

Recherche et développement concernant la production d'ions radioactifs dans le cadre de SPIRAL

C. Eléon

▶ To cite this version:

C. Eléon. Recherche et développement concernant la production d'ions radioactifs dans le cadre de SPIRAL. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Caen, 2007. Français. NNT : . tel-00256016

HAL Id: tel-00256016 https://theses.hal.science/tel-00256016

Submitted on 14 Feb 2008 $\,$

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.





UNIVERSITE DE CAEN / BASSE-NORMANDIE U.F.R. : Sciences

ECOLE DOCTORALE SIMEM :

Science des Structures, de l'Information, de la Matière Et des Matériaux

THESE

présentée par

Mr Cyrille ELEON

et soutenue

le 18 décembre 2007

en vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN

Spécialité : Sciences de la matière et génie des procédés

Arrêté du 07 Août 2006

Titre :

Recherche et développement concernant la production d'ions radioactifs dans le cadre de SPIRAL

<u>JURY</u>

Mme Marie Geneviève SAINT LAURENT, Chercheur CEA,GANIL-Caen(Directeur de thèse)M. Oscar NAVILIAT-CUNCIC, Professeur d'université,CNRS-Caen(Mapporteur)Mme Brigitte ROUSSIERE, Directrice de recherche, CNRS-IPN Orsay(Rapporteur)M. Bertram BLANK, Directeur de recherche CNRS, UST-Bordeaux(Rapporteur)M. Thierry LAMY, Ingénieur de recherche 1^{ère} classe, CNRS, LPSC-Grenoble(Rapporteur)M. Pascal JARDIN, Ingénieur de recherche 2^{ème} classe, CNRS, GANIL-Caen(Rapporteur)

SOMMAIRE

INTRODUCTION	7
I. Méthode ISOL	11
Au final, l'expérience montre qu'aucun dispositif n'est universel et qu'au contraire, ch	aque
ensemble cible-source ne peut produire qu'une quantité très limitée d'isotopes différer	its. 14
I.1. Quelques installations utilisant la méthode ISOL, de par le monde	14
I.2. Production de faisceaux d'ions radioactifs à partir de l'installation SPIRAL 1	16
I.2.a. Installation SPIRAL 1	16
I.2.b. Banc de test SIRa	21
I.2.c. Améliorations pouvant être apportées sur SPIRAL 1	23
I.3. Le Projet SPIRAL 2.	25
I.3.a. Production de noyaux exotiques riches neutrons	26
I.3.b. Production de faisceaux radioactifs déficients en neutrons et de faisceaux	
légers	28
I.4. Conclusion et perspectives	29
II. Caractéristiques de diffusion de l'Ar dans une matrice en carbone graphite :	
TARGISOL	31
II.1. Introduction	33
II.1.a. Production de nouveaux faisceaux	34
II.1.b. Données existantes sur les coefficients de diffusion pour du carbone graph	nite34
II.1.c. Amélioration des faisceaux existants sur SPIRAL 1	36
II.2. Etude du relâchement des atomes	36
II.2.a. Diffusion dans un solide	36
II.2.b. Effusion	39
II.2.c. Méthodes de mesure de l'efficacité de relâchement de la cible	41
II.3. Transformation des atomes en ions dans un ECS : Réponse dynamique	42
II.4. L'expérience TARGISOL	47
II.4.a. Dispositif technique	48
II.4.b. Principe de production du faisceau radioactif incident sur cible	51
II.4.c. Conditions expérimentales	52
II.4.d. Acquisition des données expérimentales	53
II.5. Principe d'analyse des mesures	54
II.5.a. Expressions de référence pour l'analyse	54
II.5.b. Fit des courbes de relâchement	56
II.6. Résultats de l'analyse	65
II.6.a. Coefficients de diffusion	65
II.6.b. Comparaison en régime continu et en régime dynamique	66
II.6.c. Comparaison avec les résultats antérieurs	68
II.6.d. Evolution du coefficient de diffusion avec la temperature	70
II./. Utilisation des resultats pour la prediction des taux de production des isotopes	71
d'argon avec SPIRAL I	71
II.8. Conclusion et perspectives	74
III. Froduction de faisceaux d'ions alcalins radioactifs monochargés à partir de	
I'ensemble ciple-source MUNUNAKE	//
III.1. Source a formation de sufface	00
	ðU

III.1.b. Augmentation de l'efficacité d'une source à ionisation de surface	83
III.2. Efficacités totales d'ionisation pour une source à ionisation de surface : Appr	oche
statistique	88
III.2.a. Principe	88
III.2.b. Passage des taux statistiques aux grandeurs physiques	90
III.2.c. Efficacité d'ionisation du tube ioniseur	93
III.2.d. Influence du temps d'effusion ionique T_{ieff}	94
III.3. L'ensemble cible-source MonoNaKe	98
III.4. Mesures et simulations thermiques de l'ensemble cible-source MonoNaKe	. 102
III.5. Estimation des taux de production des noyaux d'alcalins radioactifs arrêtés da	ans
la cible de production	. 107
III.6. Résultats expérimentaux	. 109
III.6.a. Efficacité totale de production des faisceaux d'ions alcalins radioactifs en	
fonction des paramètres de fonctionnement de la source MonoNaKe (puissance du fo	our
et puissance du tube ioniseur)	. 109
III.6.b. Efficacités obtenues en fonction des durées de vie des isotopes de sodium $\binom{25,26,27,28}{Na}$	112
III.6.c. Efficacités totales de production de la source MonoNaKe pour les isotopes	de
potassium : ${}^{47}K^{1+}$ (T _{1/2} =17.5 s) et ${}^{37}K^{1+}$ (T _{1/2} =1.23 s)	. 113
III.6.d. Efficacités totales de production de la source MonoNaKe pour les isotopes	de
lithium : ${}^{8}\text{Li}^{1+}$ (T _{1/2} =838 ms) et ${}^{9}\text{Li}^{1+}$ (T _{1/2} =178 ms)	. 115
III.7. Effet d'un champ électrique d'extraction sur l'efficacité d'ionisation	. 116
III.8. Comparaison des efficacités totales de production des ions 1^+ de sodium et de	3
lithium par rapport à celles obtenues à partir de la source MonoLithe	. 117
III.9. Quelle est la valeur du facteur d'amplification pour la source à ionisation de	
surface MonoNaKe ?	. 118
III.9.a. Détermination du facteur N d'amplification pour la source MonoNaKe	. 118
III.9.b. Estimation de l'efficacité de diffusion-effusion dans la cible et sa cavité po	ur
les isotopes de sodium, de lithium et de potassium	. 121
III.10. Temps de relâchement des isotopes de sodium, potassium et lithium en foncti	on
de la température de la cible	. 122
III.10.a. Mesures du temps de relâchement pour le ${}^{37}_{-}$ K (T _{1/2} : 1,226 s)	. 122
III.10.b. Mesures du temps de relâchement pour le ⁸ Li ($T_{1/2}$: 839 ms)	. 123
III.10.c. Mesures du temps de relâchement pour le ²⁶ Na ($T_{1/2}$: 1,072 s)	. 124
III.11. Comparaison entre les taux de production attendus sur SPIRAL 1 et les autres	5
installations : TRIUMF et ISOLDE	. 126
III.12. CONCLUSION et PERSPECTIVES	. 127
IV. Production d'ions alcalins radioactifs multi-chargés : METHODE 1+/N+	
DIRECTE	. 131
IV.1. Transformation $1^+/N^+$ ou « charge breeding »	. 133
IV.1.a. Tests en stable en fonction de différentes sources 1^+ : Validation du proces	sus .
	. 134
IV.1.b. Processus d'ionisation	. 137
IV.1.c. Principe de la capture du faisceau d'ions monochargés	. 139
IV.2. Production d'ions alcalins exotiques multichargés dans le cadre de SPIRAL 1	•
Ensemble cible-source NanoNaKe	. 143
IV.2.a. Description technique du système	. 143
IV.2.b. Simulations de transport entre la source MonoNaKe et Nanogan III	. 146
IV.3. Résultats expérimentaux de l'ensemble cible-source NanoNaKe	. 153
IV.3.a. Test hors ligne avec un faisceau d'ions monochargés de ²³ Na	. 153

