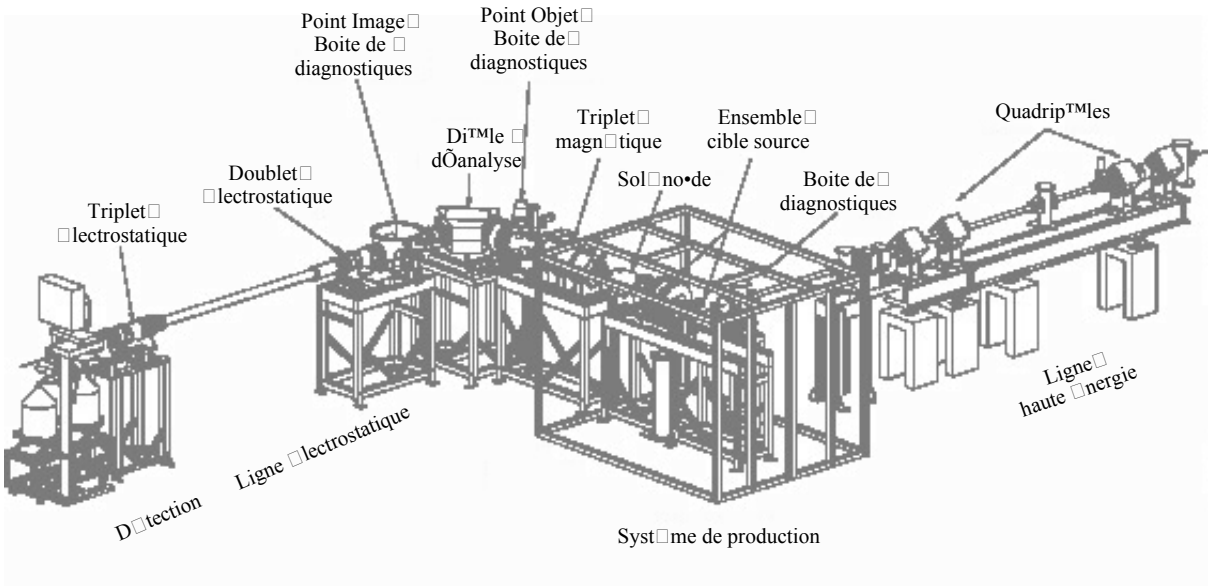


Fig.I- 21 – *Plan du banc de tests SIRa*

En annexe B, seront présentés les modes de détection les mieux adaptés pour l'identification de chaque faisceau radioactif produit avec un faisceau primaire de puissance 400 W sur SIRa.

I-6 SPIRAL

Le projet SPIRAL au GANIL a été financé en décembre 93 par l'IN2P3/CNRS, la DSM/CEA et le Conseil Régional de Basse-Normandie [SPI-94].

LE PROJET SPIRAL

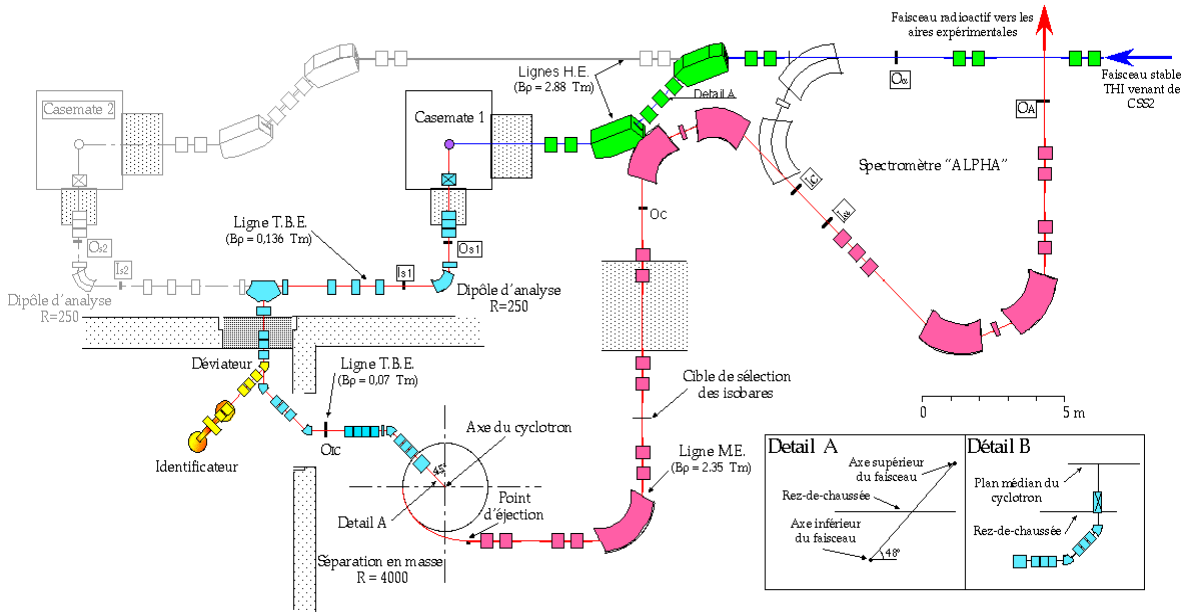


Fig.I- 22 – *Schéma de SPIRAL*

D'un point de vue production, SPIRAL utilisera la méthode ISOL. Les ensembles cible source seront installés dans la casemate 1 (figure I-22). Une deuxième casemate a été prévue, mais ne sera installée qu'ultérieurement.

Une fois ionisés dans la source, les ions forment un faisceau radioactif de basse énergie. Le noyau d'intérêt est sélectionné par le dipôle d'analyse avant d'être injecté dans le "Cyclotron pour Ions de Moyenne Energie" CIME [Bou-98].

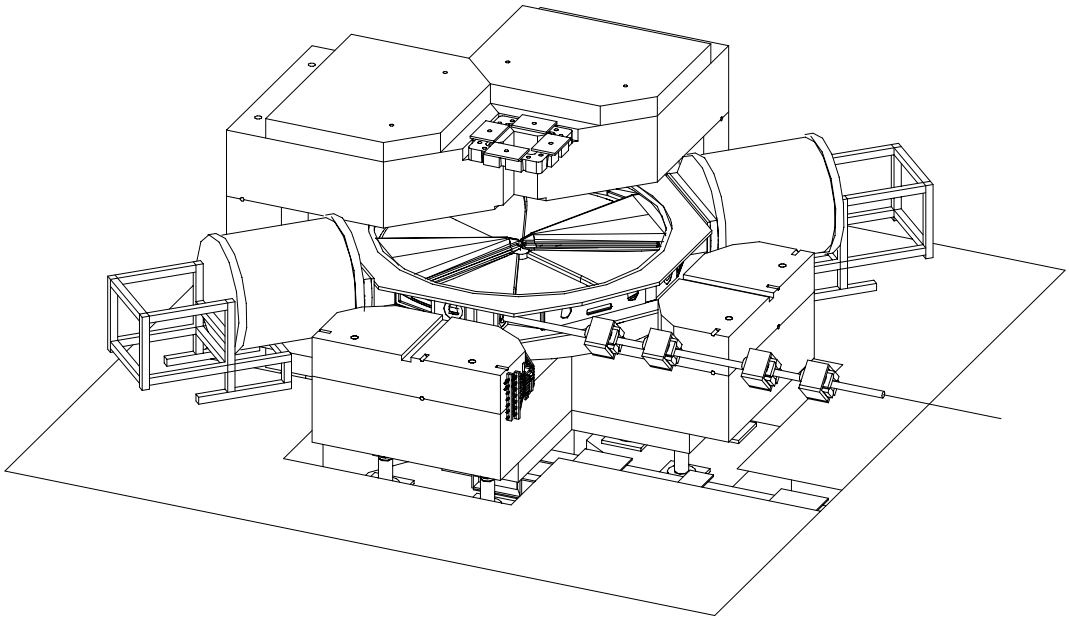


Fig.I- 23 – *Le cyclotron CIME*

CIME est un cyclotron [SPI-94] [Boy-97] compact avec deux pôles circulaires de 3.5m de diamètre et un rayon d'extraction de 1.5m. Les limites du diagramme de fonctionnement (figure I-11) sont relatives aux valeurs minimales et maximales du champ magnétique moyen

(de 0.75 à 1.56 T), ainsi qu'à la fréquence de l'onde HF (de 1.92 à 7.25 MHz). Ce cyclotron permet d'atteindre une gamme d'énergie de 1.7 à 25 MeV/A. Il est toutefois bon de rappeler que toute cette gamme en énergie n'est pas forcement disponible pour tous les isotopes (Q/M) et tous les éléments. L'émittance du faisceau à l'injection est limitée à 80 π mm mrad et à l'extraction, elle est inférieure à 10 π mm mrad. Enfin la transmission totale du faisceau est de l'ordre de 40 %.

Avant l'accélération, sur la ligne Très Basse Energie TBE, il est possible de dévier le faisceau vers une ligne d'Identification Basse Energie IBE [Kan-98] [Kan-00] (Fig.I-22) et de l'implanter sur une bande pour regarder la décroissance radioactive. Le système d'identification permet de détecter les rayonnements γ, β et protons, émis par les noyaux radioactifs, et d'identifier ainsi le noyau d'intérêt, les noyaux parents et les polluants radioactifs éventuellement présents dans le faisceau, et de mesurer leur flux en ligne. Ainsi, il est possible d'optimiser le réglage de l'ensemble cible source et de mesurer le rendement de l'accélération dans CIME.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes attachés à décrire la méthode ISOL, ainsi que les ensembles cible source tels qu'ils étaient au début de ce travail de thèse. Une étude bibliographique a permis de faire une sélection de deux matériaux pour les cibles de production : à savoir le Carbone et le Carbure de Bore B_4C qui est le mieux adapté pour la production d'Hélium.

Nous avons testé une cible en B_4C pour son gain important prévu dans la production d'^{8}He et pour accroître nos connaissances sur les matériaux de type carbure dont la température de fusion est de l'ordre de 2400°C et qui peuvent être utilisés dans d'autres expériences de production de faisceaux.

Cependant le B_4C a aussi des inconvénients, comme sa température de fusion de 2400°C qui peut être atteinte lors de la production des faisceaux radioactifs ou encore sa dureté et sa fragilité dans certaines conditions d'utilisation. Ces limitations seront confirmées dans le chapitre IV.

La description succincte de SIRa et de SPIRAL nous permet de mieux appréhender le contexte dans lequel cette thèse s'est déroulée.

Dans le chapitre suivant, nous allons exposer les problèmes thermiques liés aux cibles. Nous présenterons les codes de calculs utilisés pour ce travail de thèse : le code GANIL et le logiciel SYSTUS.

CHAPITRE II

La thermique des cibles

Nous venons de voir dans le chapitre précédent qu'il était indispensable de connaître et de comprendre la distribution de température au sein de chacune des cibles utilisées, où la température doit être suffisamment haute pour faciliter la diffusion sans toutefois évaporer la cible.

Il est bien évident que nous ne pouvons pas fiabiliser ces cibles uniquement par des tests en ligne (i.e. sous faisceau) pour des raisons de radioprotection, de coût et de temps de faisceau (une fois irradiées, les cibles ne sont plus accessibles immédiatement). Nous avons donc utilisé des outils informatiques afin d'optimiser au mieux les cibles avant de les exposer sous faisceau.

Nous commencerons par décrire les trois modes de transfert de chaleur : la conduction, la convection et le rayonnement.

Nous expliciterons ensuite comment modéliser les problèmes thermiques et les outils mis à notre disposition. Des comparaisons entre les codes de calculs seront présentés dans ce chapitre.

Nous terminerons ce chapitre par une expérience test et les simulations relatives, que nous avons réalisées [Lan-01], permettant de comprendre les problèmes de tenues en température des diagnostics THI de la machine GANIL.

Les ensembles cible source doivent être étudiés pour résister sur une durée de 15 jours en fonctionnement continu. Cette durée a été imposée par le temps d'irradiation des ensembles sous faisceau primaire : c'est le temps maximal qu'un ensemble peut être utilisé pour pouvoir être réutilisable d'un point de vue radioprotection après deux ans de "refroidissement" par décroissance radioactive.

Les cibles développées au GANIL pour la production de faisceaux radioactifs sur SPIRAL seront auto-chauffées par le dépôt de puissance du faisceau primaire (c'est à dire, sans chauffage annexe lorsque la puissance du faisceau primaire est optimale). La cible du premier ensemble dédié à l'Argon et au Néon, dont nous détaillerons les modifications apportées dans le chapitre suivant, est définie comme sur la figure II-1.

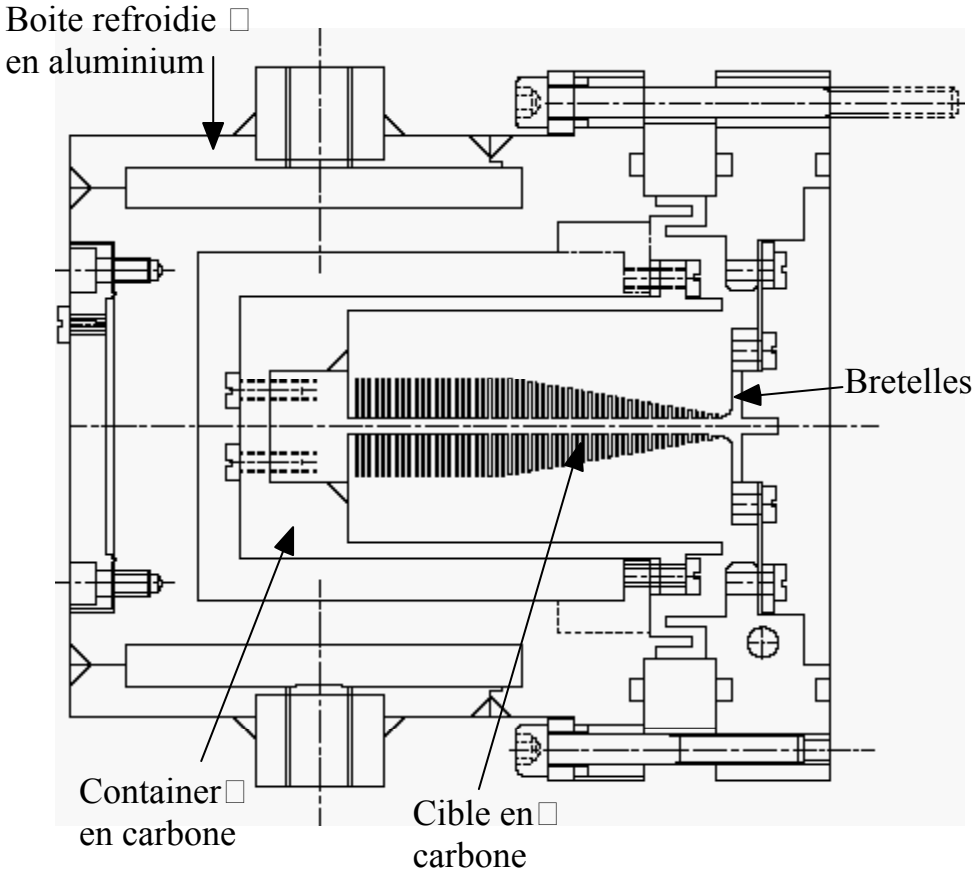


Fig. II- 1 – *Cible en carbone graphite 2318 de Carbone Lorraine (4µm) dédiée à la production des Argons et Néons radioactifs avec son environnement.*

La géométrie des cibles pour l'Argon et le Néon pour le démarrage de SPIRAL ont été définies avec une forme conique à l'avant et des lamelles de 0.5mm [Mau-98]. Un test à Louvain-la-Neuve avec un faisceau de protons équivalent à 6kW de faisceau primaire de ^{36}Ar à 95MeV/A a été réalisé. Ce test montre que la formation d'un trou à lieu sur les lamelles en raison de la puissance déposée au niveau du pic de Bragg [Lic-98]. C'est pour cette raison que la cible est de forme conique. D'autre part il a été montré qu'une température de 2700K est suffisante au niveau du pic de Bragg pour évaporer le carbone sur les lamelles en quelques heures [Put-97].

Avec le projet THI (§I-1-5), nous avons vu qu'une première étape permettrait de fournir un faisceau avec une puissance de 2kW, par conséquent toutes les cibles utilisées pour le démarrage de SPIRAL seront optimisées pour cette puissance de faisceau de 2kW. Mais si pour une raison ou une autre, la puissance du faisceau primaire est insuffisante, la température de la cible pourra être trop basse. Il est donc nécessaire d'ajouter un chauffage annexe à la cible pour maintenir sa température à une valeur de l'ordre de 2400 K afin d'optimiser la diffusion et l'effusion des éléments radioactifs hors de la cible sans dépasser 2450K.

Dans le cas de cette cible (figure II-1), le chauffage annexe se fait en appliquant un courant à travers l'axe de la cible par l'intermédiaire des bretelles et du container en carbone. La cible est alors utilisée directement comme résistance chauffante.

P. Foury a mesuré le taux d'évaporation du graphite 2318 de Carbone Lorraine, qu'elle a comparé aux données de la littérature pour un graphite haute densité HD (figure II-2) [Fou-97].

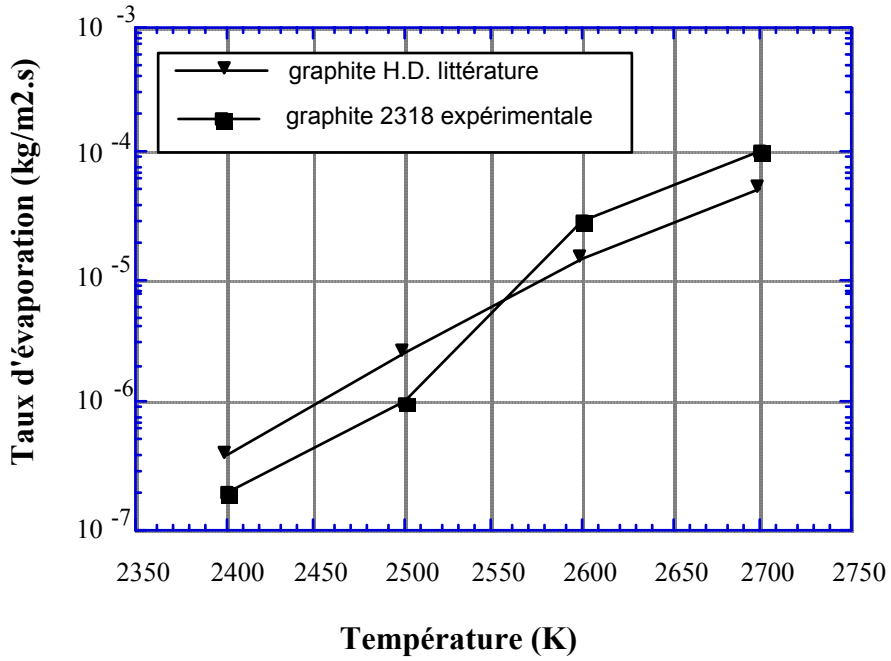


Fig. II- 2 – *Taux d'évaporation du graphite2318 en fonction de la température et comparé à celui d'un graphite haute densité.* [Fou-97]

À partir du taux d'évaporation (en kg/m2.s) mesuré par P. Foury, nous avons évalué [Lan-98] le temps de vie d'une lamelle d'épaisseur 0.5mm en fonction de la température (figure II-3).

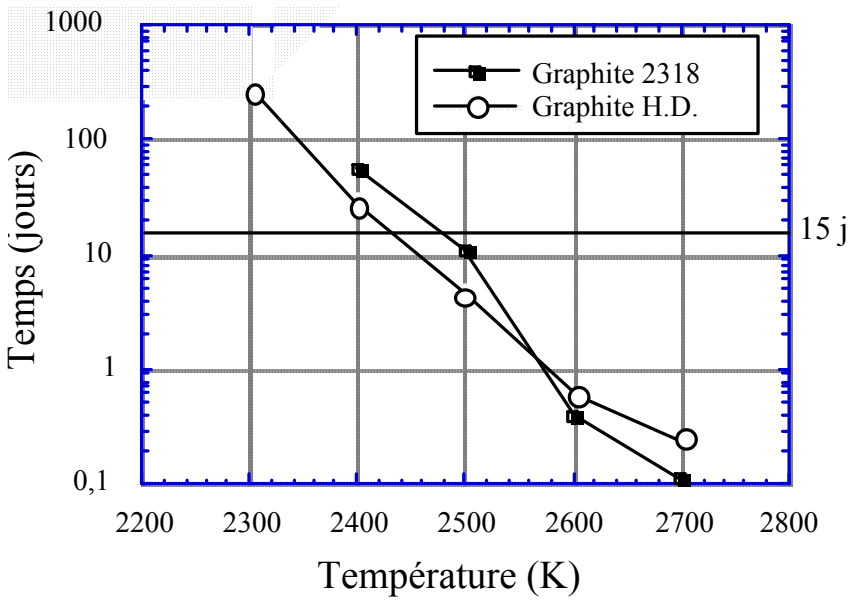


Fig. II- 3 – *Temps nécessaire pour évaporer une lamelle de carbone de 0.5mm d'épaisseur en fonction de la température* [Lan-98].

La température des cibles ne doit pas dépasser une température supérieure à 2450K correspondant à un taux d'évaporation nécessaire pour évaporer une lamelle de 0.5mm en 15 jours (figure II-3), si l'on ne veut pas faire de trou dans la cible par évaporation [Lic-98] [Lec-97 a] [Mau-98]. Pour le développement des cibles, il sera nécessaire d'utiliser des codes de simulations thermiques.

II-1 Les principes de base

La chaleur se transmet sous l'influence de gradients de température. Le transfert de chaleur est alors gouverné par trois modes différents : la conduction, la convection et le rayonnement [Dau-00] [Cra-00] [Eyg-00].

II-1-1 La conduction

La conduction est la diffusion de la chaleur dans la matière par propagation de la vibration moléculaire. Il n'y a pas de déplacement de matière. Elle nous conduit à la description des champs de température et des flux dans un système solide. La diffusion de la chaleur par conduction repose sur l'équation de Fourier.

II-1-1-1 Loi de Fourier

La loi de Fourier stipule qu'il existe une relation linéaire entre la densité de flux et le gradient de température. La chaleur diffuse des zones chaudes vers les zones froides :

$$\varphi = -k\vec{\nabla}T \qquad \textbf{(II- 1)}$$

où k est la conductivité du corps en W/m.K et représente la faculté d'un matériau à laisser passer la chaleur. ∇T est le vecteur gradient de température en K/m. k peut dépendre de la température ou être un tenseur dans le cas de matériaux anisotropes.

Le flux de chaleur s'écoule suivant les gradients de température (perpendiculaire aux isothermes). Il est proportionnel aux gradients de température (proportionnels aux isothermes) et à la conductivité.

II-1-1-2 Equation de la chaleur

L'équation de la chaleur généralisée s'écrit sous la forme :

$$\rho C_p \frac{dT}{dt} + \rho C_p \vec{V}.\vec{\nabla}T = -k\Delta T + q \qquad \textbf{(II- 2)}$$

où $\rho C_p \frac{dT}{dt}$ est le terme d'accumulation de chaleur

$\rho C_p \vec{V}.\vec{\nabla}T$ le flux de matière

$-k\Delta T$ le flux conductif

q la source de chaleur en W/ m^3

avec T : la température (K)

ρ : la densité ($kg.m^{-3}$)

Cp : la chaleur spécifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)

k : la conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$)

Dans un milieu solide, la vitesse V du flux de matière est nulle, l'équation de la chaleur devient alors :

$$\rho C_p \frac{dT}{dt} = -k\Delta T + q \qquad \textbf{(II- 3)}$$

Cette équation n'admet pas de solution analytique générale. Le problème est non linéaire et nécessite une méthode numérique. Pour la résolution des problèmes de transfert thermique, nous utiliserons le logiciel SYSTUS décrit au §II-2-1, et le programme GANIL [Lic-98] que nous expliciterons au § II-2-2.

II-1-2 La convection

La convection est un transfert dont l'origine est le mouvement d'un fluide. Elle est généralement linéarisée par :

$$\Phi = h\, S\, (T_S - T_{moy}) \qquad \textbf{(II- 4)}$$

où h est le coefficient d'échange ($W.m^{-2}.K^{-1}$)

S la surface d'échange (m^2)

T_S la température de la surface d'échange (K)

T_{moy} la température moyenne du fluide telle que $T_{moy} = (T_{amont} - T_{aval}) / 2$

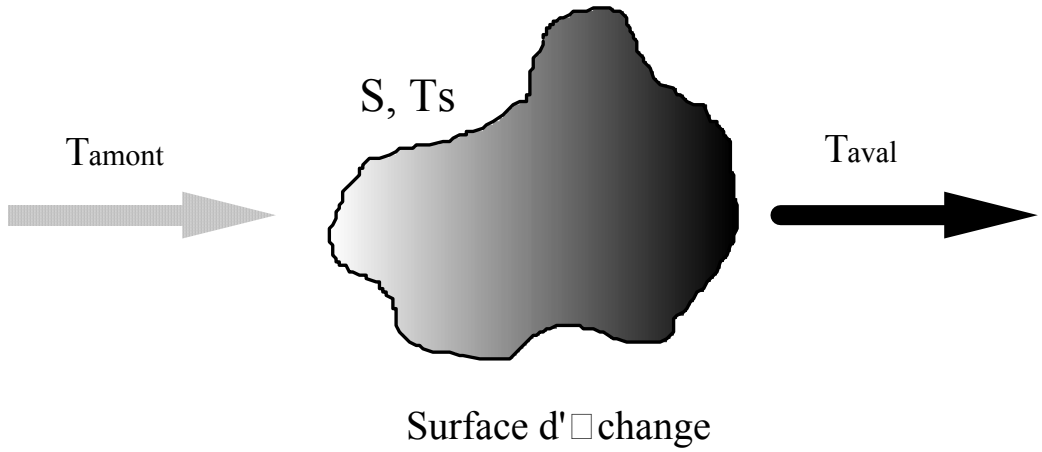


Fig. II- 4 – *Schéma de principe de la convection illustrant l'équation II-4.*

Le coefficient d'échange h est fonction de :

- la vitesse du fluide de refroidissement (calcul du nombre de Reynolds)
- la température du fluide
- la géométrie du système de refroidissement (calcul de la longueur caractéristique)
- des caractéristiques du fluide (calcul du nombre de Prandtl).

La convection est gouvernée par deux mécanismes :

- soit la convection libre ou naturelle
- soit la convection forcée

II-1-2-1 La convection naturelle

Le moteur d'écoulement est le gradient de température. Le coefficient d'échange dépend alors de la différence de température T_{moy}-T_{paroi} .

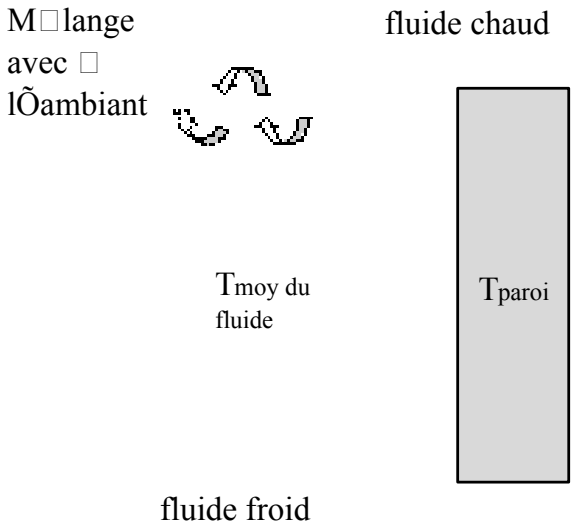


Fig. II- 5 – *Schéma de principe de la convection naturelle le long d'une paroi.*

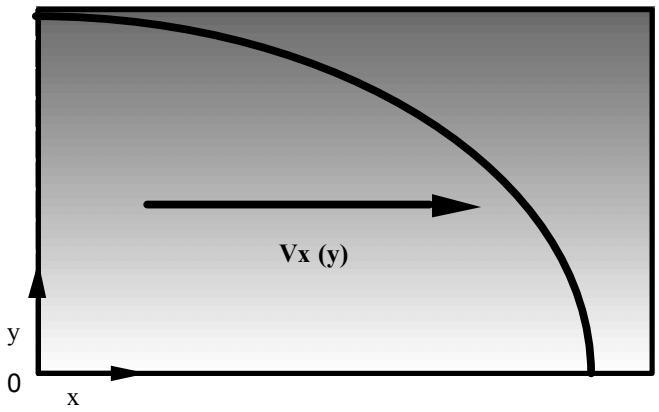
II-1-2-2 La convection forcée

Le moteur de l'écoulement est extérieur aux phénomènes de transfert (ex. : circulation de fluide dans un tube par une pompe). h dépend de la vitesse du fluide. Il faut alors prendre en compte les caractéristiques ainsi que les régimes d'écoulements du fluide, car c'est dans la couche limite qu'ont lieu les transferts. On définit par couche limite, la couche de fluide au contact de la paroi.

II-1-2-2-1 Régime laminaire

Si le régime est laminaire, où les vitesses d'écoulements du fluide sont faibles et/ou les fluides sont visqueux. Les couches de fluides glissent alors les unes sur les autres, et le transfert se fera par conduction entre ces couches sans qu'il n'y ait de mélange.

Le profil de vitesse $V_x(y)$ du fluide est alors :



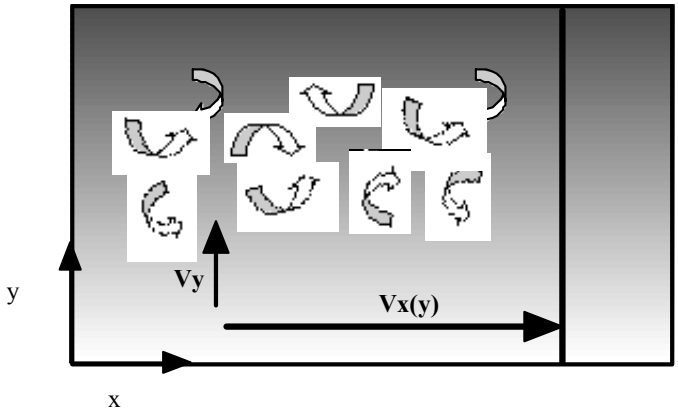
$$V_x(y) = V_{moy}\left(1 - \frac{y^2}{d}\right)$$

$$V_y = 0$$

Fig. II- 6 – *Profil de vitesse en régime laminaire. A y=0 (au centre d'un tube) la vitesse est maximum alors qu'elle est nul sur les parois (couche limite).*

II-1-2-2-2 Régime turbulent

Si le régime est turbulent, où les vitesses sont grandes et/ou les fluides sont peu visqueux. Le fluide se mélange durant l'écoulement et le transfert se fait par conduction dans la couche limite et par mélange dans l'écoulement. La vitesse et la température du fluide sont connues.



$$V_x(y) \rightarrow V_{moy}$$
$$V_y = \text{aléatoire}$$
$$V_y << V_{moy}$$

Fig. II- 7 – *Convection en régime turbulent*

Le transfert sera d'autant meilleur que la couche limite est mince, il faudra donc avoir un régime turbulent dans le système de refroidissement.

II-1-3 Le rayonnement

Le rayonnement devient non négligeable dès que des températures élevées sont mises en jeu (≈ 300°C). Tout corps opaque ou partiellement opaque dont la température n'est pas à zéro Kelvin (0K), émet de l'énergie dans toutes les directions sous forme d'un rayonnement électromagnétique composé de longueurs d'ondes différentes dont l'intensité dépend de la température du corps.

Les flux de chaleur échangés par rayonnement mettent en jeu des phénomènes d'absorption et de réflexion, et peuvent être schématisés comme sur la figure II-8 [Cra-00] :

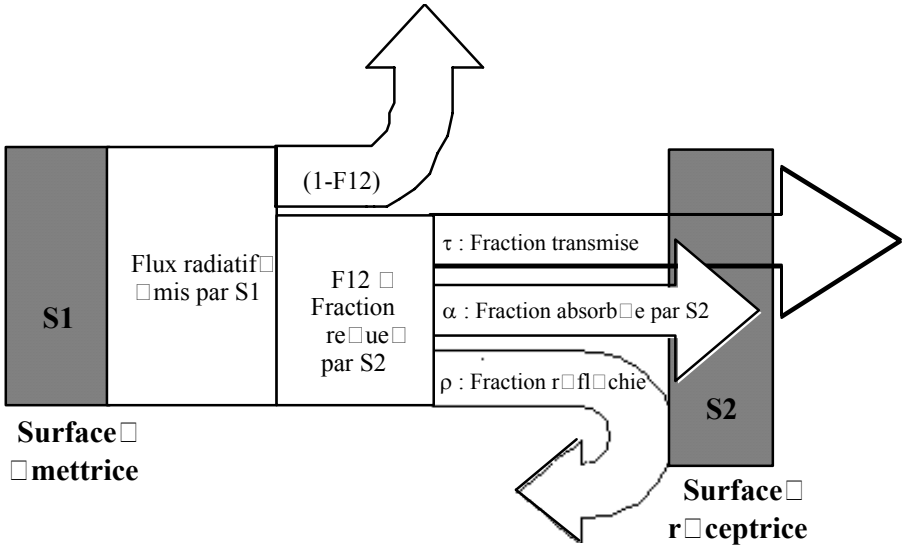


Fig. II- 8 – *Flux de chaleur échangés par rayonnement*

Le flux incident se disperse en :

- flux réfléchi caractérisé par le facteur de réflexion ρ ($0<\rho<1$)
- flux absorbé caractérisé par le facteur d'absorption α ($0<\alpha<1$)
- flux transmis caractérisé par le coefficient de transmission τ

Le bilan donne la relation entre ces facteurs : $\alpha+\rho+\tau = 1$

Dans le cas des corps opaques $\tau=0$: $\alpha+\rho = 1$.

Le pouvoir émissif, ou l'émittance e, d'un corps est caractérisé par la densité de flux émise dans toutes les directions de l'espace qui est dépendante de la température du corps.

Un corps noir est un corps dont le facteur d'absorption est 1 : il absorbe tout et ne réfléchit rien. Son émittance totale E vaut alors :

$$E = \sigma T^4 \qquad \textbf{(II- 5)}$$

T est la température en Kelvin, σ la constante de Stéphan-Boltzmann ($5.67\times10^{-8} W/m^2.K^4$).

Pour un corps quelconque, l'émittance totale est considérée comme l'émittance d'un corps noir ayant la même température telle que :

$$e = \varepsilon E = \sigma \varepsilon T^4 \qquad \textbf{(II- 6)}$$

avec ε l'émissivité d'un corps. Pour un corps noir ε=1, et pour un corps gris la loi de Kirchhoff montre que :

$$\alpha = \varepsilon = 1 - \rho \qquad \textbf{(II- 7)}$$

Les calculs sur le rayonnement sont complexes et sont non linéaires. Les calculs des facteurs de formes, permettant de connaître les facteurs d'angles entre deux surfaces, sont difficiles et longs, d'où l'intérêt d'utiliser un logiciel tel que SYSTUS [SYS] ou le code GANIL [Lic-98].

II-2 La modélisation

Les cibles étudiées pour le projet SPIRAL sont telles, qu'elles font intervenir les trois modes de transfert thermique :

- la conduction dans un élément solide : la puissance déposée, soit par le chauffage ohmique sur l'axe, soit par le faisceau sur les lamelles, se dissipe au sein de la cible par conduction thermique. Dans les simulations, les contacts thermiques entre les différentes pièces de l'ensemble cible sont supposés parfaits.
- la convection : le refroidissement de la cible est effectué par une circulation d'eau entre les parois de la boîte cible en aluminium. Le coefficient d'échange thermique est calculé à partir des caractéristiques du système de refroidissement du GANIL.
- le rayonnement : travaillant à haute température, le mode "rayonnement" devient très important ; de plus, la complexité des cavités rayonnantes (rayonnement entre les lamelles, avec les parois de la boîte en aluminium, avec le conteneur et le réflecteur) au sein de la boîte cible entraîne des calculs de facteurs de forme très complexes.

Suivant la cible étudiée (pour la production d'Argon ou de Néon, de Lithium ou d'Hélium radioactifs), nous n'utiliserons pas le même code de calcul ; nous verrons dans le §II-2-3 de ce chapitre, les raisons qui nous ont amenées à utiliser deux codes différents :

- un code de calcul a été développé au GANIL, que nous appellerons programme GANIL.
- nous utiliserons aussi la méthode des éléments finis via le logiciel SYSTUS.

Il existe différentes méthodes de résolution, mais nous nous attacherons à expliciter uniquement le cas utilisé pour résoudre les problèmes de thermique des cibles.

II-2-1 Logiciel SYSTUS et options de calculs

II-2-1-1 Principe des éléments finis

SYSTUS utilise la méthode des différences finies. Il s'agit d'un outil numérique. L'équation de la chaleur (II-3) dans un milieu solide en régime transitoire dans le cas linéaire, [Cra-00] peut s'écrire de façon discrétisée et le plus généralement possible selon l'équation II-8 :

$$Ku(t) + Cu'(t) = g(t) \qquad u(0) = u_0 \qquad \textbf{(II- 8)}$$

Il s'agit d'un système de N équations toutes couplées les unes aux autres. Où K est la matrice de conductivité, C la matrice de capacité, g le vecteur des charges thermiques et u le vecteur des températures à chaque point du problème.

En régime stationnaire, le temps n'intervient pas, les conditions initiales non plus. Les températures n'évoluent plus en fonction du temps, donc Cu'(t) = 0.

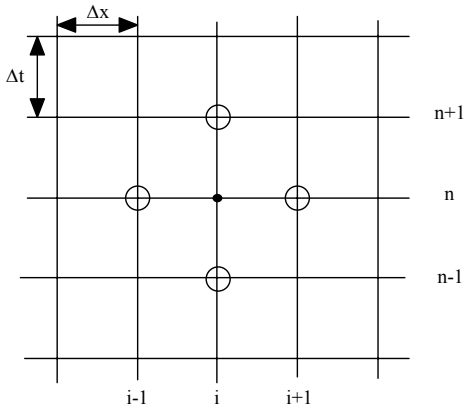
Ce système se réduit alors à :

$$Ku(t) = g(t) \qquad \textbf{(II- 9)}$$

En régime transitoire, l'équation (II-8) est résolue de façon discrète pas à pas. Pour résoudre le problème, qui est décrit par un modèle continu dans le temps, on décompose la durée d'observation en intervalles de temps Δt de durée variable ou non suivant la précision voulue. On progresse numériquement dans le temps de façon discrète.

II-2-1-2 Schéma d'intégration – cas linéaire

Un schéma d'intégration est la méthode qui permet d'avancer dans le temps et de calculer l'état du système aux différents instants choisis.



On effectue un maillage tel que :

$x = x_0 + i\,\Delta x$

$t = t_0 + n\,\Delta t$

avec i l'indice spatial et n l'indice temporel

Fig. II- 9 – *Schéma d'intégration*

À l'intérieur d'un intervalle temporel $[t_n, t_{n+1}]$, on considère un instant t_θ particulier tel que :

$$t_\theta = (1-\theta)t_n + \theta t_{n+1} = t_n + \theta\Delta t \qquad \theta \in [0,1] \qquad \textbf{(II- 10)}$$

avec Δt le pas de temps et θ le paramètre du schéma d'intégration.

La dérivée à l'instant t_θ s'écrit alors sous la forme :

$$u'(i,t_\theta) = \frac{u(i,t_n) - u(i,t_{n-1})}{\Delta t} \qquad \textbf{(II- 11)}$$

Par simplicité d'écriture, nous écrirons par la suite, uniquement les indices temporels n et θ, l'équation II-11 devient alors :

$$u'_\theta = \frac{u_n - u_{n-1}}{\Delta t} \qquad \textbf{(II- 12)}$$

La vitesse instantanée de variation de la température à l'instant t_θ est égale à la vitesse de variation de la température sur l'intervalle considéré. Si θ est différent de 0, la vitesse à l'instant t_θ dépend de la température à l'instant t_{n+1} que l'on cherche.

L'équation II-8 doit être vérifiée à tout moment et plus particulièrement à l'instant t□, cette équation devient :

$$Ku_\theta + Cu'_\theta = g_\theta \qquad \textbf{(II- 13)}$$

$$\begin{aligned} u_\theta &= (1-\theta)u_n + \theta u_{n+1} \\ g_\theta &= (1-\theta)g_n + \theta g_{n+1} \end{aligned} \qquad \textbf{(II- 14)}$$

A partir de l'équation II-13 nous obtenons :

$$u_{n+1} = \frac{1}{C + \Delta t\theta K}\left[\Delta t\left[(1-\theta)g_n + \theta g_{n+1}\right] + \left[C - (1-\theta)\Delta t K\right]u_n\right] \qquad \textbf{(II- 15)}$$

g, le vecteur des charges thermiques, est connu à tout instant, u_n est connu, donc nous pouvons connaître u_{n+1}.

Lorsque le paramètre θ est nul, on parle alors de schéma explicite. Dès lors que θ est non nul, les schémas d'intégration sont dit implicites. Si θ =1/2, le schéma est celui du trapèze ou de Crank-Nicolson : i.e. l'état du système au temps t_{n-1} et une prévision de l'état à l'instant t_n sont utilisés pour calculer l'état de ce système au temps t_n. Si θ est égale à 2/3, le schéma est celui de Galerkin. Enfin, si θ=1, le schéma est dit totalement implicite.

Dans notre cas, nous avons choisi le schéma de crank-Nicolson (θ=1/2), car il a l'avantage d'être inconditionnellement stable, sans qu'aucune composante ne diverge, donc la température reste finie partout et à tout instant. Ce schéma est conseillé dans le cas de sollicitations régulières.

II-2-1-3 Schéma d'intégration – cas non linéaire

Lorsque K et C sont dépendants de u(t), l'équation II-8 devient :

$$K\big(u(t)\big)u(t) + C\big(u(t)\big)u'(t) = g(u,t) \qquad u(0) = u_0 \qquad \textbf{(II- 16)}$$

et

$$\begin{aligned} u_\theta &= (1-\theta)u_n + \theta u_{n+1} \\ u'_\theta &= \frac{u_{n+1} - u_n}{\Delta t} = \frac{u_\theta - u_n}{\theta \Delta t} \end{aligned} \qquad \textbf{(II- 17)}$$

Le bilan thermique à l'instant t_θ est un système d'équations algébriques non linéaires tel que :

$$K_\theta u_\theta + C\frac{u_\theta - u_n}{\theta\Delta t} = g_\theta \quad \Rightarrow \quad K_\theta u_\theta + \frac{1}{\theta\Delta t}Cu_\theta = g_\theta + \frac{1}{\theta\Delta t}Cu_n \qquad \textbf{(II- 18)}$$

On estime alors le résidu que l'on veut annuler :

$$r(u_\theta) = Ku_\theta + Cu'_\theta - g_\theta \qquad \textbf{(II- 19)}$$

On définit ensuite la matrice d'itération telle que :

$$S = \frac{\partial r}{\partial u} = \frac{\partial(Ku)}{\partial u} + \frac{\partial(Cu')}{\partial u} - \frac{\partial g}{\partial u} \approx K + C\frac{\partial u'}{\partial u} = K + \frac{C}{\alpha\Delta t} \qquad \textbf{(II- 20)}$$

On itère par la relation (II-20) jusqu'à ce que le résidu r devienne inférieur à une précision choisie (pour notre cas, la précision est de 10^{-6}), les températures sont alors connues. On récupère la variation de la charge thermique g entre t_{n+1} et t_{n+2}, ce qui crée un déséquilibre. On recommence ainsi la boucle jusqu'à obtenir un équilibre thermique à la précision voulue.

Certains phénomènes d'oscillation peuvent apparaître dans l'établissement du régime transitoire, si le pas de temps Δt est mal choisi par rapport à la taille du maillage Δx. Une relation simple permet de lier Δx et Δt par :

$$\Delta x = \psi\sqrt{\frac{\lambda}{\rho c}t} \qquad 2 \le \psi \le 4 \qquad \textbf{(II- 21)}$$

Dans le cas d'oscillations spatiales (à un instant donné, la température oscille), il existe deux façons d'y pallier :

- soit le maillage est trop grossier : on refait un maillage plus fin près des frontières,
- soit le pas de temps est trop petit, il faut alors l'augmenter.

Dans le cas d'oscillations temporelles :

- soit on augmente le paramètre θ du schéma d'intégration,
- soit on diminue le pas de temps Δt.

En annexes D et E, nous présenterons en détail le fichier de commande utilisé pour les simulations avec SYSTUS.

II-2-1-4 La géométrie

Vu la géométrie des cibles présentant une symétrie axiale, exceptées les bretelles à l'avant de l'axe (figure II-1), une étude a été faite pour comparer les résultats d'une géométrie 2D axisymétrique en l'absence des bretelles avec une géométrie 3D avec la présence des bretelles. Cette étude permet de voir l'importance de la perte de chaleur par conduction au niveau des bretelles à l'avant de la cible.

Une géométrie simplifiée est utilisée et constituée d'une cible de 4 lamelles fixée à l'arrière d'un container en carbone par un axe, le tout refroidi par une boîte en aluminium. Une puissance de 350W est appliquée sur l'axe.

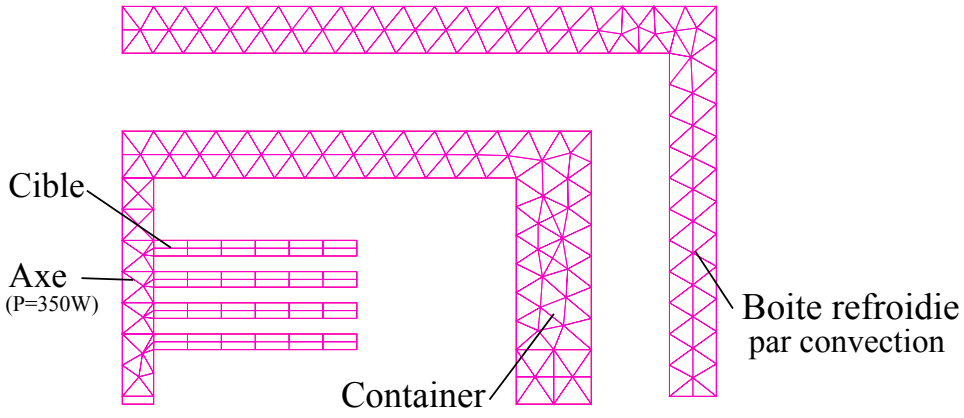


Fig. II- 10 – *Schéma de la géométrie simplifiée en 2D avec son maillage pour une cible et un container en carbone. La boite refroidie par convection (circulation d'eau sur les parois extérieures) est en aluminium. Le rayonnement est pris en compte entre la boite et le container ainsi qu'entre le container, la cible et les lamelles.*

Les résultats obtenus sont présentés par la figure II-11 :

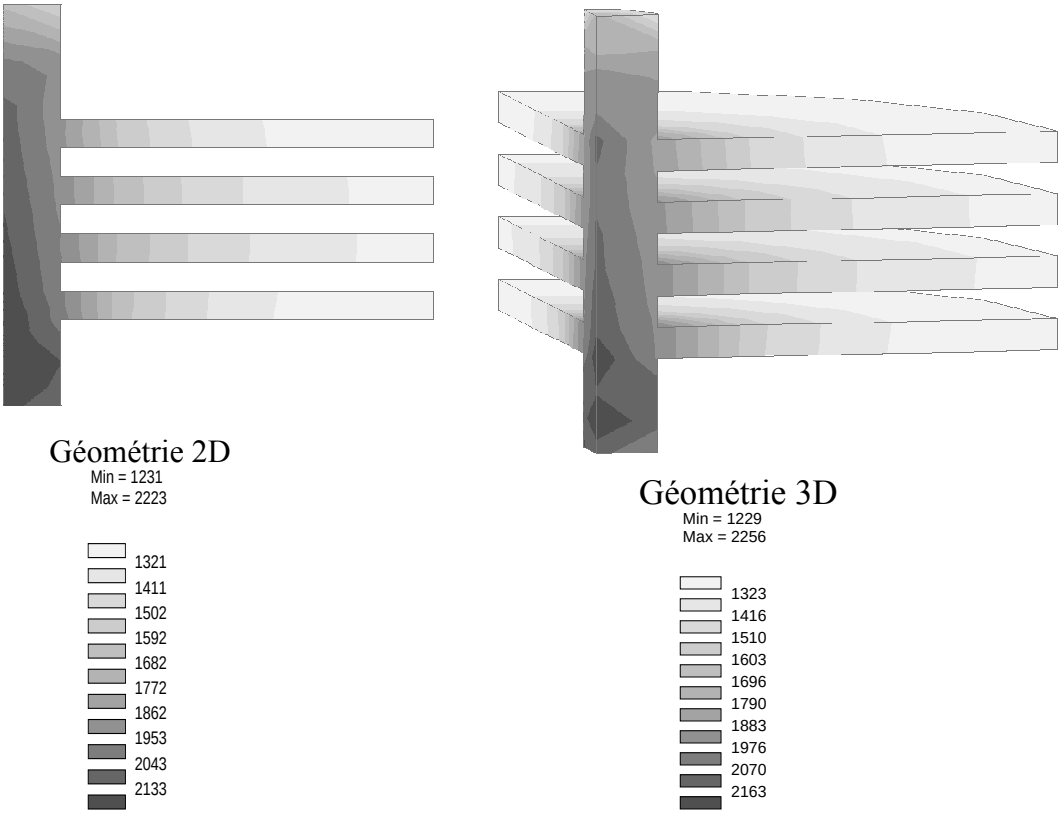


Fig. II- 11 – *Résultats comparatifs entre une géométrie 2D et une géométrie 3D. La puissance appliquée sur l'axe est de 350W. Les bretelles sont prises en comptes dans la géométrie 3D mais ne sont pas représentées sur le graphe.*

Étant donné le peu de différence sur la température maximale entre les deux géométries (T_{max}=2223°C pour la géométrie 2D et T_{max}=2256°C pour la géométrie 3D, soit une différence de 1.5 %), nous pourrons effectuer les calculs avec une géométrie 2D axisymétrique. Ceci conduit à une simplification de la géométrie, à une diminution du nombre d'éléments de calculs et, par conséquent, à une diminution du temps de calcul.

II-2-2 Programme GANIL

Ce programme a été développé à l'origine par M. Toulemonde et P. Foury [Tou-92] [Fou] puis par R. Lichtenthäler [Lic-98] au CIRIL et au GANIL. Après la découverte d'un trou à l'intérieur d'une cible en carbone qui avait été irradiée par des ions lourds du GANIL [Lec-97 a], il était important de calculer et de comprendre la distribution en température dans les cibles.

Ce programme est basé sur l'intégration numérique d'une équation différentielle non linéaire en coordonnées cylindriques.

Ce programme ne prend pas en compte les bretelles à l'avant de la cible. La simulation SYSTUS (§ II-2-1-4) a montré que cela n'entraîne pas de changements importants dans les résultats.

L'équation de la chaleur prend alors la forme :

$$\rho C(T)\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial r}\left[K(u)\frac{\partial u}{\partial r}\right] + \frac{K(u)}{r}\frac{\partial u}{\partial r} + q_a + q_{rad} \qquad \textbf{(II- 22)}$$

où u=u(z,r,t) la température (K)

ρ la densité du matériau dépendante de u

C la capacité calorifique du matériau dépendante de u

K la conductivité du matériau dépendante de u

q_a est le dépôt de puissance du faisceau primaire dans la cible ou le dépôt de puissance du chauffage ohmique (on a la possibilité de choisir, soit de chauffer l'axe de la cible : chauffage par l'axe, soit de chauffer le conteneur autour de la cible : chauffage externe).

q_{rad} décrit les échanges radiatifs entre les lamelles de la cible.

Les deux premiers termes de la partie droite de l'équation prennent en compte la conduction dans le sens radial. Lorsque l'on prend en considération les transferts de chaleur au sein de l'axe de la cible, un terme de conduction axial doit être ajouté : $\frac{\partial}{\partial z}\left(K\frac{\partial u}{\partial z}\right)$ et q_{rad}=0 sur l'axe.

Pour éviter tout problème d'oscillation dans le calcul numérique, il faut bien choisir le pas de temps. Celui-ci est lié au pas radial h tel que :

$$\Delta t \leq \frac{\rho C h^2}{2K} \qquad \textbf{(II- 23)}$$

Pour résoudre cette équation, la méthode des différences finies est utilisée. Nous définissons alors les dérivées premières et secondes par :

$$\frac{\partial u}{\partial r} = \frac{1}{2h}(u_{i+1} - u_{i-1}) \text{ et } \frac{\partial u}{\partial z} = \frac{1}{2e}(u_{i+1} - u_{i-1}) \text{ avec } r = ih \text{ et } z = me$$

$$\frac{\partial^2 u}{\partial r^2} = \frac{1}{h^2}\left[(u_{i+1} - u_i) - (u_i - u_{i-1})\right] \text{et } \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} = \frac{1}{e^2}\left[(u_{i+1} - u_i) - (u_i - u_{i-1})\right] \qquad \textbf{(II- 24)}$$

$$\frac{\partial K}{\partial r} = \frac{1}{2h}(K_{i+1} - K_{i-1})$$

Cette simulation permet l'irradiation de la cible par un faisceau tournant et décalé par rapport à l'axe de la cible.

Des tests de validation ont été réalisés à Louvain La Neuve en irradiant une cible conique en carbone optimisée à 6kW par un faisceau de protons de 30MeV et 200µA d'intensité. Ce faisceau est équivalent, du point de vue du dépôt de puissance à un faisceau d'^{36}Ar de 6kW et 95MeV/A dans du carbone [Lic-98]. Ces tests ont permis de valider le code de calcul GANIL.

II-2-3 comparaison des codes de calculs

La première étude a été de comparer les codes utilisés pour vérifier leur validité dans le cadre de nos simulations. Pour se faire, nous avons effectué des calculs avec la géométrie de la cible dédiée à la production d'Héliums radioactifs, développée dans le chapitre IV de cette thèse, dont le schéma est présenté sur la figure II-12.

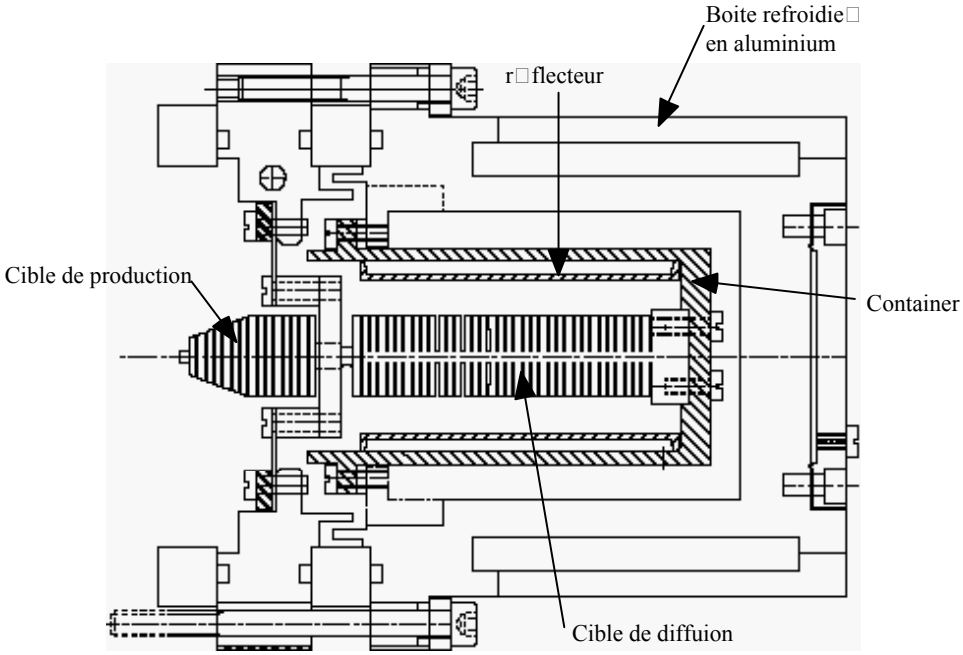


Fig. II- 12 – *Cibles en carbone dédiée à la production d'Héliums radioactifs.*

Cette cible en carbone est composée d'une cible en deux partie. La première, appelée cible de production, est uniquement chauffée par le dépôt de puissance du faisceau primaire. La deuxième cible, dite cible de diffusion, ne peut être chauffée que par un chauffage annexe en appliquant un courant au travers de l'axe par l'intermédiaire des bretelles et du container en carbone. La cible est composée de lamelles d'épaisseur 1.5mm et un cône à l'avant d'angle ± 20°. Le faisceau primaire (un faisceau de ^{13}C à 75 MeV/A) tourne autour de l'axe avec une vitesse de rotation de 20 Hz.

Le programme GANIL [Lic-98] a été développé pour estimer les températures lorsqu'un faisceau est arrêté au sein d'une cible conique à lamelles. Ce programme est facile d'utilisation car la géométrie des cibles coniques et à lamelles est prise en compte directement dans les calculs.

Les paramètres modifiables dans le fichier de commande sont :

- la géométrie de la cible : le $^1/_2$ angle du cône, le rayon de la cible et de l'axe, l'épaisseur et l'espacement entre les lamelles, le nombre de lamelles.
- l'environnement de la cible : le rayon et l'épaisseur du container, le nombre de réflecteurs.
- la géométrie du faisceau primaire : la nature du faisceau primaire (A et Z), son énergie, sa forme (carrée ou gaussienne), sa vitesse de rotation et sa position sur la cible.

Ce programme calcule alors automatiquement le nombre de lamelles dans le cône, le parcours d'arrêt du faisceau primaire dans la cible ainsi que la puissance réelle du faisceau déposée dans la cible suivant le pic de Bragg. Il permet de simuler la rotation d'un faisceau gaussien en rotation autour de l'axe de la cible de production. Il est simplifié du point de vue rayonnement au bout des lamelles en vis-à-vis du container, et de la conduction en z suivant l'axe. Ce programme ne prend pas en compte le refroidissement de la boite en aluminium par convection.

Le logiciel SYSTUS [SYS], quant à lui, est un logiciel commercial plus généraliste. Il prend en compte tous les échanges de chaleur : rayonnement, convection et conduction. L'inconvénient est qu'il faut redessiner la géométrie de la cible, calculer le parcours d'arrêt et le dépôt de puissance suivant le pic de Bragg au préalable avant chaque calcul différent, ce qui devient vite long et fastidieux si l'on cherche à optimiser une géométrie de cible.

Dans ce logiciel, la répartition du faisceau gaussien sur la cible est pris en compte de façon homogène sur l'ensemble de la cible comme si la vitesse de rotation du faisceau était infiniment grande. Pour une vitesse de rotation du faisceau supérieure à 10Hz, L. Maunoury a montré que la température maximale dans la cible se stabilisait à une valeur plateau [Mau-98]. Le fait de prendre une répartition homogène sur la cible équivalent à une vitesse infiniment grande, dans le cas des simulations SYSTUS, n'entraînera pas d'erreurs sur les résultats des calculs.

La figure II-13 présente les résultats des simulations de la cible de production en fonction de la puissance du faisceau primaire de ^{13}C à 75MeV/A.

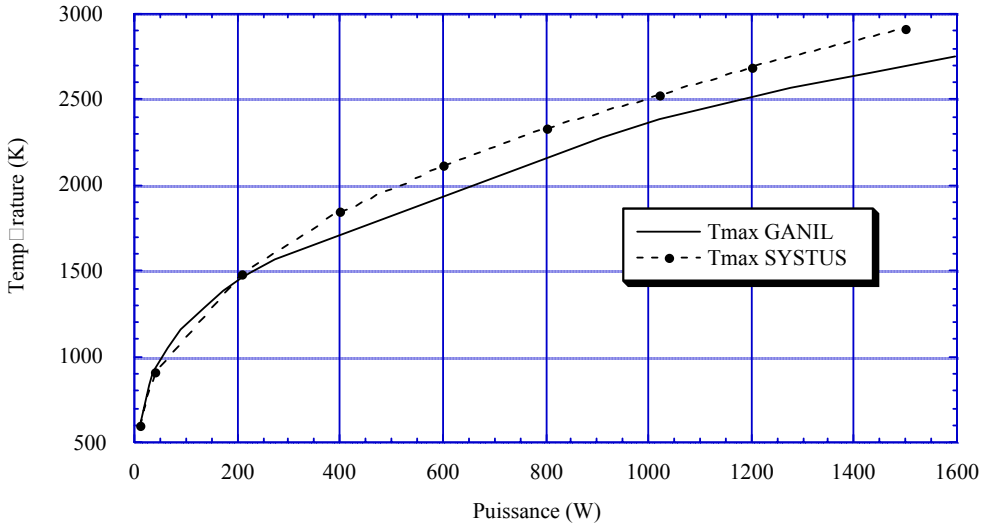


Fig. II- 13– *Comparaison des codes de calculs utilisés dans ce travail de thèse (code GANIL et SYSTUS) pour la cible de production ayant des lamelles d'épaisseur 1.5 mm et un angle de ±20° avec un faisceau de ^{13}C à 75 MeV/A. Ce graphe représente la température maximale dans la cible en fonction de la puissance du faisceau primaire de ^{13}C.*

La figure II-14 présente les résultats des simulations avec la cible dite de diffusion (figure II-12) lorsque l'on applique une puissance de 1kW sur l'axe.