IV.3.b. Test en ligne à partir d'un faisceau primaire de ⁴⁸ Ca de 60MeV/A	154
IV.4. Conclusion et perspectives	166
V. Développement d'une source test à ionisation de surface dans le cadre de	170
SPIRAL 2 : SISTHE $1 + 1 + 1 + 1 + 1 + 1 + 1 + 1 + 1 + 1 $	169
V.1. Source a Ionisation de Surface de Tests Hors Exploitation (SISTHE)	1/1
V.1.a. Demarche	1 / 1 172
V 2 Dispositif SISTHE	172
V.2. Dispositi Sistification of the section of the	175
VI CONCLUSION et PERSPECTIVES	170 177
VII ANNEXES	181
Annexes du chapitre II : TARGISOL	183
I. Résultats pour une cible en carbone de 1µm à une température de 1500°C	183
1. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 65%	184
2. Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65%	184
3. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30%	185
4. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30%	185
5. Comparaison des valeurs de λ_D et de I_0 obtenues pour deux valeurs d'efficacités	5
d'ionisation.	186
II. Fit de la réponse en temps de relâchement et de collection pour une cible en carb	one
de 1µm et à une température de 1800°C	186
1. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 65%	187
2. Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65%	187
3. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30%	188
4. Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30%	188
III. Fit de la reponse en temps de relachement et de collection pour une cible en ca	arbone
de 1µm et a une temperature de 1200°C.	189
 Traitement du temps de relachement pour une efficacité d'ionisation de 65% Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65% 	190 100
IV Fit de la rénonse en temps de relâchement et de collection pour une cible en c	arhone
de 4um et à une température de 1200°C	191
1 Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une efficacit	é
d'ionisation de 56% et à partir de deux paramètres libres (Io et $\lambda_{\rm P}$)	191
2 Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une efficacit	۰ ۱۶۱ ۵
2. Tratement du temps de relacionient et du temps de concetion pour une enteach d'ionisation de 56% et à partir d'un paramètre libre (λ_p)	101
2. Traitement du temps de relêchement et du temps de cellection pour une officient	171
5. Transment du temps de relaciement et du temps de conection pour une efficacit d'ionigation de 200(et à nortin d'un norma àtre libre (λ_{ij})	102
a formsation de 50% et a partir d'un parametre noie (λ_D)	192
V. Fit de la reponse en temps de relachement et de collection pour une cible en carb	ione
1. Traitement du temps de relêchement et du temps de cellection pour une officient	193
1. Transminent du temps de relacionment et du temps de conection pour une efficacit d'ionigation de 5.60 et à nortin d'un norma ètre libre ()	102
a constant de 56% et a partir d'un parametre nore (λ_D)	193 ,
2. Traitement du temps de relachement et du temps de collection pour une efficacit	e 104
a ionisation de 30% et a partir d'un parametre libre (Λ_D).	194
VI. Fit de la réponse en temps de relâchement et de collection pour une cible en ca	arbone
de 16 μ m et a une temperature de 1800°C	195
1. Traitement du temps de relachement et du temps de collection pour une efficacit	e 105
a ionisation de 88% et a partir de deux parametres libres (lo et Λ_D)	195

2. Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une	efficacité
d'ionisation de 30% et à partir de deux paramètres libres (Io et λ_D)	
VII. Détermination des paramètres λ_D et lo pour une efficacité d'ionisatio	on de 100%
pour une cible en carbone de 1µm et pour une température de 1500°C	
VIII. Détermination des paramètres λ_D et lo pour une cible en carbone de	lµm à une
température de 1500°C en prenant en compte un décalage de 50ms	
Annexe du chapitre III : MonoNaKe	
I. Efficacité totale de production en fonction de la puissance déposée dans	le four 199
II. Efficacité totale de production en fonction de la puissance déposée dans	le tube
ioniseur	
III. Calcul de l'efficacité totale d'ionisation d'une source d'ions	
IV. Application à une source à ionisation de surface	
1. Passage de considérations statistiques à des considérations physiques	
2. Probabilité d'ionisation de surface par unité de temps	
3. Probabilité de neutralisation par unité de temps	
4. Probabilité d'effusion des atomes par unité de temps	
5. Influence des paramètres physiques	
6. Cas où le potentiel d'extraction est nul : les ions sortent par effusion	
V. Comparaison des températures mesurées de l'ioniseur et des température	es simulées de
l'ioniseur en fonction de la puissance du four	
Annexe du chapitre IV : 1 ⁺ /N ⁺ pour SPIRAL 1	
I. Dispersion en énergie des ions monochargés liée à l'interaction coulomb	vienne avec un
milieu gazeux ou un milieu solide	
II. Calcul du coefficient de ralentissement :	
VIII. BIBLIOGRAPHIE	

Remerciements

Je tiens à remercier tout d'abord la direction du GANIL : Messieurs S. Gales, M. Jacquemet, P. Chomaz, et M. Lewitowicz, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire et m'avoir permis d'effectuer ma thèse dans les meilleurs conditions.

Je remercie tous les membres du jury de cette thèse d'avoir accepté d'en faire partie. Je remercie B. Roussière et B. Blank qui ont bien voulu examiner mes travaux et en être les rapporteurs. Je souhaite également témoigner ma reconnaissance à O. Naviliat-Cuncic qui a accepté de présider le jury de ma thèse. Je remercie également T. Lamy pour sa participation et ses conseils à l'occasion des conférences.

Je souhaite exprimer une profonde gratitude à M. G. Saint-Laurent, ma directrice de thèse, pour m'avoir soutenu et encouragé tout au long de ces trois années. Pour son grand intérêt et son aide, je tiens à remercier P. Jardin dont les explications pédagogiques m'ont beaucoup apporté ainsi que pour nos nombreux échanges.

Je tiens à remercier la région Basse-Normandie pour son soutien financier durant ces trois années.