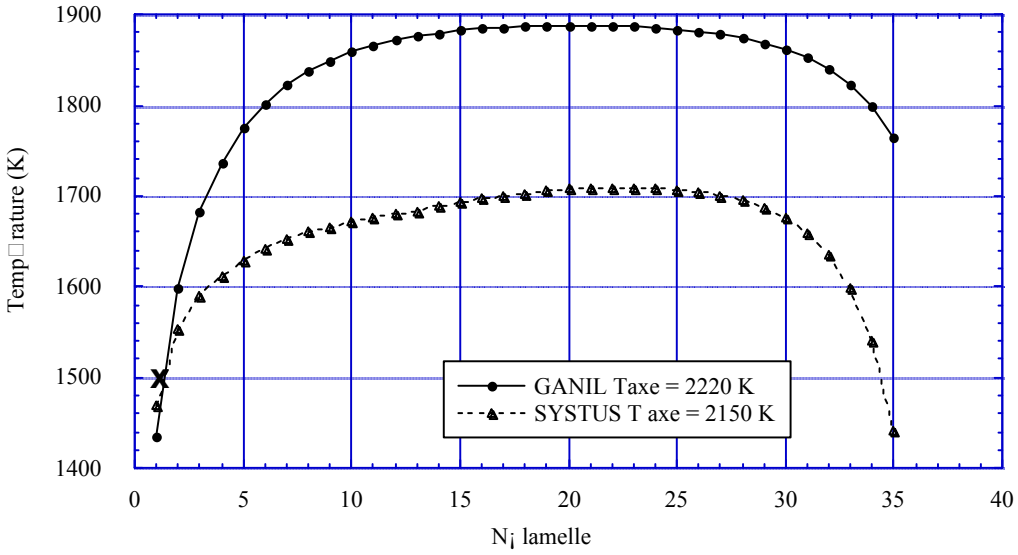


Fig. II- 14- *Comparaison des codes de calculs utilisés dans ce travail de thèse (code GANIL et SYSTUS) pour la cible de diffusion cylindrique ayant des lamelles d'épaisseur 1.5 mm. Le graphe représente la température de surface de la cible pour une puissance injectée dans l'axe de 1kW. La croix à 1500K correspond au seul point de mesure accessible sur le banc de tests de chauffage.*

Les deux codes de calculs donnent les mêmes résultats à 7 % près, lorsque l'on prend en compte le dépôt de puissance du faisceau primaire et que l'on compare la température maximale dans la cible (température où le faisceau s'arrête) (figure II-13). Les températures

calculées avec le code SYSTUS sont surestimées car il est difficile de réaliser un dépôt de puissance suivant le pic de Bragg de façon réaliste sur chaque élément du maillage lorsque la géométrie des cibles est conique et à lamelles.

Les écarts de température maximale sur l'axe avec un chauffage ohmique sont faibles (figure II-14, ΔT= 70°C (équivalent à 3.5 %)). Par contre, le programme GANIL ne reproduit pas les mêmes tendances que le logiciel SYSTUS lorsque l'on regarde la température en surface (figure II-14). Les températures données par le programme GANIL sont surestimées de 200K par rapport à SYSTUS pour les températures à l'extrémité des lamelles. À l'avant de l'axe, on observe les mêmes températures car le rayonnement est pris en compte dans les deux codes.

Un moyen de mesure non interceptif, pour valider les calculs, est d'utiliser un pyromètre pour mesurer la température de surface de la cible à distance. Un thermocouple apporte un point froid qui peut fausser le point de mesure. Il n'est pourtant pas possible de faire ces mesures en ligne avec faisceau car le pyromètre doit être en vue des surfaces à mesurer, or le seul endroit accessible sur les cibles se trouve à l'avant de l'axe. Et c'est de ce coté que le faisceau arrive. On ne peut donc avoir en même temps le faisceau et la présence du pyromètre. Des mesures hors-ligne avec la cible dédiée à l'Hélium (figure II-12), ont donc été faites sur un banc de chauffage réalisé à cet effet. La cible de production ne peut être chauffée que par le faisceau, elle est donc froide sur le banc de test. Avec la géométrie de la cible dédiée à l'Hélium (figure II-12) et celle du banc de test, la seule mesure accessible est la température sur les premières lamelles de la deuxième cible. Le pyromètre a mesuré une température de 1500K lorsque l'on vise les premières lamelles de la cible avec celui-ci (figure II-14) dans le cas où une puissance de chauffage de 1kW est appliquée sur l'axe. Cette mesure est en accord avec les résultats donnés par les deux codes de calcul, mais ne permet pas de valider l'un ou l'autre de ces codes.

Par contre, la température à l'arrière de la cible (sur la lamelle 35) est supérieure de 300K avec le code GANIL par rapport à SYSTUS. Le refroidissement par l'arrière de la cible dû au bloc et au container apporte un point froid qui n'est pas pris en compte avec le code GANIL mais pris en compte par SYSTUS. La température est alors surestimée, expliquant la différence de 300K sur le bord extérieur de la dernière lamelle 35, entre les deux codes (figure II-14).

Lors des caractérisations des cibles futures, le point le plus critique à prendre en compte est la température maximale sur les lamelles en présence de faisceau. Les deux codes de calculs sont utiles. Nous prendrons cependant le programme GANIL pour estimer la température maximale dans la cible en présence d'un faisceau primaire, pour sa simplicité et sa rapidité de mise en œuvre. Par contre, pour dimensionner les fours externes (ensemble cible source MONOLITHE, chapitre V) et les cibles chauffées uniquement par un chauffage annexe en l'absence de faisceau (cible de diffusion Hélium, chapitre IV), nous prendrons le logiciel SYSTUS qui permet de prendre en compte tous les problèmes de rayonnement, de convection et de conduction.

Tous les résultats de ces simulations seront développés pour chaque chapitre correspondant aux différentes cibles étudiées (chapitre III, IV et V).

II-3 Tests et simulations pour le diagnostic THI

Grâce aux simulations avec SYSTUS, d'autres matériaux ont pu être étudiés dans le cadre de cette thèse. L'oxyde de Béryllium BeO, utilisé dans les diagnostics sur l'accélérateur GANIL comme pont thermique, a fait l'objet d'études thermiques en simulations et en ligne avec M. Ozille du GANIL [Lan-01].

II-3-1 Définition du problème

Le but de ce travail est de comprendre pourquoi les prototypes des diagnostics [GAN-99] réalisés pour le projet THI n'ont pas, comme il était prévu, résistés aux essais de bombardement par faisceau d'électrons. En effet, ces essais avaient pour but de valider, d'une part le calcul du gradient thermique fait sur ACORD, et d'autre part, la résistance thermomécanique des liaisons par brasures faites à haute température par le CEAMLC.

II-3-1-1 Diagnostic THI

Ces liaisons sont délicates, puisqu'il s'agit d'assembler des oxydes de béryllium métallisés sur les deux faces avec du cuivre. Compte tenu du fort gradient de température résultant de la géométrie et de la puissance calorifique à évacuer (600W soit 10 % du faisceau THI), il a été décidé d'utiliser des prototypes (figure II-15) pour valider leur capacité à évacuer cette puissance.

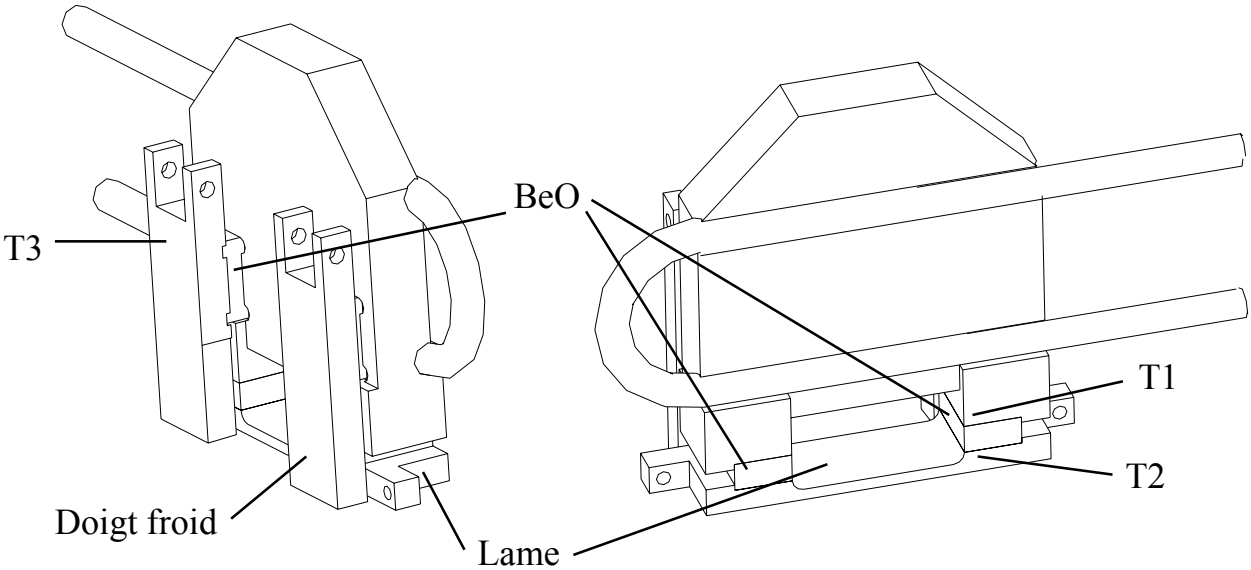


Fig. II- 15 – *Prototype du diagnostic 2. Les points de mesure des températures T1 et T2 lors de l'implantation du faisceau d'électrons sur la lame et T3 pour l'implantation sur le doigt froid sont indiqués. Le tuyaux en forme de U sur la figure de droite représente le système de refroidissement par circulation d'eau.*

II-3-1-2 Rappel des tests sur le prototype

Pour réaliser ces tests, un faisceau d'électrons fourni par le banc de soudage TECMETA à l'atelier mécanique du LAL à Orsay avait été utilisé en novembre 99.

Lors de ces mesures, il s'est produit une déformation importante de la lame avec un passage au rouge vif sur un côté de celle-ci (jusqu'au $^3/_4$ de la lame), ainsi que de l'oxyde de béryllium lui attenant. Le décollement de l'oxyde de béryllium au niveau de la brasure s'est produit suite à une contrainte mécanique due à la dilatation, et ceci curieusement, du côté de la liaison la plus froide.

Le gradient de température observé au travers des oxydes de béryllium (350°C entre T1 et T2) est très supérieur à celui calculé. Cette différence ΔT est seulement de 120°C d'après des simulations, en tenant compte de la variation de la conductivité des matériaux. Cet écart se retrouve aussi sur la température d'impact du faisceau ($T_{calculée}$ = 650°C) qui est très inférieure à la valeur mesurée lors des essais (au moins 1000°C, puisque la fonte du cuivre au point d'impact a été observée alors que la température de fusion T_{fusion} du cuivre = 1083°C).

Plusieurs points ont alors été mis en cause :

- la brasure : En prenant la conductivité du composant le moins conducteur de la brasure, le gradient ΔT calculé est de 25°C pour une épaisseur de 0.1 mm. Elle n'est donc pas à mettre en cause.
- la qualité de l'adhésion : Le décollement de l'oxyde s'est produit à une température de 680°C, température inférieure à la température de liaison (comprise entre 750 et 800°C). Ce décollement des oxydes est donc dû aux contraintes engendrées par la dilatation thermique, et non à la qualité de l'adhésion.
- La qualité de la céramique

Dans le but de vérifier la qualité de la céramique, des mesures de conductivité thermique ont été mises en place, et font l'objet de ce travail.

II-3-2 Expérience et simulations : mesures de conductivité thermique

II-3-2-1 Principe des mesures

Nous avons utilisé les échantillons d'oxydes de béryllium mis à notre disposition (dimensions : 5*10*15 mm) et identiques à ceux utilisés sur les diagnostics. À l'instant t0, nous avons positionné ces échantillons sur une plaque chauffante thermostatée et mesuré la variation de température au cours du temps à l'aide d'un thermocouple et d'un chronomètre (figure II-16). Nous avons fait varier la température de la plaque ainsi que le nombre d'échantillons empilés sur la plaque pour voir l'influence des contacts thermiques.

Pour valider nos mesures, nous avons effectué les mêmes mesures avec des échantillons de mêmes dimensions en aluminium dont la conductivité thermique λ est proche de celle des oxydes de Béryllium (λ_{Al}=130W/m.°C et λ_{BeO}=190W/m.°C) et de l'inox pour lequel λ est beaucoup plus faible (16 W/m.°C).

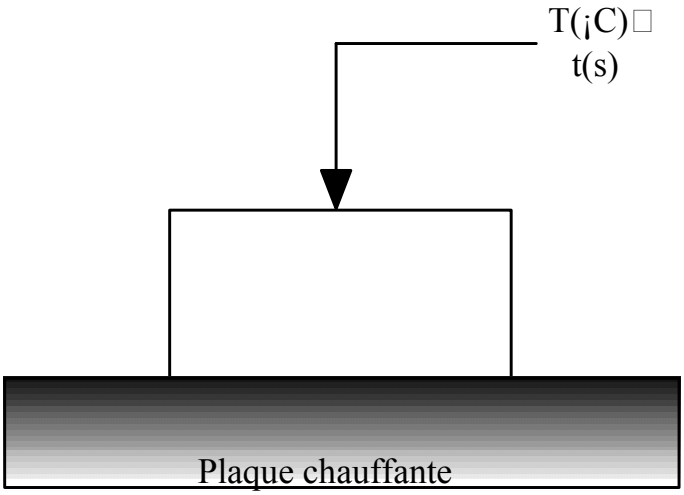


Fig. II- 16 - *Dispositif expérimental : on place un ou plusieurs échantillons empilés sur une plaque chauffante thermostatée à l'instant t0. On mesure à l'aide d'un thermocouple et d'un chronomètre l'évolution de la température de la surface de l'échantillon en fonction du temps.*

II-3-2-2 Mesures expérimentales

Dès le premier essai, nous avons remarqué que la réponse était beaucoup plus lente que celle que nous avons calculée par un calcul thermique transitoire avec SYSTUS. Pour une valeur théorique de conductivité du BeO de 190 W/m.°C à 20°C et une plaque chauffée à 190°C, il faut environ 0.5 s pour atteindre une température intermédiaire de 100°C. Or expérimentalement, il a fallu 10 s. Nous avons observé le même comportement pour les échantillons d'aluminium, alors que les résultats se rapprochent des valeurs théoriques pour l'inox.

Nous avons alors mis en doute les contacts thermiques au niveau des brasures. Les valeurs de conductivité thermique de l'aluminium et de l'oxyde de béryllium sont grandes (entre 100 et 200 W/m.°C) par rapport à celle de l'inox (16 W/m.°C). Dans les estimations effectuées avec ACORD, les contacts ont été supposés parfaits, ce qui ne semble pas être le cas dans la réalité.

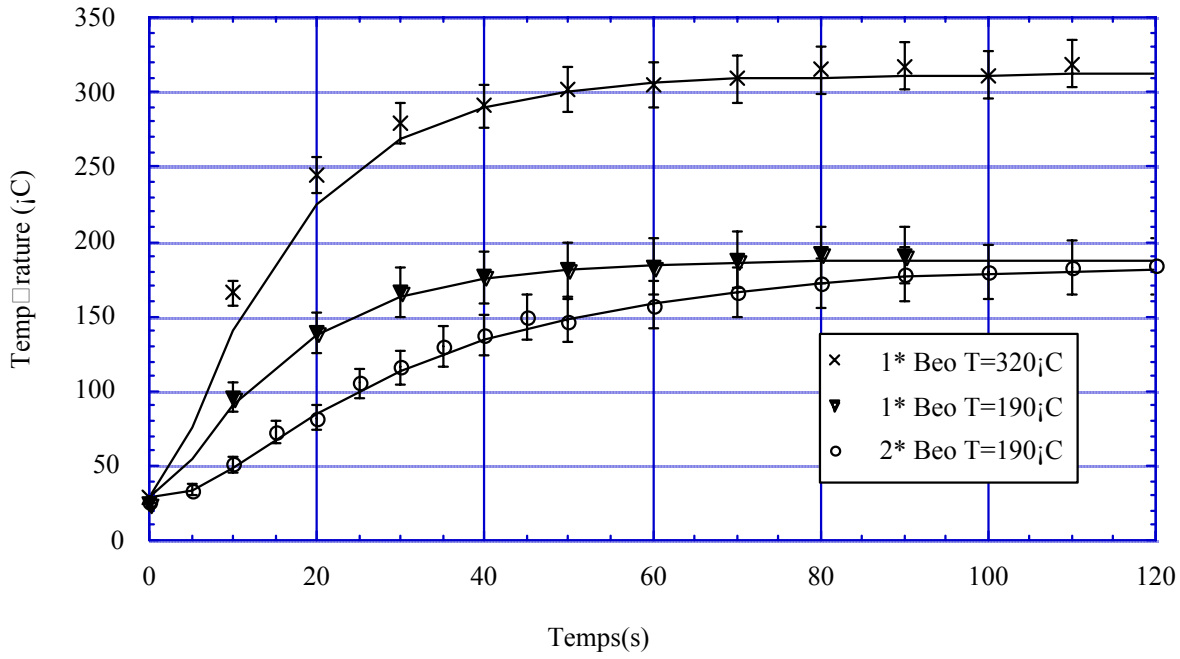


Fig. II- 17 – *Résultats expérimentaux des tests réalisés avec 1 ou 2 échantillons empilés sur la plaque chauffante (T_{plaque}=190 ou 320°C). Les points correspondent aux valeurs expérimentales. Les courbes sont le résultat des calculs avec SYSTUS en appliquant une résistance de contact de 400 mm^2 °C W^{-1}.*

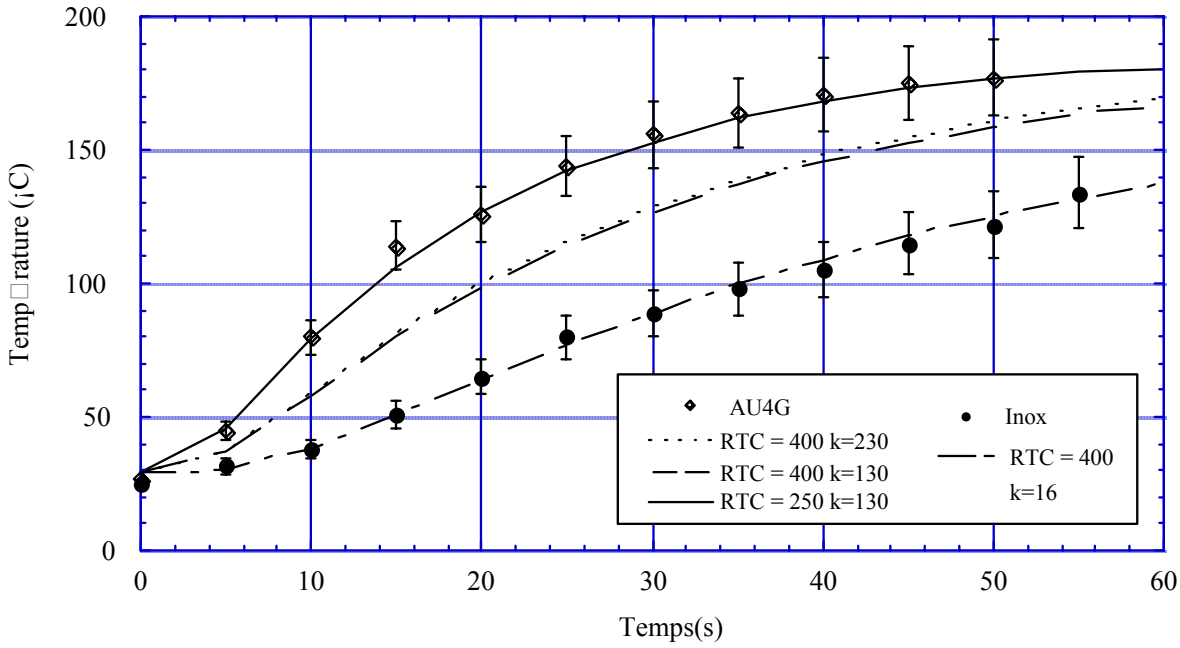


Fig. II- 18 – *Résultats expérimentaux des tests réalisés sur des échantillons d'inox et d'aluminium AU4G de mêmes dimensions que ceux en BeO. Les points représentent les résultats expérimentaux. Les courbes sont le résultat des calculs SYSTUS en appliquant différentes valeurs de Résistance de Contact (RTC) et de conductivité thermique (k).*

II-3-2-3 Simulations SYSTUS

Grâce aux simulations avec le logiciel SYSTUS, nous avons pu estimer les valeurs des contacts thermiques dans le cadre de nos mesures de température (c'est-à-dire avec un ou plusieurs échantillons posés sur une plaque en cuivre chauffée) en reproduisant au mieux les valeurs expérimentales. Ces résultats montrent que nous pouvons estimer une résistance de contact de l'ordre de 4.10^{-4} $m^2.°C.W^{-1}$ équivalente à une couche d'air de 0.1 mm, pour l'inox et le BeO (figures II-17 et II-18) et de $2,5.10^{-4} m^2.°C.W^{-1}$ pour l'aluminium (figure II-18) alors que ces matériaux n'ont pas la même conductivité thermique.

Les résistances de contacts sont liées aux états de surface des échantillons qui sont :

- pour l'inox obtenu par fraisage : on a une rugosité Ra de 0.8
- pour le BeO : une métallisation de molybdène sur un composé fritté donne une rugosité Ra de l'ordre de 0.8
- pour l'aluminium : une face laminée proche d'un Ra de 0.2.

La rugosité moyenne des surfaces de l'inox et du BeO est identique, ce qui explique la même valeur de résistance de contact.

Sur la figure II-18 montrant la montée en température de l'aluminium (AU4G), sont représentés les résultats des simulations avec une même valeur de résistance de contact équivalent air (RTC=400 $mm^2°C.W^{-1}$) mais un choix de conductivité thermique très différent (λ=130 ou 230 W/m.°C.). Il est intéressant de constater que les deux courbes se confondent.

Cela met en évidence l'importance des contacts thermiques par rapport aux conductivités thermiques. Ces essais ne nous permettent pas de vérifier les valeurs de conductivités thermiques λ de l'oxyde de béryllium, mais nous ont montré l'importance des résistances de contacts dans le cas de matériaux ayant une grande valeur de λ.

II-3-3 Simulations thermiques du diagnostic 2

Au regard de ces résultats, des simulations avec le diagnostic 2 ont été réalisées en appliquant des contacts thermiques au niveau des brasures et dans les conditions de tests réalisés à Orsay en 99 : avec un faisceau d'électrons (Φ 8mm) implantés soit au centre de la lame (mesure des températures T1 et T2) soit sur un des doigts froids (mesure de T3) comme indiqué sur les figures II-15 et II-19.

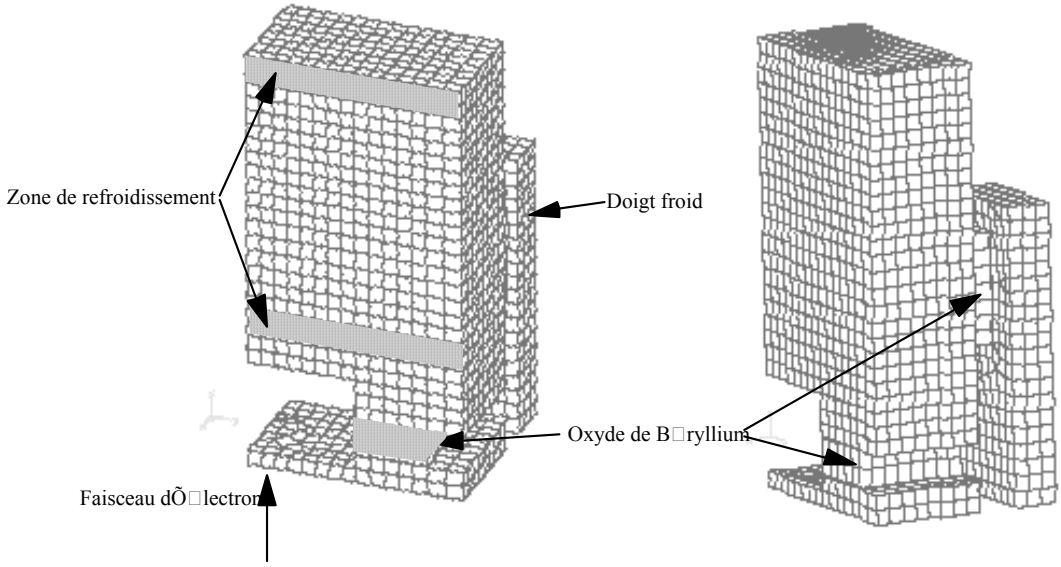


Fig. II- 19 - *Modèle de géométrie du diagnostic 2 utilisé en simulation SYSTUS.*

Nous prendrons en première approche les valeurs de conductivité thermique théorique pour l'Oxyde de Béryllium dont les variations en fonction de la température sont présentées en annexe A.

Les résultats des simulations pour deux puissances de faisceau (480W et 720W) sont présentés respectivement par les figures II-20 et II-21.

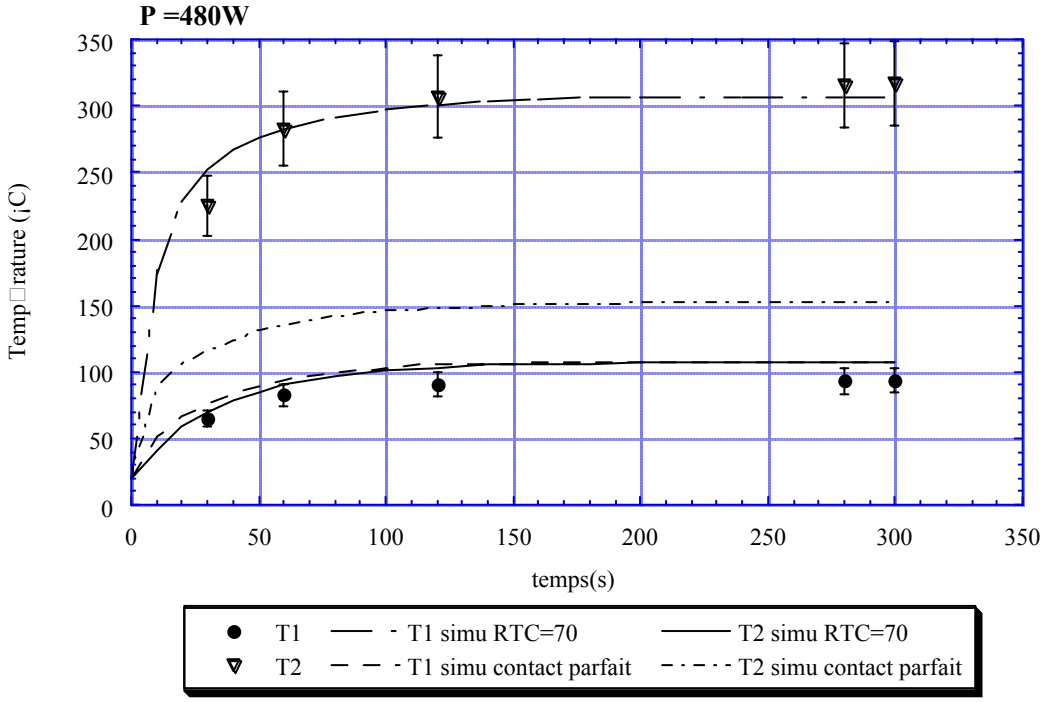


Fig. II- 20– *Mesures de température aux points de contacts T1 et T2 pendant l'impact d'un faisceau d'électrons de 480W sur la lame du diagnostic. Les points représentent les valeurs expérimentales. Les traits pleins et pointillés correspondent aux valeurs calculées par simulation SYSTUS. RTC correspond à la Résistance Thermique de Contact en* $mm^2°CW^{-1}$.

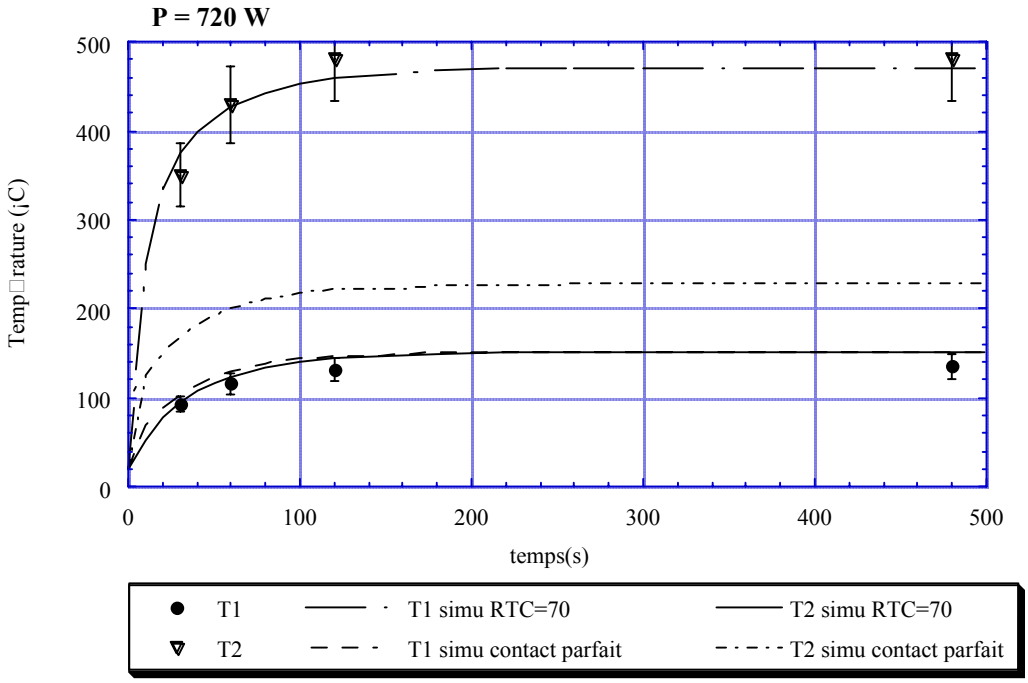


Fig. II- 21 – *Mesures de température aux points de contacts T1 et T2 pendant l'impact d'un faisceau d'électrons de 720W sur la lame du diagnostic. Les points représentent les valeurs expérimentales. Les traits pleins et pointillés correspondent aux valeurs calculées par simulation SYSTUS. RTC correspond à la Résistance Thermique de Contact en* $mm^2°CW^{-1}$.

Les figures II-20 et II-21 montrent les valeurs calculées par simulation et les valeurs expérimentales. Pour les deux mesures avec une puissance de faisceau de 480 W et 720 W, les valeurs calculées avec une résistance thermique au niveau des brasures équivalente à une couche d'air de 70 $mm^2°C.W^{-1}$ reproduisent bien les valeurs expérimentales. Par contre, les valeurs calculées avec un contact parfait au niveau des brasures sur les oxydes de Béryllium pour T2 sont loin de les reproduire. Le point T1 étant un point près de la zone de refroidissement, il y a peu de variation de température.

Cette valeur de résistance de contact estimée au niveau des brasures réalisées sur les oxydes de béryllium est très faible, mais tient un rôle primordial sur les échanges de chaleur au niveau de ces brasures. Nous obtenons une augmentation de température d'un facteur deux sur la lame au point T2. Au point le plus chaud sur la lame, la température atteint 577°C pour une puissance de 480W et 840°C pour une puissance de 720W, expliquant le passage au rouge de la lame et la déformation de celle-ci lors des mesures réalisées à Orsay.

II-3-4 En résumé

Les contacts thermiques aussi faibles soient-ils ne sont pas à négliger lorsque l'on est en présence de matériaux conducteurs de chaleur, dont le rôle est d'évacuer la puissance comme nous avons pu le voir sur les différentes mesures effectuées.

En appliquant une résistance de contact de $70mm^2°C.W^{-1}$ (équivalente à une couche d'air de 0.1mm) sur cet assemblage hétérogène par métallisation et brasure, nous avons retrouvé les valeurs expérimentales obtenues lors des essais à Orsay. Nous pouvons donc penser que dans le cas d'une liaison par brasure, suivant la qualité de celle-ci, il faut considérer une résistance de contact et non pas mettre uniquement en doute la valeur de conductivité des matériaux.

Suite aux seuls résultats des essais à Orsay, le montage de la lame du diagnostic avait été modifié en lui adjoignant un circuit de refroidissement isolé, car celle-ci doit évacuer en permanence environ 10 % de la puissance du faisceau THI soit 600W.

Dans le cas de nos cibles, ces problèmes de résistance de contact thermique ne sont pas à prendre en compte, car, d'une part, la conductivité thermique du carbone est faible (λ<70 W/m.°C).D'autre part, ce qui nous intéresse au niveau des calculs de simulation est de savoir quelle puissance nous pouvons appliquer sur la cible, soit par un faisceau primaire, soit par un chauffage sur l'axe de la cible, sans risque de détérioration par évaporation. La cible étant fabriquée à partir d'un seul bloc de carbone, les contacts sont seulement présents aux extrémités de la cible dans les zones les moins chaudes. Ceci peut devenir un problème pour les cibles réalisées en plusieurs morceaux.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu qu'il était primordial de connaître et de comprendre les distributions de température et les différents types d'échanges thermiques (rayonnement, conduction et convection) au sein des cibles afin de mieux appréhender les problèmes de diffusion et d'évaporation du carbone risquant d'engendrer la destruction de celles-ci.

Pour se faire, nous avons utilisé deux codes de calculs :

- le programme GANIL dont les résultats ont été validés à Louvain la Neuve [Lic-98], [Mau-98] avec une cible optimisée à 6kW sous un faisceau de protons de 30MeV/A.
- le logiciel SYSTUS qui permet de prendre en compte tous les échanges thermiques (rayonnement, conduction et convection) ainsi que les résistances de contacts thermiques.

SYSTUS a été utilisé pour la première fois au GANIL dans le cadre des développements des cibles de production. Il nous a permis par la même occasion de mieux comprendre certains phénomènes dans les diagnostics THI utilisés sur la machine GANIL.

De nombreux tests hors ligne et les simulations SYSTUS nous ont permis de définir les systèmes de chauffage annexes adéquates et plus particulièrement le chauffage par l'axe de la

cible de diffusion comme il sera vu dans le chapitre IV ou encore le dimensionnement du four de l'ensemble MONOLITHE (chapitre V).

Grâce au code GANIL, nous avons défini la géométrie des cibles de production irradiées par un faisceau d'ions lourds du GANIL, de puissance 2kW.

Dans les trois chapitres suivants, nous ferons appel régulièrement à ces deux codes de calcul, GANIL et SYSTUS, pour le développement des trois cibles présentées dans cette thèse. Ils nous ont particulièrement servi :

- pour définir, améliorer et/ou fiabiliser les cibles et leur système de chauffage annexe.

- à calculer des abaques en température pour estimer l'apport de puissance ohmique nécessaire en fonction de la puissance du faisceau incident dans la cible lors du fonctionnement de SPIRAL (chapitre III et IV).

- de faire une étude thermique en transitoire pour estimer le temps de réponse des cibles avec le système de chauffage annexe (chapitre IV).

Des tests de tenue thermique longue durée des cibles réalisées, ont été systématiquement effectués pour valider ces cibles et les codes sur un banc de tests de chauffage [Lan-98]. Ces résultats seront présentés dans les chapitres relatifs à chaque cible.

CHAPITRE III

La cible pour la production d'isotopes d'argons et de néons radioactifs

Les ensembles cible source doivent être étudiés pour résister à une durée de 15 jours de fonctionnement en continu. Cette durée a été imposée par le temps d'irradiation des ensembles sous faisceau primaire : c'est le temps maximal pendant lequel un ensemble peut être irradié afin d'être réutilisable d'un point de vue radioprotection après deux ans de "refroidissement" par décroissance radioactive.

Ces ensembles, lors du fonctionnement de SPIRAL, seront donc changés tous les 15 jours par un système automatique. Ils seront déposés dans des châteaux de plomb ayant une dimension imposée. Ainsi, pour le développement des cibles de production, il ne faut pas perdre de vue que la dimension de la boîte cible (Figure III-1) reste fixe avec une longueur intérieure de 140mm et un diamètre intérieur de 68mm limitant la taille des cibles.

La cible de production est placée en arrière par rapport à la source ECR afin de limiter l'irradiation neutronique des aimants permanents de la source d'ionisation.

Le premier ensemble cible source pour SPIRAL est dédié à la production des gaz rares. Le premier ensemble cible source pour SPIRAL développé par L. Maunoury et al. [Mau-98] va faire l'objet d'un travail de fiabilité et d'augmentation d'efficacité. Plusieurs cibles de production avec des systèmes de chauffage différents vont être testées. Pour les premiers tests, la cible sera en carbone de grains 4µm de Carbone Lorraine. Or, nous avons vu dans le chapitre I (figure I-10) qu'il était possible d'augmenter l'efficacité de diffusion en choisissant un carbone dont le grain est le plus petit possible. Nous testerons donc une cible en carbone 1µm de POCO Graphite, lors de tests de diffusion et de production.

III–1 Fiabilité des cibles pour la production d'argon et de néon

III-1-1 Premières modifications apportées

La première cible en carbone dédiée à la production de gaz rares radioactifs est présentée sur la figure III-1. Elle est dimensionnée pour recevoir 2kW de faisceau primaire d'^{36}Ar ou de ^{20}Ne afin de produire des isotopes de gaz rares riches en protons. Elle est associée à un système de chauffage externe développé dans le cadre d'une collaboration entre l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay et le GANIL [Put-97]. Ce four doit permettre de chauffer la cible jusqu'à une température de l'ordre de 2000K sans faisceau primaire, d'une part pour dégazer à haute température la cible et son environnement avant l'irradiation, et d'autre part, pour conserver une température élevée pour optimiser les efficacités de diffusion si la puissance du faisceau incident venait à baisser à des puissances inférieures à 2kW.

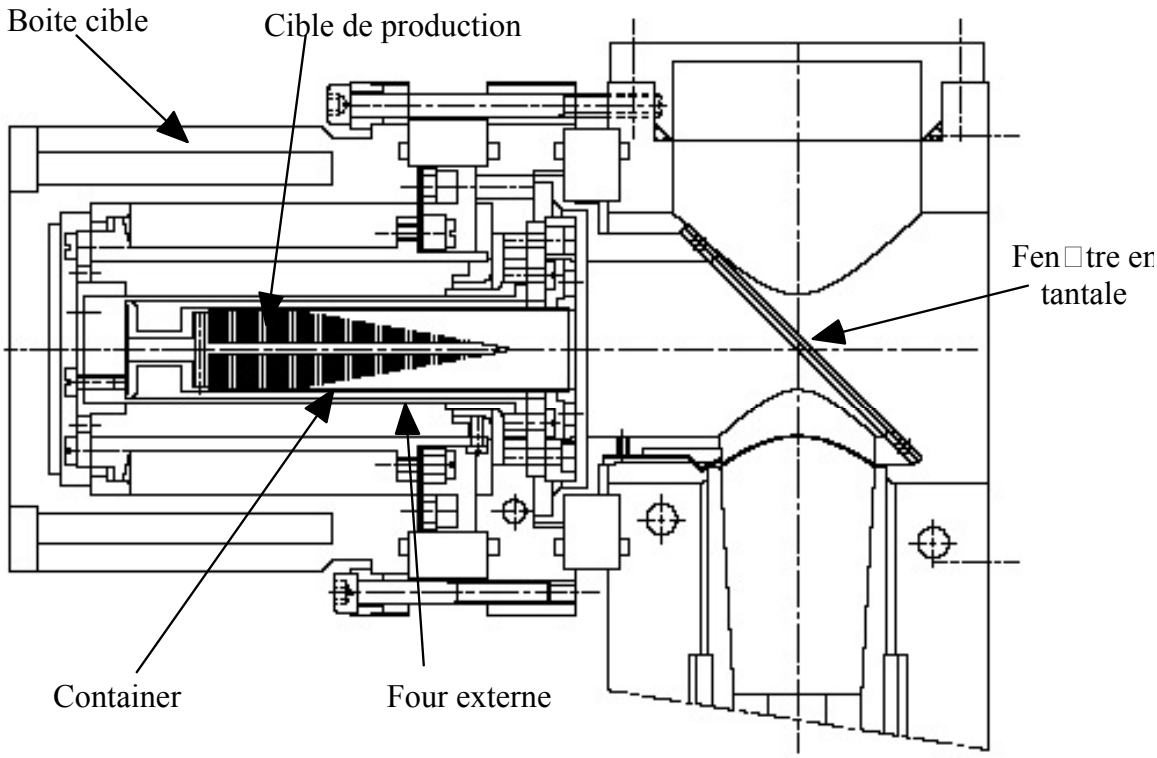


Fig. III- 1– *Schéma de la boîte cible avec une cible de production en carbone et un système de chauffage externe.*

La cible possède une partie conique à l'avant avec un angle de ±10°, afin de répartir sur plusieurs lamelles la puissance du faisceau primaire concentrée dans le pic de Bragg. La dimension de cette cible est imposée par le parcours de l'^{36}Ar (5mm) et du ^{20}Ne (8.8mm) à 95 MeV/A dans le Carbone. Le parcours des noyaux d'intérêts (les isotopes d'argons et de néons déficients en neutrons) produits par fragmentation est très faible, les atomes radioactifs qui nous intéressent vont s'arrêter dans la même zone que le faisceau incident (zone la plus chaude de la cible).

La structure en lamelles de la cible a été choisie pour minimiser le parcours des atomes radioactifs dans la matière lors de la diffusion et de l'effusion. Cette cible possède un nombre total de 53 lamelles de 0.5 mm d'épaisseur espacées de 0.8 mm, dont 34 dans le cône. Le diamètre de la cible est 19mm, elle est maintenue par l'arrière dans un container en carbone de diamètre 20 mm, le tout étant fixé au centre d'un four cylindrique en carbone.

Le faisceau gaussien, de largeur totale de 7mm décalé de 4.5mm par rapport à l'axe de la cible, tourne autour de l'axe avec une vitesse de rotation de 20Hz.

Des simulations thermiques [Lan-98] [Mau-98] [Mau-01] avec le programme GANIL ont été effectuées pour connaître la répartition de la température au sein de cette cible bombardée par un faisceau primaire.

Les températures maximales peuvent alors atteindre 2800 K avec un faisceau primaire d'^{36}Ar de 2kW (figure III-2), ce qui est supérieur à la température limite de 2450K au delà de laquelle le taux d'évaporation du carbone devient important.

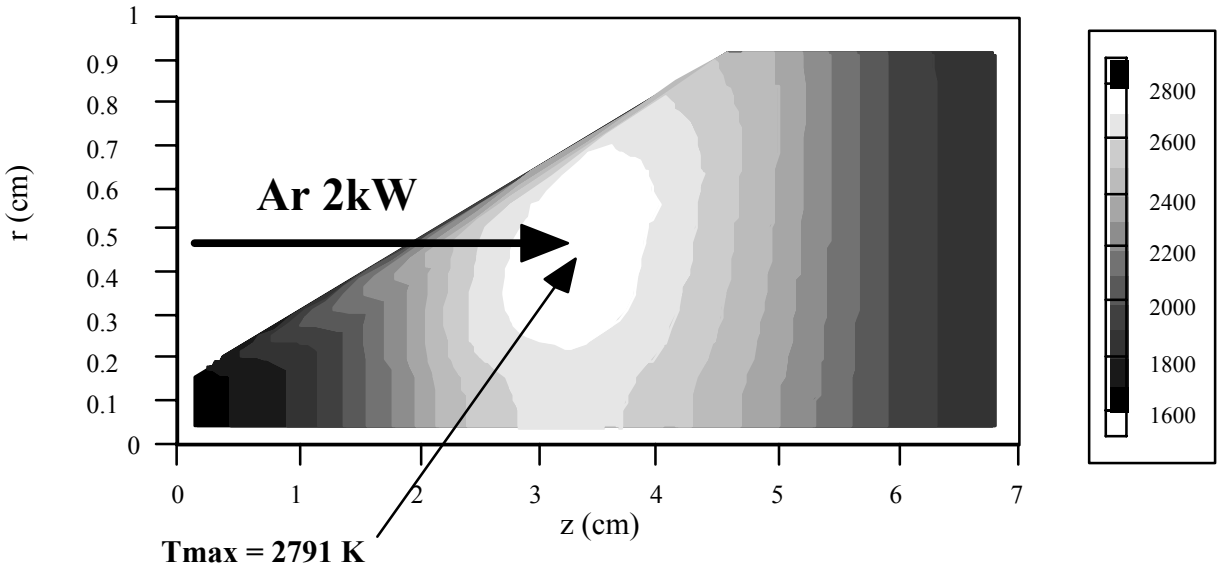


Fig. III- 2 – *Simulation avec le code GANIL de la distribution en température dans une cible de production en carbone irradiée par un faisceau primaire d'^{36}Ar de 2kW en présence d'un four externe mais sans ajout de puissance ohmique (système de chauffage externe).*

Afin de comprendre comment diminuer la température maximale obtenue avec 2kW d'^{36}Ar, diverses simulations ont été faites en modifiant :

- la taille du faisceau : si on augmente la taille du faisceau, on augmente les pertes sur le bord de la cible. La diminution de l'intensité apportée à la cible conduit à une baisse des taux de production. Pour diminuer de 200K la température maximale dans la cible (figure II-13), il faut baisser la puissance de 300W soit 20% de perte en intensité.

- la taille du container : en augmentant le rayon du container qui sert de réflecteur et donc augmente le confinement de la chaleur au sein de la cible, on accroît le diamètre du four externe. La puissance à fournir au four pour atteindre des températures inférieures à 2450K dépasse les limites de l'alimentation de puissance prévue qui est de 6kW.
- les dimensions de la cible : la limitation des dimensions de la "boite cible" ne permet pas de modifier les dimensions de la cible pour abaisser la température de façon significative.
- la fréquence de rotation : L. Maunoury [Mau-98] a montré qu'à partir d'une certaine vitesse de rotation du faisceau primaire, la température maximale au sein de la cible ne peut plus diminuer. On atteint un plateau à partir de 10Hz.

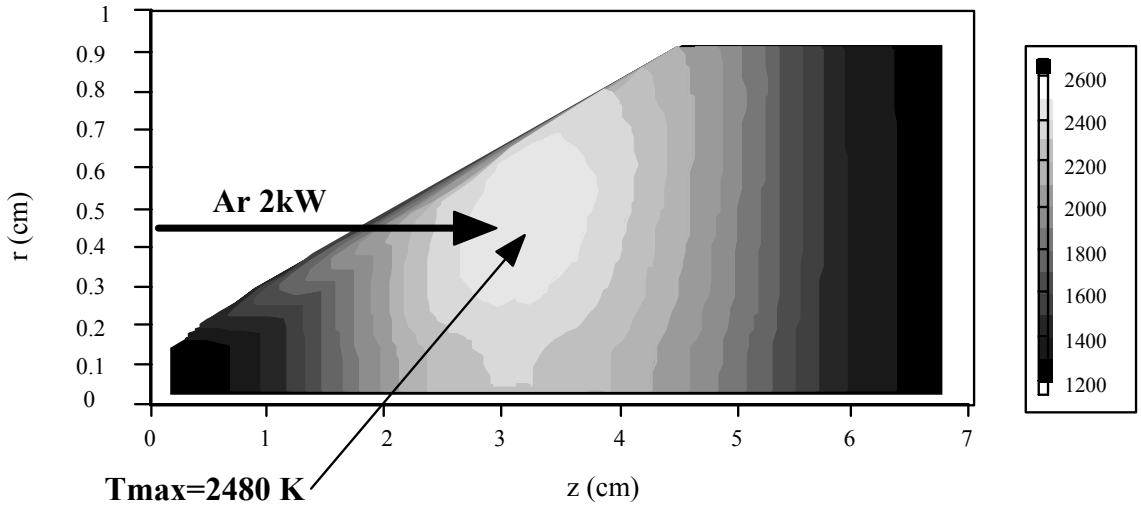


Fig. III- 3 – *Simulation de chauffage de la cible de production par un faisceau primaire d'* ^{36}Ar *de 2kW sans ajout de chauffage ohmique (système de chauffage par l'axe).* Φ_{int}*container = 36mm. Code GANIL avec la conductivité classique du carbone (annexe A).*

Un nouveau système de chauffage par l'axe a donc été développé et a permis d'abaisser la température maximale à une valeur limite de 2480K (figure III-3). Le container subsiste pour limiter les pertes des atomes par collage sur les parois froides de la "boite cible", mais avec un diamètre plus important pour minimiser la température de la cible.

L'élimination du four a permis de gagner de la place et d'éliminer l'effet de réflecteur thermique engendré par le container et le four proche de la cible.

Nous avons donc défini une boîte cible telle qu'elle est reportée sur le schéma III-4.

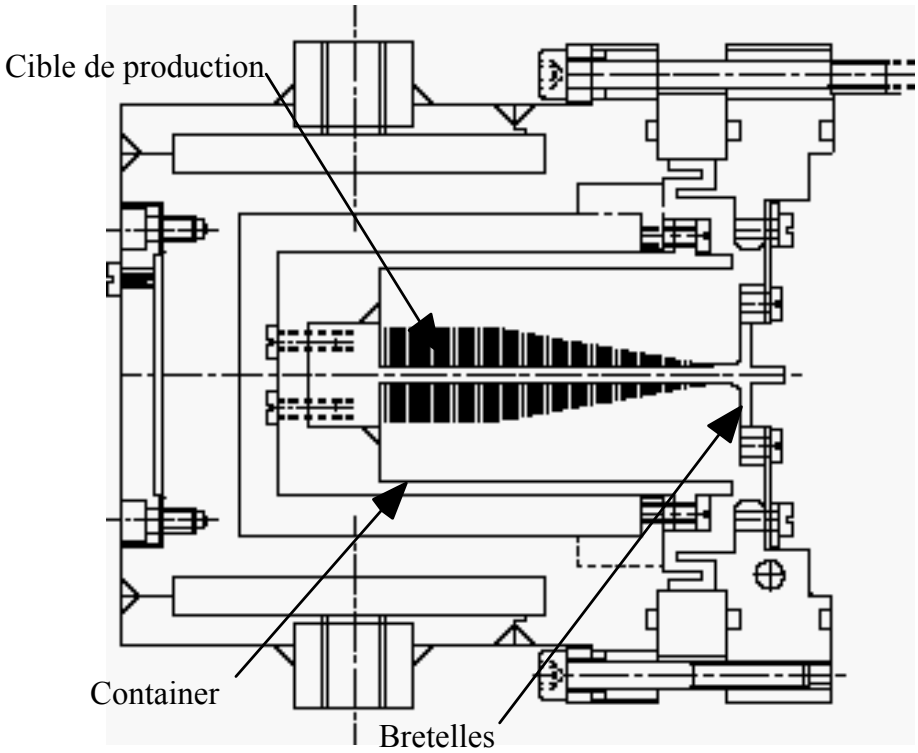


Fig. III- 4 – *Schéma de la boîte cible contenant la cible de production et le container avec un système de chauffage annexe par l'axe. (version 1)*

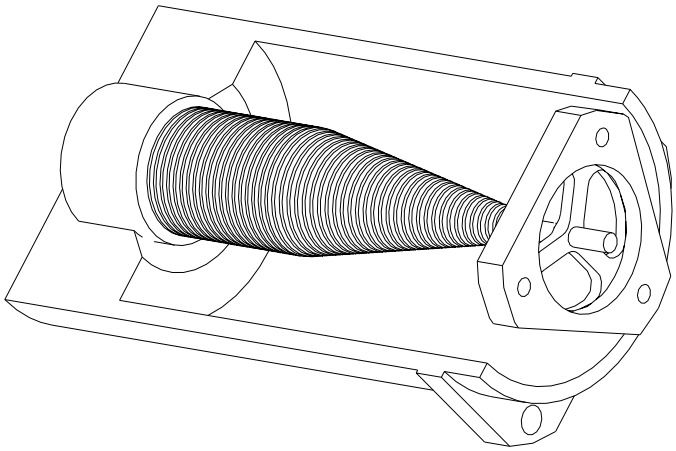


Fig. III- 5–*Schéma de la cible pour la production d'Argon et de Néon radioactifs avec un système de chauffage par l'axe, prévue pour supporter 2kW de faisceau primaire.*

Elle possède toujours une partie conique à l'avant avec un angle de ±10° afin de répartir sur plusieurs lamelles le dépôt d'énergie dû au pic de Bragg du faisceau primaire. Les bretelles (figure III-4 et III-5) à l'avant de l'axe permettent le retour de courant servant au chauffage ohmique. La cible est directement utilisée comme résistance. L'axe de la cible a un diamètre de 3mm avec une partie sans lamelle à l'avant (entre les bretelles et la première lamelle) de 6mm (figure III-4).

Le passage du premier système (chauffage externe, figure III-1) vers le deuxième système (chauffage par l'axe, figure III-4) nous a conduit à une importante simplification sur l'ensemble des pièces et donc vers une meilleure fiabilité.

Tous les ensembles cible source doivent être étudiés et fiabilisés pour tenir sur une durée de 15 jours de fonctionnement en continu (avec ou sans chauffage annexe selon les besoins). Nos cibles doivent donc être capables de tenir cette durée sans dommage à des températures élevées mais sans dépasser 2450K.

III-1-2 Tests de tenue en température

Un banc de test a été construit à cet effet [Lan-98]. Il possède :

- une enceinte sous vide sur laquelle nous fixons la boîte cible (Fig. III-4)
- un pyromètre bicolore (R1 de Land Infrared SARL) permettant de faire une mesure à distance de la température de surface de la cible [Land-95] à travers un hublot de l'enceinte. Le diamètre de la visée au point focal est de 6.7mm.
- une jauge de pression et son unité de contrôle.

La cible telle que nous l'avons définie précédemment, composée d'un carbone 4µm de Carbone Loraine, a été chauffée sur ce banc de test.

À la fin du premier étalonnage, (première montée en puissance jusqu'à une valeur de 2300W) l'axe de la cible s'est cassé. L'autopsie a montré que la partie sans lamelle à l'avant de l'axe avait disparu par évaporation. L'absence de lamelles qui participent à l'évacuation de la chaleur, provoque une surchauffe locale à l'avant de la cible. Nous avons éliminé cette partie fragile.

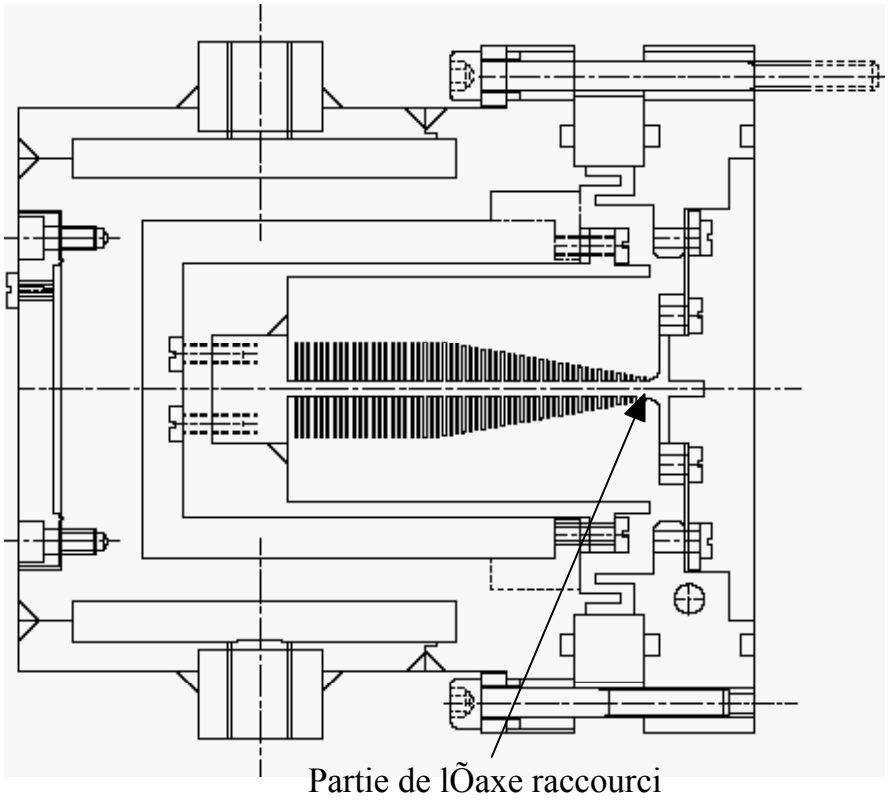


Fig. III- 6 - *Schéma de la boîte cible avec un système de chauffage annexe par l'axe après modification de la longueur de l'axe (version 2).*

Cette cible en carbone 4µm (figure III-6), devant tenir 15 jours, a été chauffée pendant 495h10, soit une durée de 20.5 jours à une puissance supérieure à 1900 W (Température de l'axe estimée supérieure à 2300K). Sur la durée totale des tests de chauffage, la cible a subi cinquante "montée – descente" en température, augmentant les contraintes thermomécaniques par dilatation.

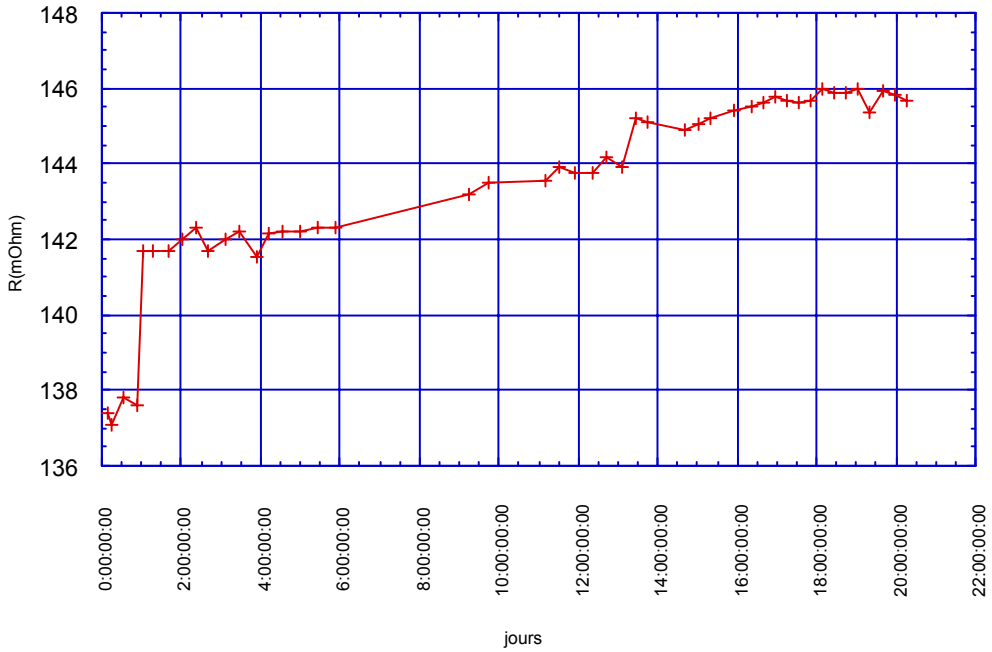


Fig. III- 7 – *Evolution de la résistance de la cible mesurée à une température de 2100K en surface (soit une puissance sur l'axe de 1900W) en fonction du temps*

La figure III-7 représente l'évolution de la résistance de chauffage (résistance de la cible 4µm) en fonction du temps. Elle a augmenté progressivement. La variation brutale en début de graphe est due au démontage et remontage de la cible avec une nouvelle alumine (problème de dysfonctionnement du système de refroidissement). Les serrages des vis étant différents d'un montage à l'autre, on ne retrouve pas exactement la même valeur de résistance.

L'évolution de la résistance au cours du temps est une bonne sonde pour vérifier la tenue de la cible. L'augmentation progressive de la résistance jusqu'à une valeur de 146 mΩ, (figure III-7), est due à une évaporation progressive de l'axe de la cible sans danger majeur. Cette mesure de la résistance est le signe de la bonne santé des cibles sur SPIRAL. Par contre, si l'on observe une augmentation brutale, cela présage d'une rupture imminente de l'axe.

Après ces tests de tenue thermique, cette cible a été montée sur un ensemble cible source Nanogan III complet pour les essais de manutention des ensembles sur SPIRAL entre la casemate de production et la zone de stockage, et n'a présenté aucune défaillance.

III-2 Simulations thermiques sur la cible - Abaques

La cible, pour la production d'Argons et de Néons, a donc fait l'objet de diverses simulations avec, soit un chauffage par le faisceau, soit un chauffage par l'axe, soit avec les deux systèmes lorsque le faisceau n'est pas suffisant pour auto-chauffer la cible. Ces abaques ont été réalisés avec le code GANIL.

Nous avons vu qu'il était possible d'augmenter l'efficacité de diffusion et par conséquent les taux de production en utilisant un carbone ayant des grains les plus petits possibles (figure I-10), nous avons donc remplacé le carbone 4µm par du carbone 1µm de POCO Graphite. Les simulations faites dans le § III-1 (figure III-2) avaient été effectuées avec les caractéristiques d'un carbone classique, dont la conductivité thermique est plus grande, et non avec les caractéristiques du carbone 1µm de POCO Graphite,. La valeur que nous utiliserons par la suite est de 70W/m^2 à température ambiante. L'évolution des caractéristiques des carbones sont présentées en annexe A.

Les abaques de températures sont reportés sur la figure III-8.

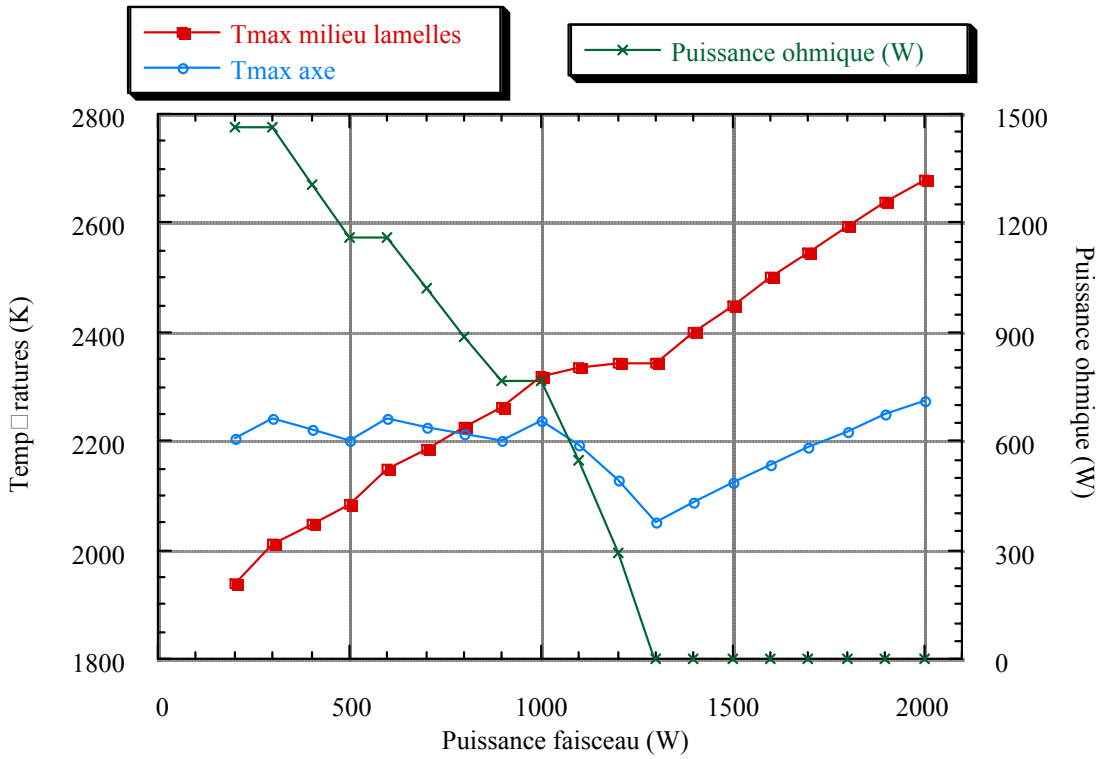


Fig. III- 8 – *Température maximale sur les lamelles (carrés) et sur l'axe (rond) de la cible en fonction de la puissance du faisceau primaire d'^{36}Ar, additionnée à une puissance ohmique (croix) sur l'axe de la cible. Code GANIL avec la conductivité du carbone 1µm de POCO Graphite (annexe A).*

Pour une valeur de faisceau d'^{36}Ar de 2kW avec la conductivité du carbone 1µm de POCO Graphite, on remarque que la température maximale sur les lamelles est de 2700K et

non de 2480K comme il avait été simulé auparavant (figure III-3) avec une valeur plus élevée de conductivité thermique. Cette température est trop élevée par rapport à la température maximale d'utilisation de 2450K qui permet d'éviter la formation d'un trou dans la cible par évaporation.