Un grand merci à J. Alcantara, R. Alves Condé, O. Bajeat, C. Barué, D. Boilley, P. Delahaye, M. Dubois, S. Essabaa, H. Franberg, G. Gaubert, U. Koester, C. Lau, P. Lecomte, P. Leherissier, R. Leroy, N. Lescesne, G. Lhersonneau, J. Y. Pacquet, V. Panteleev, F. Pellemoine, M. Marie-Jeanne, L. Maunoury, C. Pierret, C. Stodel, J. C. Thomas, P. Toussaint et A. C. C. Villari qui ont grandement participé à ce travail de thèse, pour les bons moments partagés lors des conférences et manips, et pour m'avoir fait bénéficier de leur expérience.

Je remercie tous les services du GANIL sans qui cette thèse n'aurait pas été possible.

Et sans oublier ma famille et mes amis pour m'avoir soutenu et également encouragé jusqu'au bout !

Et enfin un GROS merci à ma femme pour m'avoir aidé, encouragé et supporté durant ces trois années de thèse.

INTRODUCTION

Pourquoi produire des faisceaux d'ions radioactifs ?

Les physiciens nucléaires sont les premiers utilisateurs des noyaux dits « exotiques » car inexistants sur notre planète à l'état naturel. Une de leurs caractéristiques est en général de présenter un fort déséquilibre entre nombre de neutrons et nombre de protons, et une durée de vie relativement courte au regard de l'âge de notre planète. Ils sont cependant présents au coeur de systèmes plus jeunes tels que certaines étoiles. Le but de leur production « artificielle » est de pouvoir les étudier afin de comprendre au travers de nombreuses expériences en laboratoire la structure de ces noyaux, de déterminer les forces nucléaires assurant leur cohésion et de mieux comprendre quel fut le processus de production des 291 noyaux stables qui existent dans la nature. Les théoriciens, proposant des modèles du noyau, ont d'abord confronté leurs prédictions aux propriétés des noyaux stables connus. L'étude expérimentale des propriétés des noyaux plus exotiques a montré des surprises : les noyaux à halo [Tan-85-01] dont les noyaux ¹¹Li et ¹¹Be, l'affaiblissement des fermetures de couches et des nombres magiques [Gad-07-01] [Sor-07-01]. Elle a permis de vérifier des prédictions théoriques anciennes : la radioactivité « 2 protons » prédite il y a plus de 45 ans [Gol-60-01] et observée récemment à GANIL [Bla-07-01] [Gio-02-01] et GSI [Pfu-02-01].

La communauté scientifique porte un grand intérêt à l'étude expérimentale des noyaux radioactifs. Ils ont longtemps été produits par des réactions nucléaires induites par un faisceau d'ions constitués de noyaux atomiques stables. Cette démarche en une seule étape nécessite l'utilisation de faisceaux primaires toujours plus intenses pour que les noyaux soient produits en quantité suffisante car souvent, pour le besoin de l'expérience, des cibles minces ($\mu g/cm^2$ à mg/cm^2) doivent être utilisées. Cette méthode a, entre autres, pour difficulté la tenue au faisceau des cibles et un taux de comptage important au niveau de la détection autour de la cible.

L'utilisation de faisceaux radioactifs, quant à elle, permet grâce à leur disparité entre nombres de neutrons et de protons de s'éloigner (plus facilement) de la stabilité et donc d'utiliser des sections efficaces plus importantes pour produire un noyau radioactif donné. Ces faisceaux radioactifs doivent être toutefois suffisamment intenses, suffisamment énergétiques pour induire à leur tour des réactions en quantités suffisantes au regard de la statistique requise pour l'analyse des données expérimentales. Cette démarche en deux étapes reporte la difficulté de gérer l'intensité primaire sur une première cible pouvant être plus épaisse. Il en résulte, au niveau du dispositif du physicien, moins de difficultés de tenue de cible et une localisation du bruit de fond dû aux réactions induites par le faisceau primaire loin du lieu de détection.

Cet intérêt pour les noyaux qui sont loin de la vallée de stabilité stimule la recherche et le développement de faisceaux d'ions radioactifs. La production de faisceaux radioactifs est réalisée à partir de nombreuses méthodes : la méthode dite en vol [Sym-79-01], la méthode dite ISOL [Rav-92-01] et d'autres méthodes comme la méthode IGISOL [Ays-87-01] ou le gaz catcher [Sav-07-01] où les ions quittent la cible mince sous forme d'ions 1⁺ après avoir été arrêtés ou ralentis dans du gaz. Pour produire des faisceaux d'ions radioactifs énergétiques, le GANIL utilise deux méthodes :

• Une première méthode dite « Méthode en vol » [Sym-79-01] :

Cette méthode consiste à bombarder une cible mince avec un faisceau d'ions lourds stables à haute énergie (supérieure à 30 MeV/A) de façon à produire des faisceaux radioactifs à partir d'une réaction nucléaire de fragmentation. La cible est suffisamment mince pour que les fragments du projectile quittent la cible sous l'effet de leur inertie, pour être ensuite triés dans un spectromètre [Ann-87-01]. Ces faisceaux d'ions radioactifs ont une grande énergie, présentent l'avantage d'être produits quelque soient leurs caractéristiques chimiques (sans sélection), mais ils ont cependant des qualités optiques dégradées et ce d'autant plus qu'on cherche à les purifier. Cette méthode ne fait pas l'objet d'une étude approfondie dans le cadre de cette thèse.

• Une seconde méthode dite « Méthode ISOL » (Isotope Separation On Line [Rav-92-01]) :

La première étape de « production de noyaux radioactifs » consiste à envoyer sur les noyaux d'une cible solide un faisceau d'ions stables dit « faisceau primaire » dont l'énergie est suffisamment élevée pour que des mécanismes de réaction nucléaire induisent la production de noyaux radioactifs. Les mécanismes nucléaires en jeu dépendent des caractéristiques de la cible, du faisceau primaire utilisé et de son énergie.

Contrairement à la méthode « en vol », la cible est suffisamment « épaisse » pour que le parcours des produits de réaction soit inférieur à la longueur de la cible. Une fois arrêtés, les noyaux radioactifs, animés de leur vitesse thermique, diffusent dans la cible sous forme d'atomes radioactifs. Pour accélérer leur diffusion, si la puissance déposée par le faisceau primaire est insuffisante, la cible est chauffée.

Une fois hors de la cible, les atomes effusent jusqu'à la source d'ions généralement au travers d'une zone dite de « transfert ». La source d'ionisation

transforme une partie des atomes dans l'état de charge requis pour constituer le faisceau d'ions. Une fois hors de la source, les ions sont accélérés, triés et dirigés vers leur lieu d'utilisation.