À cette température de 2700K, un trou se forme rapidement dans la cible. L. Maunoury a montré [Mau-98] qu'à 2700K, il fallait seulement 10 jours pour créer un trou dans 15 lamelles sur une largeur de 2mm. Ensuite, le trou progresse plus lentement pour atteindre 20 lamelles sur une largeur de 2.5mm, en environ 100 jours. La formation du trou a donc tendance à se stabiliser. Mais nous ne pouvons pas travailler dans ces conditions. Les trous dans les lamelles peuvent entraîner des dégâts importants voire irrémédiables sur l'ensemble de la cible. De plus la tenue de la cible sera trop dépendante des variations des réglages de la taille du faisceau primaire.

Pour avoir une température suffisante dans la cible (T supérieure à 2300K), il semble nécessaire d'appliquer un chauffage ohmique annexe lorsque la puissance de faisceau devient inférieure à 1.3kW (figure III-8), tout en minimisant les risques d'évaporation car la température la plus chaude sur l'axe ne dépasse pas 2300K même avec une puissance de chauffage maximale sur l'axe.

Dans l'état actuel des choses, nous ne pouvons pas nous avancer sur ces problèmes de tenue thermique des cibles dans ces conditions maximales de température. Il est vrai qu'une température estimée à 2700K dans la cible est beaucoup trop élevée par rapport au cahier des charges, mais aucun test en ligne sous faisceau d'^{36}Ar à 2kW n'a pu être réalisé durant la rédaction de cette thèse.

Nous avons vu que cette cible tient sur une durée d'au moins 20 jours avec une puissance sur l'axe, supérieure à 1.9kW ; soit une température estimée sur l'axe de l'ordre de 2300K. Nous avons vérifié sur SIRa, la tenue thermique de la cible, associée à un chauffage annexe par l'axe de 1.5kW, avec un faisceau de 400W, pendant 3 à 6 jours.

Cependant la puissance n'est pas déposée de la même façon si l'on utilise uniquement le faisceau ou le faisceau associé à un chauffage annexe. La puissance déposée par le chauffage annexe est répartie sur tout le volume de l'axe (soit une densité de puissance 4W/mm^3), alors qu'elle est concentrée au centre du faisceau gaussien et au maximum du pic de Bragg (soit une densité de puissance de 8 W/mm^3) dans le cas d'un dépôt de puissance par le faisceau primaire.

De plus l'environnement et les conditions de refroidissement sont différents dans les deux cas : refroidissement de l'axe principalement par conduction, alors qu'il est par rayonnement et conduction pour les lamelles. Nous ne pouvons donc pas comparer la tenue thermique des deux parties (axe et lamelles) de la cible simplement avec un chauffage annexe par l'axe. Nous ne pouvons qu'attendre le démarrage de SPIRAL pour valider dans les conditions réelles d'expérience, la tenue des cibles au niveau des lamelles.

Au vu de la figure III-8, nous préconiserons, cependant, de travailler avec une puissance faisceau de 1.5 kW pendant les premiers jours du démarrage de SPIRAL, et d'utiliser les derniers jours de la période faisceau pour effectuer des tests sur la cible à plus haute puissance, jusqu'à 2kW.

III-3 La diffusion dans la cible

Comme nous l'avons vu dans le chapitre I, la diffusion des atomes radioactifs hors de la cible est un phénomène primordial qu'il faut connaître pour chaque type de cible et de matériau, si l'on veut améliorer les intensités des faisceaux radioactifs.

Des mesures de diffusion ont été faites sur le banc de tests SIRa avec cette cible dédiée à la production d'isotopes d'argons et de néons, liée à une source ECR Nanogan III.

III-3-1 Principe de la mesure

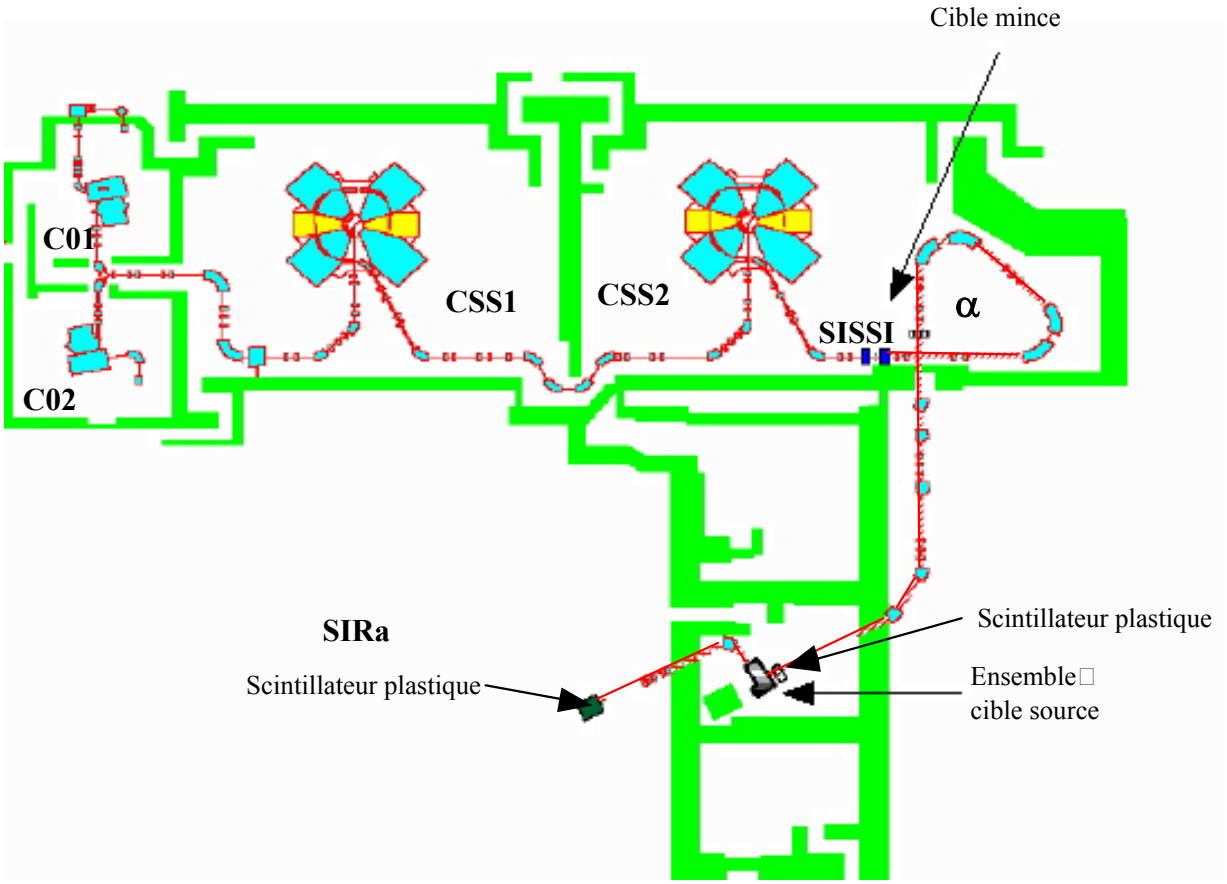


Fig. III- 9 – *Dispositif pour la méthode de mesure directe de diffusion, utilisant l'installation SISSI pour produire des faisceaux radioactifs incidents sur la cible de SIRa..*

La méthode utilisée est la méthode par mesure directe de diffusion [Lec-97 b]. Pour cela, nous utilisons un faisceau secondaire produit par fragmentation du faisceau primaire stable dans une cible mince avec l'installation SISSI (Source d'Ions Secondaires à Supraconducteur Intense) [Jou-91].

Ce faisceau secondaire est alors implanté dans la cible de production installée sur SIRa. Un premier scintillateur plastique est placé juste devant la cible afin d'évaluer le nombre d'ions radioactifs implantés dans la cible, N_{HE} (N coté Haute Energie). En bout de ligne (sur la détection SIRa, Fig. III-9) nous mesurons le nombre d'ions radioactifs restants après diffusion, effusion, ionisation et sélection par le séparateur sur la détection SIRa, N_{BE} (N coté Basse Energie). Ce nombre est déduit en mesurant la radioactivité grâce à divers détecteurs (germanium, plastique ou silicium) suivant le noyau d'intérêt.

L'efficacité totale s'écrit alors :

$$\xi_{Totale} = \frac{N_{BE}}{N_{HE}} = \xi_{SIRa} \times \xi_{diff-eff} \qquad \textbf{(III- 1)}$$

Où $\xi_{diff-eff}$ est l'efficacité de diffusion effusion que nous voulons mesurer et ξ_{SIRa} est l'efficacité de la ligne SIRa, de la source à la détection (ionisation et transport).

L'injection d'un gaz stable à proximité de la cible, dont les caractéristiques chimiques sont les mêmes que celles de l'isotopes du noyau d'intérêt, nous permet de mesurer l'efficacité de la ligne SIRa ξ_{SIRa} (incluant l'efficacité d'ionisation et de transport jusqu'à la détection). L'efficacité ξ_{SIRa} ne dépend pas de la période radioactive de l'élément, tant que celle-ci reste supérieure au temps de présence dans la source. Ce temps de présence t_{source} est pris en compte à partir du moment où l'atome entre dans la source jusqu'au moment où il en sort ionisé. Il est de l'ordre de la dizaine de millisecondes alors que le temps de parcours dans la ligne SIRa est de l'ordre de la microseconde, ce que nous considérerons négligeable face au temps t_{source}. Nous pouvons alors déduire de l'équation III-1, l'efficacité de diffusion effusion $\xi_{diff-eff}$. Nous avons vu dans le § I-2-3 que cette efficacité peut être décomposée telle que :

$$\xi_{diff-eff} = \xi_{diff} \times \xi_{eff} \qquad \textbf{(III- 2)}$$

avec ξ_{diff} la probabilité qu'un atome radioactif sorte du grain et ξ_{eff} la probabilité qu'un atome radioactif sorte de la cible par effusion entre les grains et aille jusqu'à la source d'ionisation et ce, avant sa décroissance radioactive.

Cette méthode avec SISSI fournit un faisceau de faible intensité ne permettant pas de chauffer suffisamment la cible. Elle nécessite donc l'utilisation du chauffage annexe. Cette méthode présente l'avantage de ne pas utiliser de codes d'estimation des taux produits dans la cible pour estimer les efficacités de diffusion effusion, mais utilise une mesure directe.

III-3-2 Résultats expérimentaux

La source Nanogan III a été couplée avec une cible pour la production de faisceaux d'Argon et de Néon, composée d'un carbone de microstructure 1µm de POCO Graphite [POCO-99]. Le faisceau radioactif incident d'^{35}Ar a été produit par l'installation SISSI à partir d'un faisceau primaire d'^{36}Ar sur une cible mince de carbone. En faisant varier la température

de la cible de production sur SIRa grâce au chauffage ohmique annexe, nous avons mesuré l'évolution de l'efficacité de diffusion effusion en fonction de la température.

Les données expérimentales sont représentées sur la figure III-10 .Les valeurs trouvées par L. Maunoury sont aussi reportées sur cette figure, pour une cible de grain 4µm couplée à une source ECR4 et une cible de grain 15µm avec une source Nanogan II [Mau-98].

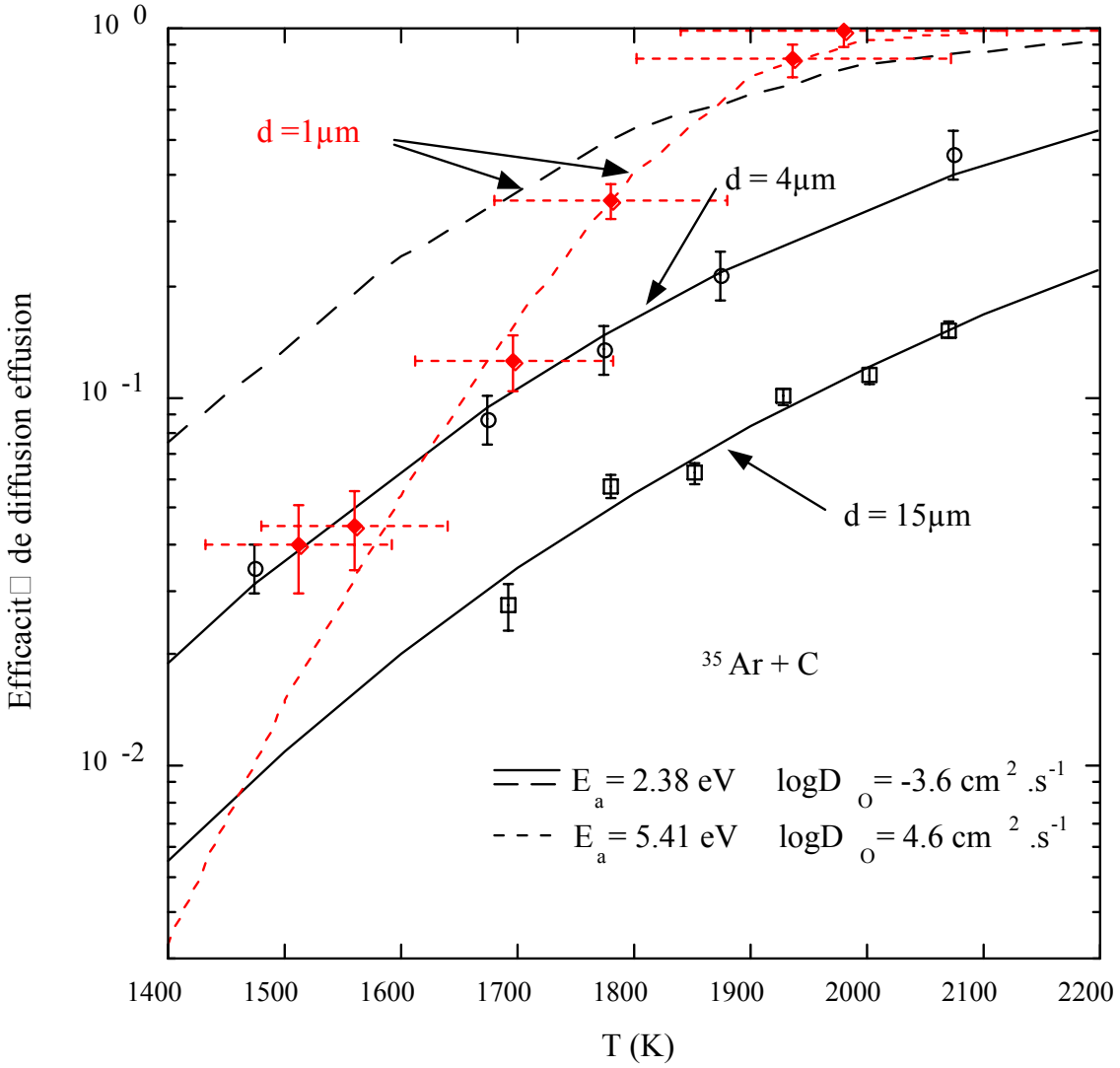


Fig. III- 10 – *Résultats expérimentaux de l'efficacité de diffusion effusion pour l'^{35}Ar en fonction de la température de la cible. Les courbes en trait plein correspondent aux fits des données expérimentales avec les coefficients d'Arrhenius du carbone 4 et 15 µm (E_a=2.38eV et $LogD_0$=-3.6 $cm^2.s^{-1}$). La courbe en pointillés larges pour le carbone 1µm correspond à l'estimation de l'efficacité de diffusion effusion avec les coefficients d'Arrhenius du carbone 4 et 15 µm et le trait en pointillés fins correspond au fit des données expérimentales du carbone 1µm (E_a=5.41eV et $LogD_0$=4.6 $cm^2.s^{-1}$). Les barres en x représentent la température minimale et maximale dans la cible en carbone 1µm simulée avec le code GANIL.*

À partir des différents points expérimentaux et en utilisant l'équation théorique de l'efficacité de diffusion effusion (équation I-17), nous pouvons déduire les coefficients d'Arrhenius E_a et $LogD_o$ (équation I-6).

Ces coefficients sont calculés à partir d'un code utilisant la minimisation du χ^2 [Bev-69] tel que :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{N} \frac{\left[f(i) - f_{mesure}(i)\right]^2}{\sigma(i)^2} \qquad \textbf{(III- 3)}$$

f(i) représente la fonction à ajuster par rapport aux N données expérimentales $f_{mesure}(i)$. On utilise généralement le χ^2 réduit, soit :

$$\chi^2_{r\square duit} = \frac{\chi^2}{\eta} \quad \text{avec} \quad \eta = N - n \qquad \textbf{(III- 4)}$$

où η est le degré de liberté et n le nombre de variables.

La méthode directe a permis de déduire les coefficients d'Arrhenius, en appliquant une efficacité d'effusion constante de 0.9 [Mau-98] pour le carbone 4 et 15 µm de Carbone Lorraine et de 1 pour le carbone 1 µm de POCO Graphite.

Carbone	E_a (eV)	$LogD_o$ ($cm^2.s^{-1}$)	χ^2 réduit
4 et 15 µm de Carbone Lorraine	2.38 (0.19)	-3.6 (0.5)	0.55
1 µm de POCO Graphite	5.41 (0.3)	4.6 (0.8)	3.17

Tab. III- 1– *Coefficients d'Arrhenius pour les différents carbones 1, 4 et 15µm, déduits des mesures de diffusion par la méthode directe.*

Pour les hautes températures (supérieures à 1900K), les valeurs expérimentales montrent bien l'amélioration apportée par des grains plus fins dans la microstructure du carbone (figure III-10). Nous avons amélioré d'un facteur 3 l'efficacité à une température de 2000K : l'efficacité de diffusion effusion est de 33,3 % pour le carbone 4µm alors que nous avons des efficacités calculée de 80 % et mesurée de 100 % pour le carbone 1µm.

Nous devrions obtenir un gain sur les taux de production non négligeable pour les noyaux ayant un très court temps de vie. Les taux de production d'isotopes de l'argon seront présentés dans le § III-4-2.

Par contre, la plage en température où l'efficacité de diffusion effusion est optimum est très restreinte (T>1900K). Dès lors que les températures sont plus basses (inférieures à 1900K), nous observons une chute de l'efficacité de diffusion effusion (figure III-10) par rapport à la courbe estimée avec les coefficients d'Arrhenius du carbone 4 et 15µm.

D'après les abaques de la figure III-8, la température ne devrait pas descendre en dessous de 2000K lorsque la puissance du faisceau primaire baisse si l'on ajoute du chauffage par l'axe. Pour le fonctionnement de SPIRAL, cette différence pour les courbes 1µm sur l'efficacité de diffusion mesurée et estimée n'engendre pas de problème car l'efficacité de diffusion effusion sera toujours de 1.

Nous avons cherché quelle pouvait être l'origine de ces différences entre la courbe estimée par L. Maunoury et al. pour 1µm et la courbe mesurée (figure III-10). Les différentes possibilités sont exposées dans les paragraphes suivants.

III-3-2-1 Changement de source

La cible en carbone 15µm était associée à un ensemble cible source Nanogan II et la cible 4 µm à un ensemble ECR3. Pour ces deux expériences, il n'a pas été noté de différences sur l'évolution de l'efficacité de diffusion effusion en fonction de la température et ceci pour des conditions de fonctionnement de source similaires. Il semble donc improbable que la chute de l'efficacité soit due au fait que la cible 1µm était liée à un ensemble cible source Nanogan III, équivalente à quelques détails près, à l'ensemble Nanogan II (§ I-3-1-3).

III-3-2-2 Changement de fabricant de carbone

Sur le marché actuel, très peu de fabricants sont capables de faire du carbone 1 µm. Nous avons choisi la fabrique POCO Graphite située aux Etats-unis dont le distributeur français est EDM [EDM].

L'hypothèse que nous avons posée en premier abord est que, une fois sorti du grain par diffusion, l'effusion entre les grains de la cible jusqu'à la chambre de la source d'ionisation est négligeable.

Nous avons étudié et comparé plus en détail la microstructure des carbones 1 et 4 µm de Carbone Lorraine et POCO Graphite pour comprendre si une structure différente entre les grains pouvait ajouter un phénomène supplémentaire de diffusion entre les grains et donc dans les joints de grain et ainsi créer un retard sur la sortie de la cible. Nous avons utilisé la méthode par microscopie électronique à balayage. En cassant un échantillon en deux parties et observant la surface de rupture intergranulaire d'un matériau polycristallin, il est alors possible d'observer la taille des grains ainsi que la structure intergrain.

Ces observations ont été réalisées sur des échantillons de carbone neufs (ni chauffés, ni irradiés) avec l'aide de F. Osterstock, de l'équipe Structures et Comportement Thermomécanique des matériaux du CRISMAT (Laboratoire de CRIstallographie et Sciences des MATériaux) de Caen. Afin d'augmenter le contraste, les échantillons ont été métallisés par un dépôt d'or. Les photos sont présentées dans la figure III-11.

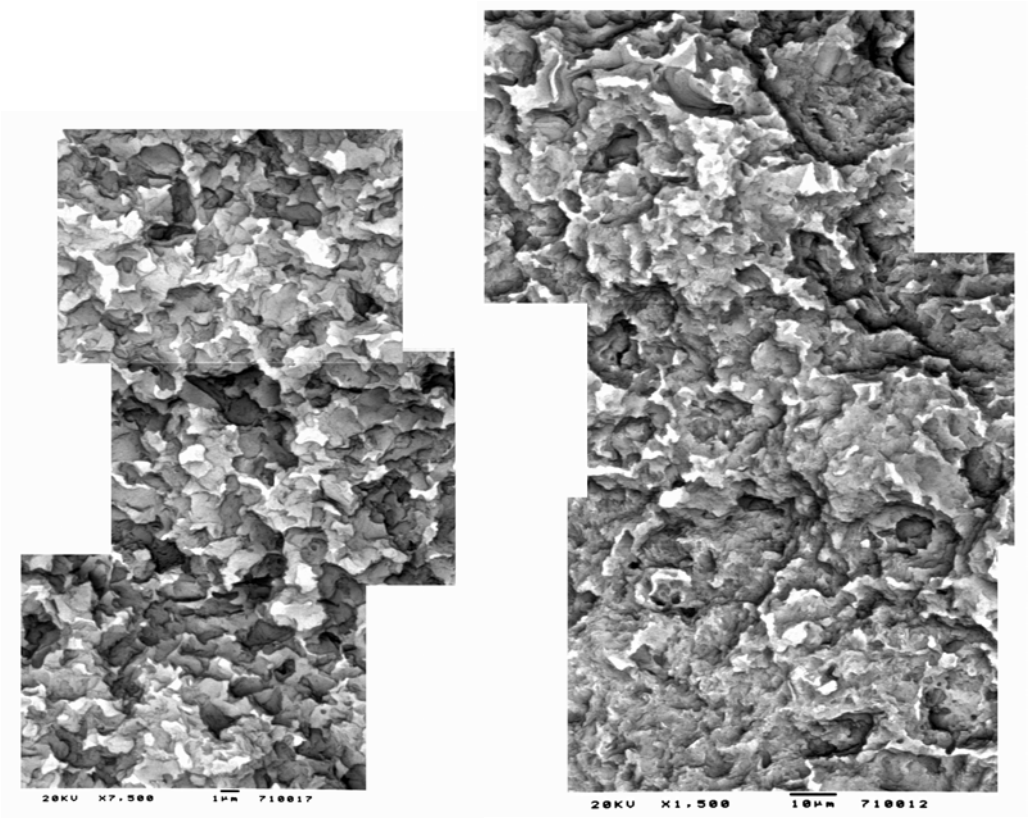


Fig. III- 11 – *Photos au microscope électronique à balayage. La photo de gauche représente le carbone 1µm grossit 4 fois plus par rapport au carbone 4µm à droite.*

Après un grossissement du carbone 1µm quatre fois supérieur au carbone 4µm, il est clair pour un spécialiste que la structure de la surface de cassure semble la même quelque soit le carbone observé [Ost-01]. Des trous (zones sombres sur les photos) sont visibles sur la surface permettant de vérifier la taille des grains.

Le carbone 4µm semble moins régulier suite au mode de sélection des poudres. En effet, les grains sont sélectionnés par tamisage des poudres ; ainsi le carbone est un mélange de grains de taille inférieure à celle annoncée par le fabricant soit inférieur à 4µm pour Carbone Lorraine et inférieure à 1µm pour POCO Graphite. Le carbone 1µm a une distribution de grains beaucoup plus homogène que le carbone 4µm. La méthode de broyage donne difficilement des grains inférieurs à 1µm. Par conséquent, cette difficulté de broyage du graphite 1µm peut entraîner un nombre de défauts plus important dans la maille cristalline du graphite. Or les pièges et défauts dans la microstructure du graphite augmentent le temps de diffusion des atomes hors des sites interstitiels et augmentent l'énergie d'activation apparente E_a de la diffusion [Ash-91] [You-98]. Ce phénomène est en accord avec les mesures effectuées dans le carbone 1µm où nous obtenons une valeur de E_a de 5.41eV contre 2.38eV pour les carbones 4 et 15µm de Carbone Lorraine. De plus les deux fabricants, POCO Graphite et Carbone Lorraine n'utilisent peut-être pas le même matériau graphite au départ comme semble l'indiquer la différence des impuretés du carbone 1 et 4µm (§ I-4-2-1) et la plus grande abondance d'eau observée avec le carbone 1µm lors des tests sur SIRa. Il est aussi possible que

le graphite de POCO ait des zones amorphes. Ainsi, les processus de diffusion dans les différents carbones ne seront pas contrôlés par les mêmes mécanismes [Ash-91] [Bol-00].

Il serait intéressant de refaire cette observation avec un microscope plus performant pour regarder s'il existe des zones amorphes dans la zone intergranulaire et dans les grains.

III-3-2-3 Changement de régime de diffusion

À une température moyenne, l'effet des défauts dans un solide (i.e. les joints de grains, les dislocations, etc…) devient prépondérant. Le coefficient $D_{apparent}$ résultant est supérieur au coefficient D de diffusion en volume, comme nous l'avons explicité pour les différents mécanismes de diffusion (§ I-2-1). En dessous de la moitié de la température de fusion T_f environ, on est en présence d'une diffusion intergranulaire, dans le cas où il existe un joint de grains dans le matériau polycristallin. Un changement de pente sur la courbe d'Arrhenius (D en fonction de $^1/_T$) lié aux deux mécanismes de diffusion intergranulaire et de diffusion en volume est attendu [Phi-90].

Ce phénomène a été observé dans le cas de la diffusion du Lithium dans des échantillons de Carbure de Bore (matériau polycristallin) par D. Simeone [Sim-99 a] [Des-99]. Dans son cas à basse température (figure III-12), il y a compétition entre la diffusion en volume (gouvernée par la taille moyenne des grains de B_4C de 10µm environ) et la diffusion intergranulaire (gouvernée par les joints de grains des échantillons de B_4C dont l'épaisseur est de l'ordre de 20nm). A haute température supérieure à 0.4 T_f soit 948K (T_f du B_4C = 2450K), la valeur du coefficient de diffusion en volume devient importante et domine les effets de diffusion aux joints de grains.

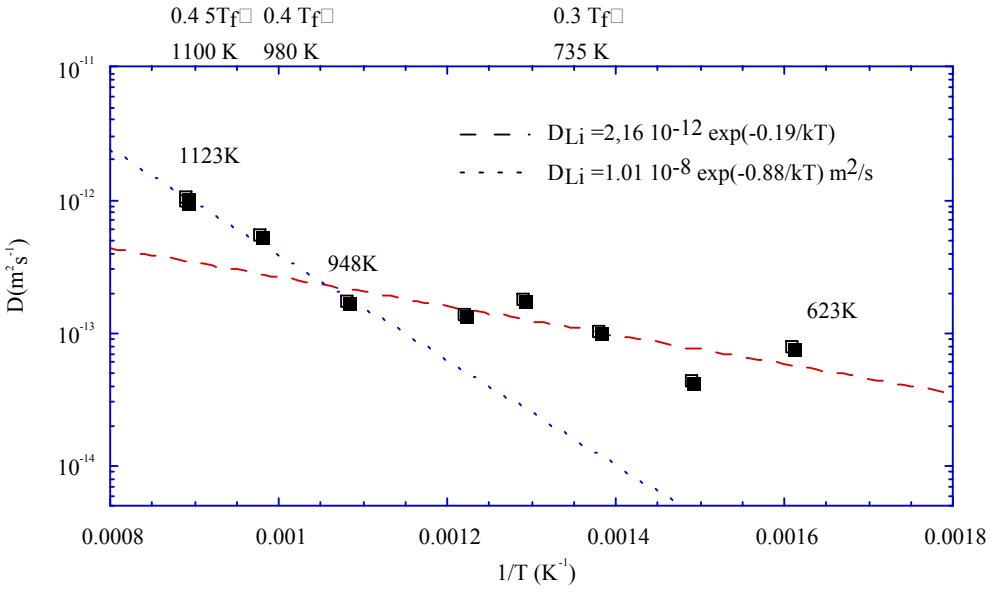


Fig. III- 12 – *Changement de pente du coefficient D en fonction de l'inverse de la température pour le Lithium dans du carbure de bore, observé par D. Simeone* [Sim-99 a].

Dans le cas du carbone, qui ne fond pas où alors dans des conditions extrêmes (pression de l'ordre de 10MPa), on prendra comme point de référence sa température de sublimation soit 3900K.

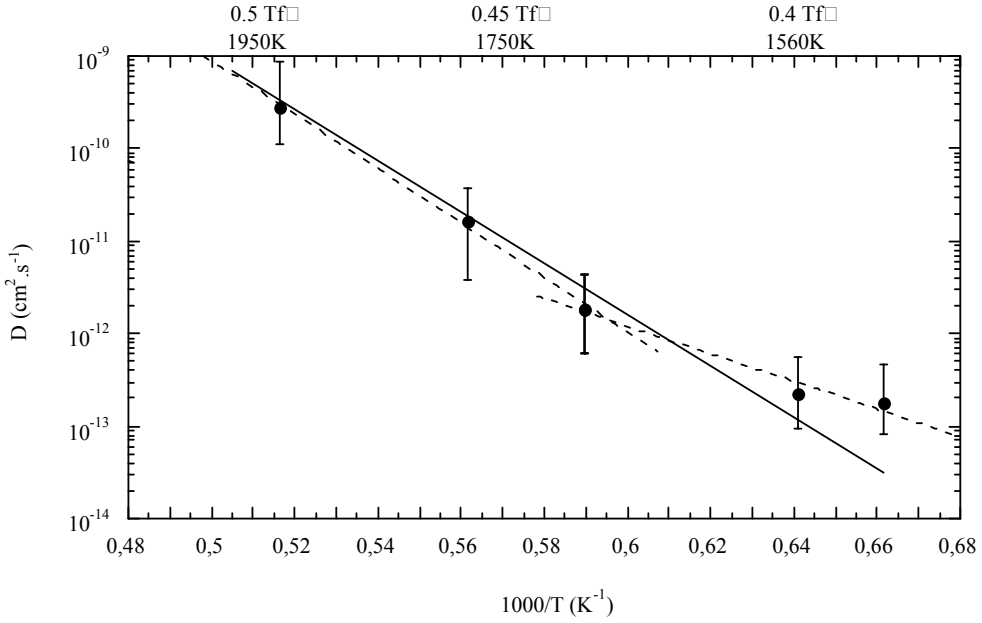


Fig. III- 13 – *Coefficient de diffusion D de l'^{35}Ar dans le carbone graphite en fonction de l'inverse de la température ($^{1000}/_{T}$). Le trait plein correspondent aux coefficients D obtenus à partir des coefficients d'Arrhenius extraits des points expérimentaux (Tab. III-1), dans ce cas le coefficient de corrélation est de 96.65%.. Les traits pointillés correspondent aux fits des points expérimentaux du carbone 1µm dans l'hypothèse d'un changement de régime. A basse température, le coefficient de corrélation est de 99.78 %, il est de 99.99 % dans la zone des températures élevées ($^{1}/_{T}$<0.59).*

Sur la figure III-13 est représentée l'évolution du coefficient de diffusion D ($cm^2.s^{-1}$) de l'^{35}Ar dans le carbone 1µm. Les points correspondants à D sont extraits des données expérimentales de l'efficacité de diffusion effusion (figure III-10) à l'aide de la formule I-11 de l'efficacité de diffusion hors d'une sphère. La courbe pleine de D est calculée à partir des coefficients d'Arrhenius extraits des données expérimentales (Tab. III-1). Les traits pointillés correspondent aux fits des points expérimentaux du carbone 1µm dans l'hypothèse d'un changement de régime, les valeurs des coefficients d'Arrhenius correspondant aux zones basses et hautes températures sont indiquées dans le tableau III-2.

		E_a (eV)	$LogD_o$ ($cm^2.s^{-1}$)	Coefficient de corrélation
4-15µm	[Mau-98]	2.38	-3.6	
1µm	Coefficient du Tab. III-1	5.41	4.6	96.65 %
	À basse température	2.95	-2.98	99.78 %
	À haute température	5.8	5.66	99.99 %

Tab. III- 2 – *Coefficient d'Arrhenius dans l'hypothèse d'un changement de régime à basse et à haute température comparé aux valeurs du Tab. III-1 pour le carbone 4,15 et 1µm. Les coefficients de corrélation des courbes de D par rapport aux points expérimentaux sont aussi indiqués.*

Le coefficient de diffusion pour le carbone 1µm semble changer de pente à basse température à partir de $^{1000}/_{T}$ = 0.59 K^{-1} soit environ 0.44 T_f (avec T_f carbone =3900K). Nous retrouvons le même phénomène, dans les mêmes conditions que pour la diffusion du Lithium dans le B_4C [Sim-99 a], où D. Simeone observait un changement de pente autour de 0.4 T_f (figure III-12). Tout se passe comme si on était en régime de diffusion intergranulaire aux basses températures (gouverné par la diffusion dans les joints de grains). Au-delà de 0.4 T_f, la diffusion en volume (où la taille de grain domine) commence à intervenir et se superpose à la diffusion intergrain, améliorant ainsi le temps de sortie de la cible et provoquant ce changement de pente.

Ce changement de régime de diffusion n'a pas été observé sur le carbone 4 et 15µm de Carbone Lorraine. La taille de grains est plus grande par rapport au carbone POCO mais le joint de grain doit être du même ordre de grandeur que celui du carbone 1µm, dû au même processus de fabrication. Ainsi la taille des grains 4 et 15 µm devient dominante devant l'épaisseur du joint de grains. La diffusion en volume dominerait alors la diffusion intergranulaire pour les carbones 4 et 15µm ne montrant pas de changement de pente aux températures où nous travaillons. La cassure du coefficient D devrait se faire à plus basse température pour les carbone 4 et 15µm.

Cette différence entre les carbones peut être expliquée par le changement du rapport entre la taille de grains et l'épaisseur du joint de grains, mais ceci est à confirmer. Il est vrai que nous avons peu de points expérimentaux pour le carbone 1µm pour évaluer correctement ce changement de pente. Seul le point à 0.66 K^{-1} permet de valider cette hypothèse. Il serait utile de faire une nouvelle expérience en affinant les mesures d'efficacité de diffusion à plus basse température et autour de cette valeur de 0.4 T_f pour valider cette hypothèse.

III-3-2-4 Effet labyrinthe

Dans l'hypothèse où il n'existe pas ou peu de liant contrairement au cas précédent, une effusion par effet "labyrinthe" serait observée entre les grains de la cible.

En effet, un calcul simpliste tenant compte d'un mouvement brownien [Sta-97] ou de marche au hasard au sein d'une feuille en 2D, permet d'estimer l'ordre de grandeur du nombre de pas N de longueur moyenne $\bar{l}$ que doit faire un atome pour parcourir une distance L.

$$N = \frac{L^2}{\bar{l}^2} \qquad \textbf{(III- 5)}$$

À partir de cette équation III-5, la distance parcourue par un atome dans le carbone 1 et 4µm peut être évaluée en supposant qu'il ne rediffuse pas à l'intérieur du grain et ce, jusqu'à la sortie d'une lamelle de 0.5mm d'épaisseur. $\bar{l}$, la longueur du pas entre deux collisions est supposée égale à la taille des pores intergrain du carbone, soit 0.3µm pour le carbone 1µm [POCO-99] et 0.8µm pour le carbone 4µm. L est égale à la demi épaisseur de la lamelle si l'on implante l'atome au centre des lamelles soit 0.25mm. Ainsi l'atome parcourt une distance de

l'ordre de 20cm (~10^7 collisions) dans le carbone 1µm contre seulement 8cm environ (~1000 collisions) dans le carbone 4µm pour sortir de la lamelle.

Pour l'^{35}Ar, à une température de 1400K où sa vitesse est de 1000m/s, cet atome mettra 0.2ms pour sortir de la cible, temps qui est négligeable. Ce facteur 3 sur les distances aurait pu avoir un effet néfaste si le parcours pour sortir des lamelles avait été plus important.

L'Argon étant un gaz rare, nous avons considéré que les temps de collage pour chaque saut sont négligeables. La chute de l'efficacité de diffusion effusion ne peut être expliquée par cet effet seul.

III-3-2-5 Changement de système de chauffage de la cible

Les mesures effectuées précédemment (4 et 15µm) ont toutes été faites avec un système de chauffage externe (figure III-1) et donc avec une température homogène au sein de la cible, alors que pour le carbone 1µm, c'est un système de chauffage par l'axe qui a été adopté comme nous l'avons explicité dans le § III-1. Ce système a été réalisé afin de minimiser les problèmes de température trop élevée dans la cible lorsque l'on est en présence d'un faisceau de 2kW. Or pour les mesures d'efficacité de diffusion, la puissance apportée par le faisceau secondaire SISSI est négligeable, il faut alors appliquer une puissance ohmique sur l'axe de la cible . Cette opération engendre par la même occasion un gradient important en température au sein de cette cible. Sur la figure III-10, les barres selon l'axe x (barres en pointillées) sur les points expérimentaux 1µm représentent les valeurs minimales et maximales de la température dans la cible estimée par le programme GANIL et montrent ainsi l'hétérogénéité en température au sein de la cible.

Il est difficile de se ramener à une température unique pour ce genre de mesure lorsque l'on est en présence de fort gradient de température. De plus, nous perdons certainement plus d'atomes radioactifs dans les parties froides de la cible où la vitesse des atomes est plus lente, l'efficacité de diffusion effusion mesurée correspond alors à une efficacité globale sur l'ensemble de la cible en présence d'un gradient de température.

Dans ces conditions, il est hasardeux d'extraire des coefficients d'Arrhenius car ils ne sont valables que si la température dans la cible est homogène.

III-3-3 En résumé

Pour valider ces mesures d'efficacité de diffusion effusion, il serait intéressant de refaire une expérience de diffusion avec SISSI en méthode directe avec des températures homogènes au sein d'une cible en carbone 1µm, dans les mêmes conditions de géométrie que la cible en carbone 4µm avec un chauffage externe.

Si les résultats de l'expérience proposée confirment les prévisions de L. Maunoury en 1µm avec les mêmes coefficients d'Arrhenius de l'^{35}Ar dans le carbone 4 et 15 µm, nous pourrons alors affirmer que la différence sur la figure III-10 ne vient que de la géométrie et par conséquent du gradient important de température au sein de la cible.

Par contre, si les résultats donnent des coefficients d'Arrhenius différents et donc un coefficient de diffusion D différent, il serait intéressant de regarder s'il y a un changement de pente correspondant à un changement de régime de diffusion dans le carbone 1µm. Si c'est le cas, nous pourrons conclure que la différence sur la figure III-10 provient du changement du rapport entre la taille des grains et l'épaisseur du joint de grains et donc du changement de fabricant. Une observation au microscope électronique permettra de confirmer cette hypothèse.

Plusieurs régimes de diffusion peuvent intervenir, et suivant le carbone utilisé et les températures avec lesquelles nous travaillons, un régime sera dominant par rapport à un autre. Il faudra donc toujours être à des températures telles que le régime de diffusion en volume soit dominant, ce qui semble être notre cas à 2000K pour la diffusion de l'^{35}Ar dans du Carbone 1µm.

D'un point de vue production sur SPIRAL, ce résultat est primordial, surtout si la puissance du faisceau primaire est inférieure à 1kW, car l'ajout de chauffage annexe par l'axe entraîne inévitablement un gradient de température. On est plus froid, là où se dépose le faisceau et plus chaud sur l'axe, là où il y a peu de faisceau et donc peu de production (figure III-15). On risque alors de baisser les taux de production.

Avec le faisceau SPIRAL à 2kW, les températures au sein de la cible sont estimées supérieures à 2000K comme le montre la figure III-8. Si l'on baisse l'intensité du faisceau primaire, l'ajout d'un chauffage annexe permet de garder une température dans la cible toujours supérieure à 2000K. L'efficacité de diffusion effusion de l'^{35}Ar est alors de 1 et n'engendre aucune perte lors de la sortie des atomes radioactifs du grain de carbone jusqu'à la source. La seule baisse sur les taux de production sera due uniquement à la baisse de l'intensité du faisceau primaire.

Par contre, d'un point de vue diffusion, l'interprétation des résultats et l'extraction des coefficients d'Arrhenius peuvent devenir hasardeuses pour plusieurs raisons :

- la taille des grains du graphite n'est qu'une distribution de grains inférieurs à une valeur donnée par le fabricant comme nous l'avons explicité dans le §III-3-2-2. Or, nous extrapolons les coefficients d'Arrhenius avec une taille fixe de grains qui est la limite supérieure donnée par le fabricant.
- l'analyse des données de diffusion est faite sur l'hypothèse qu'il n'y a qu'un régime de diffusion hors du grain puis une effusion hors de la cible. Or il est possible qu'il y ait une superposition de processus de diffusion différents. Ne connaissant pas la structure entre les grains et donc des liants, il existe peut-être un phénomène de diffusion supplémentaire entre les grains, pouvant expliquer le changement de pente de la figure III-13.
- enfin, dans le cas de l'expérience réalisée avec le carbone 1µm, le gradient de température au sein de la cible rend difficilement exploitable l'analyse des données de diffusion effusion.

Ne connaissant pas les secrets de fabrication des deux fabricants (POCO Graphite et Carbone Lorraine), il est difficile de conclure si la différence sur les résultats de diffusion effusion provient de différences sur les caractéristiques physiques des carbones, ni sur l'hypothèse de l'effet labyrinthe ou sur le changement de régime de diffusion.

Nous avons montré que le carbone 1µm permet d'améliorer l'efficacité de diffusion effusion, $\xi_{eff\text{-}diff}$=1 pour des températures supérieures à 1900K pour le carbone 1µm contre 0.3 pour le carbone 4µm. Par contre, la plage de température dans laquelle nous pouvons travailler avec cette efficacité optimale est très restreinte. Dès que cette température au sein de la cible est inférieure à 1900K, l'efficacité de diffusion effusion chute drastiquement et devient plus faible que celle du carbone 4µm.

III-4 Production des isotopes d'argon radioactifs avec la cible

III-4-1 Distribution d'état de charge

Les taux de production ont été mesurés avec la cible en carbone 4µm, sur les différents états de charge pour les ^{32,33,34,35}Ar sur le banc de tests SIRa avec un faisceau primaire d'^{36}Ar à 95 MeV/A et 400W de puissance ainsi qu'un chauffage annexe sur l'axe de 1500W. Ces résultats sont résumés par la figure III-14.

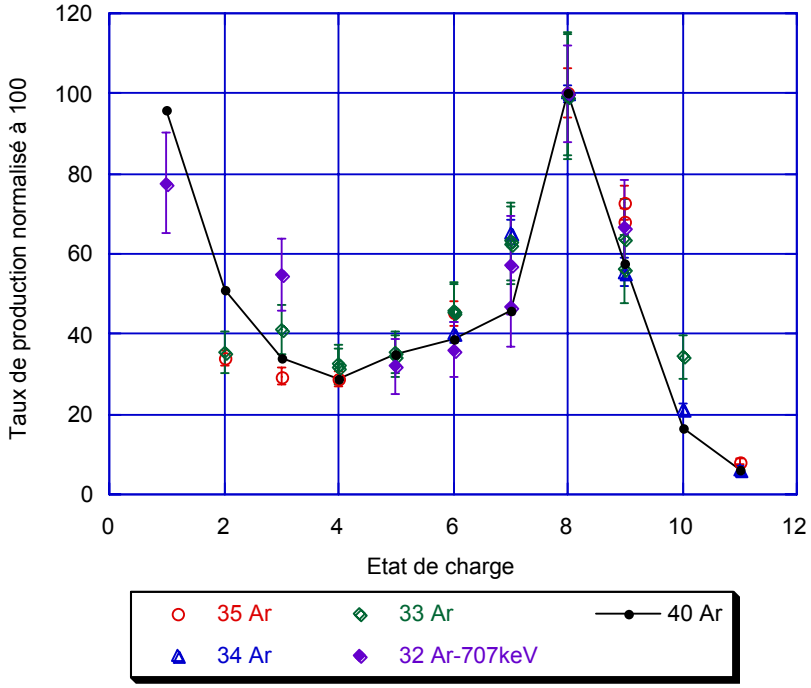


Fig. III- 14 – *Taux de production des ^{32,33,34,35}Ar dans le carbone 4µm mesurés sur le banc de tests SIRa en ligne avec un faisceau primaire d'^{36}Ar de 400W, et normalisé à 100 sur l'état de charge 8+ pour différents états de charges. La distribution de l'^{40}Ar a été effectuée hors-ligne avec une cible froide et une fuite calibrée.*

La figure III-14 montre que quelque soit l'isotope d'Argon produit, la tendance de la distribution d'état de charge fournit par la source Nanogan III est la même que celle de

l'élément stable ^{40}Ar injecté par l'intermédiaire d'une fuite calibrée. Le temps d'ionisation de la source est donc inférieur au temps de vie $T_{1/2}$ de l'atome radioactif le plus court, soit $T_{ionisation}$<<98 ms car nous n'observons pas de perte pour les états de charge plus élevés. La distribution d'état de charge de l'^{40}Ar a été mesurée hors-ligne avec une cible froide contrairement aux ^{32,33,34,35}Ar, le fait de chauffer la cible à 2000K, après dégazage de l'ensemble, ne perturbe en rien le fonctionnement de la source.

III-4-2 Les taux de production

Les taux de production ont été mesurés sur le banc de tests de SIRa pour deux cibles de géométrie identique optimisée à 2kW, en carbone 1 et 4µm. Tous les tests ont été réalisés avec un faisceau primaire de 400 W, énergie maximale disponible à l'heure actuelle dans les aires expérimentales du GANIL. Les cibles en carbone 1 et 4 µm optimisées à 2kW de faisceau primaire ne sont donc pas optimisées en température pour un faisceau d'^{36}Ar de 400W. Une puissance ohmique supplémentaire sur l'axe de 1500W a été nécessaire afin d'atteindre des températures de l'ordre de 2300 K.

Nous comparerons ces résultats à ceux de L. Maunoury qui a utilisé une taille de cible optimisée pour un faisceau primaire de 400W avec un carbone 4µm. Les taux obtenus vont nous permettre d'extrapoler les taux attendus pour SPIRAL à 2kW et présentés en annexe C.

État de charge	**Taux normalisé à 1 µAp de $^{36}Ar^{18+}$**			
	4 µm cible optimisée à 2kW	**4µm cible optimisée à 400W**	**1µm cible optimisée à 2kW**	**Estimation Sigma_sira**
$^{32}Ar^{1+}$ ($T_{1/2}$=98ms)	690 (107)		9.74 (1.2) 10^3	
$^{32}Ar^{7+}$	360 (67)	1.0 (1) 10^3	2.7 (0.32) 10^3	
$^{32}Ar^{8+}$			4.23 (0.54) 10^3	3.6 10^4
$^{33}Ar^{1+}$($T_{1/2}$=174ms)			5.75 (0.44) 10^5	
$^{33}Ar^{8+}$	3.1 (0.46) 10^4	1.62 (0.07) 10^5	3.05 (0.13) 10^5	1.8 10^6
$^{34}Ar^{1+}$($T_{1/2}$=844.5ms)			4.7 (0.36) 10^7	
$^{34}Ar^{7+}$	1.75 (0.08) 10^6	7.68 (0.56) 10^6	1.05 (0.05) 10^7	
$^{34}Ar^{8+}$	5.94 (0.29) 10^6		2.1 (0.11) 10^7	4.4 10^7
$^{35}Ar^{1+}$($T_{1/2}$=1.77s)			1.37 (0.1) 10^9	
$^{35}Ar^{8+}$	8.1 (0.5) 10^7	3.02 (0.15) 10^8	5.4 (0.36) 10^8	4.12 10^8

Tab. III- 3–*Taux de production des Argons mesurés à 400W et normalisés à 1µAp (équivalent à 3.4kW) de faisceau primaire pour le carbone 1µm, après diffusion effusion, ionisation et transport sur SIRa. Ces résultats sont comparés avec les valeurs mesurées sur SIRa avec une cible (soit optimisée à 400W, soit optimisée à 2kW) en carbone 4µm et aux estimations calculés avec le code Sigma_sira.*

La dernière colonne donne les estimations des taux de productions ramenés en bout de ligne SIRa (corrigés de l'efficacité de diffusion effusion, ionisation et transport) pour

comparaison. Ce code est basé sur le programme INTENSITY [Win-92] utilisant la paramétrisation d'EPAX.

Nous pouvons observer l'amélioration des taux de production due à une taille de grain plus petite (colonnes 2 et 4 du tableau III-3), on a un gain d'un facteur environ 7 pour une même géométrie de cible et des carbones différents. On note aussi un effet sur la température au sein de la cible (colonnes 2 et 3 du tableau III-3). En effet, lorsque l'on compare les résultats des deux cibles en carbone 4µm, on observe un gain non négligeable (un facteur 4 en moyenne) pour la cible optimisée à 400W où la température est plus homogène par rapport à la cible optimisée à 2kW chauffée avec 400W de faisceau incident et 1500W de chauffage annexe.

Pour la cible optimisée à 2 kW de faisceau primaire, un chauffage ohmique supplémentaire entraîne un gradient de température important dans la zone de production des noyaux radioactifs (figure III-15) qui est néfaste pour la diffusion (Fig. III-10)

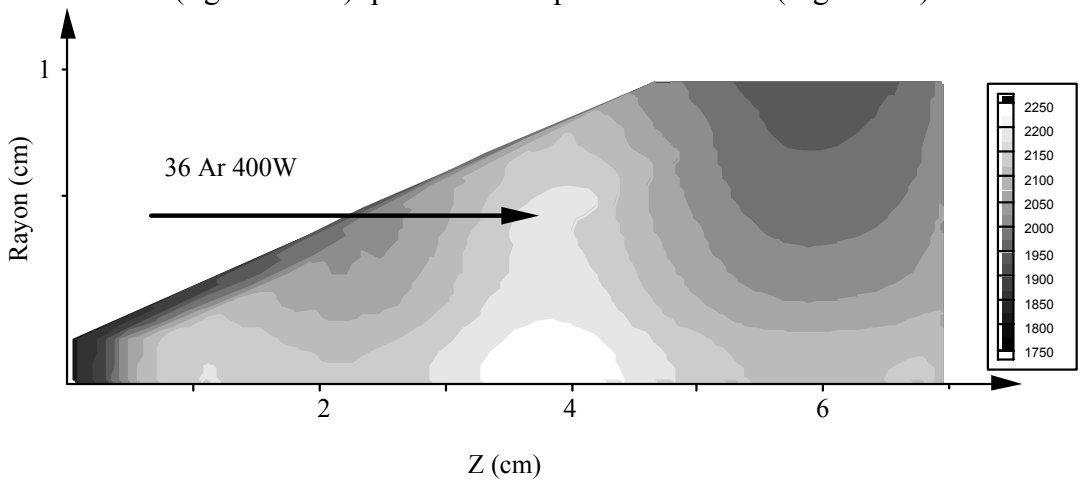


Fig. III- 15 – *Simulation avec le code GANIL d'une cible irradiée par un faisceau primaire d'^{36}Ar de 400W et chauffée par l'axe avec une puissance de 1500W. Les températures sont en Kelvin.*

Le chauffage annexe par l'axe est un bon moyen de garder une température moyenne de l'ordre de 2000K sans dépasser 2400K sur l'axe, lorsque le faisceau primaire est insuffisant. S'il y a une baisse du faisceau primaire, on diminue le taux de production des noyaux radioactifs car le nombre de noyaux incident baisse et l'on augmente le gradient de température par ajout d'un chauffage annexe. Ainsi les taux de production sur SIRa à 400W pour la cible 1µm sont certainement sous estimés, car la cible est optimisée en température à 2kW.

Ce résultat sera vérifié lors des premiers essais en ligne sur SPIRAL avec un faisceau de 2 kW.

III-4-3 Production de l'^{31}Ar

Durant ce travail de thèse, deux expériences ont été réalisées afin d'estimer le taux de production de l'^{31}Ar avec deux cibles dont le système de chauffage annexe était par l'axe : la première avec un carbone 4µm et la deuxième avec un carbone 1 µm.

Nous n'avons rien vu par rapport aux mesures de L. Maunoury qui a estimé un taux de 1.56 pps pour un faisceau primaire d'^{36}Ar à 400W sur une cible qui avait un système de chauffage externe.

Nous avons analysé les différences de configuration dans les deux cas, celles-ci sont résumées dans le tableau III-4.

Expériences de la thèse de L. Maunoury	**Expériences de cette thèse**
Source Nanogan II	Source Nanogan III
Cible 4 µm optimisée à 400W	Cibles 1 et 4 µm optimisées à 2kW
Système de chauffage externe	Système de chauffage par l'axe

Tab. III- 4 – *Comparaison des configurations d'expérience pour la mesure du taux de production de l'^{31}Ar.*

Nous avons vu précédemment que les deux sources Nanogan II et Nanogan III ne sont pas foncièrement différentes. De plus, nous avons testé les deux cibles dans les mêmes configurations avec du carbone 1 et 4 µm pour obtenir le même résultat néant. Ni la structure du carbone, ni la différence de source ne sont donc à mettre en cause.

La cible de L. Maunoury et al. était optimisée pour un faisceau de 400W, sa température était donc optimale pour l'expérience. Dans notre cas, le système de chauffage était différent. Un système de chauffage par l'axe oblige à avoir des températures plus élevées sur l'axe (2300K) pour une température de l'ordre de 2000K sur les lamelles. La température sur les lamelles était certainement trop froide pour permettre une efficacité de diffusion effusion optimale et donc pour faire sortir l'^{31}Ar qui a un temps de vie très court (15ms). Cette réflexion nous a poussé à augmenter la puissance de chauffage et à baisser la vitesse de rotation du faisceau primaire et ce, jusqu'à détérioration de l'axe par évaporation.

En annexe D, nous avons estimé l'efficacité de diffusion effusion pour les isotopes de l'Argon (^{31,32,34,35}Ar) à partir des données de diffusion de l'^{35}Ar (coefficients d'Arrhenius) et d'effusion du ^{17}Ne (ν). Ainsi pour l'^{31}Ar $\xi_{diff\ eff}$, à 2300K pour le carbone 4µm, est de 1.7 %. Dans le cas de notre expérience, à 2000K, cette efficacité $\xi_{diff\ eff}$ est égale à 5.7% pour le carbone 1µm et est égale à 0.6% pour le carbone 4µm. Dans ces conditions, nous aurions dû voir l'^{31}Ar au moins pour le carbone 1µm. Si nous n'avons rien vu, il est alors possible que :

- la cible de L. Maunoury et al. était plus chaude au niveau des lamelles ($\xi_{diff\ eff}$=2.8% à 2500K pour le carbone 4µm).
- nos cibles (1 et 4µm), dû au gradient de température, sont plus froides que nous le pensions ($\xi_{diff\ eff}$=1% pour le carbone 1µm et $\xi_{diff\ eff}$=0.2% pour le 4µm à 1800K).

Il est donc nécessaire dans le futur de prévoir un développement de cible spécifique pour la production d'^{31}Ar en travaillant avec des températures plus élevées que pour les ^{32,33,34,35}Ar. Mais avant cela, un premier test en ligne à 2kW sera d'abord à réaliser car les températures seront plus homogènes et plus chaudes sur les lamelles que dans les conditions de l'expérience précédente sur SIRa.

III-5 Production des isotopes du néon radioactifs avec la cible

III-5-1 les taux de production

Afin de confirmer les taux de production des Néons pour le démarrage de SPIRAL, une série de mesures a été réalisée sur SIRa sur une durée de trois jours avec un faisceau de ^{20}Ne à 95MeV/A à 400W. Cette expérience a été dépouillée dans le cadre de la thèse de S. Gibouin [Gib-01].

Après trois jours d'irradiation, aucun changement ni dégradation sur les taux de production n'a été observé.

Le tableau III-5 compare les résultats de production entre une cible 4µm et une cible 1µm. Les taux de production ont été normalisés à un faisceau de ^{20}Ne à 95 MeV/A à 1µAp soit 1.9kW de puissance.

	Cible 4µm [Mau-94]	**Cible 1µm** [Gib-01]	**Estimation SIGMA_SIRa**
^{17}Ne $^{5+}$ ($T_{1/2}$=109 ms)	1.49 (0.07) 10^5	8.5 (0.44) 10^5	4.7 10^6
^{18}Ne $^{5+}$ ($T_{1/2}$=1.67 s)	1.49 (0.07) 10^7	4.41 (0.41)10^7	1.8 10^8
^{19}Ne $^{5+}$ ($T_{1/2}$=17.22 s)	2.4 (0.12) 10^8	2.54 (0.18)10^8	1.12 10^9

Tab. III- 5 – *Taux de production des Néons mesurés sur SIRa normalisés à 1µAp (équivalent à 1.9kW) de faisceau primaire. La dernière colonne correspond aux estimations avec le code SIGMA_SIRa corrigées de l'efficacité de la ligne SIRa (transport, ionisation et diffusion effusion).*

Le ^{17}Ne a un temps de vie de 109ms. La mesure d'efficacité de diffusion effusion par temps de montée est une méthode qui permet d'extraire les coefficients d'Arrhenius de l'efficacité de diffusion ξ_{diff} mais aussi l'efficacité d'effusion ξ_{eff}. Cette mesure permet donc d'avoir une idée sur les temps de sortie de nos cibles, et par conséquent, sur les pertes engendrées par la décroissance radioactive pour des noyaux de telle période.

III-5-2 Temps de montée du ^{17}Ne

III-5-2-1 Principe de la mesure

Les mesures de temps de montée consistent à mesurer le nombre de noyaux de Néons arrivant au point de détection de SIRa (figure III-9) à partir d'un temps t_0, moment où l'on irradie la cible avec un faisceau primaire de ^{20}Ne [Mau-98] de 400W. La radioactivité liée au noyau d'intérêt (figure III-16) augmente en fonction du temps jusqu'à atteindre une valeur plateau.

Une fois la saturation atteinte (correspondant à l'équilibre entre le nombre de noyaux arrivant à la détection et le nombre de noyaux se désintégrant), on peut couper le faisceau primaire. Plusieurs cycles sont effectués pour avoir un maximum de statistique en prenant garde d'avancer la bande d'implantation entre chaque cycle afin d'évacuer la radioactivité résiduelle.

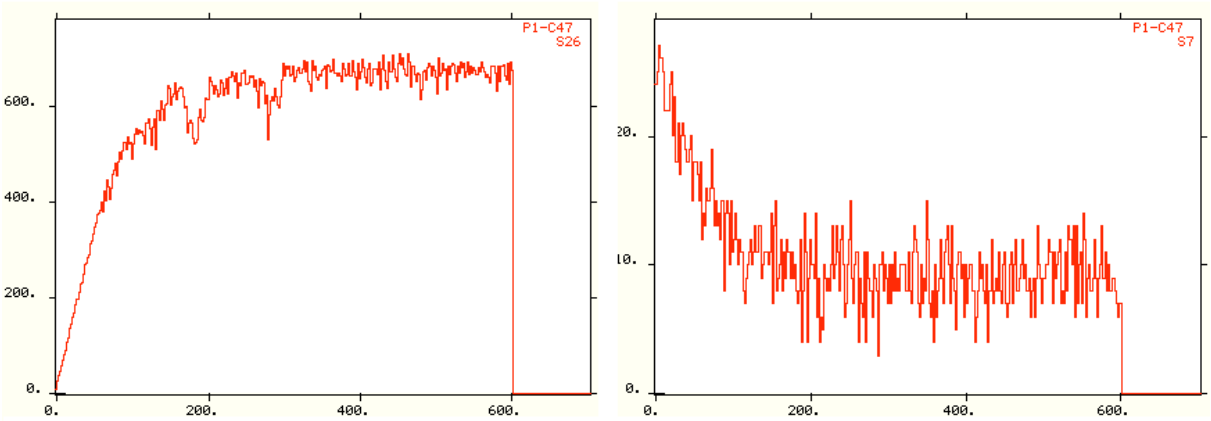


Fig. III- 16– *Spectre de radioactivité en fonction du temps (à gauche) et spectre du taux d'acceptation (à droite) permettant de corriger le spectre de radioactivité.*

Nous pouvons déduire les deux coefficients μ_0, caractéristique de l'efficacité de diffusion (équation I-11) et ν, caractéristique de l'efficacité d'effusion (équation I-16) à partir de la pente des courbes de temps de montée (Fig. III-16) obtenues pendant l'expérience et à partir de l'équation III-6 :

$$\tau_{des}(t) = \frac{6Q}{\pi^2}\sum_{k=1}^{\infty}\frac{\mu_0}{\mu_k+1}\left\{\frac{\nu}{\nu+\lambda} - e^{-\lambda t} - \frac{\lambda}{\mu_k}e^{-\lambda t}\left\{1 - \frac{\nu e^{-\mu_k t}}{\nu-\mu_k} - \left(\frac{\mu_k}{\nu+\lambda} - \frac{\mu_k}{\nu-\mu_k}\right)e^{-\nu t}\right\}\right\} \quad \textbf{(III- 6)}$$

La courbe III-17 est la résultante de la courbe du spectre de radioactivité corrigée par la courbe du taux d'acceptation du système d'acquisition qui dépend du taux de comptage. Cette correction est importante car la pente de la courbe est primordiale pour la déduction des coefficients μ_0 et ν.