L'intérêt physique des noyaux radioactifs produits est d'autant plus important qu'ils sont éloignés de la vallée de stabilité. Leur éloignement de la stabilité va généralement de pair avec une réduction de leur durée de vie, ainsi qu'avec une réduction de leur section efficace de production dans la cible. Pour réussir à produire ces noyaux avec des intensités qui répondent aux contraintes des statistiques liées aux expériences de physique, il est donc essentiel que la durée de transformation des atomes en ions, de l'instant de leur formation dans la cible à l'instant de leur sortie de la source, soit aussi courte que possible au regard de leur durée de vie. Ce rapport entre le nombre de noyaux produits dans la cible et le nombre d'ions délivrés à l'utilisateur définit l'efficacité de transformation atome - ion du système de production. Cette efficacité est la conséquence directe de la compétition entre la durée de vie des noyaux et le temps de transformation atome - ion. Les processus impliqués dans la transformation doivent donc être aussi rapides que possible.

Ce phénomène se divise généralement en trois processus : la diffusion des atomes dans la cible, l'effusion et l'ionisation. Tous dépendent de la nature physico-chimique du couple atome - système de production, de la constitution matérielle du dispositif de production et des températures en jeu. La détermination de l'efficacité d'un processus particulier suppose qu'à travers une description globale du fonctionnement du système de production, ce processus puisse être considéré comme indépendant des autres processus.

Nous proposons dans ce mémoire une description originale du processus global de transformation des atomes en ions dans un dispositif de production d'ions radioactifs. Nous montrerons comment cette approche nous a permis de mieux appréhender les dispositifs de production existants à GANIL, et comment ce travail contribue à l'étude des dispositifs destinés à la production d'ions radioactifs dans le cadre de SPIRAL 1 et de SPIRAL 2.

Dans le chapitre I, la méthode ISOL est décrite plus précisément. Nous présenterons la méthode retenue à GANIL pour la production de faisceaux d'ions radioactifs sur SPIRAL 1 et également pour l'installation future de SPIRAL 2.

Dans le chapitre II, une description du processus de transformation des atomes radioactifs en ions est présentée plus en détail. Elle a été appliquée à l'analyse de données obtenues à l'aide d'un dispositif destiné à la mesure de coefficients de diffusion d'atomes dans des cibles portées à haute température (dispositif TARGISOL). Après une description d'approches antérieures de la transformation des atomes en ions dans un système cible-source et des différentes méthodes de mesure, l'approche statistique utilisée dans ce travail de thèse est présentée. Suivent une description du dispositif expérimental et les motivations qui ont guidé sa conception. Les résultats expérimentaux obtenus en ligne pour des cibles de carbone graphite sont ensuite présentés et comparés à des valeurs obtenues auparavant à GANIL. Les limites de l'expérience sont précisées. Dans un second temps, ces valeurs seront utilisées pour essayer de rendre compte des efficacités observées lors de la production d'ions radioactifs avec l'installation SPIRAL 1.

Le chapitre III est consacré à la production d'ions alcalins mono - chargés. Le but est d'étendre la palette des faisceaux d'ions radioactifs disponibles sur SPIRAL 1. Après un

rappel succinct des principes qui régissent « l'ionisation de surface » et une approche statistique de la compétition entre l'effusion et l'ionisation dans la source 1⁺, on montrera comment il a été possible d'améliorer un système antérieur. Le dispositif expérimental MonoNaKe et sa caractérisation sont décrits en détail. Les résultats obtenus en ligne pour la production d'ions radioactifs de ^{8,9}Li, ^{25,26,27,28,29,30}Na, ^{28,29,30,31}Al et ^{36,37,47}K sont ensuite exposés et mis en relief au regard d'autres installations.

Ayant pour objectif d'accélérer les ions alcalins radioactifs par le cyclotron CIME (Cyclotron pour Ions de Moyenne Energie) du GANIL, il est indispensable d'augmenter l'état de charge des alcalins produits à partir de l'ensemble cible-source MonoNaKe. La solution technique envisagée pour SPIRAL 1 est de coupler la source MonoNaKe 1^+ à la source d'ions multichargés de type ECR (Electron Cyclotron Resonance) déjà utilisée dans le cadre de SPIRAL 1 : Nanogan III. La ligne de transport entre les deux sources est électrostatique et sans séparateur de masse. Cette technique est basée sur la méthode « $1^+/N^+$ » [Gel-96-01] ou « charge breeding ». Le chapitre IV présente le principe de cette méthode et les différents travaux effectués au LPSC de Grenoble qui nous ont incité au développement de la méthode $1^+/N^+$ direct. L'ensemble cible-source NanoNaKe est ensuite décrit. Les résultats expérimentaux sont présentés.

Enfin, le chapitre V est consacré au développement d'une Source à Ionisation de Surface de Test Hors Exploitation « SISTHE ». Son assemblage doit être suffisamment adaptable pour permettre de nombreux tests hors faisceau avec des couplages à d'autres dispositifs de production d'atomes, d'ions ou de dispositifs de mesure. Le but est à terme de disposer d'une source à ionisation de surface et de son tube de transfert pour produire en ligne des ions radioactifs d'éléments alcalins dans le cadre du projet SPIRAL 2. Son principe est basé sur les mêmes principes que ceux qui sont utilisés pour l'élaboration de l'ensemble cible - source MonoNaKe. Parce que cette source sera soumise à des contraintes supplémentaires d'exploitation liées à l'endommagement sous irradiation et à l'usure des matériaux, sa conception technique diffère d'une source de tests et les différents aspects techniques sont présentés dans ce dernier chapitre.

Chapitre I :

Production de faisceaux d'ions radioactifs :

Méthode ISOL

De très nombreux laboratoires utilisent les méthodes « en vol », ISOL, IGISOL, ou encore gaz catcher pour étudier la structure nucléaire des noyaux exotiques. Moins nombreux sont les laboratoires qui utilisent la méthode ISOL puis accélèrent les faisceaux radioactifs à plus haute énergie.

La production de faisceaux accélérés d'ions radioactifs utilisant la méthode ISOL en cible épaisse suit le schéma général de principe présenté à la figure I.1. Un faisceau primaire d'ions stables interagit avec une cible épaisse, les noyaux radioactifs sont produits à partir de réaction nucléaire. Les mécanismes de ces réactions dépendent de la nature et de l'énergie du faisceau primaire utilisé mais également de la nature de la cible utilisée. Les différents noyaux produits sont arrêtés dans la cible qui est portée à haute température. Par l'agitation thermique, les noyaux diffusent hors de la cible. La durée du processus de diffusion dépend de la température et de la nature de la cible, mais aussi de la nature de chaque noyau diffusant. Par la suite, les atomes effusent jusqu'à la source d'ions dans laquelle ils sont ionisés. Les ions sont ensuite séparés avant d'être accélérés. La durée du processus d'effusion dépend du nombre de collisions, lié à la géométrie du dispositif, à la température de l'ensemble cible source, mais aussi à la nature physico-chimique du couple élément effusant - composition et à l'état de surface des parois. Généralement, la cible est portée à très haute température pour diminuer les temps de diffusion et d'effusion. Le processus d'ionisation est réalisé à partir d'une source d'ions, celle-ci doit amener l'atome dans l'état d'ionisation requis et avec la plus grande efficacité possible.

La méthode employée met donc en œuvre des processus physiques, qui peuvent être regroupés sous les appellations suivantes :

- ✓ Processus de réaction nucléaire.
- ✓ Processus de diffusion dans la matière.
- ✓ Processus d'effusion.
- ✓ Processus d'ionisation.
- ✓ Processus de séparation isotopique du faisceau d'ions constitué.

Il est important de noter que chaque processus (diffusion, effusion, ionisation) donne lieu à une distribution des noyaux. Chacun de ces processus est caractérisé par un temps moyen durant lequel les noyaux radioactifs se désintègrent. Toute la difficulté de conception d'un dispositif de production réside dans la compétition entre les durées caractéristiques de chacun des processus (qu'impliquent les solutions techniques retenues) et la période radioactive des éléments que l'on désire produire.



Figure I.1 : Schéma de principe de la solution technique basée sur la méthode ISOL (Isotope Séparation On Line) pour la production de faisceaux d'ions radioactifs.

Malgré ce schéma commun général, les installations permettant de produire des faisceaux d'ions radioactifs sont très différentes étant donné que chacune d'entre elles n'utilise pas les mêmes faisceaux primaires (nature de l'ion, énergie et intensité), les mêmes ensembles cible-source, les mêmes types de post accélérateur.... Il en résulte une diversité dans les mécanismes de réaction utilisés, les dimensions et la nature des cibles, les sources d'ions 1^+ (Ionisation de surface, Febiad, ECR 1^+ , Laser) ou d'ions N^+ (ECR N^+ , EBIS). Les deux boîtes symbolisant la cible et la source d'ions sont en réalité très complexes et différentes selon les installations. Elles sont en général difficilement utilisables sans modification d'une installation à l'autre. Les caractéristiques des faisceaux radioactifs produits (variété, énergie et intensité) seront aussi dépendantes de ces installations.

Au final, l'expérience montre qu'aucun dispositif n'est universel et qu'au contraire, chaque ensemble cible-source ne peut produire qu'une quantité très limitée d'isotopes différents.

I.1. Quelques installations utilisant la méthode ISOL, de par le monde

La grande majorité des installations utilisant la méthode ISOL pour produire des faisceaux accélérés de noyaux radioactifs utilisent un faisceau de protons, d'ions légers ou lourds accélérés à différentes énergies et interagissant avec les noyaux d'une cible épaisse. Cette interaction permet de produire des noyaux radioactifs à partir de nombreux mécanismes de réaction :

- > Spallation et fission induites par des protons de 1GeV à REX-ISOLDE [Is-01],
- Transfert par des ions légers de basse énergie au CRC de Louvain-la-Neuve [Lou-01] et Dubna [Ef-03-01],
- ▶ Fragmentation de projectiles lourds à EXCIT à Catane [Gia-07-01],
- ▶ Fragmentation de la cible à TRIUMF à Vancouver [Br-03-01],
- Transfert, fusion évaporation et fission par des ions légers de basse énergie à Oak Ridge [Or-02],

- Fission induite par des protons de 30 MeV et transfert d'ions lourds à TRIAC au Japon [Sak-07-01],
- Photofission induite par des électrons (sans accélération des ions radioactifs à ALTO [Es-03-01] et prévue à HFRIB avec accélération des ions radioactifs [Bee-07-01]).

Nous ne décrirons succinctement ici que quelques installations afin de montrer la diversité des techniques ISOL, utilisant des cibles épaisses :

Au CERN : le pic de Bragg n'est pas arrêté dans la cible. Un faisceau de protons de 1,4 GeV et d'intensité de 3 μ Ae est typiquement utilisé, soit 1,9 10¹³ pps. La puissance du faisceau est de 4,2 kW sur des cibles d'UC₂ ayant typiquement 20 ou 40 cm de long et une densité de 2,5 g/cm³ (soit de l'ordre de 50 g/cm2 pour 20 cm). Le dépôt d'énergie par proton incident est de 57 MeV pour la cible de 20 cm. La puissance totale déposée dans la cible est de 170 W soit 3,4 W.g⁻¹.cm². Dans le cadre de l'installation ISOLDE, les ions 1⁺ radioactifs sont accumulés dans un piège Penning et extraits par paquets pour être injectés dans une Source d'Ions à Faisceau Electronique (EBIS) dans laquelle ils sont multi-ionisés. Les ions N⁺ produits sont accélérés jusqu'à une énergie de 0,3 MeV/A par un Quadrupole Radio-Fréquence (RFQ). Par la suite, un accélérateur linéaire (LINAC) permet d'atteindre une énergie comprise entre 0,8 et 2,2 MeV/A. Une augmentation d'énergie à 5,5 puis 10 MeV/A est en projet. La « panoplie » des sources d'ions 1⁺ utilisées à ISOLDE s'étend aux sources : Febiad, ionisation de surface, Laser et récemment les ECR 1⁺ avec Minimono [Gau-03-01 et références incluses].

A TRIUMF : Le pic de Bragg n'est pas arrêté dans la cible. Un faisceau de protons de 500 MeV et 100 μ A [Br-03-01] a une puissance de 50 kW et correspond à 6,24 10¹⁴ pps. Une cible typique de Nb utilisée à Triumf est composée de 519 lamelles d'épaisseur 0,025 mm de Nb, soit une épaisseur de cible de 11 g/cm². Le dépôt d'énergie par proton incident est de 20 MeV. La puissance totale déposée dans la cible est de 2 kW, soit 181 W.g⁻¹.cm².

Par comparaison, à GANIL, le faisceau est totalement arrêté dans la cible, la puissance totale déposée est de 1,5 kW (dans le cas d'un faisceau d' 36 Ar¹⁸⁺ de 95 MeV/A ayant une intensité de 7,9 µAe ou 2,7 10¹² pps). Le parcours dans la cible de carbone est de 5 mm pour une densité de 1,8g/cm³, soit une épaisseur de 0,9 g/cm². La densité de puissance déposée dans la cible est donc de 1,6 kW.g⁻¹.cm². Actuellement les cibles dites Ar supportent 1,5 kW pour le faisceau 36 Ar.

TRIUMF est l'installation au monde utilisant la plus forte intensité de faisceau primaire. M. Dombsky [Do-07-01] a décrit récemment les difficultés concernant la tenue des cibles au faisceau et la corrosion des containers associés. L'accélération des ions radioactifs est réalisée par un RFQ puis un LINAC pour obtenir une énergie des ions comprise entre 0,15 et 1,5 MeV/A. Il utilise principalement des sources à ionisation de surface, Febiad, et récemment Laser avec la production de ⁶²Ga, ²⁶Al, et ⁹⁻¹²Be [Ac-07-01] [Pr-06-01]. Des développements sont en cours concernant l'utilisation d'une ECR 1⁺ 6 GHz ainsi que la transformation de charge utilisant une source N⁺ Phoenix du LPSC de Grenoble.