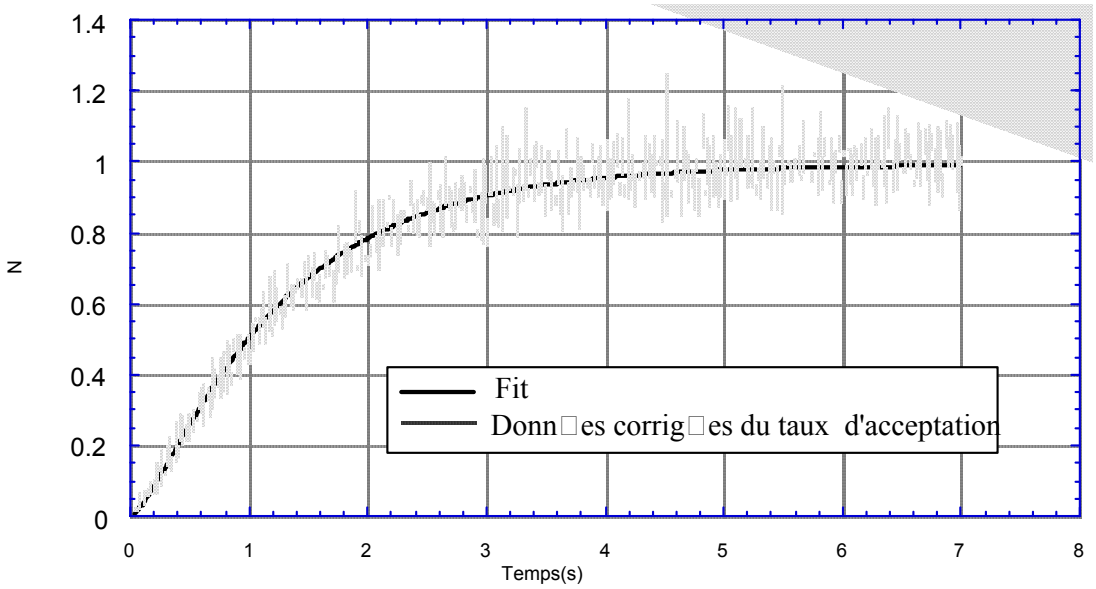


Fig. III- 17 – *Courbe de radioactivité (temps de monté) du noyau d'intérêt corrigé du taux d'acceptation et normalisé à 1. Le trait plein représente le meilleur accord obtenu pour la fonction $\xi_{diff\text{-}eff}$ (équation I-17).*

Le meilleur accord pour la formule III-6 et les coefficients μ_0 et ν est obtenu par la méthode des moindres carrés. Pour cela nous utilisons un programme basé sur la méthode "POWELL" utilisant les subroutines (du livre Numerical Recipes [Pre-88]) de minimisation et de maximisation d'une fonction à plusieurs variables.

III-5-2-2 Résultats expérimentaux

Le faisceau primaire est du ^{20}Ne d'énergie 95MeV/A et de puissance 400W. La puissance de chauffage annexe pendant l'expérience était de 1500W.

La simulation suivante avec le code GANIL permet d'estimer la distribution en température dans la cible.

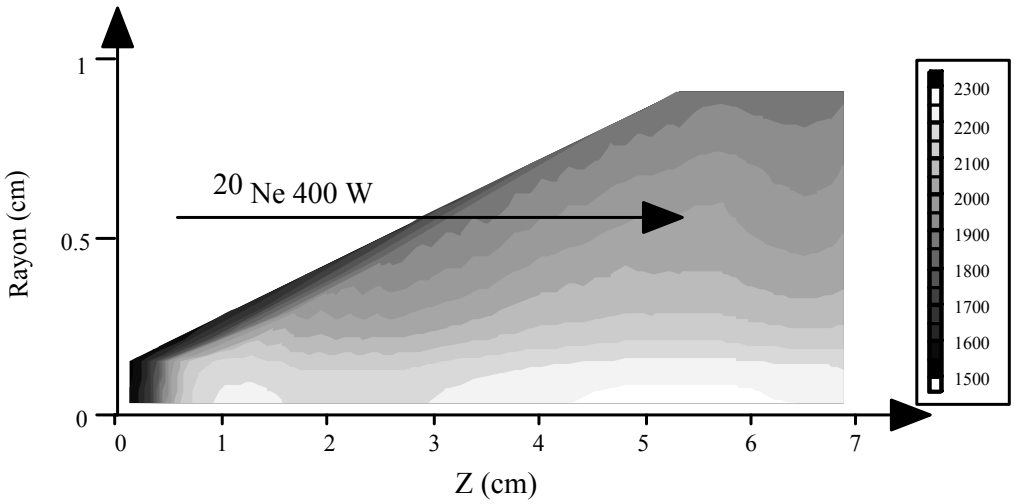


Fig. III- 18 – *Simulation avec le code GANIL de la cible irradiée par un faisceau primaire de ^{20}Ne de 400 W chauffée par l'axe avec une puissance de 1500 W. Les températures sont en Kelvin.*

Les résultats expérimentaux sur les mesures de temps de montée du ^{17}Ne sont présentés dans le tableau III-6.

T cible (K) (Fig.III-18)	ξ Diff (μ_0)	ξ Eff (ν)	ξ Diff-eff	χ^2 réduit
1900-2300	0.85 (±0.021) (22.6)	0.7 (±0.004) (13.45)	0.608 (±0.022)	0.42
1900-2300	0.89 (±0.011) (31.6)	0.727 (±0.053) (13.65)	0.65 (±0.055)	0.32
1900-2300	0.93 (±0.07) (69.8)	0.69 (±0.034) (13.0)	0.65 (±0.016)	0.356

Tab. III- 6 – *Résultats des mesures de temps de montée pour le ^{17}Ne ($T_{1/2}$ = 109.2 ms) avec une température au sein de la cible comprise entre 1900K et 2300K. Chaque ligne correspond à des runs réalisés dans les mêmes conditions de chauffage.*

Pour le ^{17}Ne (109.2ms), l'efficacité de diffusion effusion $\xi_{Diff\text{-}eff}$ extraite des mesures de temps de montée est de 60% se répartissant en une efficacité de diffusion ξ_{Diff} de 90% et une efficacité d'effusion ξ_{Eff} de 70 % avec une température au sein de la cible comprise entre 1900K et 2300K. On note un ν moyen de 13.4 s^{-1} soit un temps d'effusion de l'ordre de 75ms. Ce temps qui est caractéristique d'un temps de sortie, n'est pas négligeable au regard des périodes des noyaux d'intérêts. Il risque d'être néfaste pour l'effusion des éléments de court temps de vie hors de la cible.

Le néon est un gaz rare tout comme l'argon. Or il a toujours été supposé, une fois que l'atome est sorti du grain, que l'efficacité d'effusion était proche de 1 pour tous les gaz rares. D'après ces résultats, il semble donc qu'il faut prendre en compte ce temps d'effusion surtout pour les éléments de court temps de vie. Il pourrait expliquer le fait que l'on ne voit pas l'^{31}Ar car sa durée de vie est de 15 ms.

Pour confirmer cette hypothèse il faudrait refaire une expérience de temps de montée avec l'^{32}Ar dont son temps de vie est de 98 ms avec un carbone 1µm et comparer les résultats avec un carbone 4µm.

III-5-3 Taux de production des isotopes du néon riches en neutrons

La longueur de cette cible permet aussi de produire et d'arrêter les Néons riches en neutrons. En utilisant les données expérimentales, nous pouvons estimer avec le code SIGMA_SIRa, les taux de production des $^{24,25,26,27}Ne^{5+}$. Le faisceau primaire alors utilisé est un faisceau de ^{36}S à 77.5MeV/A. Les taux de production sont corrigés de l'efficacité de la ligne SIRa (transport et ionisation) ainsi que de l'efficacité de diffusion effusion estimée à partir des données du tableau III-6. Les résultats, normalisés à un faisceau primaire de 1µAp de ^{36}S, sont présentés dans le tableau III-7.

^{24}Ne $^{5+}$ ($T_{1/2}$=3 min)	^{25}Ne $^{5+}$ ($T_{1/2}$=602 ms)	^{26}Ne $^{5+}$ ($T_{1/2}$=197 ms)	^{27}Ne $^{5+}$ ($T_{1/2}$=32 ms)
4.8 10^7	1.2 10^7	2.0 10^6	1.8 10^4

Tab. III- 7 – *Taux de production des Néons riches en neutrons estimés avec le code SIGMA_SIRa et corrigés de l'efficacité de la ligne SIRa (efficacité de transport et d'ionisation) et de l'efficacité de diffusion effusion. Le faisceau primaire utilisé est un faisceau de ^{36}S à 77.5MeV/A normalisé à 1µAp (équivalent à 2790 W).*

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons fiabilisé la cible pour la production des isotopes de l'argon et du néons radioactifs tout en respectant le cahier des charges.

Nous avons confirmé l'hypothèse d'une amélioration de l'efficacité de diffusion effusion par diminution de la taille des grains de carbone. La différence entre ce qui avait été prédit par

L. Maunoury et les résultats expérimentaux n'a pas été complètement élucidée. De plus, un nouveau problème a été soulevé : les temps d'effusion hors de la cible ne sont pas négligeables comme cela avait été supposé auparavant pour tous les gaz rares et surtout avec des isotopes dont le temps de vie est court.

Une étude plus approfondie reste à faire sur les différents mécanismes de diffusion (diffusion en volume et diffusion intergranulaire) et les mécanismes d'effusion (temps de collage et parcours des atomes pour arriver jusqu'à la chambre d'ionisation de la source) au sein des cibles en carbone polycristallin.

Des expériences seraient nécessaires pour confirmer ces hypothèses :

- une expérience de mesure de l'efficacité de diffusion effusion, par <u>méthode directe</u> avec une température homogène dans la cible de L. Maunoury : cible associée à un chauffage externe mais avec un carbone 1µm, est nécessaire si l'on veut comprendre au mieux les problèmes de diffusion dans les cibles prévues pour le projet SPIRAL. Une étude complémentaire au microscope électronique permettrait d'observer les différents carbones.
- une expérience de mesure de l'efficacité de diffusion effusion par <u>la méthode des temps de montée</u> avec des éléments dont la période est de plus en plus courte, permettrait de connaître qu'elles sont les valeurs de temps d'effusion dans les cibles pour les éléments ayant un court temps de vie et ceci dans les carbones 1 et 4µm. Dans l'hypothèse d'un mouvement brownien où un atome parcourt moins de chemin dans le carbone 4µm, il serait intéressant de voir dans quel mesure on gagne en efficacité de diffusion avec le carbone 1µm par rapport au 4µm et comparé à l'effusion pour des éléments de courte période dans les deux types de carbones.

Ce dernier problème est primordial et doit être connu afin d'appréhender le développement de futures cibles pour la production d'éléments dont les temps de vie sont critiques ($T_{1/2}$< 50ms) telle l'^{31}Ar (15ms) ou le ^{11}Li (8.7ms). De plus pour de tels temps de vie, l'influence du temps de présence dans la source (temps pris en compte au moment où l'atome rentre dans la source jusqu'au moment où il en sort ionisé) aussi petit soit il, peut jouer un rôle.

Cette cible n'est pas adaptée pour la production d'isotopes de l'hélium radioactifs en raison du parcours important de ces atomes légers dans le carbone. Une cible plus appropriée a été développée dans le cadre de cette thèse et sera présentée dans le chapitre suivant. Nous présenterons la mise en œuvre de cette nouvelle cible, en respectant le même cahier des charges ainsi que les hypothèses émises dans ce chapitre (sur la diffusion et l'effusion) et celles émises dans le chapitre I (sur le choix des matériaux).

CHAPITRE IV

La cible pour la production d'isotopes d'hélium radioactifs

Dans ce chapitre, nous allons développer une nouvelle cible dédiée à la production d'isotopes d'hélium radioactifs ^{6,8}He. Les isotopes radioactifs de l'Hélium étant très légers, ils peuvent êtres produits, à la fois par la fragmentation du projectile et par la fragmentation de la cible de Carbone. Le fait d'utiliser ces deux processus entraîne un gain dans les taux de production.

L'hélium a un parcours d'arrêt très grand (de l'ordre de 60mm) dans le carbone, les noyaux d'héliums produits par fragmentation du projectile vont s'arrêter dans une zone froide à l'arrière de la cible loin de la zone chauffée par le dépôt de puissance du faisceau primaire.

La cible sera alors divisée en deux parties :

- <u>une première partie dite cible de production</u> auto-chauffée par le faisceau primaire. Cette cible a deux rôles : d'une part, la production des isotopes d'Hélium par le processus de fragmentation du projectile et de la cible, d'autre part un rôle de diffuseur des isotopes d'Hélium produits par fragmentation de la cible.
- <u>une deuxième partie dite cible de diffusion</u>, où vont s'arrêter les noyaux d'Hélium provenant de la fragmentation du projectile. Cette cible est chauffée à l'aide d'un chauffage annexe par l'axe.

L'avantage d'avoir deux parties permet de découpler thermiquement les deux cibles et donc de gérer au mieux les températures au sein de chacune d'elles.

Pour la production d'isotopes d'hélium radioactifs ^{6,8}He, nous avons le choix entre deux matériaux : le carbure de bore, B_4C, avec lequel nous pouvons espérer une amélioration des taux de production comme nous l'avons vu dans le chapitre I (Tableau I-7) et le carbone qui

reste le matériau standard au GANIL pour les cibles de production. Nous choisirons un carbone 1µm de POCO Graphite.

D'un point de vue faisceau primaire, nous avons le choix entre un faisceau de ^{13}C ou un faisceau de ^{12}C. L'énergie maximale pour le faisceau de ^{13}C est de 75MeV/A soit une intensité de 2.05µAp à 2kW. Pour comparer avec une même intensité de 2.05µAp et une même puissance de 2 kW, il faut un faisceau de ^{12}C à 81MeV/A. Les résultats des taux de production d'$^{6,8}He$ attendus avec le code SIGMA_SIRa sont présentés dans le tableau IV-1.

	Faisceau primaire à 2kW	**Fragmentation de la cible**	**Fragmentation du projectile**	**Total**	**$^{13}C/^{12}C$**
^{6}He	**^{12}C à 81MeV/A**	$6.30\ 10^{9}$	$6.30\ 10^{9}$	$1.26\ 10^{10}$	0%
	^{13}C à 75MeV/A	$6.12\ 10^{9}$	$6.65\ 10^{9}$	$1.27\ 10^{10}$	
^{8}He	**^{12}C à 81MeV/A**	$1.97\ 10^{7}$	$1.97\ 10^{7}$	$3.94\ 10^{7}$	+ 40%
	^{13}C à 75MeV/A	$1.91\ 10^{6}$	$3.63\ 10^{7}$	$5.54\ 10^{7}$	

Tab. IV- 1 – *Taux de production d'isotopes d'hélium dans la cible de carbone avec un faisceau de ^{12}C et un faisceau de ^{13}C de même intensité, calculés avec le code SIGMA_SIRa.*

Un faisceau de ^{13}C à 75 MeV/A semble être le choix optimal pour la production d'^{8}He par fragmentation du projectile, sans qu'il n'y ait de perte sur la production de l'^{6}He. De plus, ce faisceau a une énergie plus faible par rapport au ^{12}C, les parcours des éléments produits par fragmentation du projectile seront plus courts. La cible de diffusion en sera d'autant plus petite. La longueur de la cible de production est imposée par le parcours d'arrêt du ^{13}C à 75 MeV/A dans le carbone 1µm et dans le B_4C, de même la longueur de la cible de diffusion est imposée d'une part, par le parcours des ^{8}He à 75 MeV/A dans le carbone 1µm et d'autre part, par les dimensions de la "boite cible" refroidie, définie pour la cible précédente (figure III-1) que nous avons décidé de conserver.

Les isotopes des ^{6}He et ^{8}He ont des temps de vie $T_{1/2}$ respectivement de 806.7ms et 119ms. Ces isotopes sont particulièrement intéressants puisque ce sont des gaz rares de petite taille (Z=2), on s'attend au premier ordre à ce qu'ils diffusent facilement. Cependant, leur durée de vie est courte, l'effusion peut jouer un rôle important pour l'^{8}He comme pour le ^{17}Ne (§III-5-2-2).

Un premier test de production d'^{6}He et ^{8}He a été réalisé par N. Lecesne et al. [Lec-97 a] avec une cible non optimisée pour arrêter tous les $^{6,8}He$, produits par fragmentation du projectile. Les résultats des taux de production seront reportés dans ce chapitre pour comparaison.

Les différentes étapes de ce chapitre sont les suivantes. Une mesure de diffusion d'^{6}He dans la cible dédiée à la production de faisceaux d'Argon et de Néon va nous permettre de définir dans quelle plage en température la diffusion est optimisée. Un premier test a été réalisé avec une cible en Carbure de Bore (B_4C) pour mesurer les taux de production et les

efficacités de diffusion. À partir de ces résultats, une nouvelle cible a été complètement étudiée. Une étude thermique va être réalisée dans ce chapitre, en particulier :

- des abaques en température seront définis grâce aux simulations thermiques réalisées avec le code GANIL et le logiciel SYSTUS.
- une étude transitoire donnera une première indication des temps de réponse lors du chauffage de la cible.
- des tests sur la tenue thermique ont été réalisés hors-ligne sur un banc de tests.

Finalement, les tests en ligne réalisés sur SIRa avec un faisceau primaire à 400W nous permettrons d'extrapoler les taux de production attendus pour SPIRAL à 2kW (annexe C).

Une étude sur les différents contrôles non destructifs est exposée à la fin de ce chapitre, il nous a amené à définir des tests pour les cibles de production de SPIRAL.

IV-1 Diffusion de l'^{6}He dans le carbone 1µm

En première approche et afin d'avoir une idée sur les valeurs de diffusion de l'^{6}He dans le carbone 1µm, nous avons fait des mesures de diffusion effusion de l'^{6}He dans la cible prévue pour la production des isotopes de l'argon et du néon (à savoir des lamelles de 0.5mm espacées de 0.8mm et un carbone de grain 1µm). Pour cela nous avons utilisé la méthode directe avec l'installation SISSI dans les mêmes conditions de mesure présentées dans le chapitre précédent (§III-3-1).

L'efficacité de diffusion effusion de l'^{6}He mesurée dans la cible est reportée en fonction de la température dans la figure IV-1.

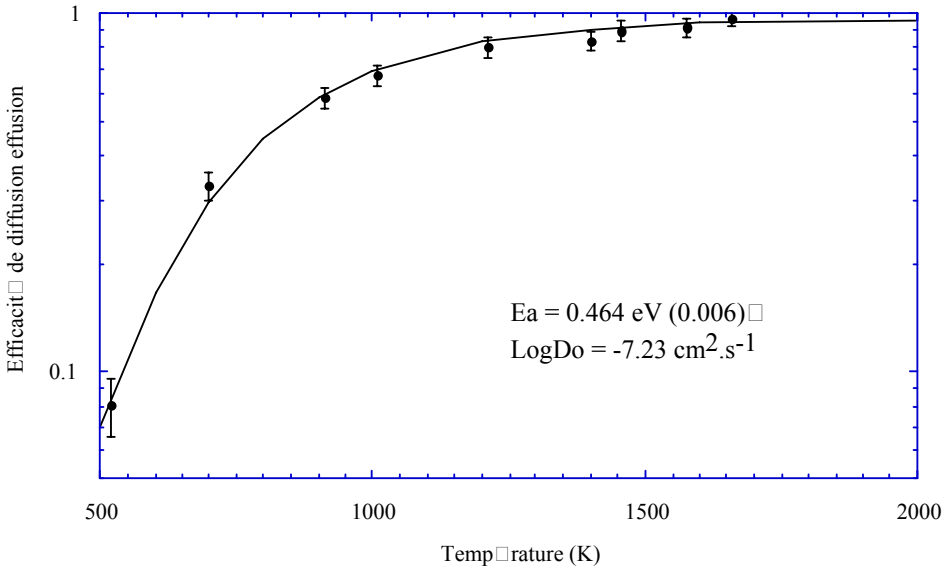


Fig. IV - 1 – *Efficacité de diffusion effusion de l'^{6}He en fonction de la température dans la cible pour la production de faisceaux d'Argon et de Néon (épaisseur des lamelles 0.5mm espacées de 0.8mm) avec un carbone 1µm. Les points correspondent aux données expérimentales. Les coefficients d'Arrhenius déduits de ces points y sont indiqués ainsi que le fit correspondant (trait plein).*

Les valeurs des deux coefficients extraits des données expérimentales y sont aussi indiquées avec une efficacité d'effusion dans ce cas de 1. Ces valeurs de coefficients $LogD_0$ et E_a sont à prendre de nouveau avec précaution car nous sommes dans le cas d'une cible avec un système de chauffage par l'axe et dont les températures au sein de celle-ci sont très hétérogènes comme nous l'avons expliqué dans le chapitre III.

Pour l'^{6}He, contrairement à l'^{35}Ar, l'efficacité de diffusion pour l'Hélium est supérieure à 80 % dès que la température de la cible atteint 1200K, et ce pour une efficacité d'effusion de 1. On peut donc se limiter pour l'Hélium, d'un point de vue thermique, à des puissances de chauffage sur l'axe plus faible. Les problèmes d'évaporation du carbone seront ainsi minimisés et le chauffage d'une cible plus grande ne posera pas de problème quant aux possibilités des alimentations de chauffage actuelles du GANIL.

IV-2 Utilisation du carbure de Bore B_4C

IV-2-1 Conception de la cible

Dans le chapitre I, il a été montré que les taux de production d'Hélium sont améliorés par l'utilisation du Carbure de Bore comme matériau pour la cible de production.

Ayant à disposition des rondelles de B_4C d'un diamètre de 25 mm percées d'un trou de diamètre Φ=7 mm et d'épaisseur 4mm, nous avons adapté une cible pour être en mesure d'estimer des taux de production dans ce matériau. Un système de chauffage par l'axe, autour duquel on enfile les rondelles de B_4C, a été développé.

La configuration choisie fut la suivante :

- une rondelle de 1.5mm de carbone 4µm à l'avant de la cible.
- une rondelle de 4mm de B4C.
- un bloc de 55mm de carbone 1µm pour étudier la diffusion dans un bloc par rapport aux lamelles. L'expérience concernant la diffusion du ^{17}Ne dans des lamelles, décrite dans le chapitre III, n'avait pas encore été réalisée.

La configuration du chauffage, avec un axe indépendant par rapport aux lamelles de B_4C, nous a amené à utiliser une cible de diffusion sous forme d'un bloc de carbone. Celui-ci est enfilé sur l'axe de façon à ce qu'il ne le touche qu'à l'arrière de la cible de diffusion en minimisant les contacts électriques par un système de crantage de l'axe. Ainsi la puissance de chauffage est appliquée à l'axe seul. La section de l'axe a été définie telle qu'elle soit identique à celles des cibles dédiées à la production d'Argons et de Néons d'où l'utilisation d'un axe creux. Ainsi, pour une même longueur de l'axe, les puissances de chauffage à fournir sont du même ordre de grandeur.

Le faisceau primaire de ^{13}C est arrêté à 3.6 mm dans le bloc de carbone 1µm après la lamelle en B_4C. Le B_4C résistant moins aux chocs thermiques que le carbone [B4C-1], il était inconcevable d'arrêter le faisceau primaire dans ce matériau mais après celui-ci, dans du

carbone qui a une plus grande résistance thermique. Le parcours de l'^{8}He produit à 75 MeV/A impose un bloc en carbone 1µm d'une longueur de 55mm pour la partie diffusion de la cible.

Cette cible est configurée pour tenir en dimension dans la "boite cible" (figure IV-2) et est couplée à la source Nanogan III.

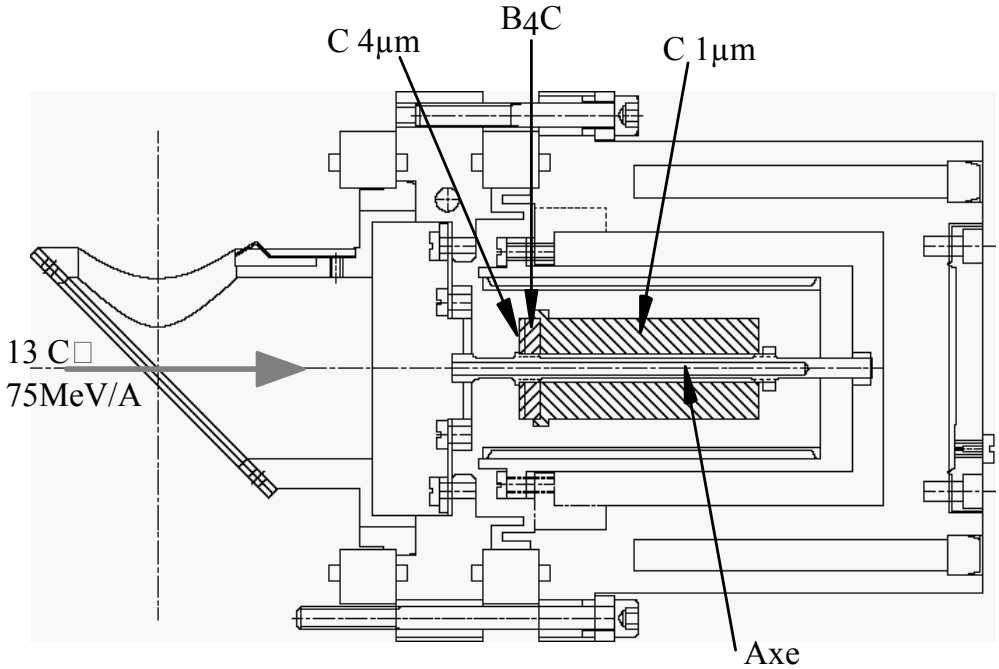


Fig. IV - 2 – *Schéma de la cible dite "B_4C"et de son environnement. La même boite cible que celle pour la production de faisceaux d'Argon et de Néon est utilisée (chap. III).*

Avec cet ensemble, nous avons réalisé deux types d'expérience :

- des mesures de l'efficacité de diffusion effusion de l'^{6}He dans le carbone et dans le B_4C par la méthode directe avec un faisceau secondaire d'^{6}He fourni par l'équipement SISSI comme décrite dans le chapitre III.
- des mesures de taux de production des ^{6,8}He avec un faisceau primaire de ^{13}C à une puissance de 400W. Cette puissance de 400W est équivalente à la puissance maximale disponible à l'heure actuelle dans les aires expérimentales du GANIL.

IV-2-2 Diffusion dans le B_4C et dans un bloc de carbone

Nous avons mesuré l'efficacité de diffusion effusion de l'^{6}He ($T_{1/2}$ = 806ms) dans le carbure de Bore. Profitant de la configuration de la cible, nous avons mesuré de la même manière l'efficacité de diffusion effusion de l'^{6}He à différentes profondeurs dans un bloc de carbone pour explorer l'influence de l'épaisseur des lamelles dans les processus d'effusion.

Dans les expériences de diffusion, nous utilisons un faisceau radioactif d'^{6}He fourni par l'installation SISSI de GANIL. Or ce faisceau, de très faible intensité, est insuffisant pour chauffer la cible. Le chauffage par l'axe va nous permettre d'atteindre les températures nécessaires, soit au minimum 1200 K dans la cible. Des simulations SYSTUS ont permis d'évaluer la puissance nécessaire à appliquer sur l'axe.

Sur le graphe IV-3 sont représentées les températures minimales et maximales de la cible de diffusion (bloc) en carbone 1µm ainsi que la température de la cible de production en B_4C et la température maximale sur l'axe, en fonction de la puissance appliquée au chauffage ohmique sans puissance faisceau. Les distributions de température sont présentées en annexe E.

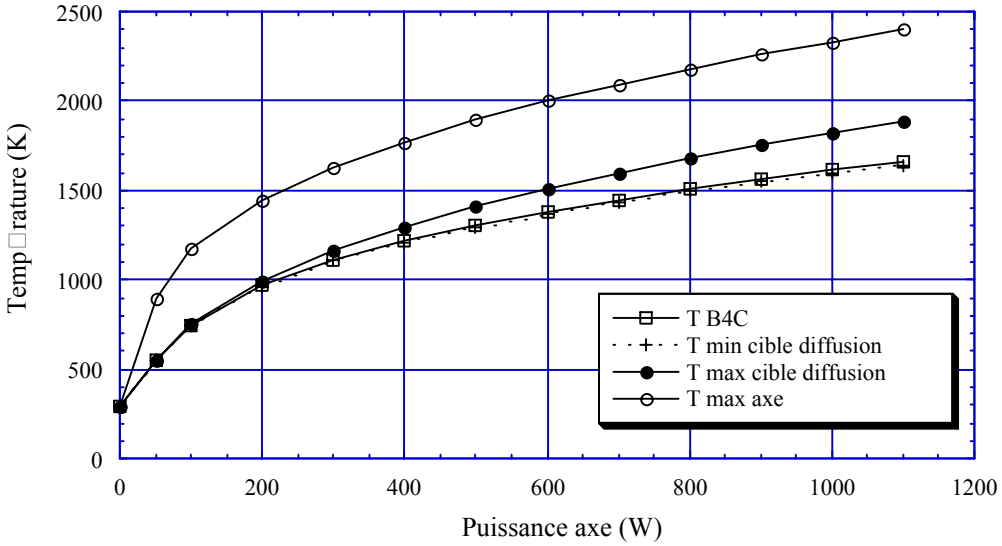


Fig. IV - 3 – *Résultats des simulations SYSTUS. Température des cibles en fonction de la puissance injectée sur l'axe sans puissance faisceau.*

Pour obtenir une température supérieure à 1200K sur les deux cibles (B_4C et diffusion), une puissance de chauffage annexe de 400 W est nécessaire et suffisante. Pendant les mesures de diffusion, la plage de température utilisée va de 1000K à 1700K dans les cibles en B_4C et de diffusion soit une puissance maximale sur l'axe de 1.1kW. Cette valeur est limitée par la température maximale de l'axe qui atteint 2400 K, température maximale pour le carbone sans qu'il y ai de rupture rapide de l'axe à cause d'un fort taux d'évaporation.

Le principe de la mesure de l'efficacité de diffusion effusion est la même que celle présentée dans le chapitre précédent (§III-3-1).

La profondeur maximale d'implantation choisie de 5 mm dans le bloc de carbone est limitée par l'énergie maximale disponible avec le faisceau SISSI d'^{6}He pour avoir des intensités suffisantes. Nous avons aussi choisi une profondeur intermédiaire de 3 mm dans le bloc de carbone.

L'identification des noyaux arrivant sur la cible et produits par fragmentation d'un faisceau primaire de ^{13}C dans une cible mince de carbone sur SISSI, est réalisée grâce à un plastique insérable devant la cible B_4C sur le banc de tests SIRa (figure III-9). Un détecteur galette à micro canaux escamotable en sortie du spectromètre alpha du GANIL (figure I-20) permet de faire une mesure de temps de vol des noyaux fournis par SISSI, facilitant ainsi l'identification des noyaux d'intérêts.

La figure IV-4 représente les matrices d'identification sur SIRa pour deux réglages machine : le premier pour une implantation du faisceau à 3 mm et le second, pour une

implantation à 5 mm dans le bloc de diffusion en carbone. L'identification des noyaux est alors sans ambiguïté.

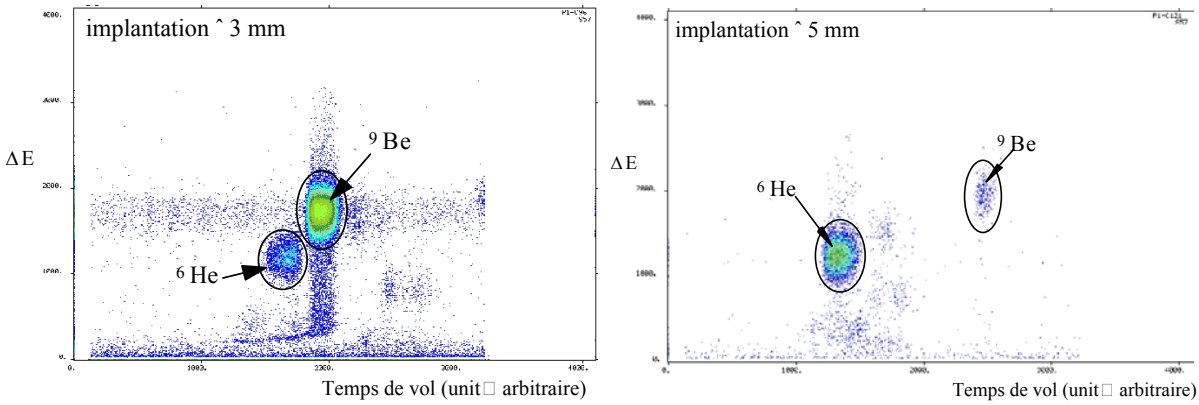


Fig. IV - 4 – *Matrice d'identification des noyaux produits par réaction d'un faisceau de ^{13}C sur une cible SISSI, mesurée sur SIRa avant implantation dans la cible. L'axe des x correspond à la mesure du temps de vol entre la sortie du spectromètre a et la cible SIRa. L'axe des y est la perte d'énergie des noyaux dans un scintillateur plastique insérable devant la cible.*

IV-2-2-1 Diffusion dans un bloc de carbone

Afin de déduire les coefficients d'Arrhenius, nous avons mesuré l'efficacité de diffusion effusion pour différentes températures de cible, de 1000K à 1700K. Ces résultats sont présentés dans la figure IV-5.

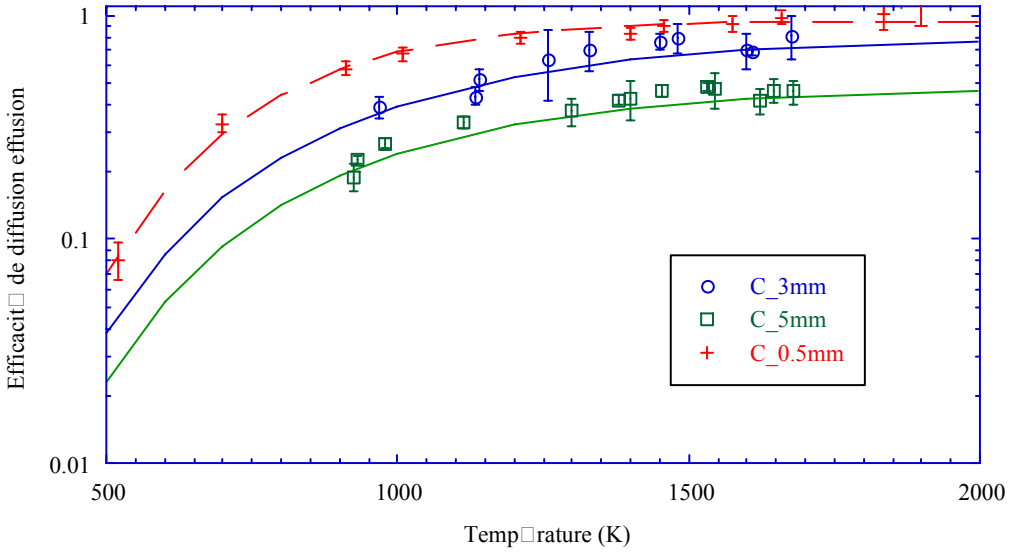


Fig. IV - 5 -*Efficacité de diffusion effusion de l'^{6}He dans le carbone 1µm en fonction de la température de la cible de diffusion pour une implantation à 3 et 5 mm. Les résultats de diffusion effusion dans la cible pour la production des faisceaux d'Argon et de Néon, dont l'épaisseur des lamelles est 0.5 mm, sont aussi reportés dans ce graphe. Les valeurs expérimentales sont représentées par les points. Les lignes correspondent aux courbes des efficacités de diffusion effusion calculées à partir des coefficients d'Arrhenius extraits des mesures expérimentales.*

À partir des valeurs des efficacités de diffusion effusion mesurées, on peut extraire les coefficients d'Arrhenius de diffusion ainsi que l'efficacité d'effusion de l'^{6}He pour différentes épaisseurs de carbone.

Ces résultats sont résumés dans le tableau IV-2. Nous y avons aussi reporté les résultats expérimentaux de l'efficacité de diffusion effusion de l'^{6}He dans la cible pour la production d'Argons et de Néons dont les lamelles ont une épaisseur de 0.5mm (résultats de la figure IV-1).

Épaisseur de C	**E_a (eV)**	**Log D_o ($cm^2.s^{-1}$)**	**ξ_{eff} (τ)**	**$\chi^2_{réduit}$**
0.5 mm	0.464 (±0.006)	-7.23 (±0.21)	1.0	1.92
3 mm	0.433 (±0.008)	-7.99 (±0.18)	0.9 (325ms)	0.56
5 mm	0.433 (±0.008)	-7.99 (±0.18)	0.55 (950ms)	0.63

Tab. IV- 2 – *Coefficients d'Arrhenius et efficacité d'effusion de l'^{6}He pour les différentes implantations 3 et 5 mm dans le bloc de carbone (grain de 1µm) de 55mm d'épaisseur (cible de diffusion) et pour la cible d'Argons (0.5mm d'épaisseur de lamelle).*

Les coefficients d'Arrhenius ne dépendent que du couple atome diffusé - atome cible, comme nous l'avons explicités dans le chapitre I (§ I-2-2). Ainsi pour deux cibles différentes (une cible pour la production d'Argons avec une épaisseur de lamelle de 0.5mm et une cible en B_4C+C avec des implantations différentes à 3 et 5mm dans un bloc), nous obtenons des résultats différents mais relativement proches. Pour les deux implantations, à 3 et 5mm dans la même cible (cible B_4C+C), des coefficients d'Arrhenius similaires sont extraits des points expérimentaux, montrant que la géométrie de la cible est importante pour l'extraction des résultats. Pour cette configuration de cible dite "B_4C", les gradients de température ($\Delta T<60K$) sont beaucoup plus faibles qu'avec la cible dédiée à la production d'Argons ($\Delta T=300K$). Les coefficients d'Arrhenius semblent donc plus proche de la réalité.

Ainsi, pour la cible dédiée aux isotopes d'Argon et de Néon, pour les mesures de diffusion, le gradient de température peut certainement de la même façon impliquer une différence sur l'efficacité de diffusion effusion de l'^{35}Ar (figure III-10) comme nous l'avons vu dans le chapitre III (§III-3-2-5).

Lorsque l'on implante les ions radioactifs à des épaisseurs de plus en plus profondes, l'efficacité d'effusion baisse drastiquement pour une implantation de 5mm dans un bloc alors qu'elle est encore élevée (0.9) pour une implantation à 3mm de profondeur.

La variation de cette efficacité entre une implantation à 3 mm et une autre à 5mm est uniquement due au changement de profondeur d'implantation dans la cible car toute la configuration de la cible est restée inchangée lors des mesures : même principe de chauffage par l'axe, même container, même "boîte cible" et même source. L'épaisseur des lamelles est une notion importante à prendre en compte dans les problèmes d'effusion. Les isotopes ^{6,8}He

implantés à 5mm auront plus de chemin à parcourir dans la cible de diffusion entre les grains de carbone, ils auront donc plus de chance de se transformer par décroissance radioactive avant de sortir si leur période est courte.

Pour l'implantation à 5 mm dans le bloc de carbone 1µm, on obtient une efficacité d'effusion de 0.55. En reprenant la formule de l'efficacité d'effusion ξ_{eff} (I-16), on déduit alors un temps d'effusion $\tau_{eff}=1/\nu$ de 950 ms. Ce temps trop long, caractéristique d'un temps de sortie de la cible, sera donc néfaste pour les isotopes de court temps de vie comme nous l'avons déjà explicité dans le chapitre précédent pour le ^{17}Ne ($T_{1/2}$=109.2ms). Pour y remédier il faudra utiliser des cibles ayant des lamelles plus fines (épaisseur<1 mm).

Ces résultats montrent cependant que, pour l'^{6}He, entre des lamelles de 0.5mm et 3mm d'épaisseur, les pertes sont minimes (figure IV-5) car nous restons avec des temps d'effusions inférieurs à la période de l'^{6}He (τ_{3mm}=325ms contre $T_{1/2}$=806.6ms).

Cette solution d'avoir des lamelles plus fines n'est pourtant pas toujours possible lorsque les parcours d'arrêt des noyaux radioactifs d'intérêt dans les cibles sont importants et que l'espace disponible dans la "boîte cible" refroidie des ensembles cible source est limité. De plus, lors de la fabrication des cibles, un espace minimum de 0.5mm entre les lamelles est nécessaire pour le passage de l'outil d'usinage.

Il faut alors faire un compromis entre l'épaisseur des lamelles et le nombre de lamelles pour les cibles de diffusion. Si l'on veut arrêter tous les noyaux radioactifs dans la cible, il faut avoir des lamelles épaisses au risque de perdre par effusion. Si l'on veut limiter cette perte par effusion, il faut mettre moins de lamelles au risque de perdre les atomes radioactifs par collage à l'arrière de la "boîte cible" qui est refroidie.

L. Maunoury [Mau-98] avait observé un comportement intéressant : les coefficients d'Arrhenius pour les gaz rares (néon, argon, krypton) diffusant dans du graphite dépendent de la taille de l'atome et donc sont proportionnels à Z.

Nous avons ainsi reporté dans la figure IV-6, les coefficients d'Arrhenius obtenus par L. Maunoury ainsi que ceux de l'^{6}He. Le comportement de quasi-linéarité est ainsi confirmé. Pour des raisons d'homogénéité de gradient de température au sein de la cible, les valeurs reportées sont celles de l'^{6}He implanté dans le bloc de carbone de la cible B_4C+C.

Ceci montre bien l'importance d'avoir une distribution de température homogène dans la cible pour ne pas fausser les mesures de diffusion.

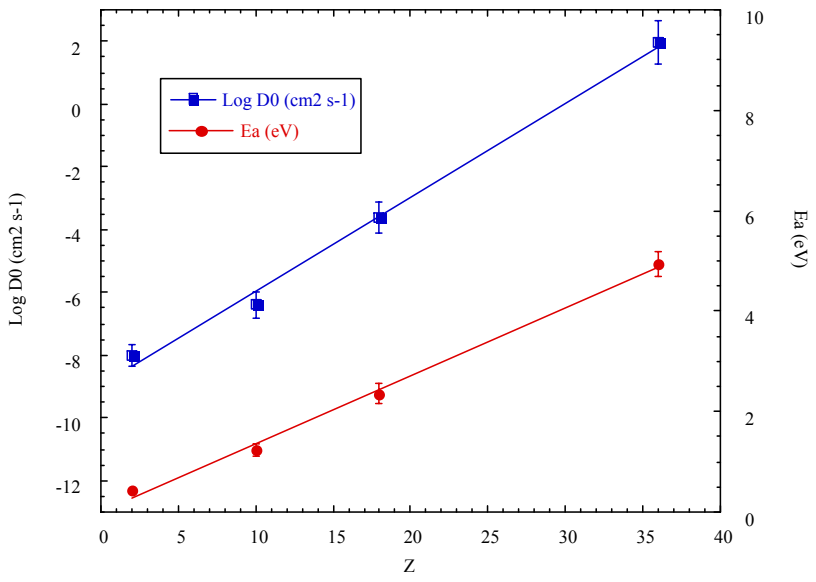


Fig. IV - 6 – *Coefficients d'Arrhenius des différents gaz rares diffusants dans du carbone graphite.*

IV-2-2-2 Diffusion dans le B_4C

L'efficacité de diffusion effusion de l'^{6}He dans la lamelle de B_4C de 4mm d'épaisseur est reportée dans la figure IV-7, en fonction de la température.

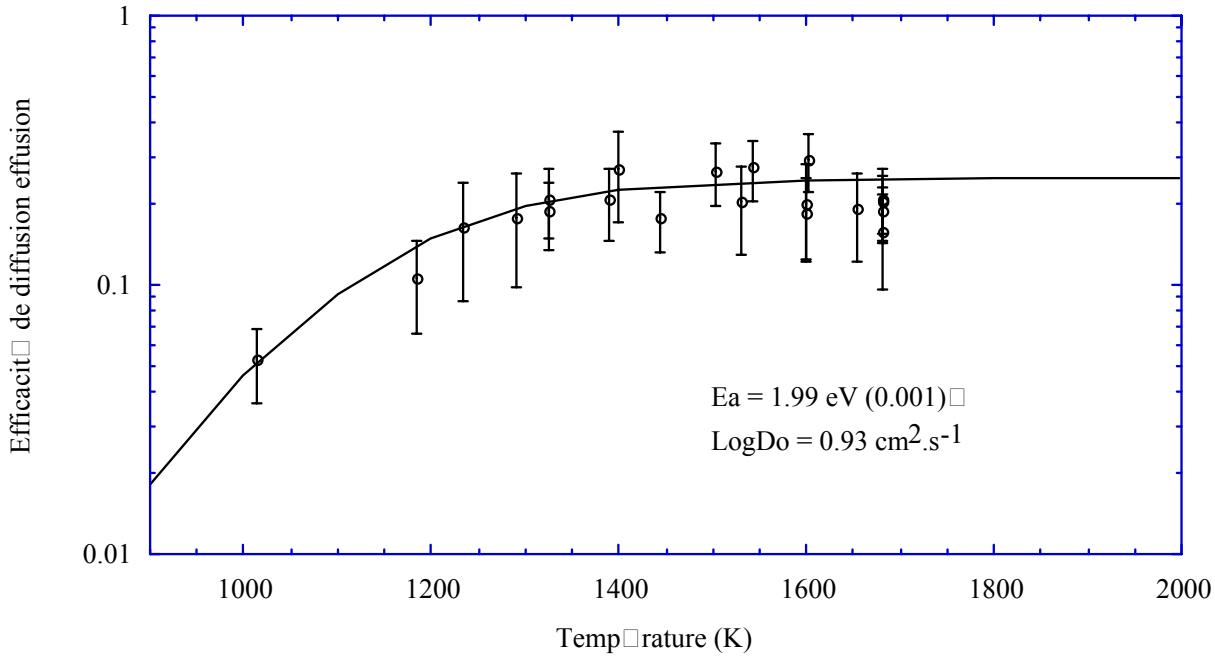


Fig. IV - 7 -*Efficacité de diffusion effusion de l'^{6}He dans le carbure de bore B_4C en fonction de la température. Les points correspondent aux données expérimentales. Les coefficients d'Arrhenius déduits de ces points y sont indiqués ainsi que le fit correspondant (trait plein).*

À partir des données expérimentales, nous avons extrait les coefficients d'Arrhenius pour la diffusion de l'^{6}He dans du carbure de bore. Les résultats sont reportés dans le tableau IV-3.

	E_a (eV)	Log D_o ($cm^2.s^{-1}$)	ξ_{eff}	$\chi^2_{réduit}$
B_4C	1.99 (±0.001)	0.93 (±0.001)	0.21	0.12

Tab. IV- 3 – *Coefficients d'Arrhenius et efficacité d'effusion de l'^{6}He dans une lamelle de 4mm de B_4C.*

Nous mesurons une efficacité d'effusion de 21 % pour une lamelle de 4mm d'épaisseur. Cette valeur est inférieure à l'efficacité d'effusion (55 %) dans un bloc de Carbone de 55mm où l'on implante à 5mm.

Lors de l'irradiation neutronique d'un échantillon de B_4C, des atomes d'Hélium et de Lithium se forment par la réaction $^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$. En particulier, l'Hélium étant un gaz rare, il ne réagit chimiquement avec aucun atome du milieu et précipite sous forme de bulles dans le matériau. Ces bulles vont alors modifier le comportement du matériau. D. Simeone [Sim-99 a] a ainsi montré que les bulles d'Hélium restaient piégées dans le B_4C, même à des températures de recuit de l'ordre de 2000K. Quelle que soit la température au sein de l'échantillon, il a évalué que la quantité restante d'hélium dans les échantillons de 2mm d'épaisseur de B_4C après recuit, était de l'ordre de 90% (soit 10% seulement d'hélium qui sort du B_4C) [Sim-99 b]. Le temps de diffusion caractéristique mesuré pour qu'un atome d'Hélium atteigne une bulle est alors de l'ordre de 300 ms. Lorsque la bulle d'Hélium devient conséquente, il y a augmentation de volume et risque de fissures au sein du B_4C.

Ces résultats montrent que le carbure de bore n'est pas un choix judicieux pour la diffusion des atomes radioactifs et est en accord avec le fait que ce matériau est quasiment vitreux (porosité < 3 %).

De plus durant l'expérience, le B_4C n'a pas résisté aux chocs thermiques et la lamelle en B_4C s'est fissurée à plusieurs endroits.

IV-2-3 Les taux de production d'^{6,8}He avec la cible dite B_4C

Dans le cadre des mesures des taux de production, des simulations thermiques avec SYSTUS ont permis d'évaluer les températures au sein de la cible avec un faisceau primaire de 400 W et d'estimer quelle puissance supplémentaire il est nécessaire d'appliquer sur l'axe pour obtenir une température d'au moins 1200K sur la cible de diffusion.

Les résultats de ces simulations (Tab. IV-4 et annexe E) montrent que le faisceau de 400W suffit, sans ajout de chauffage ohmique pour que la cible de diffusion ait une température supérieure à 1300 K.

	Température minimale (K)	**Température maximale (K)**	**Température moyenne (K)**
Cible en B_4C	1888	1947	1920
Cible de diffusion	1330	2000	1950
Axe		1875	

Tab. IV- 4 – *Résultats de la distribution en température dans la cible dite B_4C (partie en B_4C et cible de diffusion en C) réalisée avec SYSTUS pour un faisceau primaire de 400 W de ^{13}C sans chauffage sur l'axe.*

Les mesures de taux de production durant l'expérience ont été effectuées avec un chauffage supplémentaire sur l'axe de 500 W. Les températures calculées équivalentes sont représentées dans le tableau IV-5.

	Température minimale (K)	**Température maximale (K)**	**Température moyenne (K)**
Cible en B_4C	2070	2170	2117
Cible de diffusion	1677	2260	2170
Axe		2400	

Tab. IV- 5 - *Résultats de la distribution en température dans la cible dite B_4C (partie en B_4C et cible de diffusion en C) réalisée avec SYSTUS pour un faisceau primaire de 400W de ^{13}C et 500 W de chauffage ohmique sur l'axe.*

La température, maximale sur l'axe, est de 2400K pour atteindre une valeur minimum de 1680K dans la cible de diffusion. Cette distribution limite les risques d'évaporation sur les zones les plus chaudes.

Les taux de production obtenus avec la cible dite B_4C (figure IV-2) sont reportés dans le tableau IV-6, ainsi que les taux obtenus par N. Lecesne et al [Lec-97 a] dans une cible décrite comme suit. La cible de forme cylindrique en carbone 4µm se décompose en trois parties. Une première lamelle de 5mm d'épaisseur suivie de 5 lamelles de 0.7mm d'épaisseur ralentissent le faisceau incident de ^{13}C à 75 MeV/A sans l'arrêter. Une série de 21 lamelles de 0.5mm d'épaisseur, constitue la zone d'arrêt du faisceau primaire et du faisceau radioactif d'Hélium. Une dernière partie en carbone pyrolytique à l'arrière de la cible permet d'arrêter le restant des isotopes d'Hélium radioactif.

Dans le tableau IV-6, nous avons reporté les estimations calculées avec le code SIGMA_SIRa en corrigeant les chiffres de production des efficacités de la ligne SIRa, c'est-à-dire 10 %.

	Taux normalisé à 1µAp de ^{13}C 75 MeV/A (975W)			
	Cible 4µm N. Lecesne		**Cible C+B_4C**	
	Mesuré	**Estimé (projectile)**	**Mesuré**	**Estimé**
$^{6}He^{1+}$ ($T_{1/2}$ = 806.7 ms)	1.44 (±0.07) 10^8	3.2 10^8	1 (±0.51) 10^8	2.6 10^8
$^{8}He^{1+}$ ($T_{1/2}$ = 119 ms)	5.05 (±0.25)10^5	1.7 10^6	9.33 (±0.26) 10^5	1.6 10^6
$^{8}He^{2+}$			6.21 (±0.54) 10^4	8.5 10^4

Tab. IV- 6 – *Taux de production obtenus dans la cible dite B_4C et comparés avec les résultats de N. Lecesne* [Lec-97_a] *mesurés avec une cible cylindrique à lamelles en Carbone 4µm, optimisée à 400 W. Ces résultats sont normalisés à 1µAp de ^{13}C (soit 975 W) et sont comparés aux estimations du code SIGMA_SIRa (fragmentation du projectile) corrigées des efficacités de SIRa (efficacité d'ionisation et de transport) (soit 10 %).*

En comparant les taux de production mesurés dans la cible dite B_4C lors de cette expérience avec ceux de N. Lecesne effectués dans la cible cylindrique avec un carbone 4µm, on observe un gain d'un facteur 2 sur l'^{8}He, par contre, nous perdons en production pour l'^{6}He, comme il a été prédit par les estimations avec SIGMA_SIRa (colonnes 3 et 5). Ce gain sur l'^{8}He est dû à la fragmentation du ^{13}C sur le Bore de la cible en B_4C dont la section efficace de production est plus importante que sur le carbone (Tab. I-7).

S'il est vrai que nous avons gagné en taux de production sur l'^{8}He, nous perdons la majeure partie des atomes par effusion (ξ_{eff}=21 % ; Tab. IV-3). Le fait que le B_4C ne soit pas résistant aux chocs thermiques va à l'encontre de la fiabilité des cibles pour des périodes de 15 jours sous faisceau. De plus, les cibles cassées entraînent des problèmes de radioprotection lors du démontage des ensembles.

Ces problèmes nous ont conduit à remettre en question l'utilisation d'un tel matériau et nous ont poussé à continuer dans la voie des cibles uniquement constituées de carbone pour SPIRAL.

IV-3 Cible en carbone

IV-3-1 Cahier des charges

Cette cible, liée à la source NANOGAN III, doit s'adapter à la boîte cible décrite dans le chapitre III (figure III-1).

La limitation d'espace à l'intérieur de la "boite cible" de l'ensemble cible source et le grand parcours des isotopes de l'Hélium dans le carbone impose le choix de lamelles plus

épaisses que pour la cible de production d'Argons et de Néons, ainsi nous avons fait le choix d'une épaisseur de lamelle **e = 1.5 mm**.

Comme nous l'avons exposé en introduction de ce chapitre, cette cible est composée de deux parties (une cible dite de production et une cible dite de diffusion), permettant de découpler thermiquement chaque partie.

Les dimensions de la cible de production sont imposées par le parcours d'arrêt du faisceau primaire dans le carbone : **soit 10.5 mm** pour un faisceau de ^{13}C à 75MeV/A. Pour répartir le pic de Bragg, la forme de cette cible est conique avec un angle de **± 20°**.

Quant à la cible de diffusion, la longueur est imposée par le parcours d'arrêt du noyau d'intérêt le plus lourd qui a l'énergie du faisceau primaire à savoir, l'^{8}He à 75MeV/A. Son parcours d'arrêt est de **58mm**.

On obtient alors un nombre total de 31 lamelles dans la cible de diffusion plus 4 lamelles supplémentaires à l'arrière. Ces lamelles supplémentaires ont un rôle de réflecteur thermique limitant le refroidissement des lamelles par rayonnement avec le bloc à l'arrière de la cible.

Il est nécessaire de connaître le cône d'émission des noyaux d'Hélium en sortie de la cible de production pour définir le diamètre de la cible de diffusion. Grâce au programme LISE, nous pouvons calculer cette dispersion angulaire.

L'énergie minimum pour que l'^{8}He sorte de la cible de production est de 35 MeV/A (en dessous de cette énergie, il sera arrêté dans la cible de production).

Le parcours d'arrêt de l'^{6}He à 75 MeV/A est de 43.51mm, ainsi l'énergie minimum qu'il faut pour que l'^{6}He, produit par fragmentation du projectile, sorte de la cible de production est de 40 MeV/A (en dessous de cette énergie, il sera arrêté dans la cible de production).

La dispersion angulaire aux énergies incidentes de 35, 40 et 75 MeV/A est présentée dans le tableau IV-7 pour l'^{6}He et l'^{8}He avec une largeur de faisceau à la base de 7mm ±3σ (soit 99.8 % du faisceau).

	35 MeV/A	**40MeV/A**	**75MeV/A**
^{6}He	--	2.37°	1.62°
^{8}He	1.97°	--	1.22°

Tab. IV- 7– *Dispersion angulaire de l'^{6}He et ^{8}He en sortie de la cible dite de production.*

La dispersion angulaire est très petite, même pour l'^{6}He à 40 MeV/A et ne représente qu'une valeur maximale de ± 2.37°. Un diamètre de 19mm pour la cible de diffusion identique au diamètre de la cible de production est suffisant.

Il n'est donc pas nécessaire d'augmenter le diamètre car il faudrait d'autant plus de puissance de chauffage sur l'axe pour avoir une température suffisante sur l'extrémité des lamelles.

	Cible de production en C	**Cible de diffusion en C**
Diamètre	19 mm	19 mm
Nombre de lamelles	15 dont 7 dans le cône	35 lamelles
Epaisseur des lamelles	1.5 mm	1.5 mm
Espace entre les lamelles	0.5 mm	0.5 mm

Tab. IV- 8 – *Dimensions des deux parties de la cible dédiée à la production de l'Héliums Radioactifs : production et diffusion.*

Au regard de toutes ces contraintes, la cible dédiée à la production des isotopes d'Hélium radioactifs composée uniquement de carbone a été définie comme présentée sur la figure IV-8 et dans le tableau IV-8.

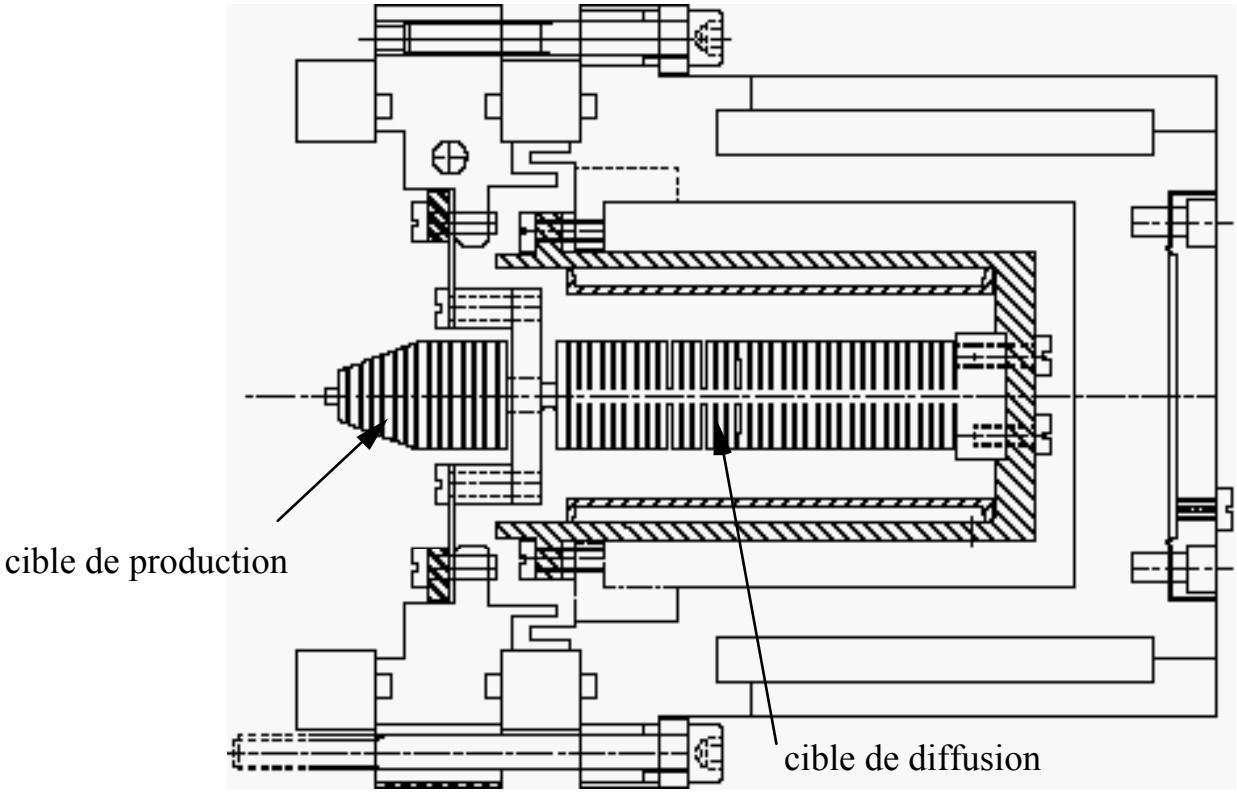


Fig. IV - 8 – *Schéma de la cible pour la production de l'Hélium radioactif en carbone dans son environnement. La boite cible est la même que celle pour la production des faisceaux d'Argon et de Néon.*

IV-3-2 Problèmes de thermique

Les deux parties de la cible, production et diffusion, sont complètement indépendantes d'un point de vue thermique. La cible de production est définie de telle sorte qu'elle est auto-

chauffée par le faisceau primaire alors que la cible de diffusion ne sera chauffée que par un système de chauffage ohmique à travers l'axe de celle-ci.

IV-3-2-1 Abaques de température

IV-3-2-1-1 Cible de production

Des simulations ont été réalisées avec le programme GANIL pour estimer la température dans la cible de production lors du dépôt de puissance du faisceau primaire de ^{13}C.