A HFRIB (Oak Ridge), le cyclotron ORIC [Or-01] permet de disposer de faisceaux de p, d, alpha (d'énergies respectivement jusqu'à 42, 49 et 85MeV), donc dans un domaine en énergie proche de celui attendu pour le LINAG de SPIRAL 2. Les mécanismes de réaction sont soit de la fission induite par des protons sur des cibles de carbure d'uranium et récemment d'oxyde de thorium, soit des réactions de transfert et de fusion-évaporation induites par ions légers. De nombreux faisceaux riches en neutrons sont produits par un faisceau direct de

protons (10 μ A) sur des cibles de carbure d'uranium. Les faisceaux riches en protons (¹¹C, ^{17,18}F, ⁵³Co, ⁵⁶Ni, ⁶⁹As, ⁶⁷Ga) sont produits généralement en « batch mode » (production, séparation chimique, puis insertion d'un échantillon de l'isotope radioactif) au niveau de la source du post accélérateur. La nature des cibles est très diversifiée HfO2, SiC, CeS, Ge liquide... [St-06-01]. L'utilisation des formes moléculaires (ajout de F, Cl, S ...) est un grand atout de ce laboratoire quant à la possibilité d'extraire et de séparer isotopiquement certains faisceaux (AIF, SnS ...). Les ions sont ensuite transformés en ions négatifs dans une cellule gazeuse, puis accélérés par un tandem (tension d'extraction jusqu'à 25 MV). Le gain en énergie est réalisé par changement d'état de charge par traversée de matière (feuille de streeping). L'utilisation d'un accélérateur d'électrons 25 - 50 MeV et de puissance 100 kW est en projet [Bee-07-01] pour utiliser la photofission comme à ALTO [Es-03-01].

A TRIAC [Wa-06-01] au Japon, des faisceaux de protons et d'ions lourds sont accélérés par un tandem 20 MeV. Des noyaux radioactifs riches en neutrons sont ainsi produits par fission de l'uranium induite par les protons : par exemple le ¹³⁹Xe par des protons d'énergie 30 MeV et d'intensité 1 µA avec une cible d'²³⁸U de 1g/cm². Le taux total de fissions par seconde dans la cible est de 1,5 10¹¹fissions/s. Des noyaux proches de la stabilité sont produits par des réactions de transfert induites par des ions lourds : par exemple un faisceau de ⁸Li a été produit avec une intensité de 10⁷ pps par un faisceau de ⁷Li interagissant avec une cible de ¹³C. Ils sont ionisés 1⁺ et séparés [Ic-03-01]. Ils sont ensuite injectés dans une source ECR N⁺ 18 GHz [Je-04-01], puis accélérés à une énergie maximum de 1,1 MeV/A par un RFQ et un LINAC. L'augmentation d'énergie à 5-8MeV/A est prévue par le raccordement à un Linéaire supraconducteur déjà existant.

De nombreux autres projets plus ou moins ambitieux et plus ou moins avancés sont en cours : SOREQ NRC SARAF [Na-01] en Israel, VECC en Inde [Chak-04-01], BRIF en Chine [Liu-03-01], SPES en Italie, Eurisol en Europe, RIA aux Etats-Unis [Ria-01]. Ces projets ont été présentés à la conférence EMIS -2007 [Blu-07-01] [Sak-07-01] [Bee-07-01].

I.2. Production de faisceaux d'ions radioactifs à partir de l'installation SPIRAL 1

La production de faisceaux d'ions radioactifs accélérés au GANIL est basée sur la méthode ISOL. Le choix s'est porté sur l'association d'une cible solide épaisse en carbone avec une source d'ions ECR-N⁺ connectées entre elles par un tube de transfert froid. Le processus de réaction nucléaire utilisé est la fragmentation des noyaux stables constituant les faisceaux primaires (fragmentation du projectile) de haute intensité et énergie du GANIL [Gan-01].

I.2.a. Installation SPIRAL 1

L'installation SPIRAL 1 [Jou-93-01][SpI-94-01][Vi-97-01][Vi-02-01][Vi-07-01] (voir figure I.2) permet de produire des faisceaux d'ions radioactifs à partir de la méthode ISOL. L'ensemble du système est constitué d'un ensemble cible-source situé dans la casemate 1, d'une ligne très basse énergie (TBE) comprenant un dipôle d'analyse, et d'un cyclotron. L'ensemble cible-source de production est équipé d'une cible épaisse arrêtant totalement le faisceau primaire délivré par le GANIL ainsi que les fragments produits. La ligne TBE va



effectuer une première sélection du faisceau d'ions radioactifs issu du système de production et également l'adapter optiquement pour l'injection dans le cyclotron CIME.

Figure I.2 : Schéma de l'installation SPIRAL 1.

La spécificité du GANIL est d'accélérer des faisceaux primaires d'ions lourds stables dans une gamme d'énergies comprises entre 25 et 100 MeV/A. Le processus de fragmentation du projectile est donc le mécanisme majoritairement utilisé, pour la production de noyaux exotiques. Le taux de production totale τ_p dans la cible (en pps) s'exprime de la façon suivante :

$$\tau_P = \sigma_P \phi_P N_C \tag{I.1}$$

Où σ_p est la section efficace de production d'un isotope donné (en cm²),

 ϕ_p est le flux de particules incidentes (en pps),

 N_c est le nombre de noyaux de la cible (en atomes/cm²).

Le taux de production maximale sera obtenu en optimisant chacun de ces facteurs. Plus le projectile incident choisi (ayant un nombre de neutrons et de protons supérieur au noyau à produire) est proche du noyau à produire, plus la section efficace de production est importante. Pour un couple projectile - cible, le taux de production d'un noyau peut être amélioré en augmentant l'intensité du faisceau primaire (ϕ_p). L'intensité maximale, acceptable au regard des conditions de radioprotection locales, est de 2.10¹³ particules par seconde, toutefois sans dépasser une puissance maximale du faisceau de 6kW. Tous les faisceaux stables ne sont pas produits aussi facilement, en particulier les éléments gazeux sont produits avec des intensités plus élevées que celles des éléments métalliques.

Les différents mécanismes de réaction sont propres aux domaines d'énergie choisis. La fragmentation du projectile a lieu dans le domaine d'énergie du GANIL de 20 à 100 MeV/A. L'épaisseur utile de la cible doit donc couvrir au mieux ce domaine d'énergie. Le nombre de noyaux produits est maximisé en utilisant des cibles épaisses, c'est-à-dire en augmentant le nombre de noyaux de la cible par cm² (N_c). La valeur de N_c dépend de la masse des noyaux qui composent la cible de production et de l'épaisseur de la cible traversée par le faisceau incident en g/cm². Le parcours dépend de l'énergie du faisceau incident et de la nature du couple projectile-cible [Lec-97-01]. Il est donc possible d'augmenter le taux de production dans la cible en augmentant l'énergie du faisceau incident. Les énergies maximales des faisceaux incidents sont reportées sur le site internet du GANIL [Gan-01]. Là encore, un choix est à faire entre l'énergie incidente (et donc l'épaisseur utile de la cible épaisse) et l'intensité disponible puisqu'à la fois, l'énergie et l'intensité dépendent de l'état de charge.

L'expression I.1 du taux de production dans la cible peut également se mettre sous la forme suivante [Lec-97-01] :

$$\tau_P \propto Z_C^{-1/3} \tag{I.2}$$

D'après l'expression I.2, le taux de production varie comme l'inverse de la racine cubique du numéro atomique de la cible. Pour obtenir un maximum de production, il faut donc choisir une cible composée de noyaux ayant un Z faible.