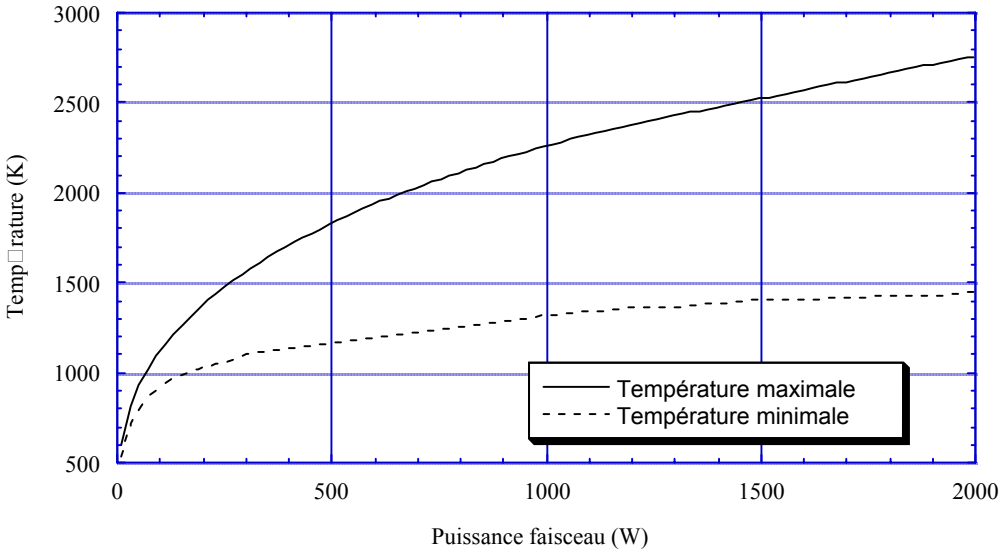


Fig. IV - 9 – *Abaque de température de la cible de production en fonction de la puissance du faisceau primaire de ^{13}C à 75 MeV/A.*

En première étape, la cible de production a été optimisée pour être auto-chauffée par un faisceau primaire de ^{13}C à 1.5kW, avec une température maximale dans les lamelles de 2500 K.

Grâce au projet THI, il est prévu d'avoir un faisceau de ^{13}C de puissance maximum 3kW. Deux solutions ont été proposées pour adapter ce faisceau à la cible de production.

La première solution serait de limiter la puissance déposée tout en gardant l'intensité du faisceau, c'est-à-dire le nombre de particules arrivant dans la cible. Il faut alors ralentir un faisceau primaire de ^{13}C de 3kW à une puissance de 1.5kW. Pour cela il faut remplacer la fenêtre de tantale (voir figure I-14 et I-15) à l'avant de la cible comme l'avait préconisé L. Maunoury et al. [Mau-98] par une fenêtre en carbone pyrolytique de 4.3 mm d'épaisseur orientée à 45° par rapport à l'axe faisceau.

Mais cette solution n'est pas viable, car on ne fait que déplacer le dépôt du pic de Bragg à l'avant de la cible. Il y a bien 1.5kW déposée dans la fenêtre en Carbone pyrolytique mais l'énergie déposée dans le pic de Bragg sera la même (figure IV-10) et la température maximale sera inchangée dans les lamelles.

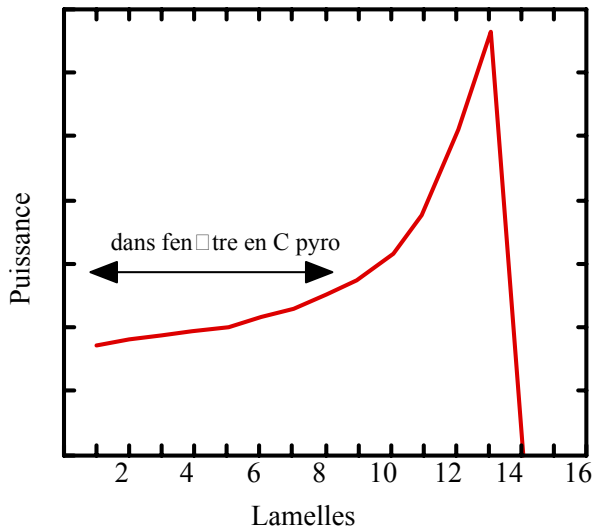


Fig. IV - 10 – *Dépôt de puissance du pic de Bragg. La première moitié de la puissance est déposée dans la fenêtre en Carbone pyrolytique mais il y a toujours autant de puissance déposée par le pic de Bragg dans la cible. Ce dépôt est simplement déplacé à l'avant de la cible.*

La deuxième solution est de redéfinir une cible complète pour que la cible reçoive la totalité des 3kW de faisceau incident et avoir un gain de 100 % par rapport à un faisceau à 1.5kW. Un diamètre plus large est nécessaire pour mieux dissiper les 3kW de puissance déposée par le faisceau primaire mais au risque d'alourdir la cible de production qui ne tient que par l'axe à l'arrière de cette partie. L'augmentation de ce diamètre entraîne alors une augmentation du diamètre de la cible de diffusion, mais ne devrait pas augmenter considérablement la puissance de chauffage à fournir.

Ce travail de R&D sera réalisé après une première expérience en ligne avec SPIRAL qui permettra de valider cette première cible à 1.5kW puis à 2kW. Nous validerons alors les codes de calculs dans les conditions réelles d'expérience longue durée sur SPIRAL.

L'inconvénient de la partie cible de production est qu'il n'y a aucun recours pour un chauffage annexe si la puissance du faisceau incident est insuffisante. Mais nous avons vu que l'efficacité de diffusion de l'Hélium est de 80 % dès que la température dépasse 1200K. Ainsi une puissance de faisceau minimum de 500W est suffisante pour avoir une température minimale dans la cible de 1200K.

IV-3-2-1-2 Cible de diffusion

Cette cible permet d'arrêter les éléments d'intérêts produits par fragmentation du projectile. La cible de diffusion ne voit pas le faisceau primaire qui est totalement arrêté dans la cible de production. Elle est uniquement chauffée à l'aide d'un système de chauffage ohmique à travers l'axe de la cible. Nous avons estimé les températures en fonction de la puissance injectée à travers l'axe à l'aide du logiciel SYSTUS (annexe E).

Ces résultats sont résumés sur le graphe IV-11.

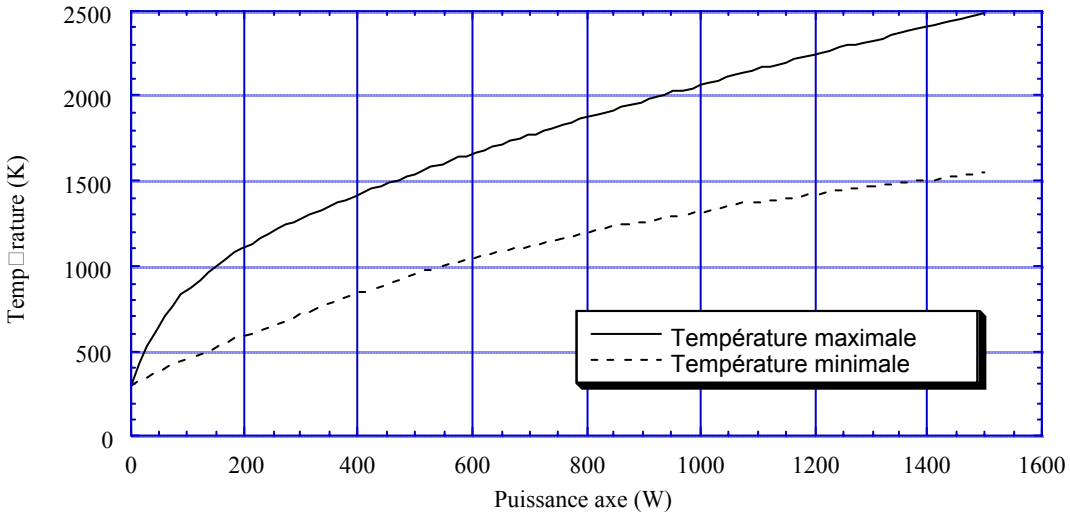


Fig. IV - 11 – *Abaque de température de la cible de diffusion en fonction de la puissance appliquée sur l'axe, réalisé avec le logiciel SYSTUS.*

Dans le cas de la cible de diffusion, une température minimum de 1200K est nécessaire et suffisante comme nous l'avons vu dans le § IV-1. Elle nécessite d'appliquer une puissance sur l'axe d'au moins 800W. Une puissance de 1200W peut être appliquée sans risque de détérioration de la cible puisque la température maximale sur l'axe est estimée à 2300K.

IV-3-2-2 Etude en transitoire

SYSTUS permet de faire des calculs en transitoire. On peut ainsi connaître l'évolution, au cours du temps, de la température de la cible lorsqu'il y a des variations de puissance.

Nous avons regardé l'évolution de la cible de diffusion lorsque l'on applique une puissance de chauffage sur l'axe brutalement, à l'instant t_0, nous passons d'une puissance de 100W à une puissance de 1200W et inversement.

Ces deux études ont été faites par simulation avec SYSTUS mais aussi hors-ligne sur un banc de chauffage. Le pyromètre utilisé ne mesure les températures de surface des matériaux que dans une plage de 1000°C à 2800°C, il est donc impossible de regarder la variation de température lors de la coupure du chauffage dès que la température baisse en deçà de 1000°C. Par contre, la résistivité du carbone varie en fonction de la température, elle diminue lorsque la température augmente. On peut donc mesurer cette évolution à travers une mesure de résistance de la cible.

La puissance minimum de 100W est due à l'impossibilité de l'électronique du banc de tests à mesurer des faibles valeurs de tension.

La température est mesurée et calculée sur l'extrémité de la première lamelle.

Les résultats sont reportés sur la figure IV-12.

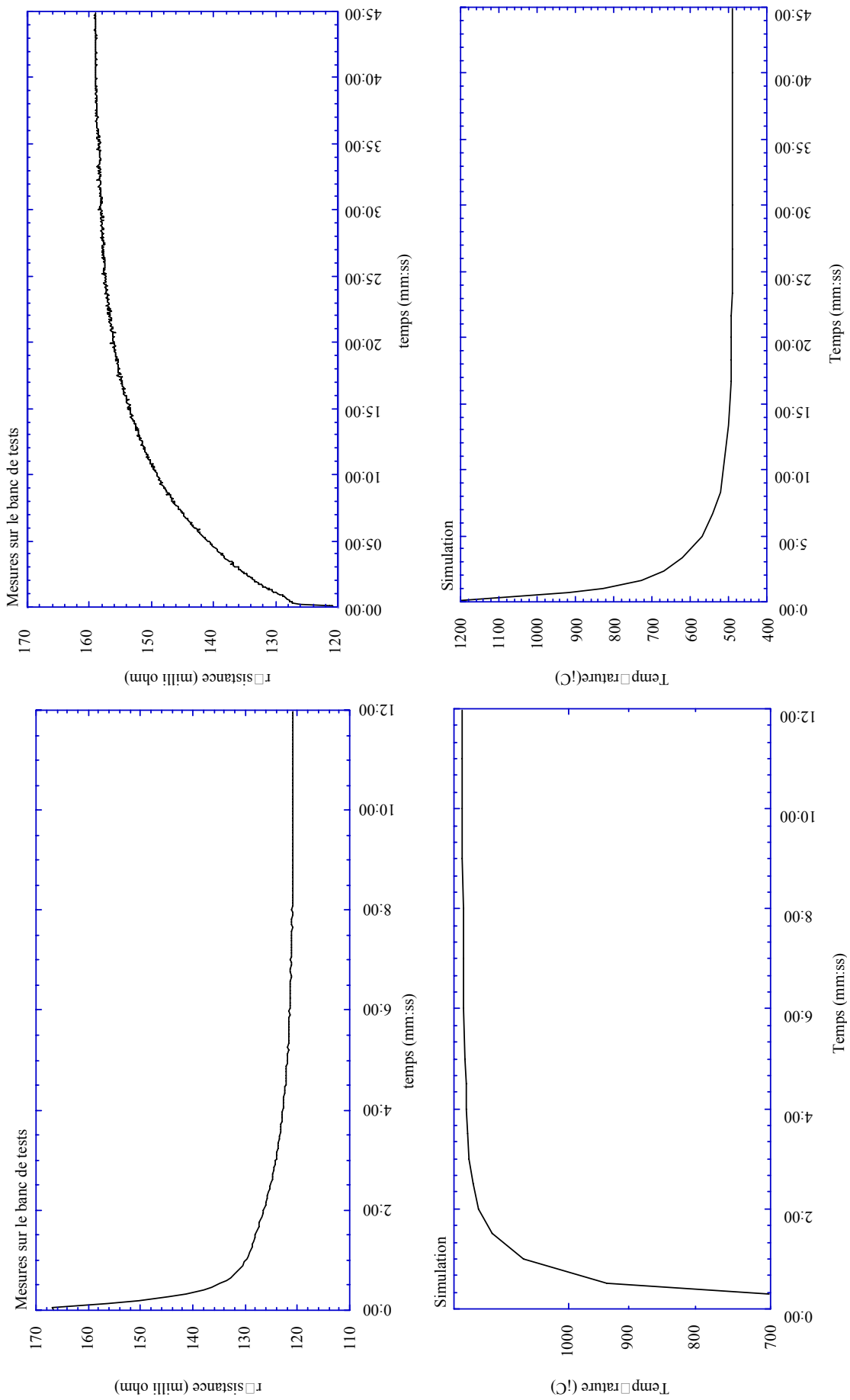


Fig. IV - 12 – *Résultats de l'étude transitoire sur la cible de diffusion. Les deux courbes de gauche correspondent respectivement à la montée de puissance du chauffage simulé (en haut) et mesuré (en bas). Les deux courbes de droite correspondent à la descente en puissance. R diminue lorsque T augmente.*

Le temps de réponse pour stabiliser la température au bout des lamelles est de l'ordre de 10 minutes lorsque l'on monte brutalement la puissance de chauffage. La stabilité est plus lente lorsque l'on coupe le chauffage brutalement : de l'ordre de 30 minutes. Cette différence entre la montée et la descente s'explique par le fait que le chauffage de la cible se fait par conduction dans le carbone alors que le refroidissement de la cible se fait en majorité par rayonnement. La conduction est plus rapide que le rayonnement.

IV-3-2-3 Tests de tenue thermique de la cible hors-ligne

Cette cible a fait l'objet de tests thermiques hors-ligne sur un banc de tests de chauffage. Elle a ainsi été chauffée avec 1.2kW de chauffage ohmique pendant 30 jours avec 75 "montées descentes" en température, cette cible devant tenir au moins 15 jours à une puissance comprise entre 800W et 1200W. Nous n'avons testé que la partie cible de diffusion hors-ligne car la cible de production ne possède pas de système de chauffage annexe.

Au vu de notre expérience avec la cible dédiée à la production de faisceaux d'Argon et de Néon, ainsi que des simulations, nous pensons que cette cible de production tiendra à 1.5kW, comme il a été dit au §IV-3-2-1.

IV-3-3 Taux de production

Les taux de production ont été obtenus pour cette cible avec un faisceau primaire de ^{13}C de 400W de puissance avec un chauffage annexe de 1kW pour les $^{6,8}He^{+}$ et de 1.5kW pour les $^{6,8}He^{2+}$. Ils sont comparés avec les résultats obtenus dans la cible pour la production de faisceaux d'argons et de néons (colonne 2 du tableau IV-6) et sont résumés dans le tableau ci-dessous. Les taux de production estimés avec SIGMA_SIRa sont corrigés de l'efficacité de la ligne SIRa (ionisation et transport) soit 10 %.

	Taux normalisé à 1µAp de ^{13}C 75 MeV/A		
	Cible 4µm [Lec-97 a]	**Cible Hélium**	**Estimation SIGMA_SIRa (cible+projectile)**
$^{6}He^{1+}$ ($T_{1/2}$=806.7ms)	1.44 (±0.07) 10^{8}	5.41(±0.43) 10^{8}	6.2 10^{8}
$^{6}He^{2+}$		3.96 (±0.26) 10^{7}	
$^{8}He^{1+}$ ($T_{1/2}$=119ms)	5.05 (±0.25)10^{5}	1.5(±0.07) 10^{6}	2.7 10^{6}
$^{8}He^{2+}$		1.75 (±0.09) 10^{5}	

Tab. IV- 9 – *Taux de production d'^{6}He et ^{8}He de la cible cylindrique en C 4µm optimisée à 400W* [Lec-97 a] *et taux de production d'^{6}He et ^{8}He de la cible pour la production d'Hélium version "tout carbone". Les taux sont normalisés à 1µAp (équivalent à 975 W de ^{13}C). Ces taux sont comparés aux estimations réalisées avec le code SIGMA_SIRa lorsque l'on prend en compte à la fois la fragmentation de la cible et du projectile, et corrigées de l'efficacité de la ligne SIRa (efficacité d'ionisation et de transport) (10%).*

Nous avons gagné globalement un facteur 3 à 4 sur les taux de production entre la cible de N. Lecesne et al. et la cible en deux parties, grâce aux améliorations apportées à cette dernière cible , qui prend en compte à la fois la fragmentation de la cible **ET** du projectile.

D'après le code SIGMA_SIRa, les taux de production prévus pour l'^{6}He et ^{8}He pour un faisceau de ^{13}C à 75 MeV/A normalisé à 1µAp sont présentés dans le tableau IV-10. Nous pouvons alors estimer quelle est la proportion des isotopes d'Hélium qui s'arrêtent dans la première partie (cible de production) et dans la deuxième partie (cible de diffusion) de la cible.

	Production total ①	Production par fragmentation du projectile ②	Production par fragmentation de la cible ③=①-②	Production pour ^{6}He<40MeV/A ^{8}He<35MeV/A ④	Production pour ^{6}He>40MeV/A ^{8}He>35MeV/A **arrêté dans cible diffusion** ⑤=②-④	Taux **arrêté dans la cible production** ⑥=③+⑤
^{6}He	6.24 10^{9}	3.24 10^{9}	3.0 10^{9}	5.7 10^{6}	**3.24 10^{9} (52%)**	**3.00 10^{9} (48%)**
^{8}He	2.7 10^{7}	1.77 10^{7}	9.26 10^{6}	4.50 10^{6}	**1.32 10^{7} (49%)**	**1.3810^{7} (51%)**

Tab. IV- 10– *Taux de production estimés par le code SIGMA_SIRa pour une intensité de ^{13}C normalisée à 1µAp dans chaque partie de la cible dédiée à la production de faisceaux d'hélium.*

Les chiffres entre parenthèses dans les deux dernières colonnes correspondent au pourcentage des noyaux produits par fragmentation (de la cible et du projectile) s'arrêtant dans chacune des deux cibles : ainsi, il y a autant d'Hélium (6 et 8) produit par fragmentation (de la cible et du projectile confondue) arrêté dans la cible de production que dans la cible de diffusion.

IV-3-4 Mesure de temps de montée

Pour estimer les pertes dans la cible par diffusion et effusion, des mesures d'efficacité de diffusion effusion par la méthode des temps de montée ont été faites avec un faisceau primaire de ^{13}C à 75MeV/A dans les mêmes conditions que les mesures de temps de montée du ^{17}Ne décrites dans le chapitre précédent (§III-5-2).

Les résultats obtenus pour les temps de montés avec l'^{6}He et ^{8}He sont reportés dans les tableaux IV-11 et IV-12.

T cible Production (en K) (puissance en W)	T cible Diffusion (en K) (puissance en W)	ξ Diff (μ_0 en s^{-1})	ξ Eff (ν en s^{-1})	ξ Diff-eff	χ^2 réduit
540-595 (10)	1520-2200 (1097)	0.98 (±0.09) (-)	0.886 (±0.05) (6.4)	0.865 (±0.1)	6.2
1050-1460 (230)	1520-2200 (1094)	1 (-)	0.881 (±0.09) (6.37)	0.881 (±0.1)	7.4
540-595 (10)	1520-2200 (1097)	0.98 (±0.09) (-)	0.886 (±0.06) (6.66)	0.866 (±0.09)	0.53
770-900 (40)	420-450 (14)	0.66 (±0.05) (0.5964)	0.8996 (±0.1) (7.7)	0.5964 (±0.1)	16.4
720-870 (35)	420-450 (14)	0.62 (±0.04) (0.5)	0.89 (±0.1) (7.0)	0.549 (±0.08)	10.2

Tab. IV- 11– *Efficacité de diffusion et d'effusion pour l'^{6}He ($T_{1/2}$=806.7ms) extrait par la méthode des temps de montée dans la cible dédiée à la production de faisceaux d'hélium (épaisseur des lamelles = 1.5mm).*

T cible Production (en K) (puissance en W)	T cible Diffusion (en K) (puissance en W)	ξ Diff (μ_0)	ξ Eff (ν)	ξ Diff-eff	χ^2 réduit
1020-1380 (190)	390-450 (14)	0.73 (±0.07) (9.11)	0.5 (±0.05) (5.43)	0.372 (±0.07)	1.41
1040-1420 (210)	390-450 (14)	0.79 (±0.08) (12.9)	0.52 (±0.05) (5.74)	0.411 (±0.08)	1.66
1030-1400 (200)	970-1170 (240)	0.89 (±0.09) (30.3)	0.61 (±0.06) (8.3)	0.545 (±0.09)	2.25
1030-1400 (200)	1170-1620 (550)	0.93 (±0.1) (53.5)	0.65 (±0.06) (9.7)	0.6 (±0.08)	1
1030-1400 (200)	1170-1620 (550)	0.81 (±0.08) (15.0)	0.66 (±0.07) (10.56)	0.54 (±0.09)	1.44
1030-1400 (200)	1420-1970 (845)	0.81 (±0.08) (14.5)	0.606 (±0.06) (8.13)	0.49 (±0.07)	1.65
1020-1380 (190)	1500-2170 (1065)	0.94 (±0.09) (58.6)	0.535 (±0.05) (6.1)	0.504 (±0.09)	1.5

Tab. IV- 12– *Efficacité de diffusion et d'effusion pour l'^{8}He ($T_{1/2}$=119ms) extrait par la méthode des temps de montée dans la cible dédiée à la production de faisceaux d'hélium (épaisseur des lamelles = 1.5mm).*

Dans les deux tableaux IV-11 et IV-12, les températures correspondent au minimum et au maximum dans chaque cible définie par les codes GANIL (pour la cible de production) et SYSTUS (pour la cible de diffusion), lors de l'expérience. Pour certaines mesures lors de l'expérience, nous avons eu des problèmes de pertes lors de l'acquisition de données dûes à un blocage de l'acquisition en temps mort, créant des "trous" dans les spectres de radioactivité engendrant des valeurs de $\chi^2_{\text{réduit}}$ parfois importante (>10).

Ultérieurement à cette expérience, une seconde mesure de l'efficacité de diffusion effusion de l'^{8}He par la méthode des temps de montée à été réalisée avec la cible dédiée à la production de faisceaux d'Argon et de Néon dont les lamelles sont de 0.5mm d'épaisseur seulement, avec un faisceau primaire de ^{20}Ne à 95MeV/A.

Ces résultats sont présentés dans le tableau IV-13.

T cible (K) (puissance faisceau/axe en W)	**ξ_{Diff} (μ_0)**	**ξ_{Eff} (ν)**	**$\xi_{Diff-eff}$**	**$\chi^2_{réduit}$**
1160-1240 (67/170)	0.682 (±0.08) (6.75)	0.7211 (±0.08) (13.69)	0.4916 (±0.06)	1.1
1330-1460 (76/350)	0.742 (±0.1) (9.54)	0.737 (±0.08) (14.85)	0.5473 (±0.051)	1.05
1660-2085 (67/1500)	0.85 (±0.09) (20.4)	0.706 (±0.075) (12.73)	0.601 (±0.065)	1.12
1700-2085 (95/1500)	0.821 (±0.1) (16.01)	0.693 (±0.07) (11.94)	0.568 (±0.058)	1.13
1730-2050 (323/1300)	0.89 (±0.09) (29.8)	0.717 (±0.07) (13.41)	0.639 (±0.06)	1
1730-2050 (295/1300)	0.86 (±0.1) (22.02)	0.699 (±(0.07) (12.35)	0.602 (±0.05)	1.05
1780-2120 (400/1500)	0.892 (±0.1) (30.0)	0.681 (±0.07) (11.3)	0.607 (±0.07)	0.6
1780-2120 (400/1500)	0.92 (±0.1) (42.9)	0.703 (±0.1) (12.51)	0.647 (±0.07)	1.6

Tab. IV- 13 - *Efficacité de diffusion et d'effusion pour l'^{8}He ($T_{1/2}$=119ms) extrait par la méthode des temps de montée dans la cible dédiée à la production de faisceaux d'Argon et de Néon (épaisseur des lamelles = 0.5mm).*

Les résultats des tableaux IV-11 et IV-12 montrent une efficacité d'effusion ξ_{eff} de 0.9 pour l'^{6}He (806.7 ms) et de 0.58 en moyenne pour l'^{8}He (119 ms) quelle que soit la température des deux cibles (production et diffusion) dont l'épaisseur des lamelles est de 1.5mm. ν est indépendant de la température et du temps de vie du noyau d'intérêt. De la formule de l'effusion I-16, on peut déduire un ν moyen, sur toutes les mesures, de 7.34 s^{-1} soit un temps d'effusion τ_{eff} de 135 ms.

Le tableau IV-13 montre les résultats réalisés dans des lamelles plus minces (0.5mm) avec l'^{8}He. Nous trouvons alors une efficacité d'effusion de l'ordre de 0.7 avec un ν moyen de 12.84 s^{-1}, soit un temps d'effusion τ_{eff} de l'ordre de 80ms.

Ces résultats confirment l'hypothèse émise dans le §IV-2-2-1 qui stipule que l'efficacité d'effusion est liée à l'épaisseur des lamelles. Une lamelle de 1.5mm est suffisante pour des temps de vie de l'ordre de 800ms et supérieur car nous avons mesuré une effusion de l'ordre de 0.9 pour l'^{6}He. Par contre cette épaisseur devient un problème pour les temps de vie plus court comme l'^{8}He où nous observons une efficacité comprise entre 0.5 et 0.6, ce que nous

avons déjà montré avec l'efficacité d'effusion du ^{17}Ne dans le chapitre précédent ; et ce, quelle que soit la température des cibles. L'effusion est donc indépendante de la température dans cette plage de température. De plus un ν moyen de l'ordre de 13 s^{-1} a été mesuré pour le ^{17}Ne et l'^{8}He dans une même cible, il semble donc que ce ν soit lié à la nature de l'élément. On pourrait alors extrapoler ce ν aux gaz rares. Une mesure d'efficacité de diffusion effusion par temps de montée avec l'^{32}Ar sera nécessaire pour confirmer cette hypothèse.

Nous venons de confirmer l'hypothèse d'utiliser des lamelles plus minces. Mais cette amélioration engendre d'autres problèmes : avec des épaisseurs deux fois plus minces, la longueur des cibles augmente d'un facteur deux et la diminution des épaisseurs des lamelles risque de fragiliser considérablement la cible dues aux contraintes à l'usinage, lors de la fabrication.

Ce temps d'effusion de 80ms pour des lamelles de 0.5mm d'épaisseur est une limite pour la production des éléments de court temps de vie inférieur à ce temps τ_{eff}. L'amélioration de ce temps ne pourra pas se faire sur l'épaisseur des lamelles, si nous restons avec la même géométrie de cible. Nous pourrons peut être réaliser cette amélioration sur le temps de transfert entre la cible et l'extraction hors de la source d'ionisation. L'atome, une fois sorti de la cible, va subir un certain nombre de collisions entre les lamelles de la cible, entre la cible et le container, puis dans le tube transfert avant de pénétrer dans la chambre de la source. Ce temps de transfert est négligeable pour les éléments de long temps de vie, par contre, il devient important devant les temps de vie court. Il serait alors intéressant de réaliser une mesure par la méthode des temps de montée avec une cible directement reliée à une source ECR 1+ de type Mono1000 [Jar-00] [Lec-01] [Ler-99] où il n'y a pas de tube transfert.

Nous avons vu (figure IV-1) qu'une température de 1200K (soit une puissance sur l'axe de 800W) était nécessaire et suffisante pour avoir une efficacité de diffusion de 80 % pour l'^{6}He. D'après le tableau IV-13, une température d'au moins 1600K (soit 1kW de puissance sur l'axe) sera nécessaire pour avoir la même efficacité de diffusion pour l'^{8}He.

Mais la majorité des pertes se fait au niveau de l'efficacité d'ionisation de la source ECR Nanogan III, où nous obtenons, au maximum dans les conditions d'expérience, une efficacité d'ionisation de 10 % sur l'Hélium se répartissant en 90 % pour l'He^{1+} et 10 % pour l'He^{2+}. Selon les énergies demandées après le cyclotron CIME, il faut aussi l'état de charge 2+. L'Hélium a un potentiel de première et de deuxième ionisation élevé (1+ : 24.587 eV et 2+ : 54.416 eV) et est donc plus difficile à ioniser que les autres gaz rares. Les efforts pour gagner en intensités de faisceau sont donc à faire sur l'amélioration des performances des sources sur l'ionisation de l'Hélium. Nanogan III n'est pas une source adaptée à l'ionisation de l'Hélium. Deux améliorations sont possibles :

- <u>un volume de chambre plus grand</u> permet d'augmenter le temps de confinement dans le plasma et donc d'augmenter l'état de charge 2+ par rapport au 1+, au risque d'augmenter le temps de confinement dans la source.
- <u>une fréquence HF plus importante</u> augmente la densité d'électrons dans le plasma et par conséquent augmente l'efficacité d'ionisation.

Une R&D permettrait d'adapter au mieux une source d'ionisation plus performante pour ioniser l'He^{2+} pour SPIRAL.

IV-4 Vérification des cibles avant l'installation sur SPIRAL

Nous venons de voir qu'il serait intéressant de faire des cibles avec des lamelles plus fines pour améliorer l'effusion ; par contre il ne faut pas perdre de vue que le fait d'augmenter le nombre de lamelles peut entraîner des contraintes sur l'axe dûes aux sollicitations de l'usinage des espaces entre chaque lamelle lors de la fabrication des cibles. Ces contraintes risquent de provoquer une fragilisation de l'axe. Une micro fissure sur cette partie de la cible peut devenir dangereuse car il est le siège d'évaporation locale importante pouvant engendrer une accélération de l'évaporation sur ces défauts et donc une diminution du temps de vie des cibles sur SPIRAL. Une possibilité pour la fabrication des cibles serait d'utiliser l'électroérosion. Cette possibilité nécessitant un masque pourrait être envisagée lorsque les cibles seront définitivement validées sur SPIRAL avec les faisceaux THI.

Il est donc primordial pour des raisons de fiabilité évidente de savoir si une cible est capable de tenir au moins 15 jours lorsqu'elle est sollicitée aux contraintes thermiques et ce avant même d'avoir été irradiée par le faisceau primaire.

IV-4-1 Les Contrôles Non Destructifs

À l'heure actuelle, il n'existe aucun moyen pour vérifier l'état des axes après fabrication par contrôle non destructif car la géométrie complexe des cibles ne le permet pas :

- une tomographie c'est-à-dire une radiographie systématique des cibles pourrait être envisagée mais est d'un coût élevé. [Bou-00].
- les ultra-sons ne sont pas valables avec cette géométrie car les lamelles atténuent les ondes. [Bou-00].
- la méthode des courants de Foucault n'est valable que pour des géométries sous forme de tube creux. Dès que l'on soumet certains matériaux à un champ magnétique variable, il se crée dans le matériau, par réaction, de petits courants électriques générant eux-mêmes un champ magnétique. Les variations du champ créées par ces courants permettent de détecter les défauts proches de la surface. Cette méthode nécessite d'avoir des pièces relativement volumineuses pour permettre le passage des capteurs aux centres des tubes [CTE], ce qui n'est pas le cas de nos cibles.
- la magnétoscopie consiste à soumettre une pièce ferromagnétique donc susceptible d'être aimanté à un champ magnétique. Les lignes de champ apparaissent déformées à proximité de discontinuité en surface ou proche de la surface du matériau à tester. Cette méthode ne peut être utilisée pour nos cibles car le carbone n'est pas magnétique [Dub-00].

IV-4-2 Tests des cibles pour SPIRAL

Avant la mise en place des ensembles cible source sur SPIRAL, ces derniers sont testés sur un banc de tests prévu à cet effet [Gau-00]. Lorsque les cibles sont chauffées à 2300K, un dégazage des impuretés contenues dans la cible à température ambiante se produit. Ce dégazage est si important lorsque la cible n'a jamais été chauffée que le fonctionnement de la source d'ionisation est compromis [Gau-00] [Mau-98].

Il est donc nécessaire de prévoir un dégazage d'une durée estimée à environ trois jours avant l'installation des ensembles dans la casemate de production de SPIRAL.

Ce banc de tests réalisé pour la préparation des ensembles pourrait alors être utilisé pour effectuer des tests thermiques sur les cibles afin d'éliminer les plus fragiles. Avec des chocs thermiques et des montées en température à des puissances de chauffage supérieures aux puissances de fonctionnement, on peut observer l'évolution de la résistance des cibles et ainsi desceller celles où se produit une évaporation locale c'est-à-dire une augmentation significative de la résistance de l'axe au court du temps. S'il y a présence de défauts, trois jours seront suffisants par évaporer l'axe de la cible.

On peut alors la remplacer par une autre cible avant l'installation de l'ensemble sur SPIRAL.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous venons de décrire le travail réalisé pour la conception d'une nouvelle cible dédiée à la production d'^{6,8}He radioactifs. Les points importants à retenir sont le compromis à trouver entre l'épaisseur des lamelles et l'espace disponible dans la boîte cible. Une épaisseur de lamelle trop grande entraîne une perte des noyaux par effusion, une épaisseur trop fine augmente considérablement la taille des cibles qui ne logent plus dans la boîte cible, ainsi que la difficulté à les usiner.

Nous avons montré que l'efficacité d'effusion prend toute son importance lorsque les lamelles sont trop épaisses par rapport au court temps de vie de certains noyaux radioactifs. Des mesures de diffusion effusion complémentaires permettraient de réaliser des abaques sur les compromis "épaisseur des lamelles / $T_{1/2}$".

Au niveau de l'efficacité de diffusion, il est nécessaire d'avoir une température minimum de 1200K dans la cible pour l'^{6}He, soit une puissance de 800W sur l'axe de la cible de diffusion. Par contre il faudra une température plus élevée pour l'^{8}He : 1600K soit une puissance de 1000W dans la cible de diffusion.

L'amélioration des taux de production avec cette cible, en tenant compte à la fois de la fragmentation de la cible et du projectile, est importante puisque nous avons observé globalement un facteur 3-4 par rapport aux taux mesurés dans la cible dédiée à la production de faisceaux d'argon et de néon.

D'autres améliorations pour augmenter les taux de production sont à l'étude :

- diminution du temps d'effusion en réduisant le temps de transfert entre la cible et la source par une expérience avec Mono1000 [Jar-00] [Lec-01] [Ler-99].
- amélioration des performances des sources d'ionisation pour l'Hélium avec l'état de charge 2+.

Un autre point important est la mise en évidence que le carbone reste le matériau "universel" pour les cibles de production dans le cas du processus de fragmentation du projectile. Il possède toutes les caractéristiques et les qualités nécessaires pour respecter le cahier des charges : un Z petit, un matériau peu coûteux et facilement usinable, résistant aux chocs thermiques et aux hautes températures, une bonne diffusion.

Nous avons vu aussi l'impossibilité d'utiliser le B_4C pour sa faible résistance aux chocs thermiques et sa mauvaise efficacité d'effusion.

Cette cible devrait être fiable pour un faisceau primaire de 1.5kW. Des tests entre 1.5 et 2 kW seront nécessaires lors des premiers essais sur SPIRAL, en fin de période du temps de faisceau, pour valider sa tenue thermique. Après ces résultats, une nouvelle étude de cible pour un faisceau primaire de 3kW sera entreprise.

Cette cible actuelle respecte le cahier des charges, en particulier des chocs thermiques et un test longue durée (30 jours) ont été réalisés avec cette cible sur un banc de chauffage. Ces tests seraient à refaire pour un plus grand nombre de cibles (chocs thermiques et tenue en température sur 3-4 jours), pour valider la méthode de vérification des cibles sur le banc de test SPIRAL, avant installation dans la casemate de production sur SPIRAL. Cette méthode est valable pour toutes les cibles ayant un système de chauffage par l'axe.

Maintenant que les différents problèmes pour la production des gaz rares ont été soulevés (production, diffusion, effusion, tests de tenue thermique), nous allons présenter dans le chapitre suivant les développements effectués au GANIL pour la production des éléments alcalins radioactifs.

CHAPITRE V

La cible pour la production d'Alcalins radioactifs MONOLITHE

Nous venons de voir dans les chapitres précédents, que l'ensemble cible source Nanogan III pour SPIRAL était bien adapté à la production des gaz rares tels que Hélium, Néon, Argon ainsi qu'à un degré moindre à l'Oxygène [Gib-01]. Par contre, il n'est toutefois pas adapté aux alcalins principalement pour deux raisons :

- les alcalins sont condensables, la majeure partie des atomes se collent sur le tube de transfert et les parois froides de l'ensemble avant d'atteindre la chambre de la source d'ionisation.
- ceux qui peuvent déjà être ionisés sous forme 1+ en sortie de l'ensemble cible-container chaud, sont repoussés par le potentiel plasma positif formé à l'intérieur de la chambre de la source ECR [LEC-97 a].

Une source à ionisation de surface, dont le principe a été rappelé dans le chapitre I, semble plus appropriée à l'ionisation des éléments alcalins. Elle permet l'ionisation des atomes sous forme 1+ et nécessite :

- soit, l'adjonction d'une transformation 1+/N+ pour obtenir des états de charge plus élevés pour l'accélération avec le cyclotron CIME (§ I-3, figure I-11),
- soit, éventuellement, l'accélération directement des ions de charge 1+ à basse énergie.

C. Thibault-Philippe et al [Thi-71] ont mesuré la période radioactive du ^{11}Li $T_{1/2}$=8.5ms. Cette période, très courte, constitue la première difficulté pour la diffusion hors des cibles ainsi que l'effusion comme nous l'avons montré dans les chapitres III et IV avec l'Argon, le Néon et l'Hélium. Le Lithium étant un élément condensable, les temps de collage à chaque collision vont retarder d'autant plus l'effusion jusqu'à la source d'ionisation.

De plus, le potentiel de première ionisation du Lithium (5.392 eV), s'il est faible comparé à la plupart des éléments (au moins 12 eV pour les gaz rares) est le plus élevé des alcalins après l'Hydrogène (13.6 eV). Ce potentiel élevé constitue une deuxième difficulté dans le choix des matériaux pour ioniser les alcalins comme nous l'avons montré dans le chapitre I-3-2.

Le ^{11}Li étant l'isotope le plus difficile à produire, nous nous sommes attachés à optimiser sa production et toutes les étapes suivantes : diffusion, effusion, ionisation.

Dans ce chapitre, nous exposerons les méthodes utilisées par différents laboratoires pour produire des faisceaux radioactifs et plus particulièrement, aux installations produisant ou qui produiront du ^{11}Li.

Par la suite, nous développerons le travail réalisé dans le cadre de cette thèse pour adapter un ensemble cible source 1+ à la production du Lithium radioactif dans les configurations du GANIL (MONOLITHE : MONOchargés de LITHium Exotiques) et ce, au regard de toutes les hypothèses émises dans les chapitres précédents.

V-1 La production de faisceau de ^{11}Li.

A l'heure actuelle, le ^{11}Li est produit par fragmentation soit avec la méthode dite "en vol" soit avec la méthode ISOL. Il est nécessaire d'avoir des accélérateurs qui fournissent soit des faisceaux d'ions lourds stables, soit des faisceaux de protons.

V-1-1 Equipements pour la production "en vol"

Un noyau lourd, de grande énergie, est fragmenté sur un noyau cible. La cible étant mince et l'énergie des ^{11}Li formés étant grande, les noyaux quittent la cible avec pratiquement la même vitesse que celle du projectile. Ils sont sélectionnés par un spectromètre magnétique selon leur rapport charge sur masse (Q/M), et éventuellement d'autres sélections telles que le ralentissement des ions dans la matière (dégradeur achromatique) et/ou une sélection en vitesse (filtre de Wien).

Cette méthode dite "en vol" est utilisée dans les laboratoires qui possèdent des machines produisant des faisceaux d'ions lourds de grande énergie. Nous pouvons, entre autre, citer LISE [Ann-87] [Ann-92] et SISSI [Jou-91] à GANIL (France), RIPS à Riken (Japon),

ACCULINA au Joint Institute for Nuclear Research (Dubna en Russie [Fom-98]), au National Superconducting Cyclotron Laboratory MSU (à Michigan, USA), FRS-ESR à GSI (Darmstadt, Allemagne).

Cette méthode est optimale pour la production des faisceaux d'ions radioactifs de courte période, elle est donc tout à fait appropriée au ^{11}Li. Elle est cependant limitée à délivrer des faisceaux de grande énergie. L'utilisation de cible ou de ralentisseur plus épais pour délivrer des énergies plus basses, dégrade sérieusement la résolution en angle et en énergie et diminue drastiquement l'intensité.

Par exemple dans le cas du ^{11}Be, si des intensités d'au moins 10^6 particules/s de ^{11}Be ont été obtenues à LISE, à l'énergie du faisceau incident, seulement 5000 ^{11}Be/s l'ont été aux énergies voisines de la barrière coulombienne [Fen-93]. Pour des expériences nécessitant des énergies allant de quelques keV à plusieurs dizaines de MeV, la méthode ISOL est mieux adaptée du point de vue qualité du faisceau.

V-1-2 Equipements utilisant la méthode ISOL

La méthode ISOL a été présentée dans le chapitre I. Il existe principalement deux possibilités pour le faisceau primaire :

- soit les laboratoires utilisent des particules légères (généralement des protons, quelquefois ont été utilisés des ^{3}He et ^{12}C) d'énergie et d'intensité relativement élevées et produisent le ^{11}Li par spallation de la cible.
- soit ils disposent d'un faisceau d'ions lourds et utilisent la fragmentation du projectile. A notre connaissance, la méthode ISOL utilisant la fragmentation du projectile n'a pas encore été utilisée pour produire des faisceaux de ^{11}Li.

L'expérience de C. Thibault-Philippe et al [Thi-71], [Thi-75], pour la mesure de la période du ^{11}Li, nous montre les difficultés rencontrées et permet d'apprécier les progrès depuis la première des expériences par la méthode ISOL pour le ^{11}Li.

Dans cette expérience, le ^{11}Li etait produit par fragmentation de noyaux lourds cible par des protons incidents de haute énergie (20GeV du P.S. du CERN, 10^{13} protons par pulse). Les noyaux de Lithium sortent de la cible grâce à leur énergie de recul et sont arrêtés dans du graphite. En effet, les vitesses de diffusion des atomes de Lithium que ce groupe avait mesurées dans les matériaux réfractaires (Pt, Ta, Rh, B, C) sont plus grandes pour le Carbone que pour les autres matériaux : il faut 350ms pour que 50% des atomes de Lithium produits sortent de la cible de Carbone à 1800°C (tableau V-1 extrait de la référence [Thi-71]).

élément (point de fusion)	épaisseur	alcalin diffusant	température	τ
Pt (1774°C)	25µm	Li Na	1120°C 1470°C 1450°C	6.1 h 4mn 30mn
Ta (3000°C)	100µm	Li	1800°C 1970°C	1h 18mn
Rh (2500°C)	25µm	Li	1350°C 1450°C	35mn 15mn
B (2300°C)	300µm	Li	1300°C 1800°C	50s 0.650s
C (>3550°C)	100µm	Li	1800°C	0.350s

Tab. V- 1 – *Diffusion du Lithium et du Sodium dans divers matériaux réfractaires. τ est le temps nécessaire pour que 50% des noyaux créés par l'irradiation soient sortis de la cible* [Thi-71].

L'Iridium produit moins de ^{11}Li que l'Uranium, il a cependant été utilisé car une baisse d'efficacité d'ionisation d'un facteur 10 a été observée en présence d'Uranium. Cette cible est entourée d'une feuille de Rhénium (25µm d'épaisseur) qui sert à la fois de four et d'ioniseur par effet thermo-ionique. A 2000°C, le rendement d'ionisation attendu était de 9.8%. La température du four en Rhénium était seulement de 1600°C. L'intensité du faisceau de $^{11}Li^{+}$ obtenue était très faible, environ 1 ^{11}Li/s. Bien que l'énergie de recul et donc le parcours des ^{11}Li soit petits, un compromis a été nécessaire entre l'épaisseur du graphite de 700µm, suffisante pour arrêter les ^{11}Li dans le Carbone, et l'épaisseur des lamelles suffisamment mince pour une diffusion rapide. Un compromis a été choisi avec 140µm de Carbone qui permet d'arrêter 85% des ^{11}Li. Les atomes arrêtés dans le carbone sortent alors par diffusion thermique.

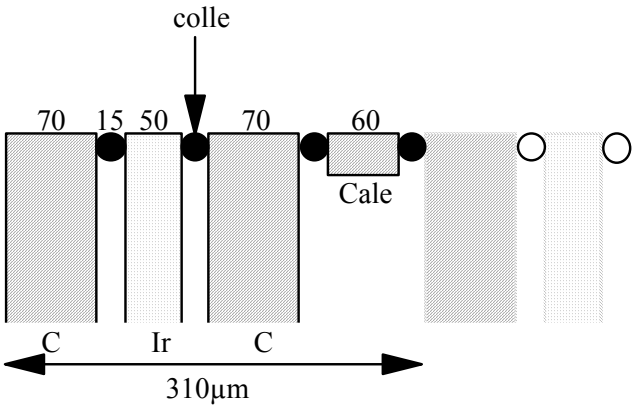


Fig. V - 1 – *Détail de la cible d'iridium préparée pour l'étude du ^{11}Li. Elle comporte 18 couches identiques à celle qui est présentée* [**Thi-71**].

La cible consiste en 18 plaquettes de 4mm de rayon. Chaque plaquette (figure V-1) est composée de 50µm d'Iridium pour la production suivi de 2x70µm de graphite pour la diffusion. D'autre part, un espace de 90µm a été réalisé entre les lamelles grâce à des cales en Carbone pré-collées par de la colle organique, puis étuvées pour évaporer les impuretés organiques. L'ensemble de la cible a une épaisseur de 0.9 mm (18*50µm) d'iridium et 2.52 mm (18x140µm) de carbone. La longueur totale de la cible est alors de 4.7mm. Pour une seconde expérience concernant la mesure de masse du ^{11}Li, la cible utilisée était 10 fois plus longue et un taux de 100 ^{11}Li par seconde a été obtenu [Thi-75] pour une intensité de 1.5 10^{12} protons dans un paquet faisceau de 2µs chaque 10s, soit un taux de 10 ^{11}Li /s. Ces taux bien que faibles ont permis de mesurer la période (1 ^{11}Li/s) ainsi que la masse (10 ^{11}Li/s) du ^{11}Li.

On remarque aussi que ces taux sont relativement faibles malgré un grand nombre de précautions :

- choix d'un des meilleurs matériaux pour ioniser (le Rhénium),
- mesure de la vitesse de diffusion pour choisir le matériau (le Carbone) le plus rapide,
- optimisation des épaisseurs des lamelles et des espaces entre les lamelles,
- choix de l'Iridium à la place du carbure d'Uranium, UCx, comme matériau pour la production, pour ne pas détruire le travail de sortie par la présence de l'Uranium.

Depuis cette date, de nombreuses recherches ont été effectuées pour améliorer les taux de production du ^{11}Li par la méthode ISOL, notamment à ISOLDE au CERN où un taux de 2000 ^{11}Li/s a été obtenu au SC [Arn-87] et 7000 ^{11}Li / s avec la cible de RIST [Ben-99].

V-1-3 Taux de ^{11}Li auprès des différentes installations

Les intensités obtenues ou prévisibles des principales installations produisant ou qui produiront des faisceaux radioactifs de ^{11}Li sont présentées dans les tableaux V-2 et V-3. Ces valeurs ont été trouvées dans la littérature ou communiquées par des physiciens et peuvent, dans certains cas, dépendre de leur expérience et en particulier de l'énergie souhaitée. Il faut donc les considérer à titre indicatif. Elles ne correspondent pas forcément au maximum possible de l'équipement.

Cette liste n'est certainement pas exhaustive. Pour avoir plus d'informations sur ces équipements fournissant ou qui fourniront des faisceaux radioactifs, le site internet du projet EURISOL permet d'avoir de nombreux liens [EUR]. Les références indiquées dans la dernière colonne permettent d'avoir plus de détails sur ces installations.

V-1-3-1 Méthode en vol

Laboratoires	Faisceau primaire	Cible utilisée	Taux ^{11}Li	Réf.
GANIL (LISE) (LISE2000)	^{18}O	C	150-200	[Ann-87][Ann-92]
DUBNA (ACCULINNA)	^{15}N (47MeV/A / 1pμA)	Be	260 (15 à 30 MeV/A)	[Fom-98]
RIKEN (RIPS) (RIBF)	^{18}O (100MeV/A) (400MeV/A / 1pμA)	Be	20000 *10^7* (*) (≈350 MeV/A)	[Kor-97] [Tan-01]
GSI (FRS)	^{18}O (340MeV/A / 3.2pnA)	Be	5000	[Hum-95]
MSU	^{18}O (120MeV/A / 1pnA)	Be	300	[She-01]

Tab. V- 2– *Taux de production indicatifs de ^{11}Li obtenus sur divers équipements utilisant la méthode en vol.* (*) *Les chiffres en italique correspondent uniquement à des estimations.*

V-1-3-2 Méthode ISOL

Laboratoires	Faisceau primaire	Cible utilisée	Source ionisation	Taux ^{11}Li Accéléré	Réf.
CERN (ISOLDE SC)	p (600 MeV/2 μA)	Ta 120g/cm^2		2000 basse énergie	[Arn-87]
CERN (ISOLDE SC)	p (600MeV/2 μA)	UCx 13 g/cm^2	W surface	1400	[ISO]
CERN (ISOLDE SC)	p (1.4GeV/1μA)	Ta 665mg/cm^2	W surface	7000 basse énergie	[Ben-99]
TRIUMF (ISAC)	p (500MeV/20μA)	Ta 121 g/cm^2	Ionisation de surface	2.2 10^4 (0.2 à 1.5MeV/A)	[Bri-96] [Tri-b]
RAL (SIRIUS)	p (800MeV/100μA)			*5 10^6* (*)	[SIR]
LNS (EXCYT)	^{18}O (76MeV/A /1pμA)	C (1.3g/cm2)		*1820* (*) (0.2 à 8 MeV/A)	[Cia-96] [Cia-00]

Tab. V- 3 – *Taux de production indicatifs de ^{11}Li obtenus ou prévisibles auprès des différents équipements utilisant la méthode ISOL.* (*) *Les chiffres en italique correspondent uniquement à des estimations.*

L'avantage de la méthode ISOL est qu'elle permet d'avoir des faisceaux de bonne qualité optique avec des énergies faibles, de l'ordre du keV à quelques dizaines de MeV. Par contre, les noyaux produits par fragmentation du projectile sont totalement arrêtés dans une cible avant de diffuser, d'être ionisés puis accélérés par un post accélérateur. Toutes ces étapes prennent du temps et diminuent le nombre de Lithium. Ce qui n'est donc pas forcément adapté au très court temps de vie.

Il faut donc apporter un soin particulier à chaque phase pour minimiser les pertes :

- il faut limiter au maximum les épaisseurs des lamelles pour les cibles de diffusion. Ceci est d'autant plus contraignant pour les noyaux légers produit par fragmentation du projectile qui ont un parcours d'arrêt élevé, pour lesquels beaucoup plus de matière est nécessaire pour les arrêter.
- il faut limiter l'effusion entre la cible et la source d'ionisation en plaçant la source le plus près possible de la cible de diffusion. Cette opération est d'autant plus difficile pour les noyaux légers, car il faut une grande cible de diffusion.
- il faut limiter le temps de présence dans la source tout en ayant une efficacité d'ionisation optimale.

V-1-4 A GANIL

Il existe déjà deux installations à GANIL (LISE [Ann-87] [Ann-92] et SISSI [Jou-91]) produisant des faisceaux radioactifs d'énergie supérieure à 25MeV/A par fragmentation du projectile sur une cible mince. Avec le projet SPIRAL, les faisceaux radioactifs auront une énergie moindre. C'est dans ce cadre que nous développons un ensemble cible source dédié à la production d'alcalins radioactifs avec l'installation SPIRAL et plus spécifiquement pour la production d'isotopes de Lithium radioactifs.

La production à GANIL se fait par fragmentation du projectile et/ou de la cible. La figure V-2 présente une partie de la table des noyaux en fonction du nombre de neutrons N et du nombre de protons Z de chaque élément.

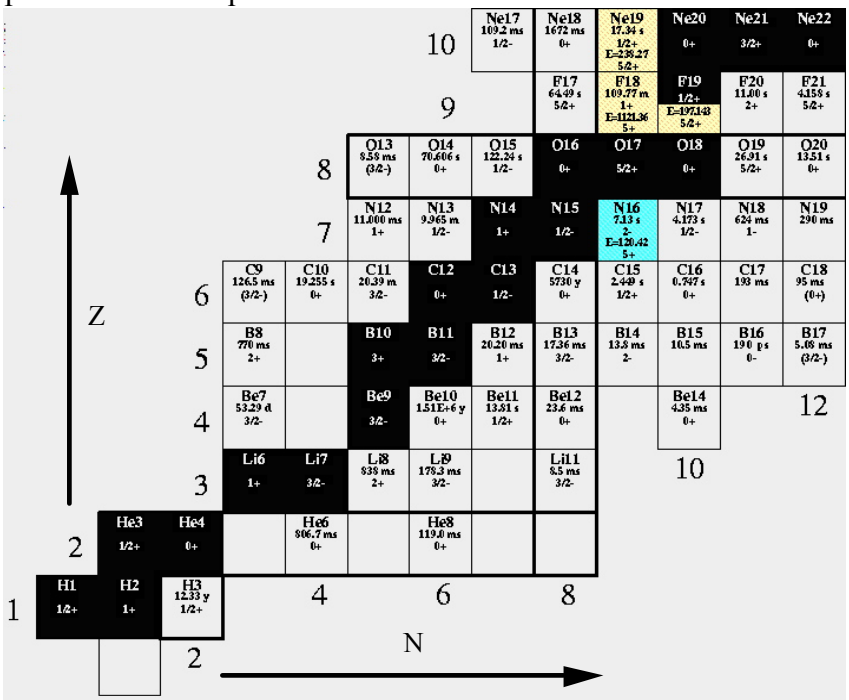


Fig. V - 2 – *Extrait de la table des isotopes.*

Le choix du carbone pour ses bonnes caractéristiques thermiques comme cible de production, ne nous permet pas comme pour l'^{8}He d'utiliser à la foi la fragmentation de la

cible et du projectile pour la production du ^{11}Li. La production se fera uniquement par fragmentation du projectile. Pour optimiser sa production, il faut utiliser un faisceau primaire soit de ^{15}N, ou ^{16,17,18}O. Des calculs avec SIGMA_SIRa (tableau V-4) montrent que le meilleur compromis entre un taux de production maximal et un parcours minimal du ^{11}Li dans une cible de diffusion est d'utiliser un faisceau primaire d'^{18}O à 63MeV/A. Il est vrai que l'on perd environ 10% en production mais, on gagne 25 % en taille de cible de diffusion et donc en épaisseur de lamelles.

Faisceau primaire	**Energie (MeV/A)**	**Taux de production ^{11}Li (x10^5)**	**Parcours du ^{11}Li dans une cible de C (mm)**
^{15}N	65	8.81	27
^{16}O	70	1.98	31
^{16}O	95	2.41	54
^{17}O	50	3.27	17
^{17}O	84	4.91	43
^{18}O	50	7.92	17
^{18}O	**63**	**9.49**	**26**
^{18}O	75	10.7	35
^{20}Ne	48	0.90	16
^{20}Ne	95	1.54	54

Tab. V- 4 – *Taux de production du ^{11}Li estimés avec SIGMA_SIRa, dans une cible de carbone avec plusieurs faisceaux de 2kW. Les parcours d'arrêt du ^{11}Li dans une cible de diffusion en carbone aux énergies du faisceau primaire sont indiqués dans la dernière colonne.*

Le parcours du ^{11}Li est inférieur à 1mm dans le cas de l'expérience de C. Thibault et al. avec des protons incidents de 2GeV. Il est de 26 mm pour des ^{11}Li produits par fragmentation d'un faisceau d'^{18}O de 63 MeV/A dans du carbone. Ce parcours est grand face aux dimensions imposées pour les ensembles cible source. Par conséquent, cette épaisseur importante de matière implique des épaisseurs de lamelles importantes. C. Thibault-Philippe [Thi-71] a mesuré un temps de sortie de 350ms pour que 50 % de Lithium sorte d'une feuille de carbone de 100µm à 1800°C. Il y a donc un fort risque d'avoir une efficacité d'effusion faible dans notre cas. Si on diminue l'épaisseur des lamelles, les dimensions de la cible risquent d'être considérables.

Puisque le parcours du Lithium est grand, les atomes radioactifs produits par fragmentation du projectile sont arrêtés dans une zone à l'arrière de la cible, loin de la zone chauffée par le dépôt de puissance du faisceau primaire. Ce manque de température limitera la diffusion des atomes dans cette zone tout comme la cible dédiée à la production de faisceaux d'Hélium radioactif.

Le premier choix d'un ensemble cible source [Mau-98] pour les alcalins appelé MONOLITHE (MONOchargés de LITHiums Exotiques) s'est donc porté, comme pour la

production d'Héliums (chapitre IV), sur l'utilisation d'une cible en deux parties avec un faisceau primaire d'^{18}O à 75MeV/A :

- la première cible dite cible de production arrête totalement le faisceau primaire. Elle sera refroidie pour dissiper la puissance du faisceau. Les dimensions de cette cible sont imposées par le parcours du faisceau primaire d'^{18}O dans le Carbone et par la taille du faisceau gaussien (diamètre à la base de 7mm) : on prendra donc un cylindre en Carbone de 10mm de long sur 7mm de diamètre.
- la deuxième cible dite cible de diffusion, (figures V-3 et V-4) arrêtant les atomes produits par fragmentation du projectile, sera chauffée à une température de l'ordre de 2200K à l'aide d'un chauffage externe. Sa longueur est imposée par le parcours du ^{11}Li à 75MeV/A soit 25mm.

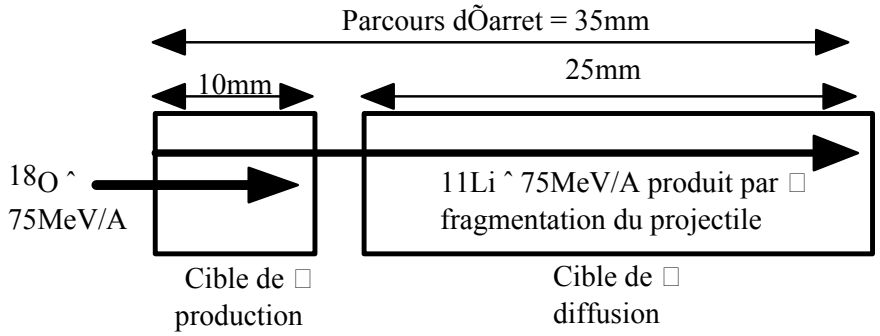


Fig. V - 3 – *Schéma des cibles de production et de diffusion pour le premier ensemble MONOLITHE.*

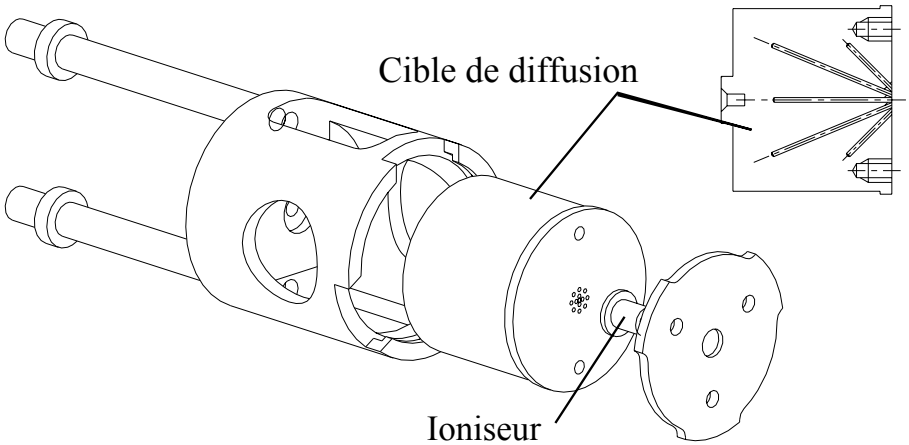


Fig. V - 4– *Cible de diffusion du premier ensemble MONOLITHE et son ioniseur*

Le matériau des cibles est du carbone 1µm de POCO Graphite. Rappelons que pour minimiser le parcours entre la cible et la source d'ionisation, nous avons fait le choix d'une source à ionisation de surface en tungstène oxydé W-Ox (dont le travail de sortie est ϕ=6.24eV) tel que nous l'avons défini dans le chapitre I (§I-3-2).

En première approche, pour favoriser l'effusion et guider les atomes vers la source, des petits canaux de 1mm de diamètre ont été creusés dans la cible (figure V-4) et convergent vers l'ioniseur en W-Ox.

V-2 Premiers tests

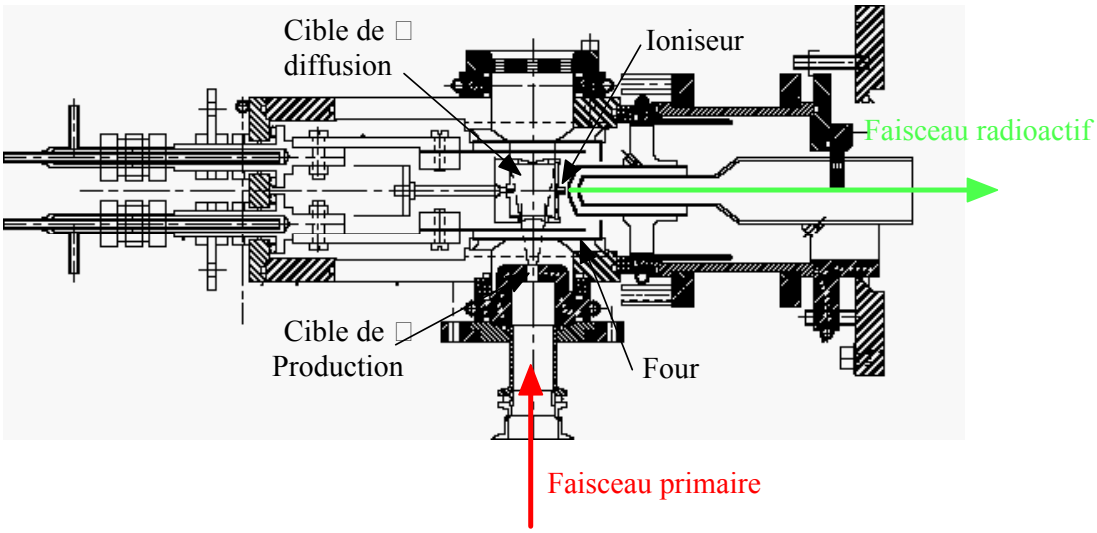


Fig. V - 5– *Premier ensemble cible source dédié aux alcalins radioactifs : MONOLITHE*

V-2-1 Tests hors ligne

Des premiers tests hors ligne ont été réalisés avec un tel ensemble (figure V-5).Pour atteindre une température de 2050K dans la cible sur SIRa, il a fallu apporter une puissance de 5kW sur le chauffage externe. L'ioniseur utilisé est en tungstène oxydé W-Ox. Pour l'oxyder, nous l'avons chauffé à l'air afin de créer une couche d'oxyde en surface. La figure V-6 montre un spectre réalisé hors ligne sur SIRa lors du dégazage de l'ensemble cible source.

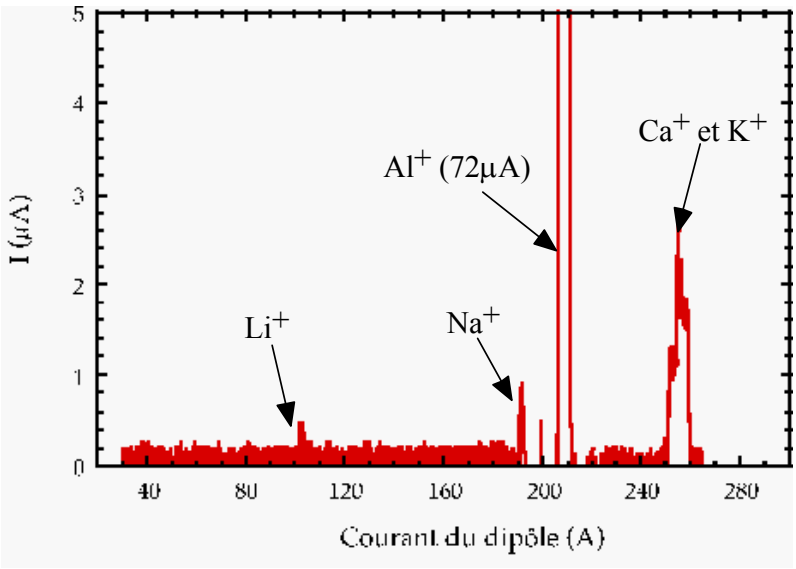


Fig. V - 6– *Spectre obtenu hors ligne lors du dégazage de l'ensemble cible source MONOLITHE grâce aux impuretés résiduelles.*

Nous avons obtenu, en stable, grâce aux impuretés résiduelles, un pic correspondant au Lithium de 0.5µAe et un pic correspond à l'aluminium (I=5.99eV) de 72µAe. Cette première étape montre la faisabilité de l'ensemble. Ne connaissant pas les taux d'impuretés dans la cible, nous ne pouvons en déduire l'efficacité d'ionisation d'un tel système.

V-2-2 Mesure du travail de sortie.

Pour mesurer l'efficacité d'ionisation du carbone, nous pouvons utiliser une méthode intermédiaire qui nous permettra de connaître le travail de sortie du carbone POCO Graphite.

Dans le cas de molécule d'hallogénure du type LiX, l'équation de Saha Langmuir (équation I-24) est valable à condition de prendre le potentiel de dissociation de la molécule LiX et non le potentiel de première ionisation du Li. Dans ce cas l'équation devient [Suz-95] :

$$\frac{N_+}{N_0} = A\exp\left(\frac{-e\varepsilon}{kT}\right) \qquad \textbf{(V- 1)}$$

où $\varepsilon = I_{dis} - \phi$ avec I_{dis} le potentiel de dissociation de la molécule et ϕ le travail de sortie de la source.

Le principe est résumé sur la figure V-7.

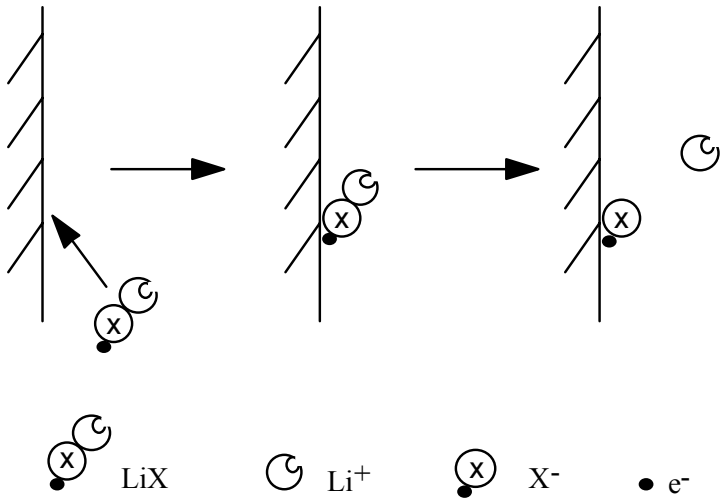


Fig. V - 7 – *Processus d'ionisation de surface avec une molécule LiX* [Suz-95].

La vapeur de LiX entre en contact avec une surface chaude. L'électron se colle alors sur cette surface et se partage entre l'halogène X et la surface. Ensuite, le cation Li^+ est désorbé de la surface.

Ainsi, en utilisant une poudre de LiI dont on connaît l'énergie d'ionisation dissociative (6.11eV), en mesurant l'efficacité d'ionisation du carbone, nous pourrons en déduire et vérifier le travail de sortie du carbone POCO Graphite.

Cette expérience, facile à réaliser, est en cours d'étude pour être installée sur un banc de tests.

V-2-3 Mesure d'efficacité de l'ensemble sur une cible "cheveux".

La cible bloc définie ci dessus (figure V-4) a été réalisée avant d'avoir eu connaissance des problèmes d'effusion dans un bloc (§ IV-2-2-1). Cette expérience de diffusion de l'^{6}He dans du carbone, nous a montré que l'effusion (ξ_{eff}= 55 %) est non négligeable, dans le cas d'un gaz rare de durée de vie $T_{1/2}$= 806 ms, implanté à 5 mm dans un bloc de carbone de 5cm. Pour le ^{11}Li qui est d'une part un condensable, et d'autre part de très courte période ($T_{1/2}$=8.7ms), il est évident qu'un bloc est loin d'être approprié pour une cible de diffusion.

G.D. Alton [Alt-96], au laboratoire d'Oak Ridge, utilise des cibles sous forme de cheveux de carbone. Nous avons donc mesuré les efficacités de diffusion effusion et d'ionisation dans une telle cible.

Nous avons décidé d'implanter, dans la cible cheveux pour MONOLITHE, un faisceau de ^{20}Na ($T_{1/2}$=447 ms) et ^{21}Na ($T_{1/2}$= 22.48s) fournis par l'installation SISSI du GANIL. Cet élément possède un potentiel de première ionisation de 5.14 eV, il est donc plus facile à ioniser. Un résultat négatif avec le ^{11}Li ne nous aurait pas permis de conclure si le problème venait de la diffusion ou de l'ionisation car il est plus difficile à ioniser avec son potentiel de première ionisation de 5.39 eV.

La cible de diffusion a été réalisée avec des cheveux de carbone de 7 µm de diamètre bobiné autour d'un châssis et placée dans un container, chauffé à environ 2200K par un four extérieur dont la puissance était de 6kW.

L'expérience a montré :

- une variation d'efficacité de "diffusion effusion ionisation" en fonction de l'épaisseur d'implantation : au début d'expérience , elle était de l'ordre de 10 % pour des Sodiums radioactifs ^{21}Na, produits par SISSI et implantés en milieu de cible puis elle a atteint une efficacité de l'ordre de 50 % pour ceux implantés en bord de cible. Les cheveux semblent retarder la sortie des atomes de Sodium radioactifs hors de la cible bien que les durées de vie des noyaux de Sodium utilisés soient relativement longues.
- au court du temps, les intensités de ^{21}Na ont baissées pour une même implantation dans la cible.

Cependant ces chiffres sont à prendre avec précaution : en effet une perte d'efficacité d'un facteur 2 a été brutalement observée lors de l'expérience. Cette perte semble être liée à une variation entre le taux de noyaux de Sodium radioactifs produits par SISSI et la valeur de l'intensité primaire qui nous sert de normalisation à la sortie du deuxième cyclotron CSS2 de GANIL. Une panne sur la cible de l'installation SISSI ne nous a pas permis de confirmer ces efficacités.

La baisse des intensités de ^{21}Na ne peuvent pas être confirmée par une mesure de l'efficacité d'ionisation des gaz résiduels de l'ensemble puisque la cible a été chauffée pendant plusieurs jours, les impuretés se sont raréfiées par dégazage.

Lors du démontage, nous avons observé que l'ioniseur en W-Ox se réduit chimiquement à haute température. Le travail de sortie du tungstène pur est seulement de 4.5 eV contre 6.24 eV pour le W-Ox, dégradant ainsi l'efficacité d'ionisation de la source.

Ce phénomène est illustré par la figure V-8 [Kaw-95][Kaw-98] qui représente la variation du travail de sortie apparent du tungstène et d'autres matériaux en fonction de la température.

A basse température, le tungstène est oxydé dû à la présence des gaz résiduels du milieu et plus particulièrement de l'oxygène. Dès que l'on augmente la température, le tungstène se réduit chimiquement et l'oxygène disparaît peu à peu. La surface du tungstène à haute température (2000K) est alors considérée comme propre de toutes impuretés et son travail de sortie chute alors à une valeur de l'ordre de 4.5 eV.

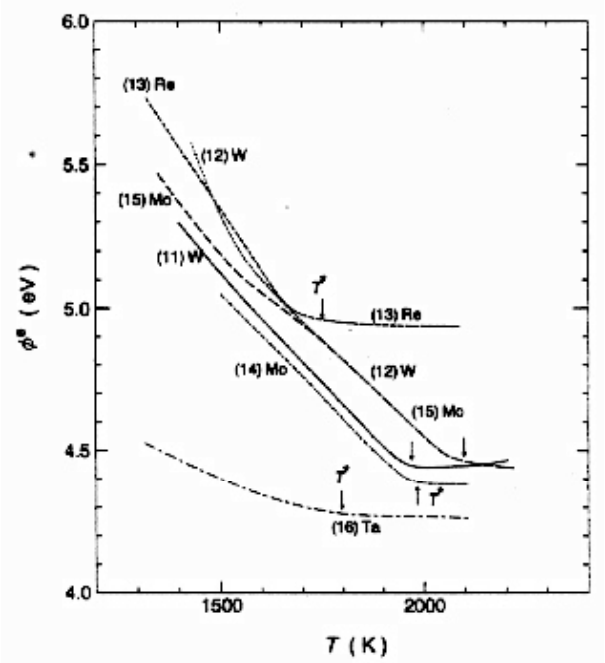


Fig. V - 8 – *Travail de sortie apparent ϕ^e de divers matériaux en fonction de la température* [Kaw-95].

Un flux d'Oxygène injecté dans l'environnement au niveau du ioniseur, pour garder le tungstène oxydé, est utilisé pour certaines sources à ionisation de surface [Wol-95]. Dans notre cas, son utilisation est prohibée car l'ensemble possède de nombreuses pièces en carbone dont la cible. A 2000K, la réaction "$C+O_2$" donne CO_2 et détériore les pièces en Carbone. Le tungstène oxydé W-Ox n'est donc pas un matériau utilisable dans le cas d'ensemble cible source en carbone chauffé à 2000K.

Cette expérience nous conforte cependant dans l'idée qu'il est indispensable d'utiliser une cible ayant des lamelles (comme cela avait déjà était vu dans les chapitres précédents) plutôt qu'une cible en bloc (où la diffusion est mauvaise) ou "à cheveux de carbone" dont la plus faible densité engendre un grand volume pour la cible de diffusion.

Au regard de ces observations, nous avons donc choisi d'utiliser directement le carbone comme ioniseur dont le travail de sortie est de 5 eV [Rob-74] [Stö-99]. Il est vrai qu'il est moins efficace que le Rhénium ou le Platine. Mais le ioniseur se trouve dans un milieu très carboné par l'évaporation des pièces de l'ensemble (cibles, container et four externe). Il a donc de forte chance de subir une activation donc une contamination de la surface du ioniseur par dépôt de carbone. Le travail de sortie apparent devient alors plus faible que le W-Ox en surface, diminuant son efficacité d'ionisation. L'avantage d'utiliser du carbone comme ioniseur élimine ce problème d'activation des sources à ionisation de surface.

V-3 Version cavité chaude

V-3-1 Cahier des charges

Au vu des divers résultats sur la diffusion (problème d'effusion d'éléments de court temps de vie dans des lamelles épaisses de 1.5mm avec l'^{8}He par exemple (§IV-3-4)), nous avons abandonné la cible de diffusion en bloc telle qu'elle était décrite au §V-2 (figure V-5) et la cible en cheveux. Nous nous sommes orientés vers une cible de diffusion à lamelles. La cible de production cylindrique ne change pas par rapport à la première version, les dimensions sont de 10mm de long pour 7 mm de diamètre.

Par contre, nous avons fait le choix de perdre 10% en production en utilisant un faisceau d'^{18}O à 63 MeV/A (et non plus 75 MeV/A) car nous diminuons de façon importante la taille de la cible de diffusion (seulement 26 mm contre 35 mm pour arrêter le ^{11}Li). Ce changement, nous permet d'avoir des lamelles plus fines, soit une épaisseur de 0.5mm.

Si nous faisons le choix d'une cible de diffusion à lamelles, nous devons adapter un container externe pour contenir les atomes radioactifs et les "guider" jusqu'au ioniseur. Ce même container devra tenir à l'intérieur du four externe. Les dimensions de la cible de diffusion vont donc être imposées d'une part par le parcours du ^{11}Li à 63 MeV/A en sortie de la cible de production soit **16 mm** de carbone et d'autre part, par les dimensions du four externe (Φ=42 mm) et par conséquent du container entourant la cible de diffusion, ainsi que de la dispersion angulaire (10°). Nous garderons les mêmes dimensions de four qu'auparavant. La cible de diffusion aura donc **32 lamelles de 0.5 mm** d'épaisseur. L'espace entre les lamelles sera de **0.8mm**. L'angle dû à la dispersion angulaire est de ± 10°. L'ioniseur aura un diamètre intérieur de 5 mm.

Dimensions (mm)	Four externe	Container	Cible de diffusion
Diamètre	42	32	$\phi_{max} = 28$
Longueur effective	60	48	42
Epaisseur	0.5	1	0.5mm

Tab. V- 5– *Dimensions du four, du container et de la cible de diffusion.*

L'utilisation du container et du ioniseur en carbone, nous a permis de développer une source de type "cavité chaude". Ainsi l'ioniseur est utilisé comme un tube transfert pour guider les ions au regard de l'électrode d'extraction et l'ensemble du container, du ioniseur et de la cible est utilisé comme source d'ionisation à cavité chaude.

V-4-2 Principe de fonctionnement d'une source à cavité chaude

Une source à ionisation de surface telle que nous l'avons décrite au chapitre I, est régie par la loi de Saha-Langmuir (équation I-24), pour laquelle nous obtenons une efficacité d'ionisation théorique de 5% pour le Lithium avec un ioniseur en carbone (figure I-16) et ce, à une température de 2000K. R. Kirchner [Kir-90] a montré que l'on pouvait améliorer l'efficacité d'ionisation dans une cavité chaude par rapport à une ionisation de surface.

Une source à cavité chaude est basée sur le même principe de fonctionnement qu'une source à ionisation de surface. [Wol-95] L'efficacité d'ionisation peut être améliorée, par un facteur N, dès lors qu'un atome est piégé dans la cavité, il collisione alors plusieurs fois avec les parois avant de sortir par l'orifice prévu à cet effet dans la cavité.

Ce facteur multiplicatif N est lié au nombre de collisions que fait l'atome pour sortir de la cavité par l'orifice. Ainsi le degrés d'ionisation en surface est multiplié par N :

$$\alpha_{vZ} = \alpha_{sZ}\, N \qquad \textbf{(V- 2)}$$

où α_{vZ}, α_{sZ} sont respectivement les degrés d'ionisation d'une cavité chaude et d'une surface.

La loi qui régit l'efficacité d'ionisation d'un élément Z dans les conditions de thermo-équilibre devient alors :

$$\eta_Z = \frac{\beta_Z N}{1 - \beta_Z (1 - N)} \qquad \textbf{(V- 3)}$$

avec $N = \omega\, \kappa$ où ω est la probabilité que tous les atomes sortent ionisés de la cavité et κ est le nombre de collisions moyen pour sortir de la cavité par l'orifice prévu à cet effet. κ est donc le rapport des surfaces de la cavité sur la surface de l'orifice.

R. Kirchner a montré que ω augmente [Kir-90] avec la température et avec la densité de neutre au sein de la cavité. Ainsi l'ajout d'un gaz rare tel que le Xénon dans la cavité, qui ne contribue pas à la charge d'espace, car son travail de sortie est trop élevé, provoque l'augmentation de la pression totale et donc du nombre de collision et par conséquent de l'efficacité d'ionisation.

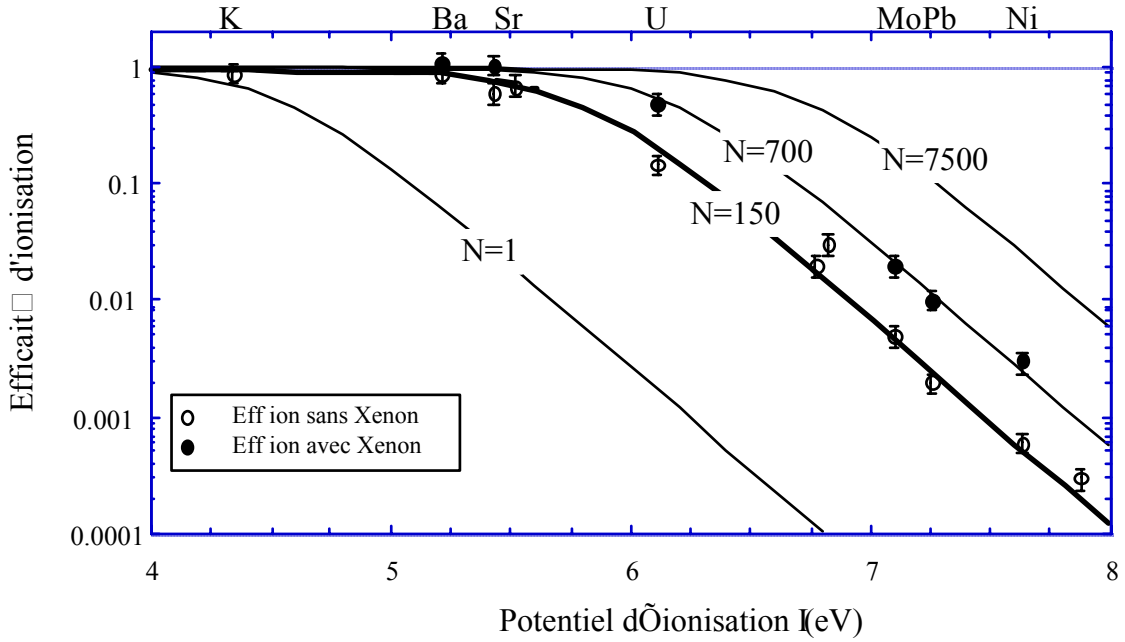


Fig. V - 9- *Efficacité d'ionisation en fonction du potentiel d'ionisation, dans une cavité chaude. Les cercles ouverts correspondent aux mesures d'efficacité effectuées avec une cavité en W à 3000K sans Xénon et les cercles pleins avec Xénon (10^{-3} cm^3/s). Cette source correspond à une valeur de N=150 (soit ω=0.214) sans Xénon et à un N=700 soit ω=1 avec Xénon. Le cas N=1 correspond à une simple source à ionisation de surface.*[Kir-90].

Expérimentalement, comme le montre la figure V-9, Kirchner a obtenu une valeur de ω de 0.214 (N=150) pour une cavité en W à 3000K et a obtenu une valeur de ω de 1 (N=700) en injectant du Xénon dans la cavité. La valeur N=1 correspond au cas d'une source à ionisation de surface (nombre de collision=1). Le cas N=7500 correspond aux conditions à l'équilibre thermique. Pour N=150, on obtient alors une amélioration de l'efficacité d'ionisation d'un facteur de l'ordre de 40 pour le Lithium (5.39eV) par rapport à une simple ionisation de surface (N=1). Dans ce cas, cette même figure V-9 montre qu'il n'est pas utile d'ajouter du Xénon pour l'ionisation du Lithium car on n'améliore quasiment pas l'ionisation.

Cette source a les mêmes avantages qu'une source à ionisation de surface, c'est à dire une très grande sélectivité car la plupart des éléments ont un potentiel de première ionisation élevé et ne peuvent donc pas être ionisés par une telle source.

V-4-3 Faisabilité thermique de l'ensemble MONOLITHE

La nouvelle version de l'ensemble MONOLITHE est définie comme sur la figure V-10.

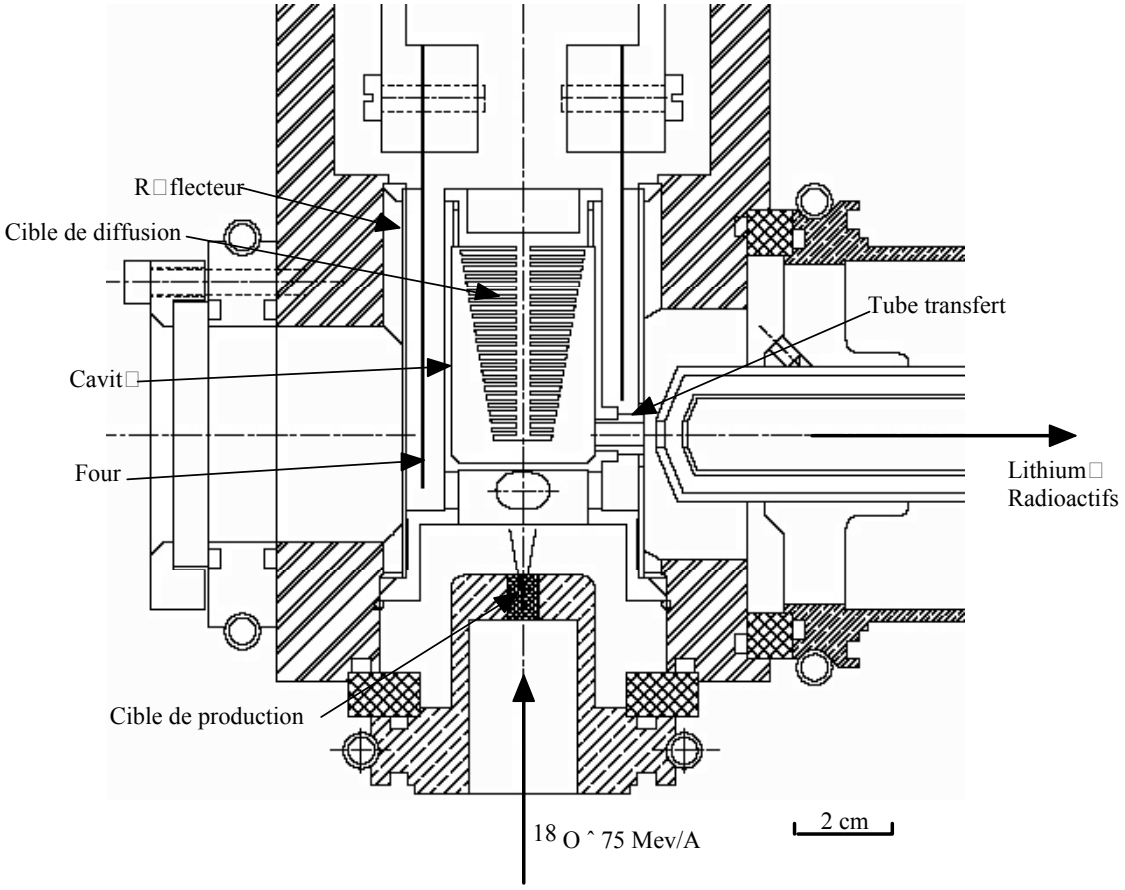


Fig. V - 10 - *Nouvel ensemble MONOLITHE – Version cavité chaude.*

Un réflecteur a été ajouté autour du four pour limiter les pertes de chaleur par rayonnement avec les parois de la boite refroidie.

Pour le passage du tube transfert en vis à vis des deux électrodes d'extraction, il a fallu modifier la résistance chauffante. Pour cela, nous avons raccourci une branche de la résistance. Il faut maintenant vérifier que, dans cette configuration, les conditions thermiques ne sont pas défavorables au niveau du tube transfert et sur l'ensemble cible-source. Une température plus froide pourrait retarder les alcalins par un temps de collage plus long.

Cet ensemble a été simulé avec le logiciel SYSTUS. La géométrie utilisée est présentée sur la figure V-11, où l'on voit à gauche de la figure, le four raccourci au niveau du tube transfert et sur la partie droite l'ensemble avec un réflecteur et les deux électrodes d'extraction.

Il y a rayonnement entre chaque partie de l'ensemble. L'électrode externe, en Carbone pyrolytique, et l'électrode interne, en Titane, sont refroidies par convection sur le bord extérieur pour la première et à l'arrière de l'électrode interne. La cible de production est refroidie pour dissiper la puissance déposée par le faisceau d'^{18}O de 2kW. Il n'est pas nécessaire que cette cible soit chaude car elle ne sert pas à la diffusion mais à la production.

Lors des simulations, nous avons simplifié cette cible par une surface rayonnante à 2100K en présence de faisceau et à 300K en l'absence de faisceau primaire.

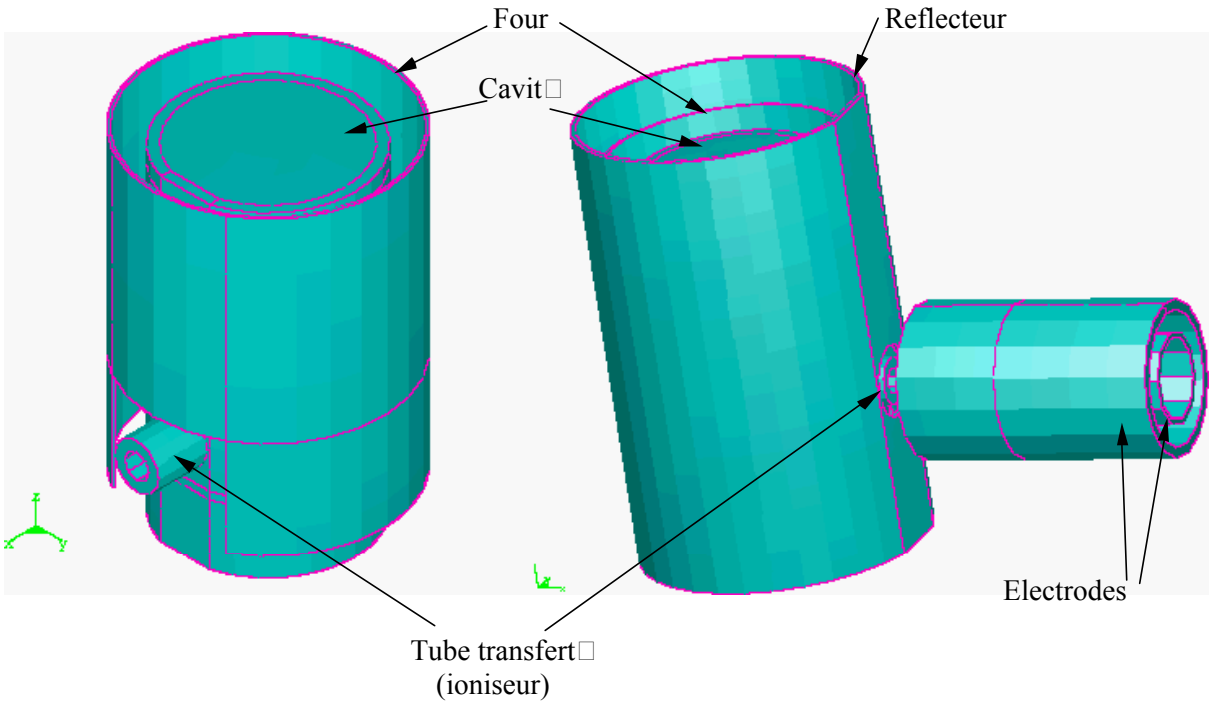


Fig. V - 11 – *Géométrie de l'ensemble MONOLITHE utilisée pour les simulations avec le logiciel SYSTUS.*

Les résultats graphiques des calculs sont présentés en annexe F. Le tableau V- 6 résume ces résultats.

Puissance four (kW)	Cible de Production (K)	$T_{\text{cible de diffusion}}$ (K)	$T_{\text{tube transfert}}$ (K)	T_{four} (K)
5	**300**	Min =**1955** Max =2135 Moy = **2063**	Min = 2104 Max =2138 Moy = **2123**	Min =2078 Max =**2258** Moy = 2185
5	**2100**	Min =**2000** Max =2230 Moy =**2145**	Min =2230 Max = 2240 Moy =**2237**	Min =2157 Max =**2300** Moy = 2250
6	**2100**	Min =**2075** Max =2318 Moy=**2233**	Min =2320 Max =2330 Moy=**2327**	Min =2250 Max =**2410** Moy=2350

Tab. V- 6 – *Résultats des simulations SYSTUS pour l'ensemble MONOLITHE avec une température de la cible de production à 300K (absence de faisceau primaire) et à 2100K (faisceau ^{18}O à 2kW).*

Avec une puissance de chauffage de 6kW, la cible de diffusion a une température moyenne de 2200K avec un minimum à 2075K, pour une température maximale du four de 2400K. D'après les problèmes sur l'hétérogénéité de température soulevés dans le chapitre III (§III-3-2-5), une température homogène dans la cible grâce au four externe ne peut

qu'améliorer la diffusion. Le tube transfert a une température de 2300K, ce qui ne pose aucun problème car cette partie n'est pas plus froide que l'ensemble de la cavité.

V-4-4 Les problèmes de diffusion et d'effusion

Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, la connaissance des problèmes de diffusion et d'effusion est primordiale pour les éléments de court temps de vie. L'effusion est d'autant plus importante dans le cas de l'ensemble MONOLITHE, car nous sommes en présence d'éléments alcalins et donc de condensables. Dans l'hypothèse où il n'y a pas de liant entre les grains de carbone mais du vide, on ne pourra plus négliger le temps de collage sur les grains lors de la sortie hors de la cible, ni sur les parois de la cavité chaude. De plus, le ^{11}Li a un temps de vie de 8.7 ms, il faut donc minimiser le temps de sortie du Lithium de la cavité jusqu'aux électrodes.

Nous avons très peu de données concernant la diffusion du Lithium dans le graphite. F. Schmitt et al. [Sch-00] ont réalisé une expérience en implantant un faisceau de ^{7}Li accéléré à 5.6MeV par le LINAC de GSI dans des feuilles de carbone [Kir-00]. Le carbone utilisé était un carbone polycristallin de POCO Graphite dont la taille des grains est de 3µm et une porosité ouverte de 20 %. L'épaisseur des échantillons était de 100 et 200µm.

Une courbe d'efficacité de sortie a été réalisée pour différentes températures de la cavité chaude (figure V-12). L'efficacité de sortie du ^{7}Li a été mesurée en fonction du temps de vie après l'ionisation des atomes par la cavité chaude et après la séparation par le spectromètre de masse.

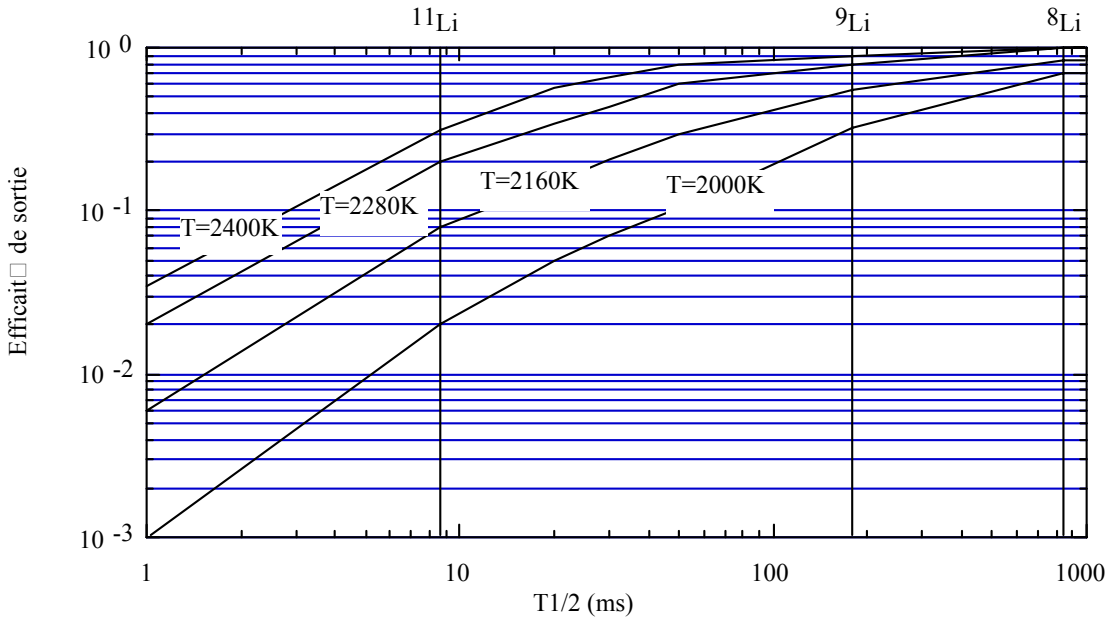


Fig. V - 12 – *Efficacité de sortie du Lithium hors de la cavité chaude pour différentes températures. Un faisceau de ^{7}Li est implanté dans une feuille de carbone de 100 µm* [Sch-00].

En reprenant les données de F. Schmitt (figure V-12), on peut alors tracer l'efficacité de sortie des ^{8,9,11}Li en fonction de la température de la cavité (figure V-13).

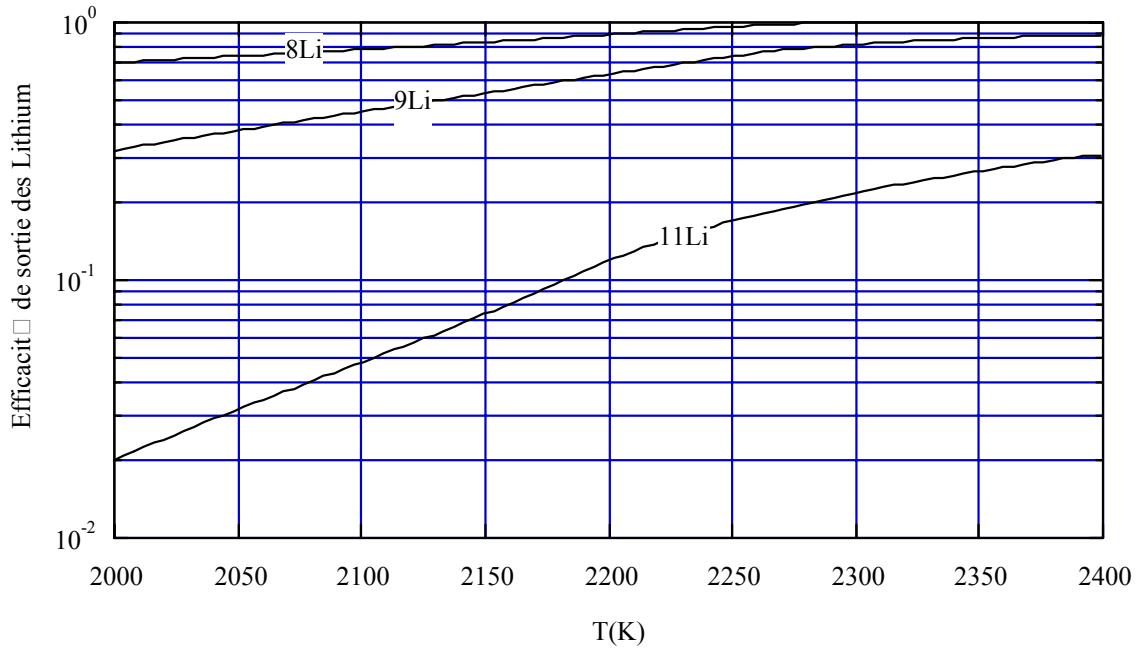


Fig. V - 13 – *Efficacité de sortie du Lithium hors de la cavité chaude en fonction de la température de la cavité. Les lamelles utilisées ont une épaisseur de 100µm.*

Pour le ^{11}Li, dans les conditions de l'expérience de F. Schmitt avec une épaisseur de carbone de 100µm, on peut espérer une efficacité de sortie supérieure à 20% pour une température T ≥2300K.

V-4-4-1 Première approche

D'après la figure V-13, l'efficacité de sortie du ^{11}Li est de l'ordre de 5 % à 2100K avec une épaisseur de carbone de 100 µm. Dans notre cas, avec des lamelles de 500µm et un carbone POCO de 1µm, au vue de nos travaux sur la diffusion effusion dans les lamelles, on peut espérer tout au plus, une efficacité de sortie de l'ordre du pourcent. Mais il ne s'agit ici, que d'une approximation grossière, car il est difficile d'extrapoler [Kir-00] lorsque l'on n'est pas dans les mêmes conditions d'expérience, que l'on n'a pas le même carbone (taille de grains différente : 1µm contre 3µm, porosité différente : 16 % contre 20 %), ni la même épaisseur de feuille (500µ contre 100µm).

V-4-4-2 Deuxième approche

Afin d'obtenir un ordre de grandeur maximum de l'efficacité de diffusion du Lithium, on a effectué un calcul, en supposant que le lithium a les mêmes caractéristiques qu'un gaz rare. On peut alors extrapoler la courbe des coefficients d'Arrhenius pour les gaz rares au Lithium, dans du graphite (figure IV-6) soit des coefficients d'Arrhenius E_a=12eV et

$LogD_0$=-8cm^2.s^{-1}. L'efficacité de diffusion du Lithium dans du graphite 1µm est (équation I-11) au mieux de l'ordre de 18%.

Par des simulations Monté Carlo, nous pouvons estimer quel est le nombre de collisions nécessaires pour un atome de Lithium pour sortir d'une cavité chaude. R. Lichtenthäler a développé un code de calcul adapté à la géométrie des cibles de SPIRAL (à lamelles et conique, voir annexe G). Le résultat de ce calcul avec des lamelles de 500µm d'épaisseur, espacées de 0.8mm, donne un nombre moyen κ de l'ordre de 800 collisions pour sortir de la cavité. Si l'on se réfère à l'équation de Frenkel (I-15) $\tau_a = \tau_0 e^{\frac{H_a}{kT}}$ avec une enthalpie H_a=3.6eV et une constante τ_0=2.54 10^{-15} (valeur pour le Lithium sur le Tantale), on obtient un temps moyen de collage τ_a=9.6 10^{-6} s, soit une efficacité d'effusion entre la cible et la sortie de la cavité de 3.2 %.

L'efficacité de diffusion effusion sera alors de l'ordre de 0.58 %.

Calculons maintenant une estimation de l'efficacité d'ionisation. Le nombre moyen de collisions pour sortir de la cavité MONOLITHE (figure V-10) est de l'ordre de κ=800 (calcul Monté Carlo). L'efficacité d'ionisation de surface β_Z du Lithium (I=5.39eV) sur du Carbone (Φ=5.0eV) à 2200K est de 6% (équation I-24). Si l'on prend la valeur trouvée par R. Kirchner de la probabilité de sortie ω pour du tungstène de l'ordre de 0.214 (figure V-9) on obtient alors N=170 dans notre cas. D'après l'équation V-3, on en déduit une efficacité d'ionisation de la cavité chaude de 91 % si la température de la cavité est de 2200K.

Si l'on prend en compte l'efficacité de diffusion de la cible de carbone 1µm (18%), l'efficacité d'effusion dans la cavité chaude (3.2%) et l'efficacité d'ionisation attendue avec du carbone (91%), on obtient une efficacité totale de sortie de l'ordre de **0.5%.** Cette valeur est en accord avec l'extrapolation faite avec les données de F. Schmitt (figure V-13) où l'on estimait une efficacité de sortie de l'ordre du pourcent pour des épaisseurs de cible de 500µm.

Le code SIGMA_SIRA permet d'estimer le taux de production du ^{11}Li dans la cible de carbone avec un faisceau d'^{18}O à 75MeV/A (I=1.48µAp) à 2kW. Avec une efficacité de sortie estimée à 0.5%, on peut espérer avoir un taux de $^{11}Li^{1+}$ de l'ordre de **5.5 10^3pps**. Les taux attendus pour le ^{11}Li restent honorables par rapport aux possibilités des autres laboratoires (Tableau V-3) sachant que nous ne travaillons pas avec les mêmes intensités de faisceau primaire.

V-5 Perspectives

Cet ensemble cible source est en cours de réalisation et devrait être testé en ligne sur SIRa d'ici la fin de l'année 2001.

Au cas où le travail de sortie du carbone 1µm de POCO soit plus faible que la valeur de 5 eV donnée dans la littérature, il sera possible de changer le tube transfert en carbone par un tube en composé Iridium+Carbone où ϕ=5.29eV. Ce type de ioniseur a déjà été utilisé par G.D. Alton [Alt-98].

Cet ensemble semble adapté à la production de faisceaux radioactifs de Sodium et de Potassium qui peuvent être produits, au GANIL, par fragmentation du ^{24}Mg (pour les Na déficients en neutrons, ^{20,21,22}Na), du ^{36}S (pour les Na riches en neutrons, $^{24...31}$Na), du ^{40}Ca (pour les K déficients en neutrons, $^{35...38}$K). Il suffit d'enlever la cible de production. Le tableau V-7 présente les calculs des parcours d'arrêt des faisceaux primaires et des noyaux d'intérêts. On voit que la taille de la cible de diffusion est adaptée à la production et à l'arrêt des isotopes de Sodium et Potassium produits par fragmentation, ainsi qu'à l'arrêt des faisceaux primaires correspondants.

Réaction	Energie du faisceau primaire (MeV/A)	Parcours d'arrêt du faisceau primaire (mm)	Parcours d'arrêt de l'isotope produit le plus lourd (mm)
^{24}Mg+^{12}C → ^{20,21,22}Na	70	4.3	4.7 (^{22}Na)
	95	7.4	8 (^{22}Na)
^{36}S+^{12}C → $^{24,..,31}$Na	77.5	4.4	7.9 (^{31}Na)
^{40}Ca+^{12}C → $^{35,..,38}$K	50	1.5	1.5 (^{38}K)
	95	4.5	4.7 (^{38}K)

Tab. V- 7 – *Parcours d'arrêt du faisceau primaire et des noyaux d'intérêts dans le cas d'une adaptation de la cible MONOLITHE.*

La majorité des noyaux d'intérêts s'arrête près de la zone où s'arrête le faisceau primaire et donc dans la zone chauffée par le dépôt de puissance du faisceau primaire. La cible sera principalement chauffée par le faisceau incident. Le four externe servira de chauffage annexe si la puissance du faisceau primaire est insuffisante. Une étude thermique est en cours de réalisation pour définir quelle puissance maximale de faisceau primaire, la cible peut subir sans que la température maximale ne dépasse 2450K sur les lamelles.

L'ensemble MONOLITHE est tout à fait utilisable sur Parnne2 pour la production de faisceaux de Rubidium et Césium riches en neutrons produits par la fission induite par des neutrons rapides aux puissances du Tandem. La première cible de Carbone (appelée cible de production dans cette thèse) peut servir de convertisseur de neutrons tandis que la deuxième cible (cible de diffusion) en lamelles de carbone peut être changée par une cible en UCx.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit une première étape de la réalisation d'un ensemble cible source pour la production d'alcalins radioactifs. Il est vrai que nous nous sommes attachés à l'optimisation du ^{11}Li, car c'est l'élément le plus difficile à produire dû à sa courte période et à son potentiel d'ionisation élevé.

Nous avons pris bénéfice du nombre de collisions nécessaires pour sortir de la cavité pour améliorer l'efficacité d'ionisation du Lithium. En contre partie cette amélioration amène aussi une augmentation du temps de présence dans la cavité, ce qui est très pénalisant pour les éléments de très courtes périodes.

Nous avons fait le choix d'arrêter tous les ^{11}Li dans la cible, engendrant une grande cible et donc un nombre important de collisions. Pour améliorer le temps d'effusion de l'ensemble, il faut diminuer la taille de la cible, aux risques de perdre une partie des ^{11}Li et de diminuer le nombre de collision et donc l'efficacité d'ionisation.

Dans le cas où les temps d'effusion dans la cavité chaude seraient trop long par rapport à la période du ^{11}Li, une autre possibilité pour les isotopes de Lithium serait d'utiliser une cible adaptée directement au bord de la chambre de la source ECR MONO1000 [Jar-00][Lec-01][Ler-99]. Cette source 1+ a l'avantage de posséder une chambre d'ionisation de grand volume, où les entrées au niveau de cette chambre ont une grande conductance. Si l'on adapte une cible au niveau d'une des entrées, on limite alors le nombre de collisions et par conséquent le temps d'effusion entre la cible et la source.

L'avantage de MONOLITHE est son faible coût et son faible encombrement pour la gestion des déchets respectant les principes du projet 1+/N (i.e. minimiser le volume et le coût des ensembles 1+ irradiés dans la casemate de production qui seront changés régulièrement). De plus, le fait d'avoir un ensemble constitué essentiellement de carbone, évite la contamination par évaporation du carbone sur la surface d'un ioniseur fait avec un autre matériau dont le travail de sortie plus élevé deviendrait plus faible (activation des sources à ionisation de surface).

Cet ensemble est capable de produire d'autres faisceaux d'alcalins radioactifs, en choisissant le meilleur faisceau primaire pour optimiser la production.

Lors du premier test en ligne sur SIRa, outre les taux de production, il serait intéressant de réaliser une mesure de diffusion effusion par la méthode des temps de montée afin de déterminer l'efficacité de diffusion effusion pour les différents isotopes du Lithium.

Cet ensemble, en cours de réalisation, pourrait être testé avec un faisceau de ^{24}Mg à 400W permettant de produire les ^{20}Na ($T_{1/2}$=447ms) et ^{21}Na ($T_{1/2}$=22s) et ^{8}Li ($T_{1/2}$=838ms), ^{9}Li ($T_{1/2}$=178ms). Pour cela, nous n'utiliserons que la cible dite de diffusion comme cible de production. La première cible dite de production sera enlevée. Nous n'utiliserons alors pour la production des Lithiums 8 et 9, que la fragmentation de la cible. Pour la production des Sodiums 20 et 21, nous utiliserons alors la fragmentation du projectile. Par la méthode des temps de montée, ces faisceaux radioactifs devraient nous permettre de mieux comprendre la part prise par les efficacités de diffusion effusion et d'ionisation en jouant sur le choix de l'élément (Na ou Li) et de leur temps de vie même si ce faisceau de ^{24}Mg n'est pas l'optimum pour la production du Lithium. Nous attendons les premiers résultats pour confirmer les hypothèses émises dans ce chapitre sur les différentes efficacités.

CONCLUSION GENERALE

Bilan

Dans le cadre du projet SPIRAL, cette thèse a été réalisée avec l'objectif de mettre au point plusieurs ensembles de production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL (Isotopic Separation On-Line). Il a été nécessaire de bien comprendre chaque étape dans le but d'optimiser la production de ces faisceaux radioactifs (la production, la diffusion, l'effusion et l'ionisation), et de développer de nouveaux ensembles cible source.

Après avoir posé les bases théoriques pour chacune de ces étapes, nous avons pu définir, améliorer et/ou fiabiliser différents ensembles cible source. Trois ensembles ont ainsi été étudiés dans ce travail de thèse :

- amélioration et fiabilité de l'ensemble cible source dédié à la production des isotopes radioactifs d'Argon et de Néon : tenue thermique longue durée, amélioration de l'efficacité de diffusion effusion et par conséquent du taux de production en choisissant un carbone de microstructure 1µm.
- conception complète de la cible dédiée à la production des faisceaux des isotopes radioactifs de l'Hélium (de la définition du cahier des charges jusqu'aux tests en ligne sous faisceau primaire de ^{13}C de puissance 400W et aux tests de tenues thermiques hors ligne).
- études, définition du cahier des charges et conception de l'ensemble cible source pour la production de faisceaux d'alcalins radioactifs monochargés (MONOLITHE : MONOchargés de LITHium Exotique).

Pour optimiser la production par la fragmentation de la cible, une étude bibliographique nous a amené à faire un choix approprié parmi les matériaux réfractaires. Cette partie qui est plutôt descriptive, nous a été nécessaire pour mieux comprendre et aborder les problèmes

rencontrés dans cette thèse. Des calculs avec le code SIGMA_SIRa ont permis de faire le choix du meilleur couple cible / projectile pour la production : le Carbone polygranulaire (1 et 4µm) et le Carbure de Bore B_4C sont de bons prétendants comme matériau pour la cible de production. Après des expériences montrant les inconvénients du B_4C (faible efficacité d'effusion et fragilité thermomécanique), il s'est avéré que le carbone reste actuellement le matériau "universel" pour la conception des cibles de production pour SPIRAL.

Toutes les simulations thermiques réalisées avec les codes GANIL et SYSTUS ont présenté ces deux codes comme étant complémentaires. Ils nous ont permis de définir la forme et la taille des cibles de production et de diffusion, ainsi que le dimensionnement du four externe de MONOLITHE, en fonction du cahier des charges de chaque ensemble. Les deux cibles pour la production des gaz rares (Argon, Néon et Hélium) et le four de l'ensemble MONOLITHE ont ainsi été validés par des tests hors ligne sur le banc de chauffage.

Les différentes mesures réalisées sur le banc de tests SIRa ont montré l'amélioration importante des taux de production due à l'augmentation des efficacités de diffusion, à 2000K, avec un carbone composé de grains plus petits (1µm contre 4µm auparavant) comme attendu par la théorie, à l'exception toutefois de l'^{31}Ar ($T_{1/2}$=15ms) où nous n'avons rien observé.

D'un point de vue diffusion, nous avons observé un changement de régime de diffusion dans le carbone 1µm de POCO Graphite, alors que ce phénomène n'avait pas été observé dans les carbones 4 et 15µm de Carbone Lorraine. Ce résultat est inattendu, mais dans l'état actuel de nos connaissances et de nos mesures, des hypothèses peuvent uniquement être émises.

Les mesures de diffusion effusion par deux méthodes différentes (méthode directe et méthode par mesure du temps de monté) ont mis à jour l'importance de l'effusion pour les isotopes de court temps de vie. De ces mesures de diffusion effusion, nous avons déduit les coefficients d'Arrhenius de l'Argon et de l'Hélium dans du graphite 1µm, ainsi que les temps d'effusion du ^{17}Ne (τ_{eff}=75ms), et de l'^{8}He (τ_{eff}=80ms) pour une cible dont les lamelles font 500µm d'épaisseur. Nous avons montré, pour des isotopes de court temps de vie, l'importance de l'épaisseur des lamelles qui retarde la sortie de l'atome radioactif hors de la cible : un temps d'effusion τ_{eff} pour l'^{6,8}He de 135ms a été mesuré dans une cible dont les lamelles avaient une épaisseur de 1.5mm. L'utilisation de lamelles d'épaisseur de l'ordre de 500µm, voir inférieure, est conseillée si cela n'entraîne pas une augmentation trop importante de la taille des cibles. La limite inférieure est donnée par la réalisation et la tenue mécanique de celles ci.

Toutes ces mesures de diffusion effusion ont fait ressortir la nécessité d'avoir une température homogène au sein de la cible afin que les valeurs des coefficients d'Arrhenius ne soient pas ambiguës.

Le carbone, en plus d'être un bon matériau pour la production et la diffusion d'atomes radioactifs, semble être un bon ioniseur pour les sources à ionisation de surface prévues pour les alcalins (ϕ=5eV). Ainsi, dans le cadre de l'étude de l'ensemble MONOLITHE, nous avons

entièrement redéfini la conception de cet ensemble cible source en adoptant le principe d'une cavité chaude. Un gain de l'ordre d'un facteur 16 est attendu pour l'efficacité d'ionisation du Li^+.

Les taux de production, mesurés sur SIRa avec un faisceau incident de 400W, permettent d'estimer les taux attendus sur SPIRAL. Ces taux sont résumés en annexe C. Ils prennent en compte le gain de puissance ainsi que la transmission moyenne de CIME. Par contre, ils ne tiennent pas compte du fait que la répartition en température au sein de la cible n'est pas la même sur SIRa (avec un faisceau de 400W et un chauffage annexe) que sur SPIRAL (avec 2kW de faisceau sans chauffage annexe).

Perspectives

Toutes les études réalisées au cours de cette thèse ont permis de mieux appréhender chaque étape de la production des faisceaux radioactifs mais de nombreux travaux restent à réaliser :

- d'un point de vue production, une étude complète est à faire pour les éléments de temps de vie extrêmement court (<50ms) et notamment l'^{31}Ar ($T_{1/2}$=15ms).
- d'un point de vue thermique, le démarrage de SPIRAL permettra de valider la résistance des cibles avec un faisceau primaire de 2kW de puissance.
- d'un point de vue diffusion effusion, plusieurs mesures doivent être réalisées pour définir des abaques en fonction des épaisseurs des lamelles et des temps de vie des noyaux d'intérêts. Il faudra améliorer l'efficacité d'effusion. Pour cela plusieurs voies sont explorées : diminuer l'épaisseur des lamelles ou diminuer le parcours entre la cible et la chambre d'ionisation. Une mesure de diffusion effusion par méthode directe devrait être réalisée avec une cible en carbone 1µm et un chauffage externe. Cette étude, avec une température homogène dans la cible, permettra de confirmer et de mieux comprendre les phénomènes liés au changement de régime de diffusion observés dans le carbone 1µm en particulier. Il sera important de pouvoir déterminer pour des périodes inférieures à 50ms, quel carbone est le plus rapide entre le 1µm et le 4µm (compétition entre la diffusion et l'effusion).
- d'un point de vue ionisation, le premier test sous faisceau de l'ensemble MONOLITHE validera l'utilisation d'une cavité chaude en Carbone pour la production des alcalins et plus particulièrement du ^{11}Li.

À moyen terme, après le démarrage de SPIRAL, des études plus poussées sur le vieillissement du carbone sous irradiation devront être réalisées. En effet, après quinze jours d'irradiation sous faisceau primaire de 2kW, il est possible que la microstructure du carbone change (création de défauts par exemple) et engendre un changement dans les processus de diffusion effusion dans la cible de production, pouvant entraîner une variation des taux de production. Ainsi, chaque semaine, durant les périodes de fonctionnement de SPIRAL, il serait intéressant de réaliser des mesures de diffusion effusion par la méthode des temps de

montée, pour déterminer l'évolution de la cible due aux irradiations et aux vieillissements de celle ci. Ces mesures, utilisant le faisceau primaire, nécessitent peu de temps de faisceaux et peuvent être réalisées aisément sur la station d'identification IBE sans modifier les réglages de GANIL et de SPIRAL.

Ce travail de R&D sur les ensembles cible source a demandé des connaissances dans des domaines aussi divers et variés que :

- la physique nucléaire, la détection et l'acquisition de données
- la thermique et les transferts de chaleur
- l'étude des matériaux, des processus de diffusion et d'effusion
- la physique expérimentale (électricité, montage et conception de banc de tests, mesures physiques)
- l'utilisation de codes informatiques.

Les ingénieurs, techniciens et chercheurs travaillant sur les ensembles cible source sont souvent confrontés à faire des choix et des compromis à chaque étape de la production des faisceaux radioactifs. Des collaborations toujours plus étendues avec les autres laboratoires européens et internationaux sont nécessaires. Ces développements gagneraient en qualité et en temps, en multipliant les contacts avec les spécialistes des autres disciplines (principalement la physique des matériaux, de la diffusion thermique, et de la chimie…)

La communauté de la physique nucléaire doit prévoir les outils dont elle aura besoin dans l'avenir. Elle prépare son évolution à moyen et long terme [NuP-00]. Dans ce contexte, les laboratoires utilisant le GANIL sont déjà partie prenante, entre autre, dans les futurs projets : SPIRAL phase II [Sai-01] et EURISOL [EUR].

SPIRAL est mieux adapté à la production de faisceaux d'ions radioactifs soit légers, soit déficients en neutrons. Pour élargir la palette de faisceaux disponibles au GANIL, une extension à moyen terme est proposée pour produire et accélérer des faisceaux d'ions lourds radioactifs, riches en neutrons. Ce projet, SPIRAL phase II, basé sur un programme de R&D européen financé par l'Union Européenne, est coordonné par GANIL en collaboration avec d'autres laboratoires européens (Institut de Physique Nucléaire d'Orsay - France, Université de Jyväskylä - Finlande, Kernfysish Versneller Institut – Pays Bas et le Centre de Recherches du Cyclotron - Belgique). Ce projet devrait assurer aux utilisateurs du GANIL, une place importante dans le domaine de la physique nucléaire jusqu'en 2010.

En raison des développements technologiques nécessaires pour accéder à des faisceaux radioactifs de fortes intensités [Ben-01] [Mue-00_b], la communauté européenne des physiciens nucléaires prépare déjà pour le plus long terme, une machine de deuxième génération. De nombreux laboratoires européens, regroupés dans le cadre de la R&D EURISOL (EURopean Isotope Separation On-Line radioactive nuclear beam facility), définissent les caractéristiques principales et les besoins associés en équipements.

BIBLIOGRAPHIE

[Alt-92] G.D. Alton et al., *Studies of release properties of ISOL – target materials using ion implantation*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B66 (1992) 492-502.

[Alt-96] G. D. Alton, *Targets and ion sources for RIB generation at the Holifield Radioactive Ion Beam Facility*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 382 (1996) 207-224.

[Alt-98] G.D. Alton et al., *A new concept positive (negative) surface ionization source equipped with a high porosity ionizer*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 142 (1998) 578-591.

[And-98] T. André et al., *Recent developments for beam intensity increase operation*, Proceedings of the 15th Int. Conf. On Cyclotrons and their Applications, Caen, France (1998), p. 290, Ed. E. Baron and M. Lieuvin. Publisher : IOP.

[Ann-87] R. Anne et al., Nuclear Instruments and Methods A 257 (1987), 215.

[Ann-92] R. Anne and A.C. Mueller, *LISE3 : A magnetic spectrometer – wien filter combination for secondary radioactive beam production*, Nuclear Instruments and Methods B 70 (1992), 276-285.

[Ann-93] R. Anne, *On Line Isotopic Separator Tests Benches at GANIL*, IEEE Particle Accelerator Conference, New York, USA, Vol. 3, p. 1792-1794.

[Arn-87] E. Arnold et al., *Nuclear spin and magnetic moment of* ^{11}Li, Physics Letters B 197 (1987) 311-314.

[Ash-91] Kan Ashida et Kuniaki Watanabe, *Diffusion constants of tritium in graphites and compensation effect*, Journal of Nuclear Materials 183, (1991) 89-95.

[Bar-95] E. Baron and GANIL Staff, *Upgrading the GANIL facilities for high-intensity heavy ion beams (T.H.I. Project)*, proceedings of the 14th Int. Conf. On Cyclotrons and their Applications, Cape Town, South Africa (1995), p. 35. Ed. J.C. Cornell. Publisher : World Scientific.

[Bar-98] E. Baron and al., *Experience with high intensity operation of the GANIL facility*, Proceedings of the 15th Int. Conf. On Cyclotrons and their Applications, Caen, France (1998), p. 385, Ed. E. Baron and M. Lieuvin. Publisher : IOP.

[Ben-99] J. R. J. Bennet, *Predicted yields of selected radioactive nuclear beams from a thick target bombarded by high energy protons*, communication privé.

[Ben-01] J. R. Bennet and A. C. C. Villari, *The Production of Radioactive Ion Beams*, Rapport Européen FINA *Frontiers in Nuclear Physics and Astrophysics*, to be published.

[Bev-69] P.R. Bevington, *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences*, Mc GRAWHILL BOOK COMPAGNY, New York, 1969.

[Bjo-85] T. Björnstad, Nucl. Phys. A443 (1985) 283.

[Boe-69] J.H. de Boer, *The dynamical character of adsorption*, Clarendon Press Oxford (1969).

[Bol-00] W. Bolse et al., *Diffusion of hydrogen implanted in α-quartz during air annealing*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 161-163 (2000) 641-645.

[Bor-65] S. Borg, U. Fägerquist, G. Holm et F. Kropff, Nuclear Instruments and Methods, 38 (1965) 296.

[Bou-98] M.P. Bourgarel and the SPIRAL/GANIL groups, *SPIRAL facility : first results on the CIME Cyclotron obtained with stable ion beams*, Proceedings of the 15th Int. Conf. On Cyclotrons and their Applications, Caen, France (1998), p. 311, Ed. E. Baron and M. Lieuvin. Publisher : IOP.

[Bou-00] J. Bouteyre, *Conférences thématiques sur les Contrôles Non Destructifs*, Salon Physique Recherche Industrie, Paris, le 19 septembre 2000.
AEDS LV Services IL/QP
BP11
33165 Saint Médard en Jalles Cedex

[Boy-97] L. Boy, *Problèmes posés par l'accélération d'ions radioactifs dans le projet SPIRAL, Réglage et stabilisation de l'accélérateur*, thèse de l'Université de Paris VI, GANIL T 97 04.

[Bri-92] P. Bricault, *An on Line Isotopic Separator test bench at GANIL*, Proceedings of the 13th International Conference on Cyclotrons and Applications, Vancouver, 1992.

[Bri-96] P. Bricault et al., *ISAC : Radioactive ion beams facility at TRIUMF*, Proceedings of the LINAC96 conference (1996) 399.

[B4C-1] F. Thevenot et M. Bouchacourt, *Le carbure de bore : matériau industriel performant, 1ère partie : Le point des connaissances physico-chimiques*, L'industrie céramique, n° 732, 10/79.

[Car-78] L.C. Carraz et al., *Fast release of nuclear reaction products from refractory matrices*, Nuclear Instruments and Methods 148 (1978) 217-230.

[Cha-99] Charge Breeding, Contrat Européen N° HPRI-CT-1999-50004.

[Cho-00] P. Chomaz, *Le noyau atomique en pleines formes*, La Recherche, 335 (2000), 26-32.

[Cia-96] G. Ciavola, *The EXCYT RIB facility at LNS*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 382 (1996) 186-191.