Le noyau produit par fragmentation du projectile étant plus léger que le noyau projectile, son parcours dans la matière est plus grand ou équivalent à celui du projectile. Le faisceau primaire est donc généralement arrêté dans la cible qui doit être plus longue pour arrêter les noyaux d'intérêt. Le parcours d'un noyau radioactif dépend de sa nature propre, de l'énergie à laquelle il a été produit, et également, de la matière composant la cible de production [No-70-01]. L'originalité du système de production de SPIRAL 1 résulte dans l'utilisation de différents faisceaux primaires d'ions lourds pour la production de différents noyaux radioactifs tout en conservant la même nature de la cible de production. Les éléments radioactifs vont donc sortir de la cible de production à une vitesse qui dépend du processus physique de diffusion dans les matériaux polycristallins (voir chapitre II : TARGISOL). Afin d'augmenter cette vitesse de diffusion, la cible est portée à haute température (environ 2000°C). La cible de production est relativement proche de la source d'ions et les atomes radioactifs effusent au travers d'un tube de transfert jusqu'au plasma de la source où ils sont ionisés puis accélérés. Le dépôt de puissance du faisceau primaire dans la cible de production participe à l'élévation de la température de la cible. Dans le cas où la température optimale n'est pas atteinte, un chauffage ohmique supplémentaire est utilisé.

Les ensembles cible-source de SPIRAL 1 sont actuellement en service pour la production d'éléments gazeux radioactifs (He, O, N, F, Ne, Ar et Kr). En effet, la zone de transfert entre la cible et la source est à une température de l'ordre de 300 K. Seuls les éléments qui se propagent sous une forme gazeuse stable (élément noble ou molécule neutre), sans rester collés aux parois du tube de transfert, peuvent parvenir jusqu'à la source d'ions. Cet ensemble est constitué d'une cible épaisse en carbone et de la source ECR Nanogan III (voir figure I.3).



Figure I.3 : Ensemble cible-source de SPIRAL 1 permettant de produire des faisceaux d'ions radioactifs à partir de la méthode ISOL. Association de la cible de production en carbone et de la source ECR Nanogan III.

L'utilisation du carbone pour élaborer une cible de production permet d'optimiser le taux de production car le nombre de protons Z_c est faible et également d'avoir une bonne tenue mécanique à des températures élevées (de l'ordre de 2000°C).

L'avantage de découper la cible en plusieurs lamelles est de diminuer le temps de diffusion des noyaux produits en diminuant l'épaisseur de matière. La forme conique de la cible de production est celle qui convient le mieux pour homogénéiser le dépôt d'énergie du faisceau primaire [Ma-98-01] [Pel-01-01]. Sur SPIRAL 1, il existe trois types de cibles :

Une première cible dédiée à la production d'argon, krypton, néon, fluor et oxygène (voir figure I.4) :

Cette cible de production est utilisée pour un faisceau primaire d'une puissance maximale de 1400 W pour en assurer la fiabilité. A cette puissance, la température de la cible atteint 2000°C. Dans le cas où la puissance du faisceau primaire est inférieure à 1400 W, un chauffage ohmique par l'axe permet également d'atteindre une température de 2000°C. Le diamètre de la cible est de 19 mm, elle est maintenue par l'arrière dans un containeur en carbone de 20 mm de diamètre. La cible de production est constituée de 53 lamelles de 0,5 mm d'épaisseur et espacées de 0,8 mm.

➤ Deux cibles en carbone dédiées à la production des ⁶He ($T_{1/2} = 806$ ms) et ⁸He ($T_{1/2} = 119$ ms), une première cible dimensionnée pour une puissance maximum de faisceau primaire de ¹³C à 75 MeV/A de 1,5 kW et une seconde cible dimensionnée pour une puissance de faisceau primaire de 3,3 kW (voir figure I.5 et figure I.6).



32 mm

La cible destinée à la production d'isotopes d'hélium à partir d'un faisceau primaire de ¹³C est composée de deux parties à cause du long parcours de l'hélium dans une matrice en carbone [Pel-01-01]. La première partie (cible de production) est utilisée pour produire les deux isotopes d'hélium à partir du processus de fragmentation des noyaux projectiles mais également à partir des noyaux de la cible de production. Les dimensions de la cible de production sont imposées par le parcours du ¹³C à 75 MeV/A égal à 10,5 mm. Elle est donc fabriquée à partir de 15 lamelles d'épaisseur 1,5 mm et espacées de 0,5 mm. Tandis que la seconde partie (cible de diffusion) est utilisée pour arrêter les noyaux d'hélium. La longueur de la cible de diffusion est imposée par le parcours d'arrêt de 1'⁸He à une énergie de 75 Mev/A égal à 58 mm. Cette partie est donc constituée de 35 lamelles d'épaisseur de 1,5 mm et également espacées de 0,5 mm. La cible de production est chauffée par le dépôt de puissance du faisceau primaire alors que la cible de diffusion est chauffée par un système de chauffage ohmique à travers l'axe de la cible.

La cible, pour une puissance maximum de faisceau primaire de 3,3 kW, est également constituée d'une cible de production et d'une cible de diffusion. La cible de production est aussi chauffée par le dépôt de puissance du faisceau primaire. Cependant, la différence par rapport à la cible hélium 1,5 kW est située au niveau du chauffage de la cible de diffusion. En effet, cette partie est chauffée par un four ohmique externe d'une puissance de 1,5 kW.

Ces cibles de production sont associées à la source Nanogan III par le biais d'un tube de transfert à température ambiante. La source Nanogan III est une source ECR dont la fréquence de résonance est de 10 GHz [Ma-98-01]. Cette source permet de produire des faisceaux d'ions multichargés à partir d'un plasma dont les électrons « chauds » (quelques keV) permettent d'« éplucher » les atomes présents dans la source ECR. Elle est constituée de trois couronnes à aimants permanents et d'un hexapôle (voir figure I.3) qui permettent d'obtenir respectivement un champ magnétique axial et un champ magnétique radial.

Les ions radioactifs extraits de la source sont directement sélectionnés par un dipôle d'analyse en fonction du rapport charge sur masse et sont injectés dans le cyclotron CIME (Cyclotron pour Ions de Moyenne Energie) [Bou-98-01] [Boy-97-01]. Ce cyclotron permet d'atteindre une gamme d'énergies comprises entre 1,7 et 25 MeV/A. Cette gamme d'énergies dépend du rapport charge sur masse de l'ion accéléré et n'est donc pas atteinte pour tous les ions. La résolution en masse du cyclotron CIME est de 1/4000. L'émittance RMS du faisceau d'ions à la sortie de CIME est de 10π .mm.mrad.