[Cia-00] G. Ciavola et al., *The Progress of the EXCYT Facility at INFN-LNS, Proceedings of EPAC 2000*,Vienna, Austria, 2000.

[Cot-00] E. Cottereau, *RNB production with fast neutrons*, Proceedings of the 5th International Conference on Radioactive Nuclear Beams, RNB 2000, April 3-8 2000, Divonne, France, to be published in Nuclear Physics A.

[Cra-00] Ecole thématique Calcul de structures, *Cours de thermique*, cours de M. Craveurs, Porqueroles mai 2000.

[CTE] http://www.cte-nordtest.fr/activitesf_cte.html

[Dau-00] Ecole thématique Calcul de structures, *Initiation à la thermique*, cours de M. Daurelle, Porqueroles mai 2000.

[Des-99] X. Deschanels et al., *Determination of the lithium diffusion coefficient in irradiated boron carbide pellets*, Journal of Nuclear Materials 265 (1999) ,321-324.

[Dif-94] P. Guiraldenq, *Diffusion dans les métaux*, Techniques de l'ingénieurs, traité Metallurgie, M 55 (1994).

[Dub-00] P. Dubosc, *Ressuage et magnétoscopie mis en œuvre dans l'industrie mécanique*, *Conférences thématiques sur les Contrôles Non Destructifs*, Salon Physique Recherche Industrie, Paris, le 19 septembre 2000.
BABB CO
3. avenue Nagelmackers
78450 Villepreux

[Dup-98] P. Van Duppen, *New Results from Advances in ISOL Techniques*, Exotic Nuclei and Atomic Masses, Bellaire, Michigan, AIP Conference Proceedings 455, Editors Sherrill, Morrissey, Davids, (1998) 919.

[EDM] EDM Service
Z. A. des Béatries
37, rue des Cayennes
78702 CONFLANS Ste HONORINE CEDEX FRANCE

[EUR] http://www2.ganil.fr/eurisol/EURISOL3.html

[Eyg-00] B. Eyglunent, *Manuel de thermique : théorie et pratique*, 2ème édition, HERMES Sciences Publications, 2000. ISBN 2 86601 615 7.

[Fen-93] Yang Yong Feng et al., *Reduction of the energy of secondary beams down to the Coulomb barrier*, Nucl. Instr. and Methods in Physics Research B82 (1993) 175-179.

[Fic-85] A. Fick, Ann. Physik, Leipzig,170, p. 59, 1885.

[Fir-96] R. B. Firestone, *Table of Isotopes*, 8th Edition, Vol. I, V. S. Shirley Editor, 1996.

[Fom-98] A.S. Fomichev et al., *Production of radioactive nuclear beams at the ACCULINNA set-up*, Proceedings of the 15th Int. Conf. On Cyclotrons and their Applications, Caen, France (1998), p. 338, Ed. E. Baron and M. Lieuvin. Publisher : IOP.

[Fou] P. Foury et al, *Thermal dynamic studies of ISOL targets*, communication interne.

[Fou-97] P. Foury et al., *Graphite target for the SPIRAL project*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B126 (1997), 113-116.

[Fuj-81] M. Fujioka et al., *Diffusion of radioisotopes from solids in the form of foils, fibers and particles*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research 186 (1981) 409-412.

[Gae-98] M. Gaelens et al., *High Efficiency Release Targets for Radioactive Ion Beams : A Different Approach*, Proceedings of 15th International Conference on the Application of Accelerators in Research and Inductry (CAARI98), Denton, Texas, USA (1998), AIP CP475, p302,1999.

[GAN-99] M. OZILLE, *Compte-rendu des mesures thermiques réalisées sur les prototypes diagnostics Ese1 (LAL ORSAY le 8-9/11/99)*, rapport interne GANIL, Secteur support technique, Bureau d'Etudes, 1999.

[Gau-00] G. Gaubert, *Réalisation d'un banc de tests de sources d'ions*, mémoire pour obtenir le diplôme d'ingénieur CNAM en Instrumentation – Mesures, soutenue le 21/09/2000, GANIL R 00 02.

[Gib-01] S. Gibouin, *Taux de production d'oxygène et de néon*, communication privée.

[GSI] http://www-aix.gsi.de/~msep/home.html

[GSI-1] http://www.gsi.de/gsi.welcome.html

[Han-87] P. G. Hansen and B. Jonson, Europhys. Lett. 4 (1987) 409.

[Hum-95] F. Humbert et al., *Longitudinal and transverse momentum distributions of ^{9}Li fragments from break-up of ^{11}Li*, Physics Letters B 347 (1995) 198-204.

[Ibr-00] F. Ibrahim, EURISOL town meeting, Nov. 6-7 2000, Orsay, France.

[ISIS-97] R.J. Nelmes , *The structural pressure dependence and carbon disorder in boron carbides*, Rutherford Appleton Laboratory, ISIS Experimental Report RB Number 8351/8352 (1997).

[ISO] http ://isolde.cern.ch/normal/prodintr.html

[Jar-00] P. Jardin et al., *Derniers développements de sources d'ions monochargées au GANIL*, Journées Sources d'Ions, Cadarache, France, 13-14 décembre 2000.

[Jim-98] I. Jiménez and al., *Photoemission and x-ray-absorption study of boron carbide and its surface thermal stability*, Phys. Rev. B57, 15 May (1998).

[Jon-93] B. Jonson, *ISOLDE and its contributions to nuclear physics in Europe*, Phys. Rep. 225, N° 1-3 (1993) 137-155.

[Jou-91] A. Joubert et al., *The SISSI Project : An Intense Secondary Ion Source Using Superconducting Solenoid Lenses*, IEEE Particle Accelerator Conference, San Francisco, USA, Vol. 1 (1991), 594-597.

[Kan-98] S. Kandri-Rody, *Identification system for SPIRAL*, Proceedings of the 15th Int. Conf. On Cyclotrons and their Applications, Caen, France (1998), p. 359, Ed. E. Baron and M. Lieuvin. Publisher : IOP.

[Kan-00] S. Kandri-Rody, *Développement d'un système d'identification pour SPIRAL, et test d'une cible d'Uranium liquide dans le cadre du projet PARRNe*, thèse de l'Université Chouaib Doukkali, Faculté des sciences d'El Jadida, GANIL T 00 04.

[Kaw-95] H . Kawano et al., *Helpful effect of residual gases upon the thermal positive ion emission from metal surfaces heated in high vacua*, Vacuum, 46, N° 8-10, (1995) 1139-1143.

[Kaw-98] H. Kawano et al., *Work function of refractory metals and its dependence upon working conditions*, Applied Surface Science, Vol. 146, N° 1-4, (1998) 105-108.

[Kin-23] K. H. Kingdom and I. Langmuir, Phys. Rev., 21, (1923) 385.

[Kir-90] R. Kirchner, *On the thermoionization in hot cavities*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A292 (1990), 203-208.

[Kir-92] R. Kirchner, *On the release and ionization efficiency of catcher-ion-source systems in isotope separation on-line*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B70 (1992), 186-199.

[Kir-00] R. Kirchner, exposé lors du Workshop on Target and Ion Source Technology, TWIST II, GANIL, Caen, France, 14-16 Juin 2000.

[Kla-67] R. Klapisch et al., *Spectromètre de masse en ligne pour l'étude d'isotopes de très courtes périodes produits par réactions nucléaires*, Nuclear Instruments and Methods 53 (1967) 216-228.

[Kof-51] O. Kofoed-Hansen, K.O. Neilsen, K. Danske Vidensk. Selk, Medd. 26, N° 7, (1951).

[Kor-97] A. A. Korsheninnikov et al., *Elastic and inelastic scattering of exotic nuclei*, Nuclear Physics A616 (1997) 189c-200c.

[Lan-98] F. Landré, *Banc de tests de chauffage pour les cibles de SPIRAL*, Rapport de DEA "Méthodes Physiques Expérimentales", Université Joseph Fourier, Grenoble (1998).

[Lan-00] F. Landré-Pellemoine et al., *Recent results at the SIRa tests bench : diffusion properties of carbon graphite and B_4C targets*, Proceedings of the 5th International Conference on Radioactive Nuclear Beams, RNB 2000, April 3-8 2000, Divonne, France, to be published in Nuclear Physics A.

[Lan-01] F. Landré-Pellemoine, M. Ozille, *Mesures thermiques réalisées sur les échantillons de Béryllium*, Rapport interne du Service Technique SST 119, GANIL, 2001.

[Land-95] Land infrared, *guide de l'utilisateur*, Thermomètre Fibroptic System4.

[Lau-00] C. Lau, *Etude de la production de faisceaux riches en neutrons par fission induite par neutrons rapides*, thèse de l'Université de PARIS 7, IPNO T 00 08.

[Lec-97 a] N. Lecesne, *Etude de la production d'ions radioactifs multichargés en ligne*, thèse de l'Université de Caen, GANIL T 97 08.

[Lec-97 b] N. Lecesne et al., *A new method for measuring the absolute efficiency of isotope separation on-line systems*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B126 (1997), 141-145.

[Lec-01] N. Lecesne et al., *A high efficiency ECRIS for the production of monocharged ions : MONO1000*, ICIS International Conference Ion Sources, San Francisco, USA, 2-7 sept. 2001, to be published in Rev. Sci. Instr.

[Ler-99] R. Leroy et al., *Ion source developments for stable and radioactive ion beams at GANIL*, 14th International Workshop on ECR Ion Sources ECRIS 99, CERN, Suisse, 3-6 mai 1999, Rapport GANIL S 99 01.

[Lic-98] R. Lichtenthäler, P. Foury et al., *A simulation of the temperature distribution in the SPIRAL target*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B140 (1998) 415-425.

[Lor-95] Le Carbone Lorraine, *Spécifications techniques*, édition 1995.
Spécialités et Matériaux Avancés
BP 148 – 41, Rue Jean Jaures
92 231 GENNEVILLIERS FRANCE

[MAF] O. Kester, *The Munich Accelerator for Fission Fragments (MAFF)*, The 8th International Conference on Heavy-Ion Accelerator Technology, Argonne National Laboratory, oct. 5-9 1998.

[Mau-94] L. Maunoury, *Etudes des processus de diffusion et mesure de l'efficacité de production de noyaux radioactifs avec le séparateur SIRa*, Rapport de stage DEA, GANIL, 1994.

[Mau-98] L. Maunoury, *Production de faisceaux d'ions radioactifs multichargés pour SPIRAL : Etudes et réalisation du premier ensemble cible-source*, thèse de l'Université de Caen, GANIL T 98 01.

[Mau-01] L. Maunoury et al., *Temperature simulations for the SPIRAL ISOL target*, prétirage GANIL, GANIL S 01 02.

[Mil-68] J. Millet, *Etat naturel et préparation des carbones, avant-propos*, Nouveau traité de chimie minérale Tome VIII premier fascicule, MASSON et Cie Editeurs (1968).

[Mue-00 a] A. C. Mueller, *An Overview of Radioactive Beam Facilities*, Proceedings of the 7th European Conference on Particule Accelerators, EPAC 2000, June 2000, Vienna, Austria, J. L. Laclare et al. Ed., Austrian Academy of Sciences Press.

[Mue-00 b] A. C. Mueller, *High Power Accelerators and Radioactive Beam of the Future*, Nato Advanced Study Institute, August 2000, Predeal, Romania, NATO Series II – Mathematics, Physic and Chemistry, H. Rebel et al. Ed., Kluwer academic publishers, Dordrecht, The Netherlands.

[Nav-99] O. Navillat-Cuncic et al., *Measurement of $\beta-\nu$ angular correlation in the decay of ^{32}Ar*, Proposition d'expérience GANIL E341S (Jan1999).

[Nav-00] O. Navillat-Cuncic et al., *Measurement of $\beta-\nu$ angular correlation in the decay of ^{32}Ar*, Proposition d'expérience GANIL E341 (Jan 2000).

[Nav-01] O. Navillat-Cuncic et al., *Measurement of $\beta-\nu$ angular correlation in the decay of ^{32}Ar*, Proposition d'expérience GANIL E341a (Juin2001).

[Nol-98] J. A. Nolen, *Status of RNB Facilities in North America*, Exotic Nuclei and Atomic Masses, Bellaire, Michigan, AIP Conference Proceedings 455, Editors Sherrill, Morrissey, Davids, (1998) 952.

[NuP-00] Rapport NuPPECC, *Radioactive Nuclear Beam Facilities*, Avril 2000.

[ORNL] http://www.phy.ornl.gov/hribf/beamdevel/pro.htm

[OST-01] F. Osterstock, *Etude des carbones 1 et 4µm au microscope électronique à balayage*, communication privée.

[Phi-90] J. Philibert, *Diffusion et transport de matière dans les solides*, Monographies de Physique, Les Editions de Physique (1990) 472 p. ISBN 2 86883 004 8.

[POCO-99] EDM POCO graphite, *Technical Manual*, édition 99.
Poco Graphite, Inc.
1601 South State Street
Decatur, TEXAS 76234 USA

[Pre-88]] W.H. Press et al., *NUMERICAL RECIPES in C*, The Art Of Scientific Computing, Cambridge University Press, 1988.

[Put-97] J.C. Putaux et al., *Graphite target for the SPIRAL project*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B126 (1997) p.113.

[Rob-74] B. Robrieux, R. Faure, J.P. Dussaulcy, *Résistivité et travail de sortie du carbone en couches très minces*, C. R. Acad. Sc. Paris, t. 278, série B, 1er avril 1974, 659-662.

[Sai-01] M.G. Saint Laurent, *SPIRAL Phase II*, Rapport Annuel 2001 pour l'EU, Rapport Interne, N° de contrat Européen ERBFMGECT 980100.

[Sch-90] K. Schnarr and H. Münzel, *Release of Tritium from Boron Carbide*, J. Chem. Soc. Faraday Trans., 86(4), (1990) 651-656.

[Sch-00] F. Schmitt et al., *Towards the determination of the charge radius of ^{11}Li by laser spectroscopy*, Hyperfine Interactions 127 (2000) 111-115.

[She-01] B. Sherrill, sherrill@nscl.msu.edu, communication privée.

[Sim-99 a] D. Simeone, *Contribution à l'étude de l'évolution du Carbure de Bore sous irradiation neutronique*, thèse de l'Université de Clermont Ferrand, Rapport CEA-R-5858.

[Sim-99 b] D. Simeone et al., *Study of B_4C microstructure evolution under neutron irradiation by X-ray diffraction profiles analysis*, Journal of Nuclear Material 264 (1999) 295-308.

[SIR] http://www.sirius.ac.uk/ODS_production_yields.htm

[SPI-94] *The SPIRAL Radioactive Ion Beam Facility*, GANIL Report R 94 02 (1994).

[Sta-97] B. Diu, C. Guthmann, D. Lederer, B. Roulet, *Physique statistique*, Hermann, Collection enseignement des sciences, 37, éditeurs des sciences et des arts (1997) 1001 p. ISBN 2 7056 6065 8.

[Stö-99] H. Stöcker, F. Jundt, G. Guillaume, *Toute la physique*, 1er et 2ème cycles, Ecoles d'ingénieurs, Edition Dunod (1999), ISBN 2 10 003942 2.

[Süm-90] K. Sümmerer et al., *Target fragmentation of Au and Th by 2.6GeV protons*, Phys. Rev. C, Vol. 42, N° 6 (1990) 2546-2561.

[Süm-00] K. Sümmerer and B. Blank, *Modified empirical parametrization of fragmentation cross sections*, Phys. Rev. C, Vol. 61, N° 3 (2000) 034607.

[Suz-95] T. Suzuki et al., *Chemical form effects on the surface ionization of lithium halides*, International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes 145 (1995) 131-137.

[SYS] logiciel SYSTUS, ESI Group, Engineering Systems International, PAM – System International.

[Tam-96] C. Tamburella, *Projet P.I.A.F.E. : Production d'états de charges élevées pour des ions radioactifs*, thèse de l'Université Denis Diderot Paris VII, juin 1996.

[Tan-85] I. Tanihata, et al., Phys. Rev. Lett., 55 (1985) 2676.

[Tan-85b] I. Tanihata et al., Phys. Rev. Lett.160B (1985) 380.

[Tan-98] I. Tanihata, *Status of RIB Facilities in Asia*, Exotic Nuclei and Atomic Masses, Bellaire, Michigan, AIP CP 455, Editors Sherrill, Morrissey, Davids, (1998) 943.

[Tan-01] I. Tanihata, tanihata@rikaxp.riken.go.jp, communication privée.

[Thi-71] C. Thibault-Philippe, *Etude par spectrométrie de masse en ligne de noyaux légers exotiques produits dans les réactions à haute énergie*, Thèse de la Faculté des Sciences d'Orsay, Université de Paris, (1971),Série A n° 783, CNRS AO 5862.

[Thi-75] C. Thibault et al., Phys. Rev. C 12 (1975) 644.

[Tou-92] M. Toulemonde, C. Dufour, E. Paumier, *Transient thermal process after a high energy heavy ion irradiation of amorphous metals and semiconductors*, Physical Review B46 n°22 (1992) 14362.

[TRI-a] http://www.triumph.ca/people/baartman/ISAC

[TRI-b] http://www.triumf.ca/isac/lothar/facility/yieldtable/yieldtable.html

[Vil-01] A.C.C. Villary and the SPIRAL group, *The accelerated ISOL technique and the SPIRAL project*, contribution au numéro spécial de Nuclear Physics A : Research opportunities with accelerated beams of radioactive ions, GANIL S 01 01.

[Win-92] J.A. Winger et al., Nucl. Instr. and Meth., B70 (1992) 380.

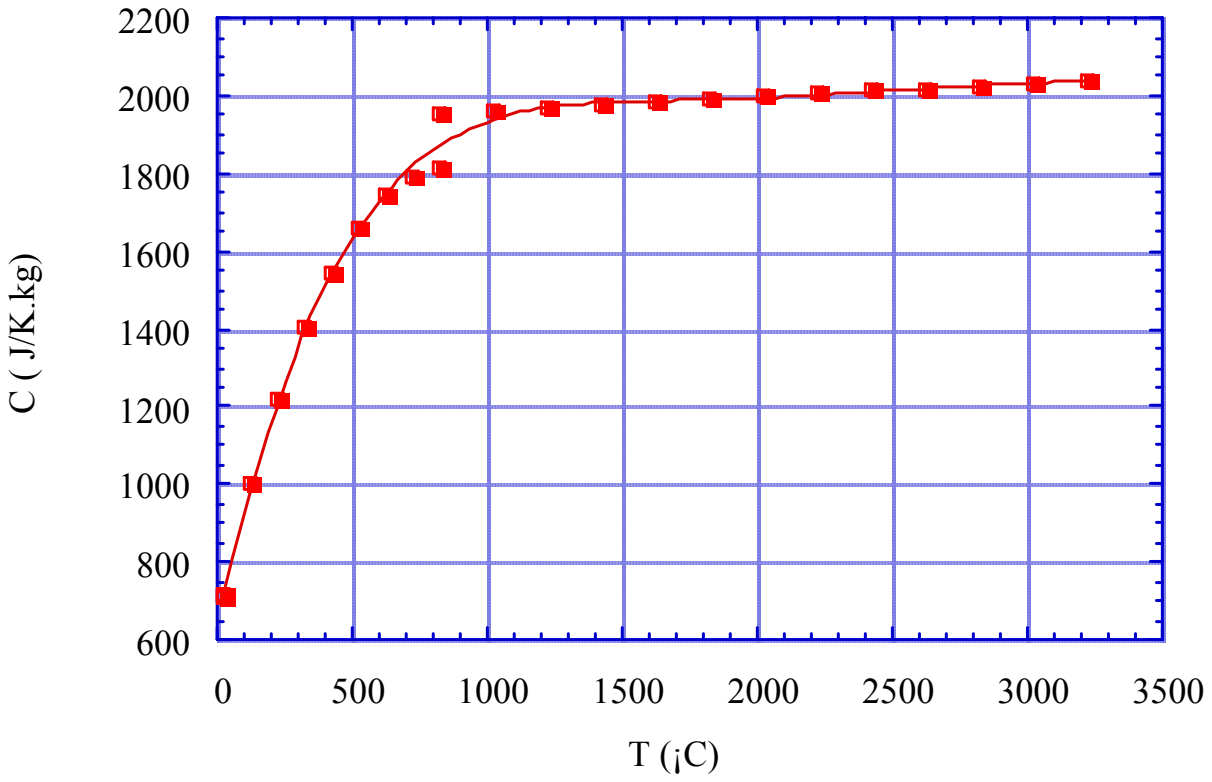
[Wol-95] B. Wolf, Handbook of Ion Sources, CRC Press, 1995, ISBN 0 8493 2520 1.

[You-98] G.A. Young JR et J.R. Scully, *The diffusion and trapping of hydrogen in high purity aluminium*, Acta mater, Vol. 46, N° 18, (1998) 6337-6349. Acta metallurgica Inc. Published by Elsevier Science Ltd.

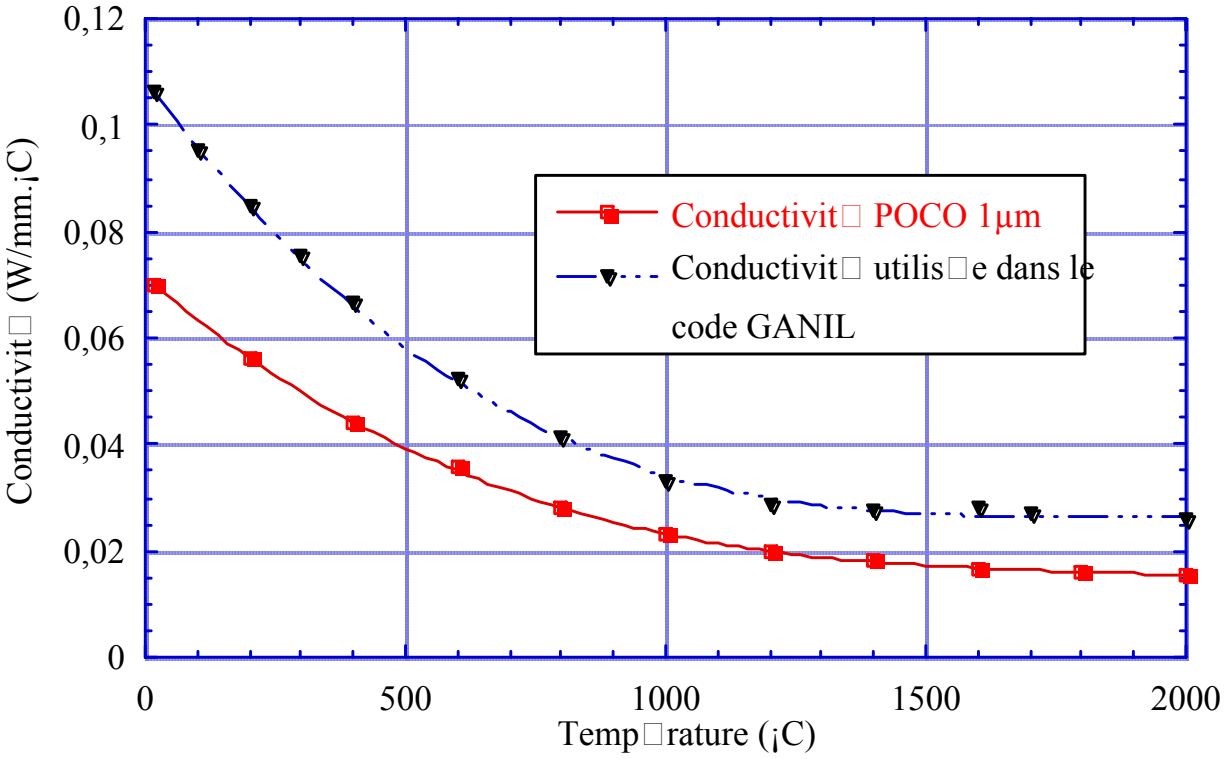
Annexe A
Caractéristiques des matériaux

Le carbone

Capacité thermique du carbone en fonction de la température



Conductivité thermique du carbone 1µm de POCO Graphite et du carbone utilisé dans la modélisation du code GANIL en fonction de la température



Quelques ordres de grandeurs

La dilatation thermique

Le coefficient d'expansion thermique du carbone graphite 1µm [POCO-99] est de 8.1 10^{-6}m/m°C.

A 2000°C, l'allongement relatif des cibles comportant un axe est donné dans le tableau A-1.

	Longueur de l'axe (mm)	Allongement relatif (mm)
Cible Argon et Néon (Chapitre III)	80	1.2
Cible de diffusion Hélium (Chapitre IV)	80	1.2

Tab. A- 1 – *Allongement relatif des cibles pour l'Argon-Néon et l'Hélium à une température de 2000°C.*

Pour limiter les contraintes sur l'axe dûes à la dilatation thermique du carbone, les bretelles qui permettent l'arrivée de courant (figures III-4 et III-5) sont reliées à des pattes en PAPYEX, un carbone souple.

La résistivité électrique des cibles pour un chauffage par l'axe

A 20°C, la résistivité électrique ρ du carbone graphite 1µm [POCO-99] est de 1950 µΩ.cm. La résistance de l'axe dont le diamètre est 3mm et la longueur 8cm (cibles Argon-Néon et Hélium) est alors :

$R = \rho \frac{l}{S}$ avec S la section de l'axe et l sa longueur

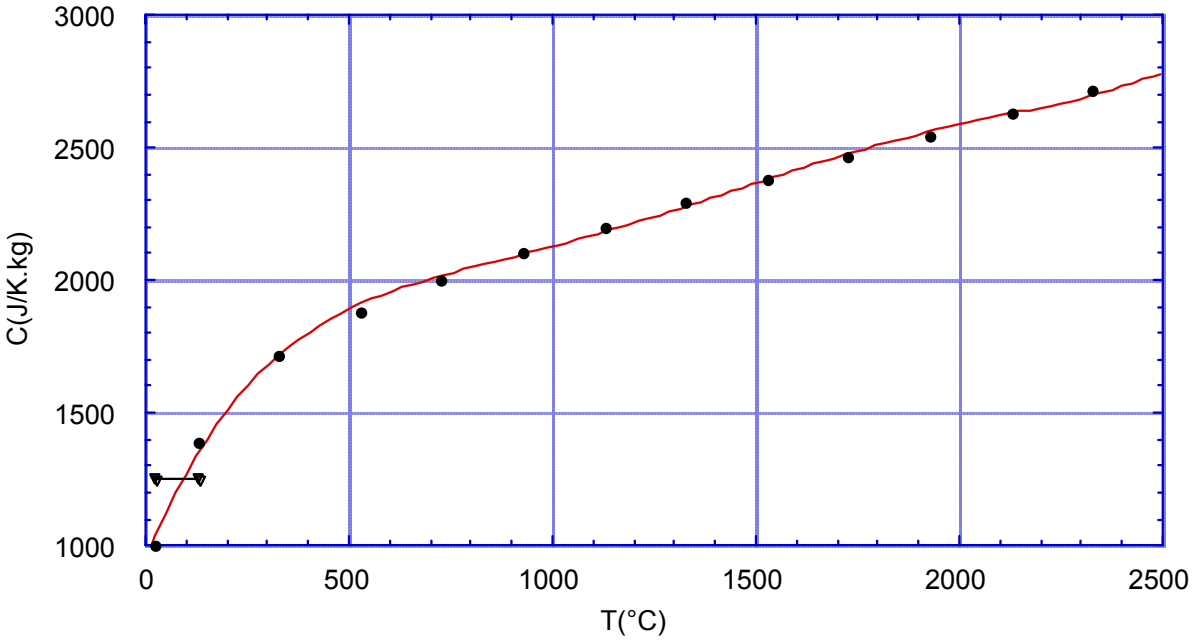
R=220mΩ

Cette résistance est valable pour les alimentations de puissances disponibles au GANIL (limitées à 30V et 330A). Pour fonctionner à 2kW, il faut alors un courant de 95 A ($P=RI^2$) et une tension de 20 V (U=RI). A 2000°C sa résistance baisse à une valeur de l'ordre de 120mΩ, soit un courant de 130A et une tension de 15 V.

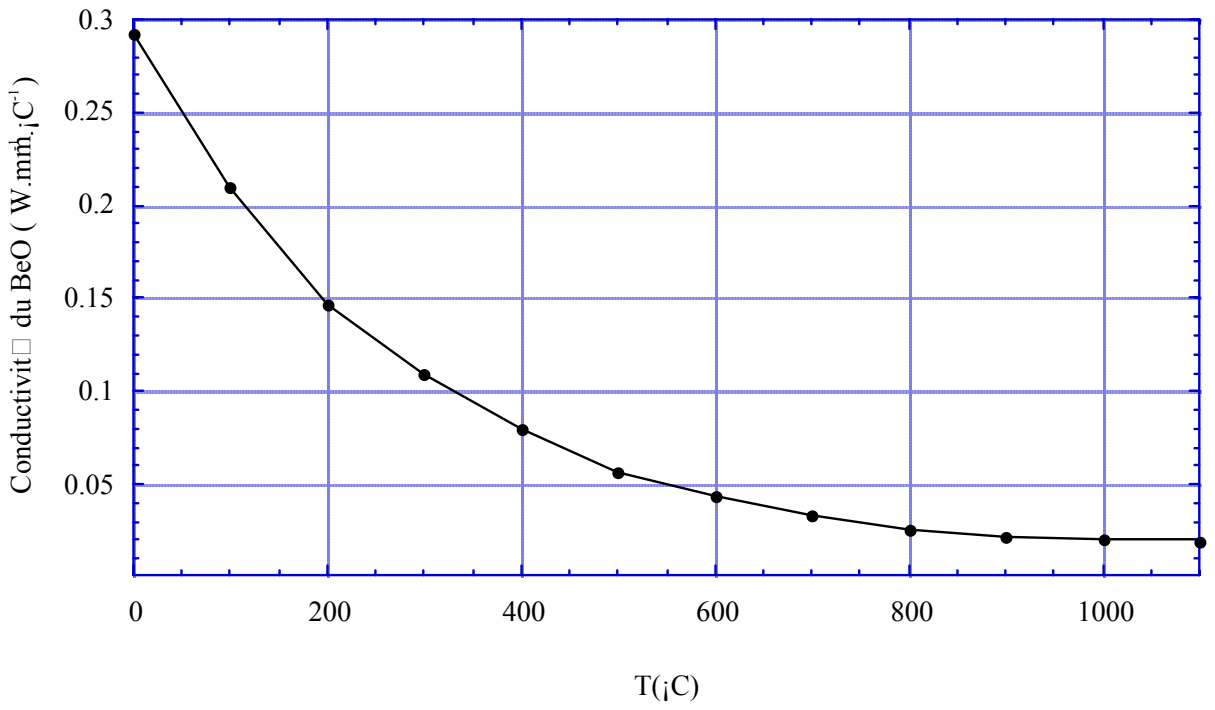
Dans le cas du chauffage annexe de l'ensemble cible source MONOLITHE, la résistance du four en carbone pyrolytique est de l'ordre de 100mΩ. Ainsi il n'y a pas de problème pour un fonctionnement à 6kW comme cela est prévu. I=245A et U=25V.

Le BeO

Capacité thermique de l'Oxyde de Béryllium en fonction de la température



Conductivité thermique de l'Oxyde de Béryllium utilisé dans la modélisation du code SYSTUS en fonction de la température (chapitre II).



Annexe B
Mode de détection

Le mode d'identification des noyaux dépend essentiellement de leur mode de décroissance, leur taux et les noyaux contaminants. Nous avons reporté dans les tableaux ci-dessous les caractéristiques utilisées pour chaque état de charge : la radioactivité utilisée γ, β ou p et l'énergie de la transition associée, le type de détecteur et sa position par rapport à l'implantation (soit sur la bande, soit sur la Cage de Faraday sur SIRa), les taux de comptage des détecteurs et leur pourcentage d'acceptation (inverse du temps mort), l'intensité du faisceau primaire utilisé, le taux (pps) du faisceau radioactif normalisé à 2µAe de faisceau primaire, les caractéristiques du carbone de la cible et la puissance complémentaire du chauffage par l'axe.

Il est cependant possible que ce mode ne soit plus approprié à 2kW en raison de la différence de taux de comptage. Il faudra donc soit éloigner le détecteur, soit insérer un pepperpot normalisé ou mettre le hacheur sur la ligne de faisceau radioactif avec une période de répétition faible par rapport à la période du noyau. De même les noyaux contaminants ne seront ni forcément les mêmes, ni dans les mêmes proportions puisque les lignes de faisceaux SIRa et SPIRAL sont différentes. Aussi nous avons identifié en détail les polluants seulement pour l'$^{32}Ar^{1+}$ et $^{32}Ar^{9+}$ qui étaient demandé pour une expérience de physique [Nav-99] [Nav-00] [Nav-01].

La nomenclature utilisée pour les types de détecteur utilisés est la suivante :

GHD : détecteur Germanium Haut en mesure Directe.

S p : détection protons avec Silicium

PH + C : Plastique Haut en mode Chopeur

^{35}Ar

Caractéristiques spectroscopiques de l'^{35}Ar utilisées : $T_{1/2}$=1.77s, **Eγ=1219.44 keV**, R=1.23%
Implantation sur bande.

^{35}Ar	Détection	Distance mm	Taux pps détecteur	Taux acceptation Echelles	Intensité faisceau primaire (µAe)	Taux pps Normalisé à 2µAe	Contaminant
2+	GHD	846	2400	61%	1.6	3.06 10^6	
3+	GHD	846	1700	67%	1.67	2.65 10^6	
4+	GHD	2000	887	80%	1.89	4.25 10^6	
6+	GHD	846	2500	58%	1.74	5.1 10^6	
8+	GHD	846	7000	35%	1.9	1.2 10^7	
9+	GHD	846	4200	37%	1.9	6.54 10^6	BdF 0.09 µA sur CF
11+	GHD	846	1200	76%	1.8	7.3 10^6	

Tab. B- 1 - *Mode d'identification de l' ^{35}Ar dans différents états de charge pour une cible de grain 4µm et un chauffage annexe par l'axe de 1600 à 1700W.*

Stabilité des taux de production d'^{35}Ar en fonction du temps

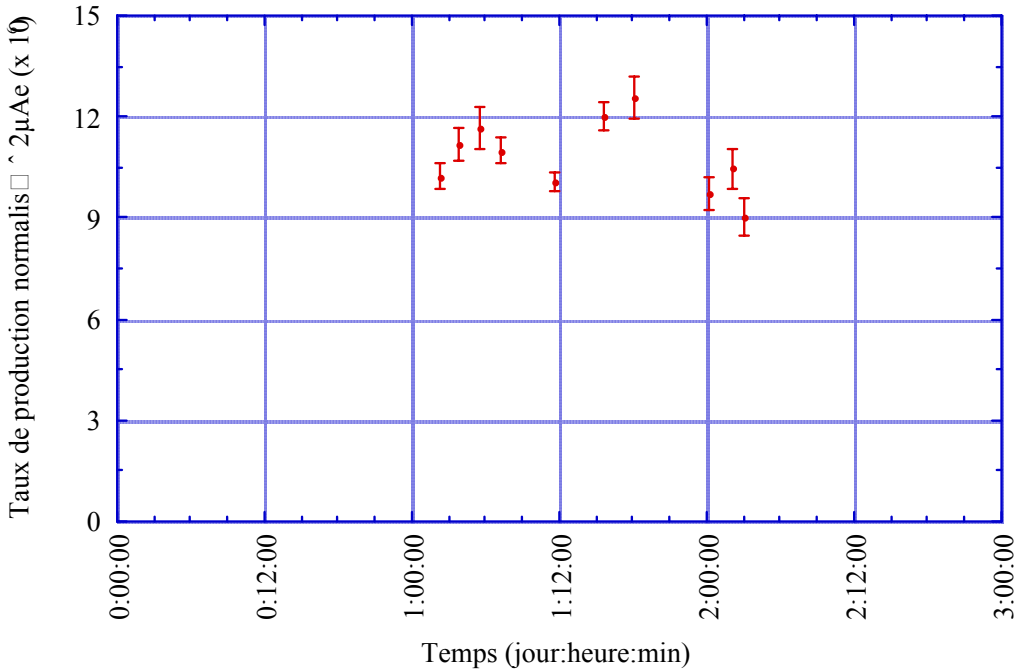


Fig. B- 1 – *Evolution des taux de production de l'$^{35}Ar^{8+}$ en fonction du temps.*

Sur une durée de deux jours, les taux de production de l'^{35}Ar sont constants.

^{34}Ar

Caractéristiques spectroscopiques de l'^{34}Ar utilisées : $T_{1/2}$=844.5ms, **Eγ=665.55keV**, R=2.49%. Implantation sur bande.

La transition 461keV du rapport d'embranchement R= 0.91 % n'est pas utilisé car le fond Compton de la raie 511keV est important.

Attention l'^{34}Ar décroît vers le ^{34}Cl qui d'une part est émetteur β+ et d'autre part a un état isomère de 33mn. Il est donc impératif de :

- déduire le taux à partir de la transition 665.55 keV et non 511keV (annihilation β+)
- ne pas implanter trop longtemps sur la bande pour éviter de la polluer
- avancer la bande entre chaque run pour évacuer la radioactivité résiduelle.

^{34}Ar	Détection	Distance mm	Taux pps détecteur	Taux. acceptation Echelles	Intensité μAe	Taux pps Normalisé à 2μAe	Contaminant
6+	GHD	341	1700	72%	1.68	$1.2\ 10^5$	
7+	GHD	341	1700	67%	1.78	$1.94\ 10^5$	
8+	GHD	341	2800	56%	1.83	$6.6\ 10^5$	
9+	GHD	341	1700	65%	1.75	$1.65\ 10^5$	
10+	GHD	341	1000	77%	1.76	$6.32\ 10^4$	
11+	GHD	100	3500	50%	1.77	$1.8\ 10^4$	

Tab. B- 2 - *Mode d'identification de l'^{34}Ar dans différents états de charge pour une cible de grain 4μm et un chauffage annexe par l'axe de 1600 à 1700W.*

^{33}Ar

Caractéristiques spectroscopiques de l'^{33}Ar utilisées : $T_{1/2}$=173 ms, **Eγ=810.52 keV**, R%=41.1%. Implantation sur bande.

^{33}Ar	Détection	Distance mm	Taux pps détecteur	Taux acceptation Echelles	Intensité μAe utilisé	Taux pps Normalisé à 2μAe	Contaminant
2+	GHD	collé	800	84%	1.44	1.23 10^3	
3+	GHD	collé	850	82%	1.75	1.43 10^3	
4+	GHD	collé	800	85%	1.64	1.14 10^3	
5+	GHD	collé	800	83%	1.5	1.24 10^3	
6+	GHD	collé	1000	78%	1.62	1.6 10^3	
7+	GHD	collé	3100	4%	1.65	2.2 10^3	
8+	GHD	collé	1700	76%	1.69	3.45 10^3	
9+	GHD	collé	882	81%	1.79	2.22 10^3	
10+	GHD	collé	3000	57%	1.78	1.19 10^3	

Tab. B- 3 - *Mode d'identification de l'^{33}Ar dans différents états de charge pour une cible de grain 4μm et un chauffage annexe par l'axe de 1600 à 1700W.*

^{32}Ar

Caractéristiques spectroscopiques de l'^{32}Ar utilisées: $T_{1/2}$=173ms, **Eγ=707.4keV**, R%=32.8%.

Attention :

- pour ce noyau, les rapports d'embranchements disponibles dans les bases de données informatiques et dans la table des isotopes [FIR-96] sont différentes de ceux mesurés et publiés par [Bjo-85].
- certains états de charge de l'^{32}Ar ne peuvent pas être implanté sur la bande en raison de faisceaux de noyaux contaminants stables dont la trop forte intensité brûlerait la bande. Sur SIRa, ces états de charge de l'^{32}Ar ont été implantés dans la cage de Faraday. Sur la station d'identification de SPIRAL, ils pourront être implantés sur un échantillon escamotable.

^{32}Ar	Détection/ implantation	Distance mm	Taux pps détecteur	Taux acceptation Echelles	Intensité µAe	Taux pps Normalisé à 2µAe	Contaminant
1+	GHD Sur bande	collé	850	82%	1.8	7.7 10^1	cf. tableau B-6
2+	GHD sur CF	collé	800	84%	1.44		^{24}Ne 2+ ^{16}O 35µA
3+	GHD Sur bande	collé	850	82%	1.75	5.5 10^1	
4+	GHD Sur CF	collé	3300	46%	1.8		^{24}Ne 3+ ^{16}O 24µA
5+	GHD Sur bande	collé	950	80%	1.6	2.6 10^1	Long $T_{1/2}$
6+	GHD Sur CF	collé	1000	82%	1.6	2.5 10^1	^{16}O 17µA
7+	GHD Sur bande	collé	2000	61%	1.7	4. 10^1	^{23}Ne 5+
8+	GHD Sur CF	collé	1900	60%	1.9	1 10^2	^{24}Ne 3+ ^{16}O 26µA
9+	GHD Sur bande	collé	700	84%	1.8	6.7 10^1	cf. tableau B-7
9+	Silicium	2mm					

Tab. B- 4 - *Mode d'identification de l'^{32}Ar dans différents états de charge pour une cible de grain 4µm et un chauffage annexe par l'axe de 1600 à 1700W.*

L'$^{32}Ar^{9+}$ a été mesuré d'une part par la radioactivité γ, et d'autre part par la radioactivité p. La radioactivité γ permet généralement de mesurer sans ambiguïté le noyau d'intérêt si une transition appartenant à ce noyau est non polluée par une transition d'un autre noyau. Ces mesures nous ont permis de régler et contrôler le bon fonctionnement de nos détecteurs Silicium pour la mesure de radioactivité proton pour identifier l'^{31}Ar dont la radioactivité γ n'est pas connue.

Le taux de l'$^{32}Ar^{9+}$ a été mesuré par les transitions de radioactivité protons issues du niveau IAS. Le rapport d'embranchement est de 22.9% et l'énergie de la transition protons est de 3.353MeV. Les taux de l'$^{32}Ar^{9+}$ sont en relativement bon accord.

^{32}Ar	Pic Mesuré (keV)	Détection	Distance mm	Taux pps détecteur	Taux acceptation Echelles	Intensité µAe	Taux pps Normalisé à 2µAe	Contaminant
9+	Eγ 707	GHD Sur bande	collé	700	84%	1.8	6.7 10^1	cf. tableau B-7
9+	Ep 3353	S p Sur Al	2mm	120	97%	1,8	6.0 10^1	

Tab. B- 5 - *Comparaison des taux de l' $^{32}Ar^{9+}$ mesurés en mode direct par détection de la radioactivité γ et p, pour une cible de grain 4µm et un chauffage annexe par l'axe de 1600 à 1700W.*

Polluants $^{32}Ar^{1+}$

T_{run}=237.14 s T_{mort}=0.6409 $I_{primaire}$=1.5965µAe Distance=112 mm

Energie du pic (keV)	R (%)	Taux dans le pic (erreur %)	Flux calculé (pps)	Flux normalisé à 2 µAe	Elément
89.89	12.0	413 (20)	702	880	$^{32}Ar^{1+}(\varepsilon^+, \beta^+)$
109.9	2.54	516 (10)	4943	6192	$^{19}O\ (\beta^-)$
146.36	40.5	592 (7.6)	457	573	$^{34m}Cl\ (\varepsilon^+, \beta^+, IT)$
197.1	95.9	10839 (1.4)	4600	5764	$^{19}O\ (\beta^-)$
461.09	32.8	363 (9.9)	954	1195	$^{32}Ar^{1+}(\varepsilon^+, \beta^+)$
610.7	/	162 (18)	/	/	1633-2*511 keV
707.4	32.8	215 (10)	842	1054	$^{32}Ar^{1+}(\varepsilon^+, \beta^+)$
1056.8	99.979	13889 (1.1)	24838	31115	$^{20}O\ (\beta^-)$
1078.5	12.0	53	804	1008	$^{32}Ar^{1+}(\varepsilon^+, \beta^+)$
1121	/	153	/	/	1633-511 keV
1168.4	12.1	53	856	1072	$^{32}Ar^{1+}(\varepsilon^+, \beta^+)$
1356.9	50.4	915 (4.2)	4045	5068	$^{19}O\ (\beta^-)$
1554	1.39	82 (15)	/	/	$^{19}O\ (\beta^-)$
1633.6	100	8493 (1.7)	22286	27918	$^{20}F\ (\beta^-)$
2127.492	42.8	46 (20)	356	446	$^{34m}Cl\ (\varepsilon^+, \beta^+, IT)$
2230.2	71.6	134 (10)	646	810	$^{32}Cl(\varepsilon^+, \beta^+)$

Tab. B- 6 – *Polluants de l'$^{32}Ar^{1+}$*

Polluant $^{32}Ar^{9+}$

T_{run}=590.03 s T_{mort}=0.7417 $I_{primaire}$=1.8057 μAe Distance=112 mm

Energie (keV)	R (%)	Taux dans le pic (erreur %)	Flux γ (pps)	Flux normalisé à 2 μAe	Elément
89.53	12 95.5	5831 (2.7)	/	/	$^{32}Ar^{9+}$ (ε^+, β^+) ^{25}Ne (β^-)
389.7	12.68 0.023	249	/	/	^{25}Na (β^-) ^{25}Al (ε^+, β^+)
439.99	33	238 (17.7)	207	230	^{23}Ne (β^-)
461.09	32.8	328 (13.4)	299	332	$^{32}Ar^{9+}$ (ε^+, β^+)
585.03	13 0.023	220 (22)	/	/	^{25}Na (β^-) ^{25}Al (ε^+, β^+)
707.4	32.8	201 (12)	267	296	$^{32}Ar^{9+}$ (ε^+, β^+)
787.7	/	/	/	/	BdF ?
846.1	/	83	/	/	?
974.72	14.95 0.024	70	/	/	^{25}Na (β^-) ^{25}Al (ε^+, β^+)
979.77	18.1	128 (10)	411	455	^{25}Ne (β^-)
1041.2	7.83	473 (6)	3704	4102	^{18}Ne (ε^+, β^+)
1078.5	12.0	57 (30)	300	333	$^{32}Ar^{9+}$ (ε^+, β^+)
1168	12.1	52	291	323	$^{32}Ar^{9+}$ (ε^+, β^+)
1219.42	1.35	228 (8.4)	11900	13180	^{35}Ar (ε^+, β^+)
1460	11	103 (16)	774	856	^{40}K
1611.7	9.48 0.79	29	/	/	^{25}Na (β^-) ^{25}Al (ε^+, β^+)
1763.1	0.312	40	/	/	^{35}Ar (ε^+, β^+)
1779	100	91 (17)	89	100	^{28}Al (β^-)
2222.1	/	58 (15)	/	/	?
2230.2	71.6	102 (13.4)	170	190	^{32}Cl(ε^+, β^+)

Tab. B- 7 – *Polluant de l'$^{32}Ar^{9+}$*

Les taux des l'$^{35,\ 34,\ 33,\ 32}$Ar dans les états de charge 1^+, 7^+, 8+ ou 9^+ (selon les contaminants) ont été remesurés pour une cible de grain 1µm et un chauffage annexe par l'axe de 1500W. Ces taux sont présentés dans le tableau B-8. Implantation du faisceau sur bande.

	Pic Mesuré (keV)	Détection	Distance mm	Taux pps détecteur	Taux Acceptation Echelles	Intensité µAe	Taux /s Normalisé à 2µAe
$^{35}Ar^{8+}$	1219	GHD	2300	5000	47%	1.76	$6.0\ 10^7$
$^{35}Ar^{1+}$	1219	GHD	3470	7000	37%	1.86	$1.5\ 10^8$
$^{34}Ar^{7+}$	666	GHD	751	2450	63%	1.76	$1.1\ 10^6$
$^{34}Ar^{1+}$	666	GHD	3470	900	82%	1.8	$5.2\ 10^6$
$^{33}Ar^{8+}$	810	GHD	215	2000	68%	1.95	$3.4\ 10^4$
$^{33}Ar^{1+}$	810	GHD	855	960	85%	1.63	$6.4\ 10^4$
$^{32}Ar^{9+}$	707	GHD	collé	1600	74%	1.8	$4.7\ 10^2$
$^{32}Ar^{1+}$	707	GHD	collé	2300	65%	1.6	$1\ 10^3$

Tab. B- 8 - *Taux et Mode d'identification de l' $^{35,\ 34,\ 33,\ 32}$Ar dans différents états de charge pour une cible de grain 1µm et un chauffage annexe par l'axe de 1500W .*

^{6}He

Caractéristiques spectroscopiques de l'^{6}He utilisées : $T_{1/2}$=806.7ms, 100% β^- au niveau fondamental (pas de gamma), R=100%. Implantation sur feuille de mylar aluminisé devant le plastique.

La cible en 2 parties dédiée à la production d'Héliums radioactifs (cf. chapitre IV) a été chauffée directement par le faisceau incident pour la 1ère partie dite de production et par un chauffage annexe par l'axe pour la 2ème partie dite de diffusion (puissance indiquée dans le tableau ci dessous).

^{6}He	Puissance annexe (W)	Détection	Distance mm	Taux pps détecteur	Taux acceptation Echelles	Intensité µA	Taux /s Normalisé à 2µAe	Contaminant
1^+	242	PH + C Tc=6s, Ta=2s, Tmr=6s	Fentes fermées ±0.2mm (Div/150)	1 10^6	32%	1.6	1.8 10^8	$^{12}C^{2+}$
2^+	1571W	PH + C Tc=6s, Ta=2s, Tmr=6s	Fentes fermées ±0.2mm (Div/150)	1 10^6	32%	1.8	1 10^2	$^{12}C^{4+}$ 511keV (^{11}C ?)

Tab. B- 9 - *Mode d'identification de l'^{6}He dans différents états de charge pour une cible de grain 1µm avec un faisceau de 2 µAe et un chauffage annexe par l'axe de 1570 W pour la cible de diffusion .*

^{8}He

Caractéristiques spectroscopiques de l'^{8}He utilisées : $T_{1/2}$=119ms, **Eγ=981keV**, R=84%. Implantation sur la CF.

^{8}He	Détection / Puissance annexe	Distance mm	Taux pps détecteur	Taux acceptation Echelles	Intensité μAe utilisé	Taux pps Normalisé à 2μAe	Contaminant
1^{+}	GHD 1056W	450	1800	78%	1.85	$5\ 10^{5}$	$^{16}O^{2+}$
2^{+}	GHD 1571W	collé	2800	64%	1.75	$1\ 10^{2}$	$^{12}C^{3+}$ $^{16}O^{4+}$

Tab. B- 10 - *Mode d'identification de l'^{8}He dans différents états de charge pour une cible de grain 1μm avec un faisceau de 2 μAe et un chauffage annexe par l'axe de 1570W pour la cible de diffusion .*

Annexe C
Taux de production
SPIRAL

Faisceau Secondaire	Faisceau Primaire (début de SPIRAL)	Taux de production SIRa normalisé à 1µAp (pps)	Taux de production pour le projet SPIRAL (pps)	Transmission CIME	Intensité du faisceau SPIRAL Accéléré (pps)
$^{32}Ar^{7+}$ ($T_{1/2}$=98ms)	$^{36}Ar^{18+}$ 95MeV/A 2kW	2.7 (0.32) 10^3	1.6 (0.19) 10^3	30%	480 (57)
$^{33}Ar^{8+}$ ($T_{1/2}$=174ms)		3.05 (0.13) 10^5	1.8 (0.08) 10^5		5.4 (0.24) 10^4
$^{34}Ar^{7+}$ ($T_{1/2}$=844.5ms)		1.05 (0.05) 10^7	6.18 (0.3) 10^6		1.85 (0.1) 10^6
$^{35}Ar^{8+}$ ($T_{1/2}$=1.77s)		5.4 (0.36) 10^8	3.18 (0.2) 10^8		9.54 (0.6) 10^7
$^{17}Ne^{5+}$ ($T_{1/2}$=109ms)	$^{20}Ne^{10+}$ 95MeV/A 2kW	8.5 (0.44) 10^5	8.95 (0.46) 10^5	25%	2.23 (0.11) 10^5
$^{18}Ne^{5+}$ ($T_{1/2}$=1.67s)		4.41 (0.41) 10^7	4.65 (0.43) 10^7		1.16 (0.11) 10^7
$^{19}Ne^{5+}$ ($T_{1/2}$=17.22s)		2.54 (0.18) 10^8	2.67 (0.19) 10^8		6.67 (0.47) 10^7
$^{6}He^{1+}$ ($T_{1/2}$=806.7ms)	$^{13}C^{6+}$ 75MeV/A 3kW	5.41 (0.43) 10^8	1.66 (0.13) 10^9	20%	3.32 (0.26) 10^8
$^{6}He^{2+}$		3.96 (0.26) 10^7	1.22 (0.08) 10^8		2.44 (0.16) 10^7
$^{8}He^{1+}$ ($T_{1/2}$=119ms)		1.5 (0.07) 10^6	4.61 (0.2) 10^6		9.22 (0.4) 10^5
$^{8}He^{2+}$		1.75 (0.09) 10^5	5.38 (0.3) 10^5		1.08 (0.06) 10^5

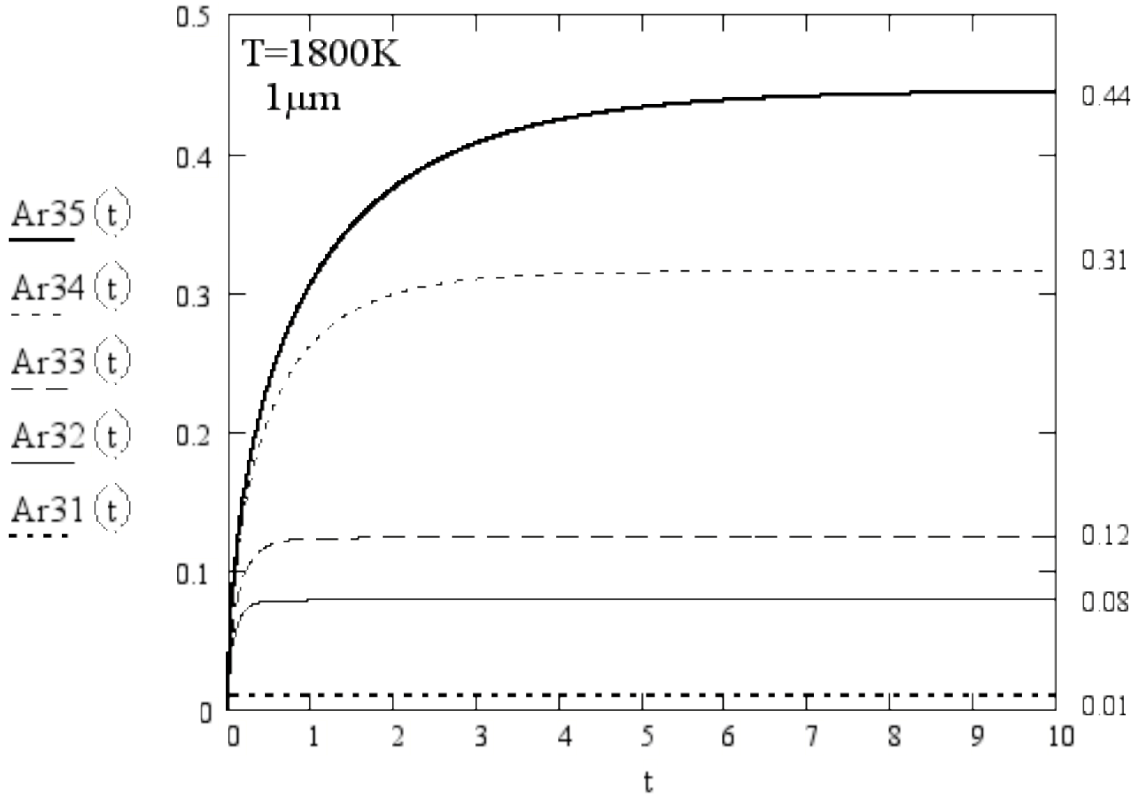
Annexe D
Efficacité de diffusion effusion des isotopes de l'Argon

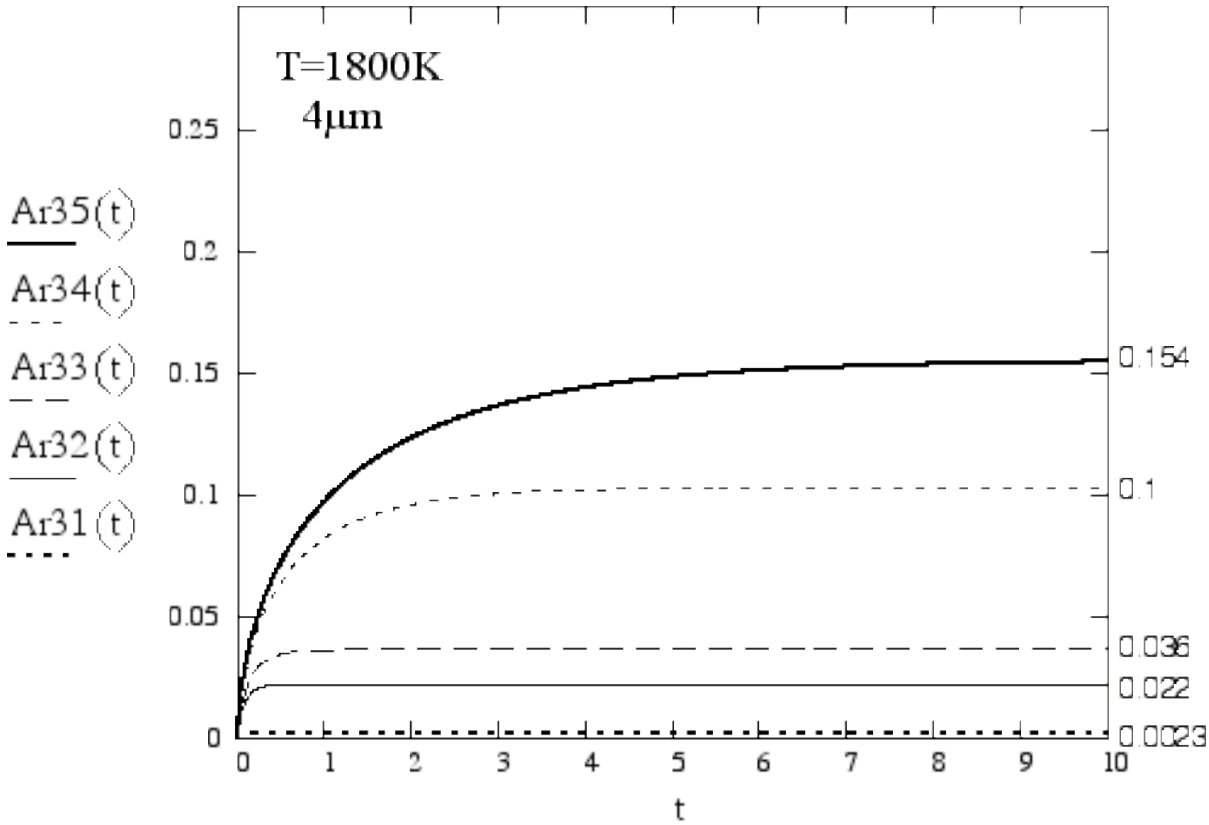
L'efficacité de diffusion effusion est estimée à partir des données de diffusion de l'^{35}Ar (chapitre III) pour les carbones 1 et 4µm et des données d'effusion de l'^{8}He et du ^{17}Ne (chapitres III et IV). Nous prendrons, en première approche, les mêmes valeurs d'effusion pour les deux types de carbones (1 et 4µm).

Données 1µm	Données 4µm
E_a =5.41 eV	E_a=2.38 eV
$LogD_0$=4.6 $cm^2.s^{-1}$	$LogD_0$=-3.6 $cm^2.s^{-1}$
ν=13 s^{-1}	ν=13 s^{-1}

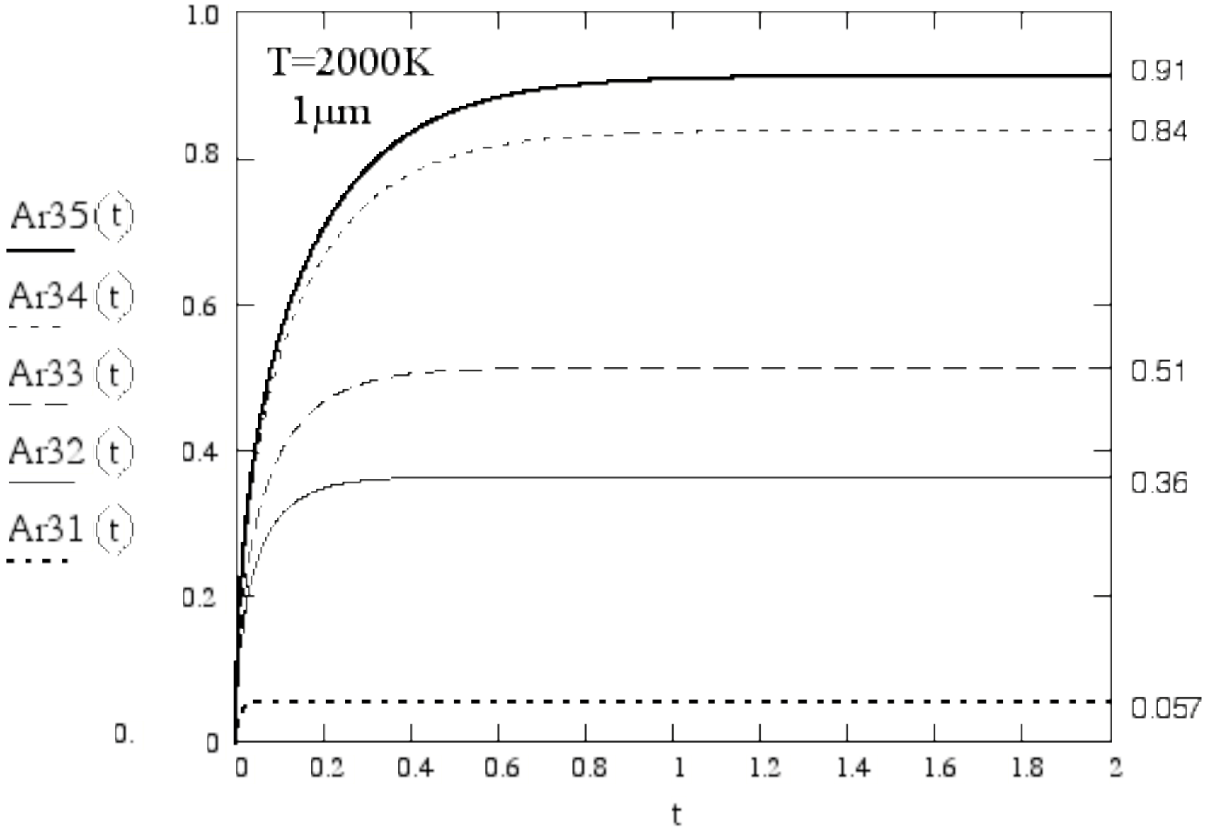
Ces efficacités sont représentées en fonction du temps (en s) pour plusieurs températures de cible.

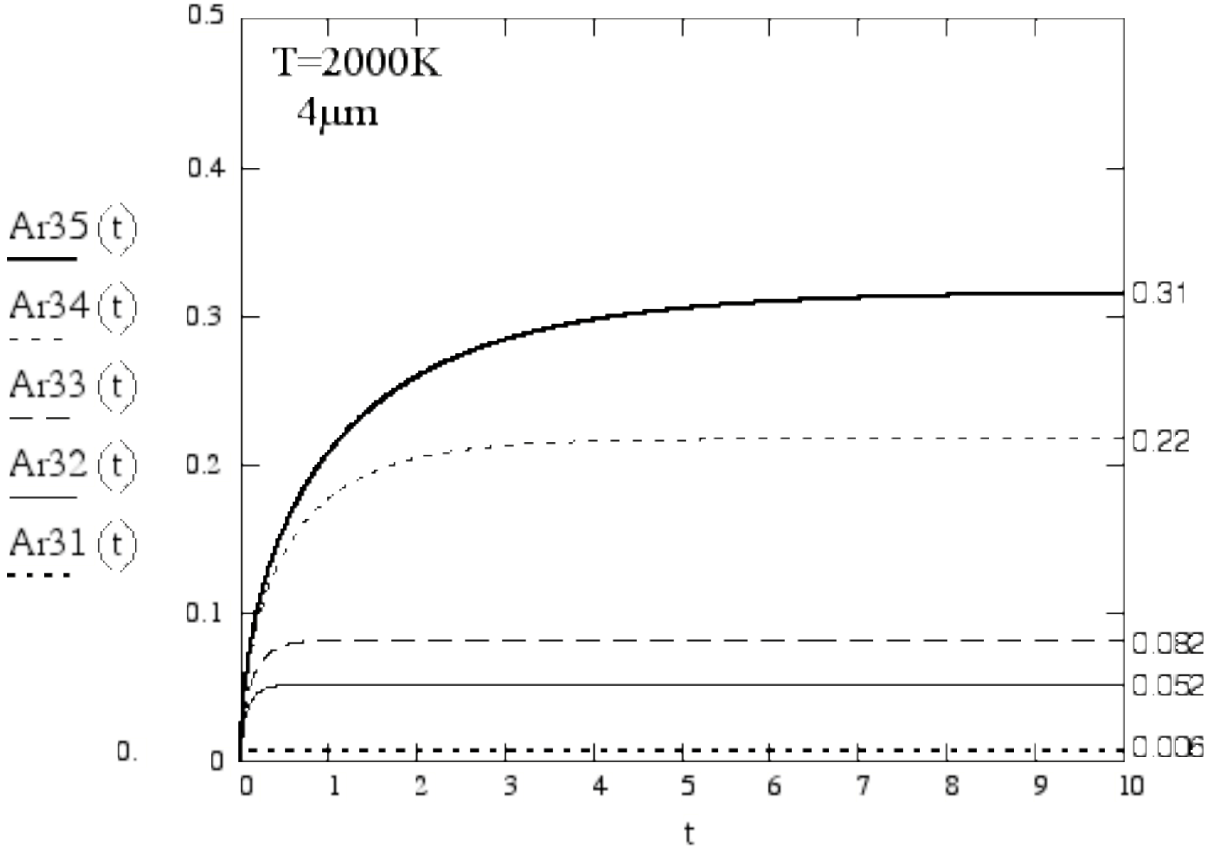
T=1800K


T=1800K
1μm
Ar35(t)
Ar34(t)
Ar33(t)
Ar32(t)
Ar31(t)
0.5
0.4
0.3
0.2
0.1
0
0.44
0.31
0.12
0.08
0.01
0 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10
t

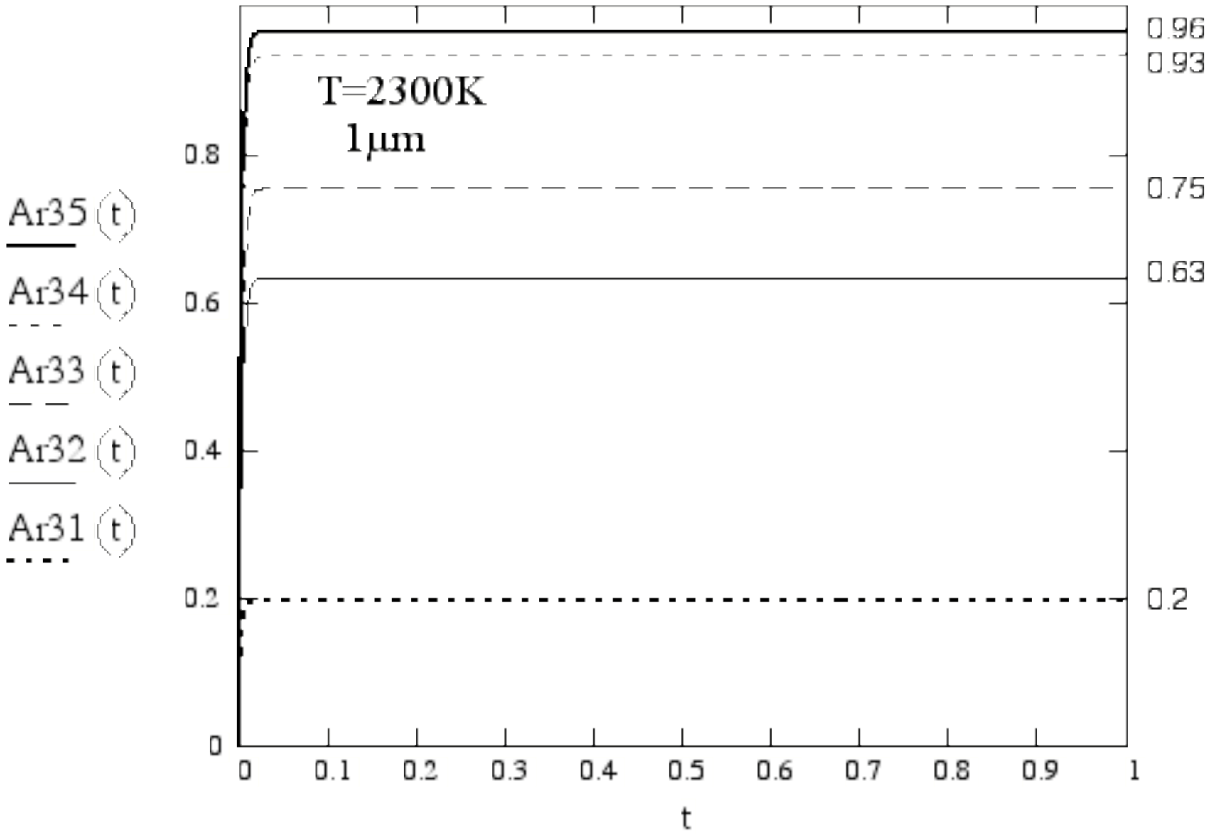

T=1800K
4μm
Ar35(t)
Ar34(t)
Ar33(t)
Ar32(t)
Ar31(t)
0.25
0.2
0.15
0.1
0.05
0
0.154
0.1
0.036
0.022
0.0023
0 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10
t

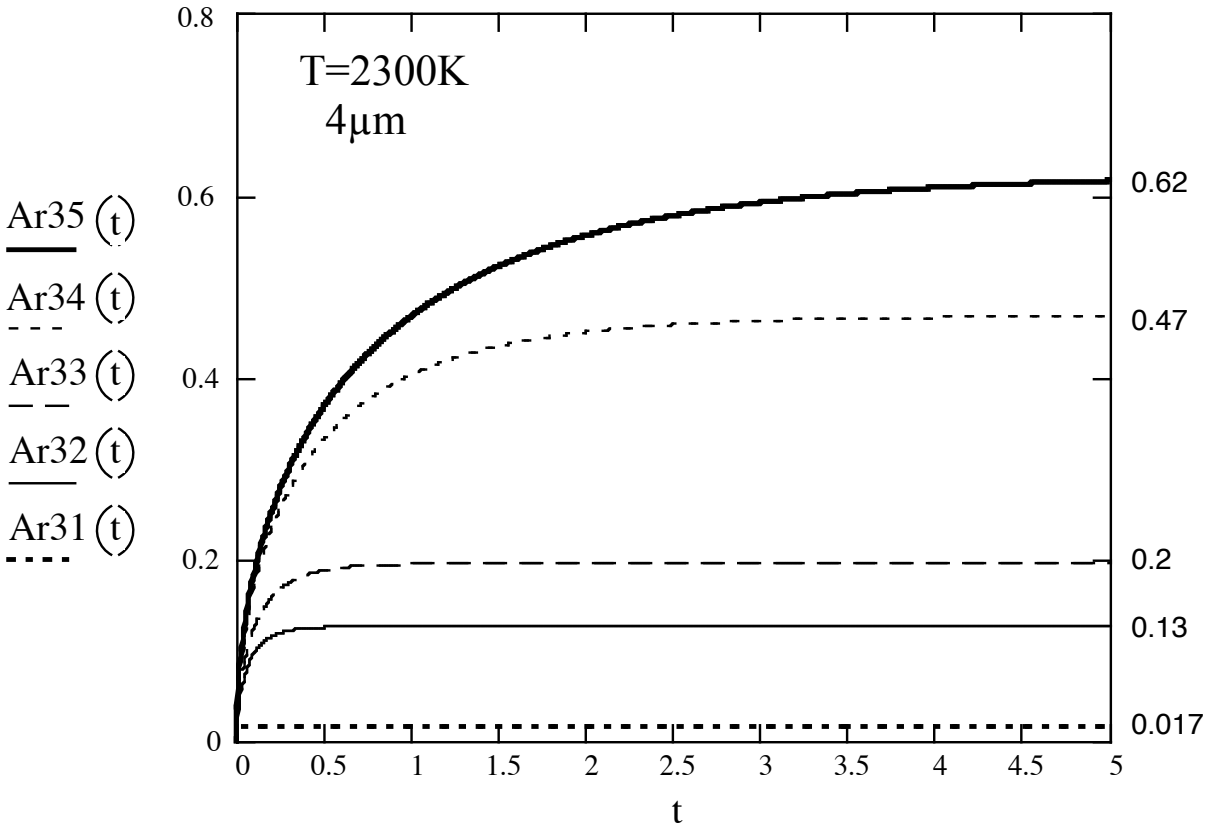
T=2000K


T=2000K
1μm
Ar35(t)
Ar34(t)
Ar33(t)
Ar32(t)
Ar31(t)
0.91
0.84
0.51
0.36
0.057
t

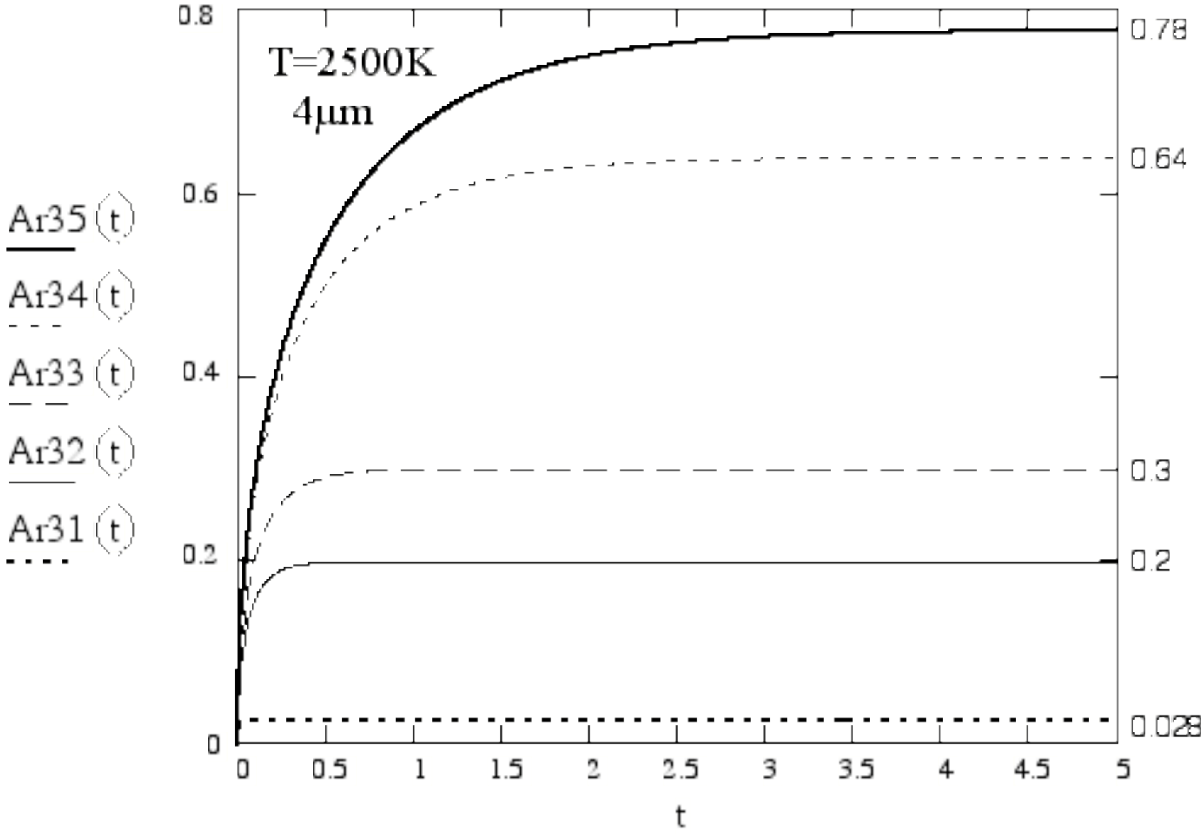

T=2000K
4μm
Ar35(t)
Ar34(t)
Ar33(t)
Ar32(t)
Ar31(t)
0.31
0.22
0.082
0.052
0.006
t

T=2300K


T=2300K
1μm
Ar35 (t)
Ar34 (t)
Ar33 (t)
Ar32 (t)
Ar31 (t)
0.96
0.93
0.75
0.63
0.2
0
0.2
0.4
0.6
0.8
0
0.1
0.2
0.3
0.4
0.5
0.6
0.7
0.8
0.9
1
t

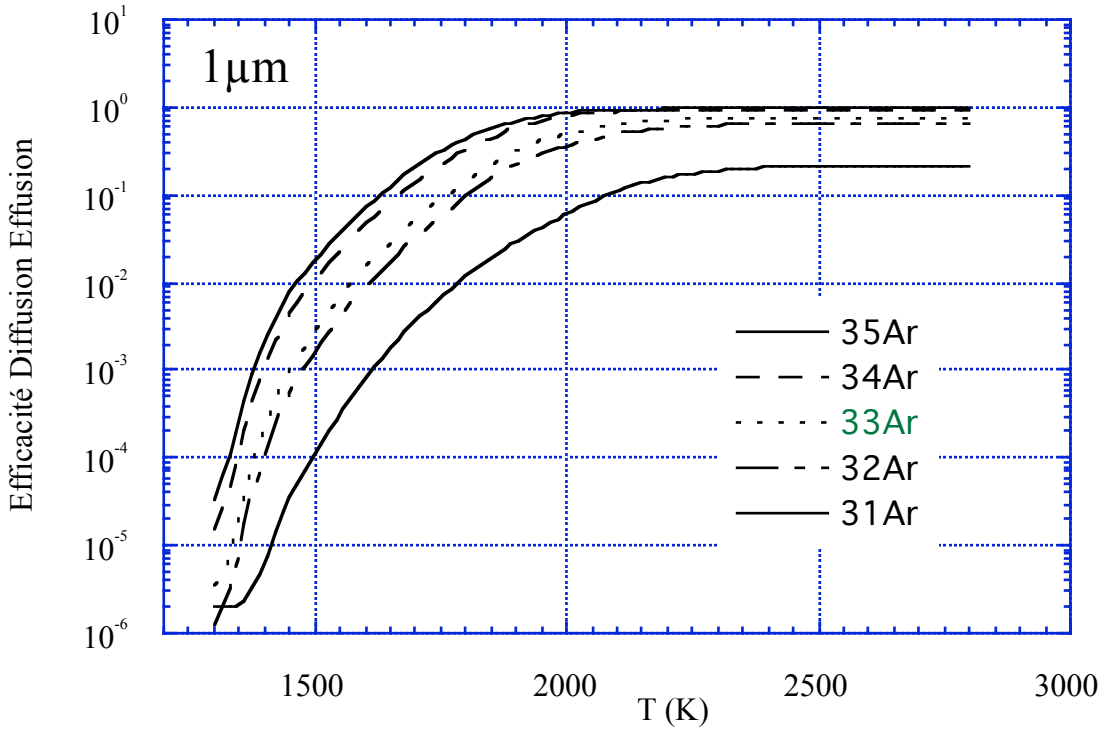

T=2300K
4μm
Ar35 (t)
Ar34 (t)
Ar33 (t)
Ar32 (t)
Ar31 (t)
0.62
0.47
0.2
0.13
0.017
0
0.2
0.4
0.6
0.8
0
0.5
1
1.5
2
2.5
3
3.5
4
4.5
5
t

T=2500K

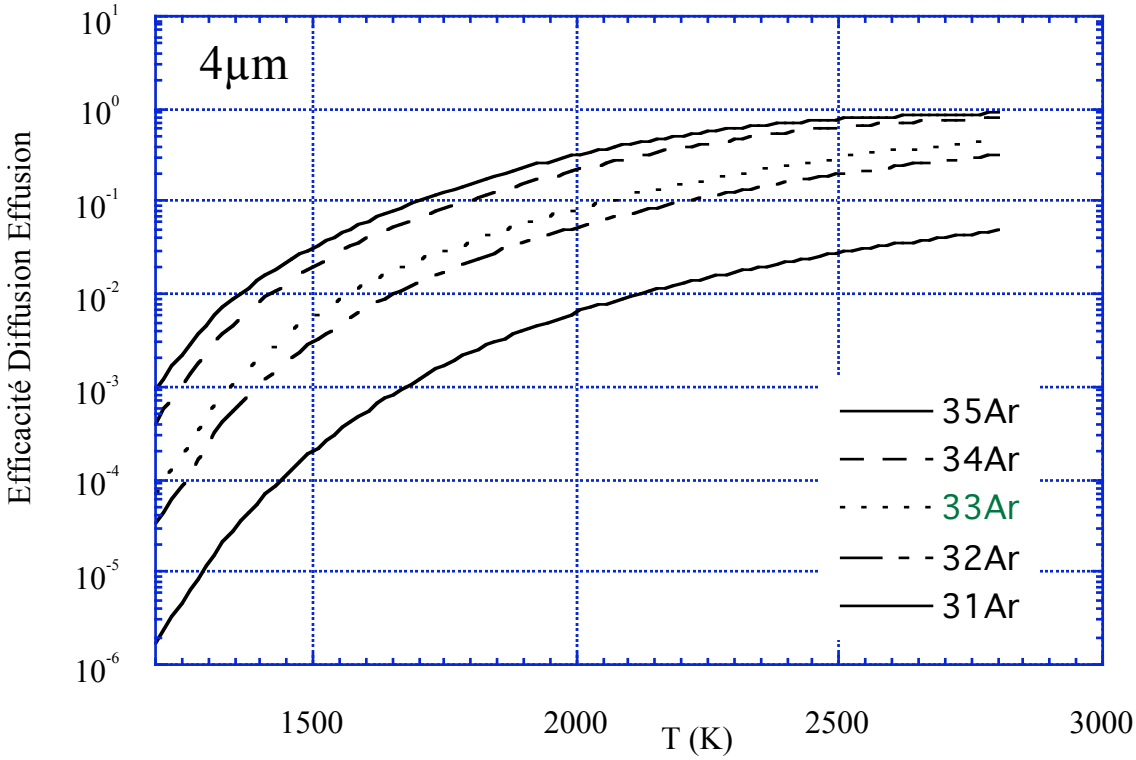


Pour avoir une vue d'ensemble, nous avons présenté ces efficacités de diffusion effusion en fonction de la température pour chaque isotope d'Argon.

Carbone 1µm



Carbone 4µm



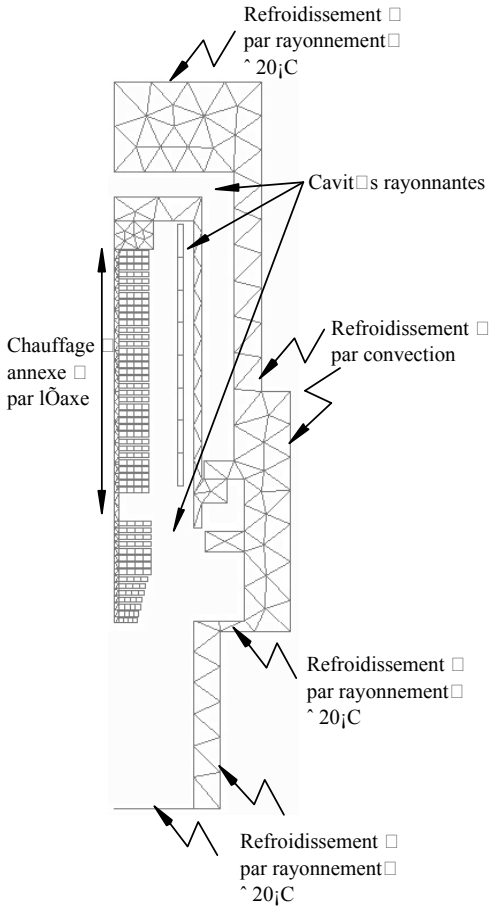
Annexe E
Fichier de commande SYSTUS
Cible Hélium en deux parties

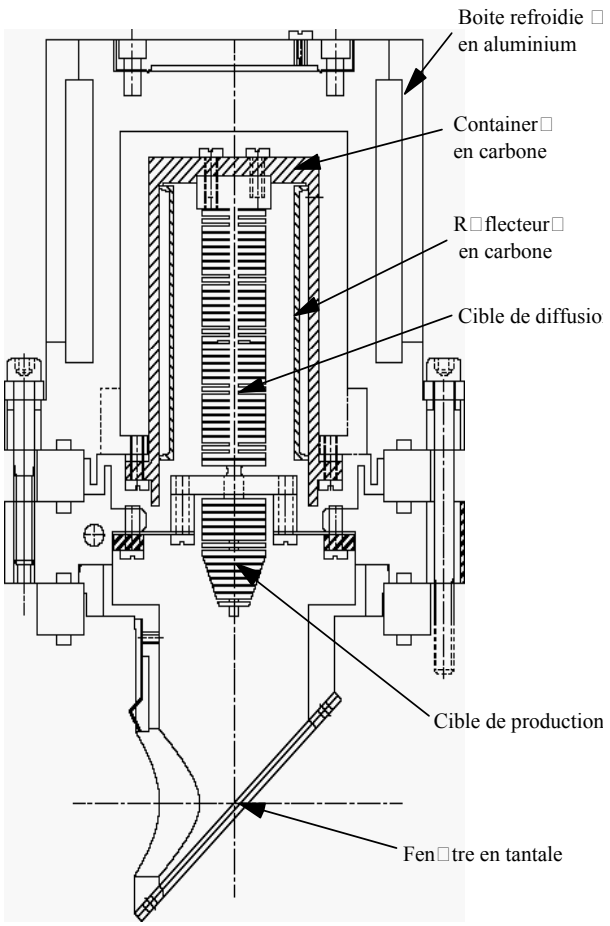
```
RECH DONN 1                                   * nom du fichier géométrie
DEFI
 cible helium tout carbone
opti thermique axisymetrique                  * calcul thermique avec une géométrie
repe geom                                     présentant une symétrie axiale
reclasser iter 20
 1
CARACTERISTIQUES                              * caractéristiques des matériaux
        La fonction "vari" renvoie à la fonction de variation des matériaux dans la partie TABLE
(ex :"kx ky 1 vari 2" renvoie à la variation de la conductivité décrite dans la table n°2)
 m groupe $carbone$ / kx ky 1 vari 2 RHO 1.78*-6 C –1   * kx ky : conductivité thermique(W/mm.°C)
 m groupe $d41$ / kx ky 0.238 rho 2.7*-6 c 917          * rho : densité (kg/mm3)
 m groupe $d48$ /kx ky 0.0576 rho 16.6*-6 c 142         * C : capacité calorifique (J/K.kg)
 m GROUPE $emiss_c$ / EMISS 0.8                         * emiss : emissivité
 m groupe $emiss_alu$ / emiss 0.2
 m groupe $emiss_ta$ / emiss 0.2
MILIEU                                                  * définition du rayonnement
 rayon / groupe $surf_20$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme -1 tinf 20   * rayonnement à 20°C à
                                                                        l'infini
 rayon / groupe $cavite1$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme 1 grpe 1     * rayonnement dans une
                                                                        cavité
 rayon / groupe $cavite2$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme 1 grpe 1
 rayon / groupe $cavite3$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme 1 grpe 1
reclasser iter 20
 1
LIAISONS
 m groupe $surf_ref$ / kt 5*-3                  * refroidissement par convection
 m groupe $l10$ / kt 5*-3                       * kt : coefficient d'échange (W/mm2.°C)
CHARGEMENTS
1 chauffage annexe                              * chargement N°1. "d1" correspond à l'axe de la cible
; m groupe $d1$ / qr=2.17                       * soit un chargement continu qr (W/mm3)
 m groupe $d1$ / qr=1 ft=4                      * soit un chargement en fonction du temps
                                                suivant la fonction temporelle ou table n°4
 m groupe $surf_ref$ / TT 20                    * le fluide de refroidissement par convection est à 20°C
```

```
 m groupe $l10$ / tt 20
TABLE                                   * définition des différentes fonctions ou tables
 1/fortran
c capacite calorifique du carbone en fonction de la température T
   function C(T)
   A1=635.9
   A2=3.1452
   A3=0.0028782
   A4=1.285*-6
   A5=2.7813*-10
   A6=2.345*-14
   B1=A2 T *
   B2=A3 T T * *
   B3=A4 T T T * * *
   C1=T T *
   B4=A5 C1 C1 * *
   B5=A6 C1 C1 T * * *
   C2= A1 B1 +
   C3=C2 B2 -
   C4=C3 B3 +
   C5=C4 B4 -
   C=C5 B5 +
   return
   end
 2/fortran
c conductivite thermique du carbone POCO en fonction de la température T
   function K(T)
   A1=0.071703
   A2=-8.7246*-5
   A3=5.0897*-8
   A4=-1.3245*-11
   A5=1.2905*-15
   B1=A2 T *
   B2=A3 T T * *
   B3=A4 T T T * * *
   C1=T T *
   B4=A5 C1 C1 * *
   K=A1 B1 B2 B3 B4 + + + +
   return
   end
  3/fortran
c conductivite thermique du carbone en fonction de la température T
   function K(T)
   A1=0.10865
   A2=-0.00013346
   A3=7.2024*-8
   A4=-1.2896*-11
   B1=A2 T *
   B2=A3 T T * *
   B3=A4 T T T * * *
```

```
   K=A1 B1 B2 B3 + + +
   return
   end
  4/1,0,0,2,2.17,1200,2.17,1202,0.1814        * table décrivant la variation du chargement en
                                                fonction du temps
retour
milieu extraire 1
transitoire non lineaire                      * option en transitoire non linéaire
algo opti 1 0 151 implicite 0.5 iter=150      * options pour les algorithmes de calcul
precision absolue force 1*-6 deplacement 0.1
methode symetrique test 1 direct
conditions initiales
 n / TT 20                                    * tous les nœuds du maillage sont à 20°C
temps initial 0.                              * pas de temps pour le calcul en transitoire
 2 pas 0.1/ depla 1 stock 2                   * de t=0 à t=2s déplacement par pas de 0.1s et
                                                enregistrement des données une fois sur deux
 10 pas 1 /depla 1 stock 2
 50 pas 5/ depla 1 stock 1
 200 pas 10 /depla 1 stock 1
 1000 pas 20 / depla 1 stock 1
retour
cons donn tran 102                            * conservation des données et des données
                                                transitoires dans les fichiers DONN102 et TRAN102
fin
```

Géométrie SYSTUS
Cible Hélium en deux parties

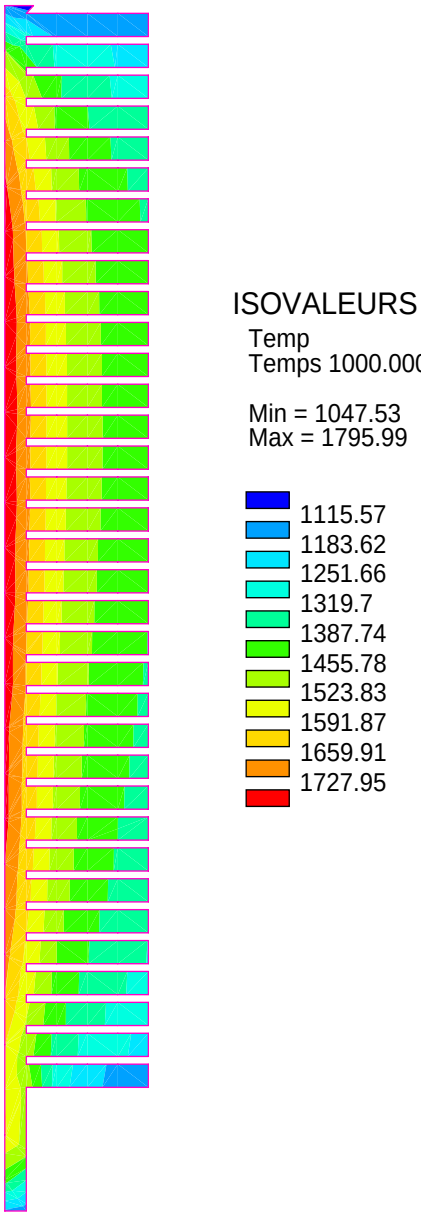




Résultats SYSTUS
Cible Hélium

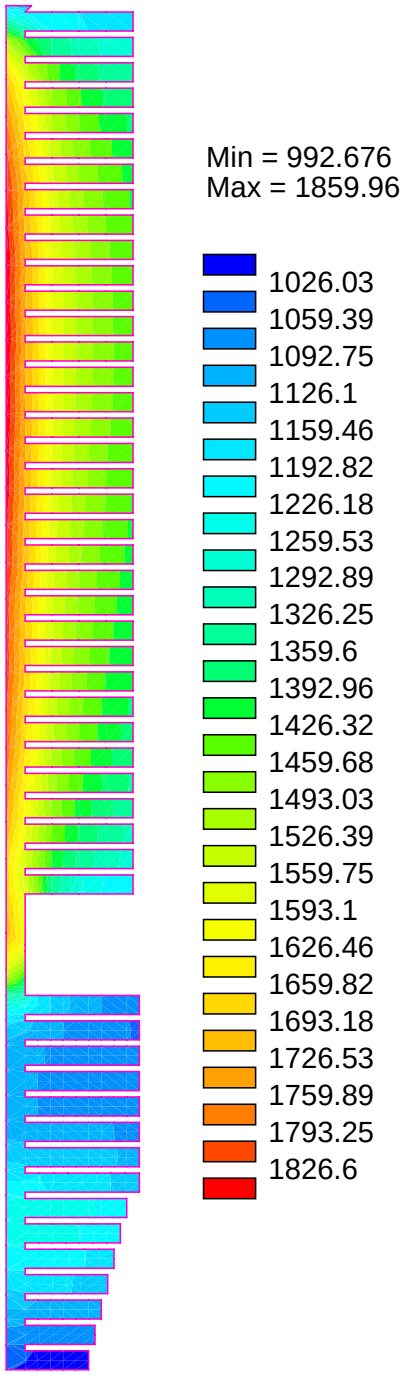
Cible de diffusion

Puissance chauffage annexe = 1kW
Puissance faisceau = 0W



Cibles de diffusion et de production

Puissance chauffage annexe = 1kW
Puissance faisceau = 200W



Fichier de commande SYSTUS
Cible Hélium B_4C

```
RECH DONN 24
DEFI
 cible helium b4c
opti thermique axisymetrique
repe geom
reclasser iter 20
 1
CARACTERISTIQUES
 m groupe $carbone$ / KX KY 1 vari 1 RHO 1.86*-6 C -2
 m groupe $d16$ / KX KY 1 vari 1 RHO 1.86*-6 C -2
 m groupe $d2$ / KX KY 0.07 RHO 2.52*-6 C 1000
 m groupe $alu$ / kx ky 0.238 rho 2.7*-6 c 917
 m groupe $d20$ / kx ky 0.0576 rho 16.6*-6 c 142
 m groupe $emiss_ta$ / emiss 0.26
 m GROUPE $emiss_c$ / EMISS 0.8
 m groupe $emiss_alu$ / emiss 0.1
MILIEU
 rayon / groupe $rayo20$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme -1 tinf 20
 rayon / groupe $cavite1$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme 1 grpe 1
 rayon / groupe $cavite2$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme 1 grpe 1
 rayon / groupe $cavite3$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme 1 grpe 1
reclasser iter 20
 1
LIAISONS
 m groupe $l62$ / kt 5*-3
 m groupe $l87$ / kt 5*-3
CHARGEMENTS
1 carbone 75MeV/A 400W
 m groupe $d11$ / qr=0.3366                    * puissance sur l'axe (domaine d11)

 m 59 70 81 92 103 114 / qr=0.0642             *
 m 60 71 82 93 104 115 / qr=0.0662             *
 m 61 72 83 94 105 116 / qr=0.0683             *
 m 62 73 84 95 106 117 / qr=0.0707             *
 m 63 74 85 96 107 118 / qr=0.0733             *
 m 64 75 86 97 108 119 / qr=0.0764             *
 m 65 76 87 98 109 120 / qr=0.08               * Répartition de la puissance faisceau
 m 66 77 88 99 110 121 / qr=0.0842             * sur la cible suivant le pic de Bragg
 m 67 78 89 100 111 122 / qr=0.0892            *
 m 68 79 90 101 112 123 / qr=0.0954            *
```

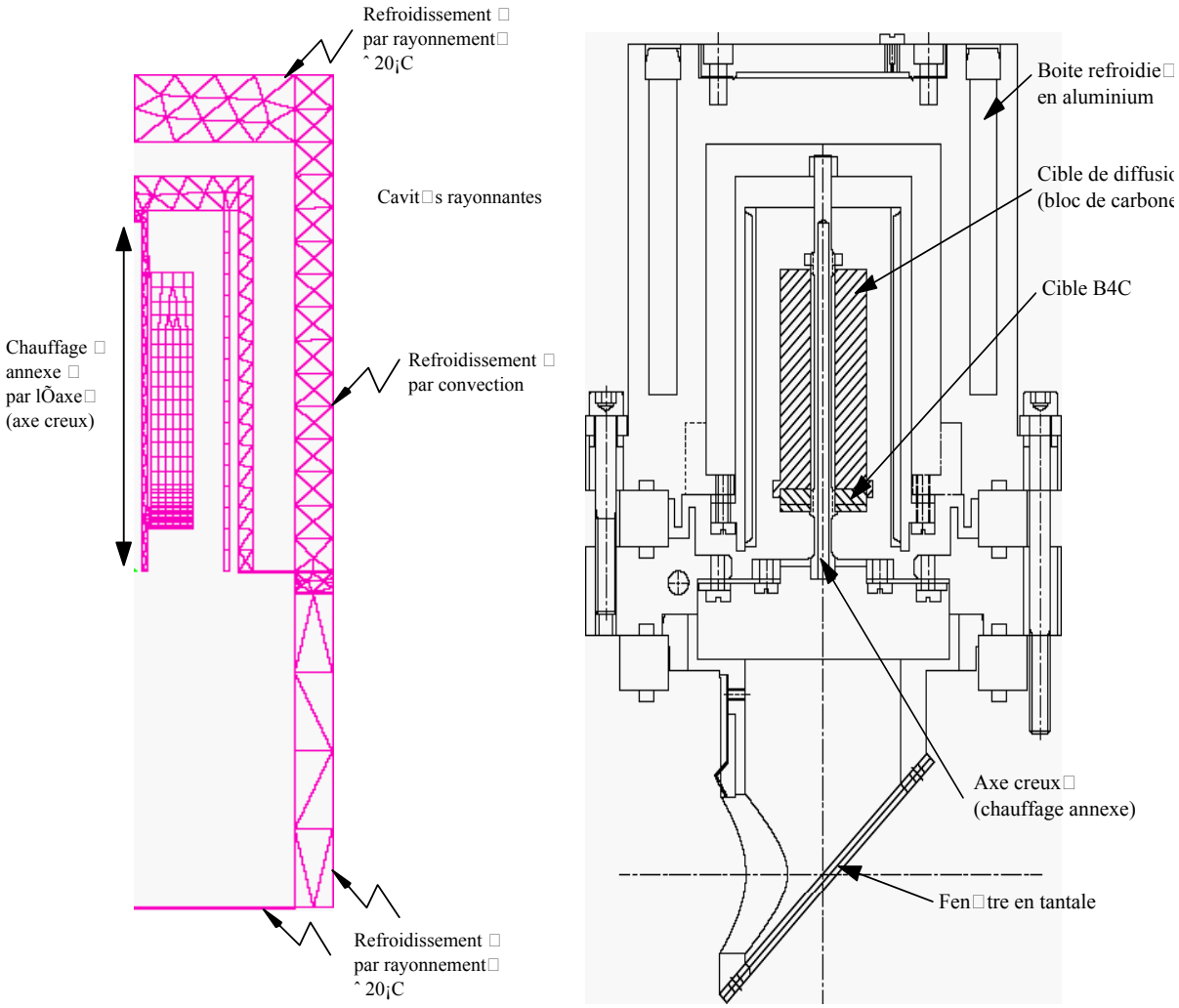
```
 m 69 80 91 102 113 124 / qr=0.1                    *
 m 125 a 139 / qr=0.0863                            *
 m 131 a 136 / qr=0.108                             *
 m 137 a 142 / qr=0.254                             *
 m 143 a 148 / qr=0.74                              *
 m groupe $l62$ / tt 20
 m groupe $l87$ / tt 20
```

TABLE

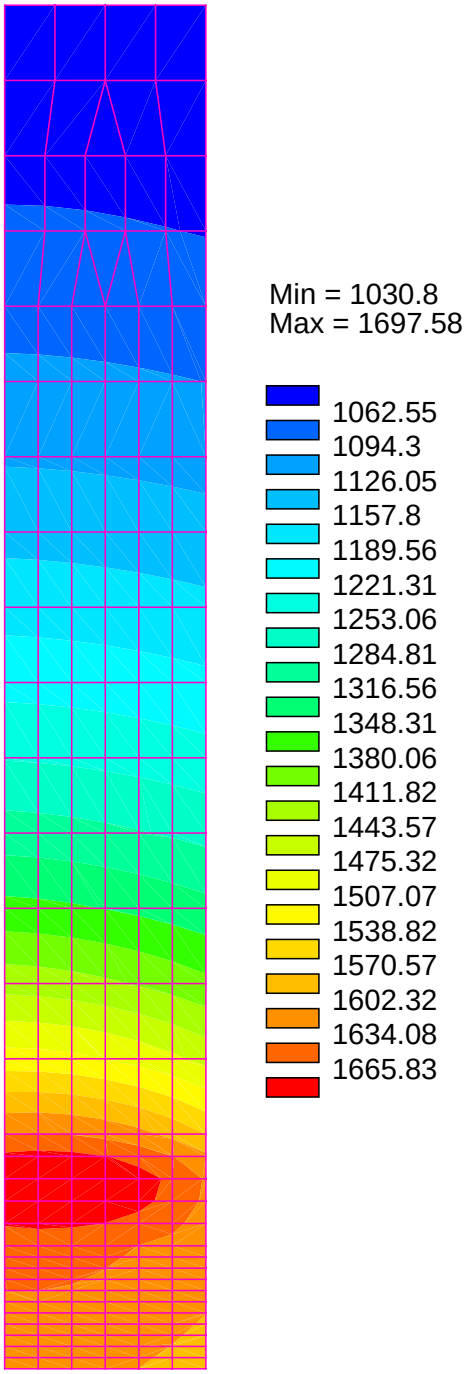
```
 1/fortran
c conductivite thermique du carbone POCO en fonction de T
   function K(T)
   A1=0.071703
   A2=-8.7246*-5
   A3=5.0897*-8
   A4=-1.3245*-11
   A5=1.2905*-15
   B1=A2 T *
   B2=A3 T T * *
   B3=A4 T T T * * *
   C1=T T *
   B4=A5 C1 C1 * *
   K=A1 B1 B2 B3 B4 + + + +
   return
   end
 2/fortran
c chaleur specifique du carbone en fonction de T
   function C(T)
   A1=635.9
   A2=3.1452
   A3=0.0028782
   A4=1.285*-6
   A5=2.7813*-10
   A6=2.345*-14
   B1=A2 T *
   B2=A3 T T * *
   B3=A4 T T T * * *
   C1=T T *
   B4=A5 C1 C1 * *
   B5=A6 C1 C1 T * * *
   C2= A1 B1 +
   C3=C2 B2 -
   C4=C3 B3 +
   C5=C4 B4 -
   C=C5 B5 +
   return
   end
retour
milieu extraire 1
transitoire non lineaire
algo opti 1 0 151 implicite 0.5 iter=150
```

```
precision absolue force 1*-6 deplacement 0.10
methode symetrique test 1 direct
conditions initiales
 n / TT 20
temps initial 0.
 2 pas 0.1 / depla 1 stock 10
 10 pas 1 / depla 1 stock 1
 100 pas 5 /depla 1 stock 2
 1000 pas 10 / depla 1 stock 2
 2000 pas 50 / depla 1 stock 2
retour
cons donn tran 39
fin
```

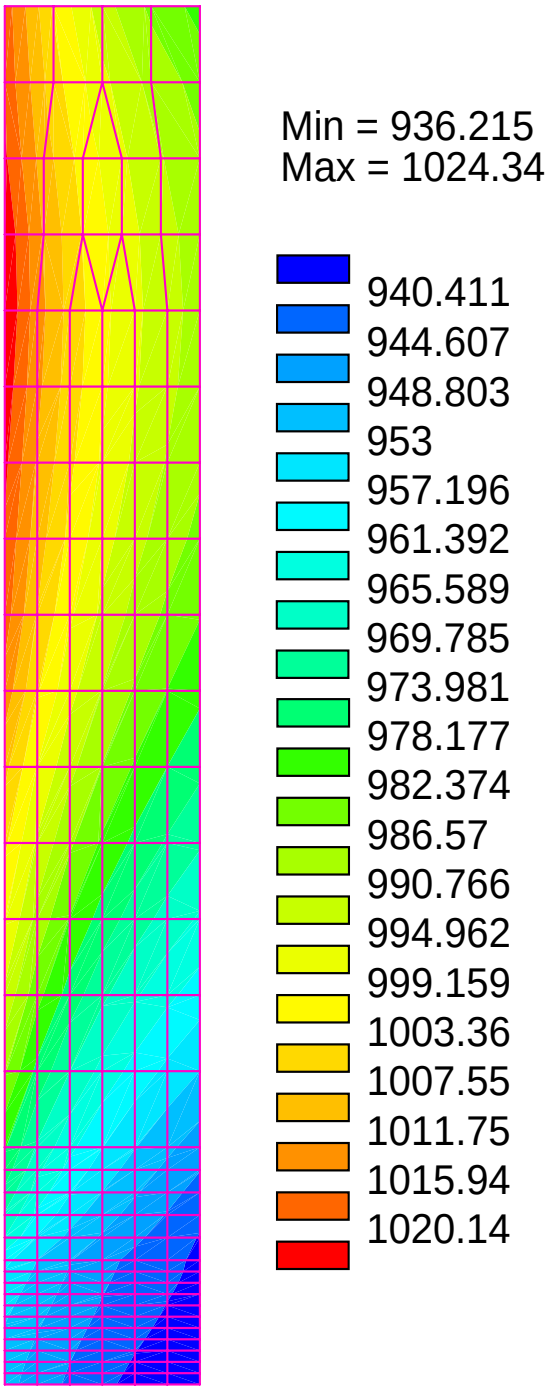
Géométrie SYSTUS
Cible Hélium B_4C



Résultats SYSTUS
Cible Hélium B_4C



Puissance faisceau = 400W
Puissance axe = 0W



Puissance faisceau = 0W
Puissance axe = 400W

Annexe F
Fichier de commande SYSTUS
MONOLITHE

RECH DONN 2 * *nom du fichier géométrie*

DEFI

monolithe 3d

opti thermique spatiale * *calcul thermique avec une géométrie*

repe geom *avec une géométrie 3D*

reclasser iter 20

300

CARACTERISTIQUES * *caractéristiques des matériaux*

La fonction "vari" renvoie à la fonction de variation des matériaux dans la partie TABLE (ex :"kx ky kz 1 vari 2" renvoie à la variation de la conductivité décrite dans la table n°2

m groupe $cavite$ / KX KY kz 1 vari 2 RHO 1.78*-6 C -1

m groupe $four$ / kx ky kz 0.1 rho 2.2*-6 c –1 * *kx ky : conductivité thermique(W/mm.°C)*

m groupe $reflecteur$ / kx ky kz 0.03 rho 1.9*-6 c 1500 * *rho : densité (kg/mm^3)*

m groupe $electrode_c$ / kx ky kz 0.1 rho 2.2*-6 c -1 * *C : capacité calorifique (J/K.kg)*

m groupe $v20$ / kx ky kz 0.0216 rho 4.5*-6 c 528

m groupe $v10$ / kx ky kz 1 vari 2 rho 1.78*-6 c -1

m GROUPE $emiss_c$ / EMISS 0.8 * *emiss : emissivit*

m groupe $emiss_ti$ / emiss 0.2

m groupe $emiss_bn$ / emiss 0.6

MILIEU * *définition du rayonnement*

rayon / groupe $cavite1$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme grpe 1 * *rayonnement dans une cavité*

rayon / groupe $cavite2$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme grpe 1

rayon / groupe $cavite3$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme grpe 1

rayon / groupe $cavite4$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme grpe 1

rayon / groupe $cavite5$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme grpe 1

rayon / groupe $surf_elec$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme grpe 1

rayon / groupe int_tube stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme grpe 1

rayon / groupe $surf_20$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme -1 tinf 20 * *rayonnement à 20°C à l'infini*

rayon / groupe $surf_faisc$ stefan 5.67*-14 matrice 1 ferme -1 tinf 2000 * *cible de production à 2000°C*

LIAISONS

m groupe $D155$ / kt 5*-3 * *refroidissement par convection*

m groupe $d159$ / kt 5*-3 * *kt : coefficient d'échange (W/mm^2.°C)*

CHARGEMENTS

```
1 chauffage par le four
 m 1232 a 1647 / qr=1.45          * puissance du four (W/mm3)
 m groupe $d155$ / tt 20          * le fluide de refroidissement par convection est à 20°C
 m groupe $d159$ / tt 20
```

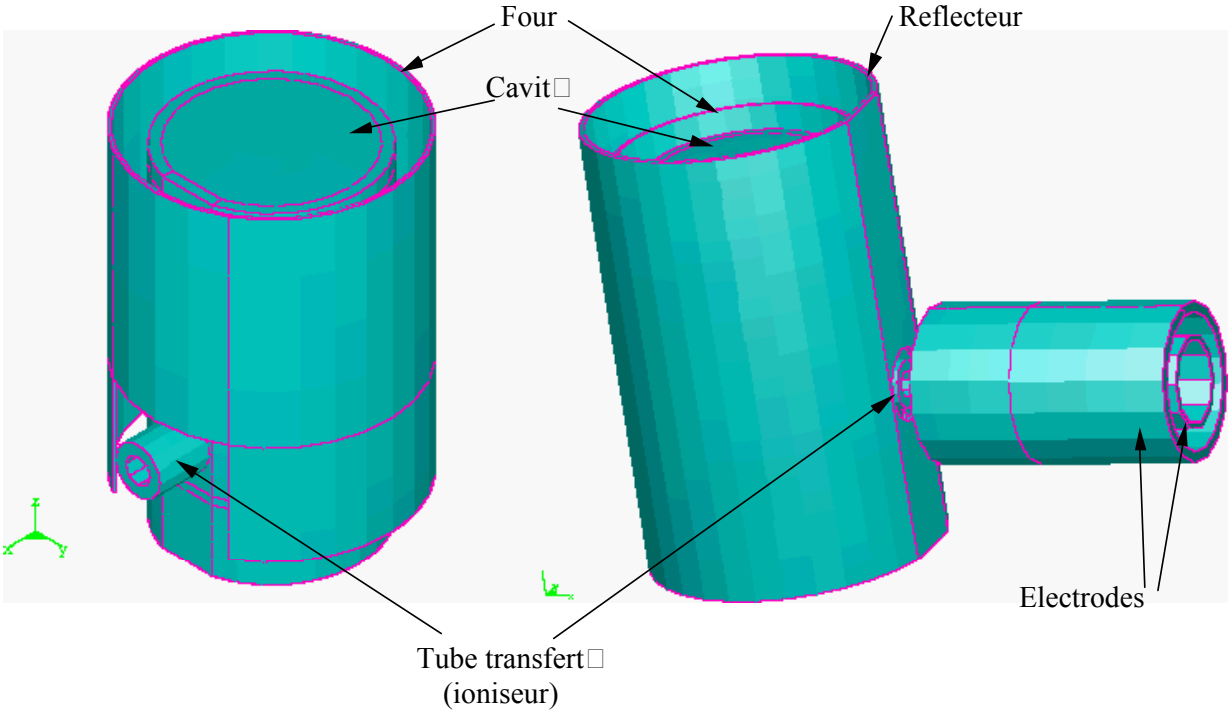
TABLE * *définition des différentes fonctions ou tables*

```
 1/fortran
c chaleur specifique du carbone en fonction de T
   function C(T)
   A1=635.9
   A2=3.1452
   A3=0.0028782
   A4=1.285*-6
   A5=2.7813*-10
   A6=2.345*-14
   B1=A2 T *
   B2=A3 T T * *
   B3=A4 T T T * * *
   C1=T T *
   B4=A5 C1 C1 * *
   B5=A6 C1 C1 T * * *
   C2= A1 B1 +
   C3=C2 B2 -
   C4=C3 B3 +
   C5=C4 B4 -
   C=C5 B5 +
   return
   end
 2/fortran
c conductivite thermique du carbone en fonction de T
   function K(T)
   A1=0.071703
   A2=-8.7246*-5
   A3=5.0897*-8
   A4=-1.3245*-11
   A5=1.2905*-15
   B1=A2 T *
   B2=A3 T T * *
   B3=A4 T T T * * *
   C1=T T *
   B4=A5 C1 C1 * *
   K=A1 B1 B2 B3 B4 + + + +
   return
   end
retour
milieu extraire 1
transitoire non lineaire                    * option en transitoire non linéaire
algo opti 1 0 151 implicite 0.5 iter=150    * options pour les algorithmes de calcul
precision absolue force 1*-5 deplacement 0.1
methode symetrique test 1 direct
```

<u>conditions initiales</u>

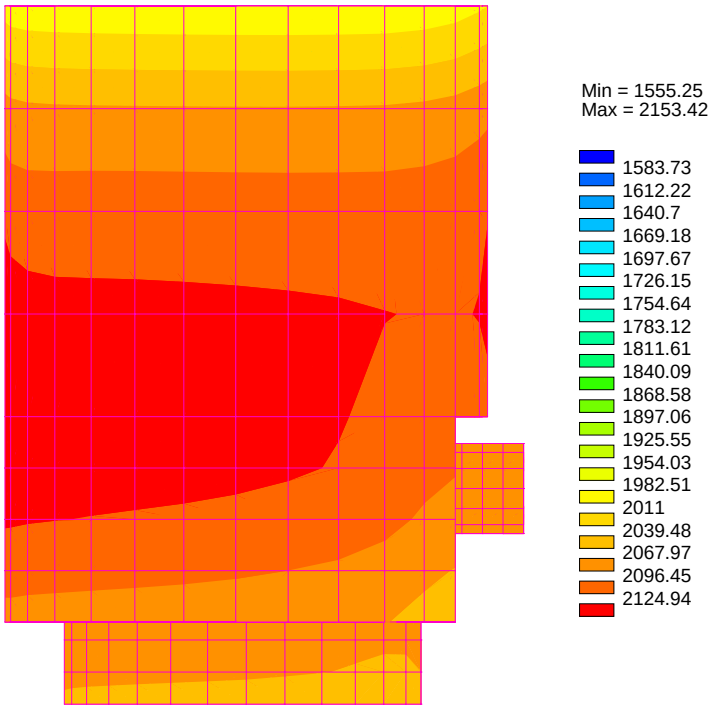
```
 n / TT 20                          * tous les nœuds du maillage sont à 20°C
temps initial 0. 0.                 * pas de temps pour le calcul en transitoire
 2 pas 0.1/ depla 1 stock 5         * de t=0 à t=2s déplacement par pas de 0.1s et
                                    enregistrement des données une fois sur cinq
 30 pas 2/ depla 1 stock 1
 60 pas 5 /depla 1 stock 1
 300 pas 20 /depla 1 stock 1
 1500 pas 50 / depla 1 stock 1
retour
cons donn tran 16                   * conservation des données et des données
                                    transitoires dans les fichiers DONN16 et TRAN16
fin
```

Géométrie SYSTUS
MONOLITHE

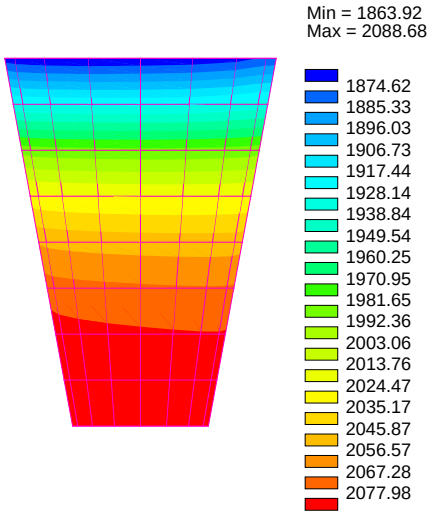


Résultats SYSTUS
MONOLITHE

Puissance four = 6kW



Cavité chaude, four et tube transfert



Cible de diffusion

Annexe G
Calculs de l'effusion

Ce programme appelé "effusion" prend en compte la géométrie des cibles SPIRAL : conique, à lamelles, dans un container et avec un tube de transfert. Il permet de calculer le nombre de collisions nécessaire à un atome pour sortir d'un container (ou cavité) contenant une cible SPIRAL, à une température donnée. A partir de ces données, il donne l'efficacité d'effusion, le temps et le parcours dans la cavité et la vitesse de l'atome.

Le fichier de données est le suivant :

ioption, sigtet, hset

ioption si 0 cas de collision élastique

si 1 cas de collisions inélastiques alors sigtet et hset sont des paramètres dans le cas 1.

0	1.570000	1.000E-3

ralvo,	hx,	delz,	rcont,	zm,	zm1,	angle	beta
1.4	8E-02	5E-02	1.6	4.0	4.0	20.0	0

Rayon cible (cm), épaisseur des lamelles (cm), espace entre les lamelles (cm), rayon container (cm), zm et zm1 : épaisseur totale de la cible, angle du cône de la cible, angle du container.

am,	alcance,	npar,	tmeio,	tcol,	temper
11	2	100	0.0085	0	2273

masse de l'atome, parcours d'arrêt de l'atome (cm) (implantation dans la cible), nombre d'atomes implantés période de l'atome, temps de collage (s), température de la cible (K).

tube,	colim,	temper1
0.2	0.25	2273

longueur du tube transfert (cm), rayon du tube transfert (cm), température du tube transfert.

Le fichier résultats est le suivant :

ioption, sigtet, hset

ioption si 0 cas de collision élastique

si 1 cas de collisions inélastiques alors sigtet et hset sont des paramètres dans le cas 1.

0 1.570000 1.000E-3

ralvo,	hx,	delz,	rcont,	zm,	zm1,	angle	beta
1.4	8E-02	5E-02	1.6	4.0	4.0	20.0	0

Rayon cible (cm), épaisseur des lamelles (cm), espace entre les lamelles (cm), rayon container (cm), zm et zm1 : épaisseur totale de la cible, angle du cône de la cible, angle du container.

am,	alcance,	npar,	tmedio,		tcol,	temper
11	2	100	0.0087	0	2273	

masse de l'atome, parcours d'arrêt de l'atome (cm) (implantation dans la cible), nombre d'atomes implantés période de l'atome, temps de collage (s), température de la cible (K).

tube,	colim,	temper1
0.2	0.25	2273

longueur du tube transfert (cm), rayon du tube transfert (cm), température du tube transfert.

ef= 0.76	efefu=0.7399	t1/2=8.700E-03	tmedio=4.444E-03
effusion		*période*	*temps de parcours*

ncolmed=846 v1=1.856E+05 espmed=8.2357E+02

nombre de collision, vitesse de l'ion, longueur du parcours dans la cavité

A partir de ces données nous pouvons utiliser un autre code appelé "eff." qui permet de calculer l'efficacité de diffusion effusion en fonction des coefficients d'Arrhenius donnés.

Le fichier de données est le suivant :

Log Do (cm2/s), Ea (kcal/mol), d(micros), it (1=spheric, 0), T1/2 (s), M(amu), Z

4.5 52.3 800 0 0.87E-02 11 3

Coefficients d'Arrhenius LogDo et Ea, épaisseur de lamelle ou diamètre du grain de carbone, option 1 : diffusion dans sphère, 0 : diffusion dans lamelle, période, masse et Z de l'atome

lb (cm),	lt(cm),	nbcol,	ntcol,	t1(K),	t2 (K)
1100	1	800	10	2273	2273

parcours moyen dans la boite (données dans le 1er programme), parcours moyen dans le tube (données dans le 1er programme), nombre de collision dans la cavité (données dans le 1er programme), nombre de collisions dans le tube transfert (données dans le 1er programme), température de la cavité, température du tube transfert.

Fichier résultats :

INPUT

Log Do (cm2/s),	Ea (kcal/mol),	d(micros),	it (1=spheric, 0),	T1/2 (s),	M(amu),	Z
4.5	52.3	800	0	0.87E-02	11	3

Coefficients d'Arrhenius LogDo et Ea, épaisseur de lamelle ou diamètre du grain de carbone, option 1 : diffusion dans sphère, 0 : diffusion dans lamelle, période, masse et Z de l'atome

lb (cm),	lt(cm),	nbcol,	ntcol,	t1(K),	t2 (K)
1100	1	800	10	2273	2273

parcours moyen dans la boite (données dans le 1er programme), parcours moyen dans le tube (données dans le 1er programme), nombre de collision dans la cavité (données dans le 1er programme), nombre de collisions dans le tube transfert (données dans le 1er programme), température de la cavité, température du tube transfert.

OUTPUT

D (cm2/s)	tmu(s)	ta1(s)	tnu1(s)	ta2(s)	tnu2(s)
0.2962	0.5473E-3	0.9602E-5	3.894	0.9602E-05	0.14E-03

Coefficient D, temps de diffusion, temps de collage pour chaque collision dans la cavité, temps d'effusion dans la cavité, temps de collage pour chaque collision dans le tube transfert, temps d'effusion dans le tube

Ymu	Ynu1	Ynu2	Ytot
0.9656	0.3213E-01	0.989	0.3068E-01

Efficacité de diffusion, efficacité d'effusion dans la cavité, efficacité d'effusion dans le tube transfert, efficacité totale

RESUME

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre du projet SPIRAL (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne) dont la mise en service débutera en septembre 2001 au GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) de Caen.

Cette thèse a essentiellement porté sur le développement de systèmes de production d'ions radioactifs (ensemble cible source) par l'étude approfondie de chaque étape de la production par la méthode ISOL (Isotopic Separation On Line) : la production par fragmentation de la cible et/ou du projectile, la diffusion hors du matériau cible, l'effusion jusqu'à la source d'ionisation et enfin l'ionisation des atomes radioactifs. Une étude bibliographique et des simulations thermiques ont permis d'optimiser au mieux les matériaux et la forme des cibles de production et de diffusion. Une première cible a été optimisée et fiabilisée pour la production de gaz rares radioactifs (Argon, Néon,…). Une deuxième cible dédiée à la production d'Héliums radioactifs a entièrement été conçue (du cahier des charges jusqu'aux tests "hors ligne" et "en ligne"). Enfin, un troisième ensemble cible source a été défini pour la production d'alcalins radioactifs monochargés. Les intensités de faisceaux secondaires prévues pour SPIRAL y sont présentées.

Une étude détaillée sur les efficacités de diffusion effusion pour ces différentes cibles a montré que l'utilisation d'un carbone dont la microstructure est fine (grain de 1µm) améliore la diffusion ainsi que l'importance de l'épaisseur des lamelles dans l'effusion des isotopes de courts temps de vie.

Radioactive ion beam production by the ISOL method for SPIRAL

ABSTRACT

This work is directly related to the SPIRAL project (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Lignes) of which the start up will begin in September 2001 at GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) in Caen.

This thesis primarily concernes the development of radioactive ion production systems (target/ion source) by the thorough study of each production stage of the ISOL (Isotopic Separation On Line) method: target and/or projectile fragmentation production, diffusion out of target material, effusion into the ion source and finally the ionization of the radioactive atoms. A bibliographical research and thermal simulations allowed us to optimize materials and the shape of the production and diffusion targets. A first target was optimized and made reliable for the radioactive noble gase production (argon, neon...). A second target dedicated to the radioactive helium production was entirely designed and realised (from the specifications to the "off line" and "on line" tests). Finally, a third target source system was defined for singly-charged radioactive alkaline production. The intensities of secondary beams planned for SPIRAL are presented here.

A detailed study of the diffusion effusion efficiency for these various targets showed that the use of a fine microstructure carbon (grain size of 1µm) improved the diffusion and showed the importance of thickness of the lamella for the short lived isotope effusion.

Discipline : Sciences de la matière et génie des procédés

Mots clefs : faisceaux d'ions radioactifs, processus de diffusion, sources d'ions, thermique, simulation par ordinateur, physique nucléaire, cibles (physique nucléaire), matériaux à haute température.

Grand Accélérateur National d'Ions Lourds
BP 55027
14 076 CAEN Cedex 05