I.2.b. Banc de test SIRa

Le banc de test SIRa (Séparateur d'Ions Radioactifs) [Ann-93-01] [Br-92-01] est installé dans la salle D2 des aires expérimentales du GANIL (voir figure I.7). Les ensembles cible - source sont mis en place sur ce banc dans le but de développer, tester, améliorer et mesurer les taux des faisceaux d'ions radioactifs. Le faisceau primaire fourni par l'accélérateur du GANIL est transporté par la ligne haute énergie jusqu'à l'ensemble cible source à caractériser. Sur SIRa, la puissance maximale du faisceau primaire autorisée est égale à 400 W en raison du blindage de béton pour les neutrons. De plus, les expériences sont souvent, au moins en début de test, réalisées à des intensités moindres de manière à limiter l'activation des systèmes de production de faisceaux d'ions radioactifs en cours de développement. Il est toutefois possible de disposer de plus de puissance à énergie incidente plus faible. Le faisceau d'ions exotiques extraits de l'ensemble cible - source est guidé par la ligne d'analyse qui est composée d'une ligne magnétique adaptant le faisceau jusqu'au dipôle d'analyse. Le dipôle d'analyse sélectionne les ions d'intérêt en fonction de leur rapport charge sur masse ($\sqrt{Q_p / M_p}$). Une ligne constituée d'éléments électrostatiques guide le faisceau jusqu'au point de détection. Cette ligne est bien adaptée pour des ions lourds multichargés. Elle est toutefois limitée en transmission à des noyaux de masse A=40 pour l'état de charge 1⁺. Les noyaux de masses plus lourdes peuvent cependant être transmission. Pour des développements de sources 1⁺ pour des noyaux plus lourds (SPIRAL 2), cette ligne serait à transformer. Au point de détection, le faisceau est implanté dans une bande en mylar aluminisé. La détection γ se fait par un détecteur en germanium, un scintillateur plastique sert à la détection β^{-} ou des jonctions en silicium pour la détection de protons [Lec-97-01].



Figure I.7 : Banc de test SIRa permettant de caractériser les nouveaux ensembles ciblesource.

Le banc de test SIRa permet de caractériser les nouveaux ensembles cible-source à partir de la mesure de l'efficacité totale de production des ions radioactifs. Cette efficacité dépend de l'efficacité de diffusion, de l'efficacité d'effusion entre la cible et la source, de l'efficacité d'effusion-ionisation dans la source et de l'efficacité de transport entre la sortie de la source et le point de détection. En régime permanent, l'efficacité totale s'écrit selon la relation suivante :

$$\varepsilon_{Totale} = \varepsilon_{diff} \varepsilon_{eff} \varepsilon_{ion} \varepsilon_{trans} \tag{I.3}$$

Le taux mesuré dans SIRa s'exprime donc de la manière suivante :

$$\tau_{mesuré} = \varepsilon_{Totale} \tau_p \tag{I.4}$$

 τ_p représente le taux, en particules par seconde, de noyaux radioactifs produits ou implantés dans la cible de production.

 ε_{diff} représente l'efficacité de diffusion dans la cible de production.

 ε_{eff} est l'efficacité d'effusion entre la cible de production et la source d'ions.

 ε_{ioni} est l'efficacité d'ionisation pour un état de charge donné « et pour une source d'ions donnée ».

 ε_{trans} représente l'efficacité de transport entre la sortie de la source d'ions et le point de détection.

Le nombre de noyaux produits dans la cible pour un isotope donné est calculé à partir du code de calcul Sigma-Sira, basé sur la définition des paramètres de Sümmerer [Su-00-01], contrairement au nombre de noyaux implantés qui peut être mesuré. En régime permanent, l'efficacité totale d'un ensemble cible-source est mesurée pour différents isotopes radioactifs et également pour différentes températures de la cible de production. Cette mesure permet de déterminer les efficacités de diffusion et d'effusion qui dépendent de la nature de l'élément d'intérêt, de la cible de production et de la température de fonctionnement. On peut alors déterminer les points à améliorer. L'efficacité d'ionisation est déterminée à partir d'une fuite calibrée. Elle peut également être déterminée à partir de la réponse en temps de la source d'ions à un pulse d'isotope stable [Ja-04-01]. L'efficacité de transport est également mesurée à partir d'un isotope stable (utilisation d'une fuite calibrée). Les différentes mesures d'efficacité pour un ensemble cible-source en fonction de la nature des isotopes et en fonction de la température de fonctionnement caractérisent l'ensemble du système de production. Il est donc possible d'accéder aux propriétés physiques de diffusion, d'effusion et d'ionisation. En effet, des mesures des temps de réponse d'un ensemble cible-source à partir d'un faisceau primaire d'³⁵Ar [El-07-02] ont permis de déterminer les paramètres de diffusion de l'argon pour différentes cibles (voir chapitre II : Targisol). La compréhension de chaque processus intervenant dans la méthode ISOL est essentielle pour l'amélioration des efficacités des systèmes de production et par conséquent pour l'amélioration des intensités des faisceaux déjà existants.

I.2.c. Améliorations pouvant être apportées sur SPIRAL 1

Actuellement sur SPIRAL 1, la production de faisceaux d'ions radioactifs concerne essentiellement les gaz rares (He, Ne, Ar et Kr) et les éléments gazeux légers qui peuvent être transportés entre la cible et la source ECR sous forme de molécules associées au carbone évaporé de la cible chaude [Gib-03-02] [Gib-03-01] [Ko-05-01]. Le tableau I.2 montre l'ensemble des isotopes disponibles sur SPIRAL 1 [Vi-07-01] et le tableau I.3 [Gan-01] montre quelques exemples de taux de production sur SPIRAL 1.

Eléments						A					
Kr	72	73	74	75	76	77	79	81			
Ar	31	32	33	34	35	41	42	43	44	45	46
Ne	17	18	19	23	24	25	26	27			
F	18										
0	14	15	19	20	21	22					
Ν	13	16									
Не	6	8									

Tableau I.2 : Liste des isotopes disponibles sur SPIRAL 1.

Noyaux	Etat de charge	Taux de production mesurés au niveau de la station d'identification basse énergie de SPIRAL 1 (pps)
31 Ar (15ms)	3+	2
31 Ar (15ms)	6+	4,4
³² Ar (98ms)	3+	500
32 Ar (98ms)	9+	10 ³
35 Ar (1.78s)	8+	3,5.10 ⁸
17 Ne (0,11s)	2+	1,4.10 ⁵
19 Ne (17s)	5+	1,8.10 ⁸
²⁷ Ne (32ms)	5+	5.10^2
⁷² Kr (17s)	11+	2.10^{2}
6 He (0,8s)	1+	2.10 ⁸
⁶ He (0,8s)	2+	2,5.10 ⁷
⁸ He (0,12s)	1+	2,6.10 ⁵
8 He (0,12s)	2+	1,3.10 ⁵

Tableau I.3 : Exemples de taux de production de quelques isotopes d'argon (³¹Ar, ³²Ar et
³⁵Ar), de néon (¹⁷Ne, ¹⁹Ne et ²⁷Ne), de krypton (⁷²Kr) et d'hélium (⁶He et ⁸He) produits sur
SPIRAL 1.

Pour les faisceaux existants, les améliorations sont possibles dans deux directions qui peuvent être complémentaires : augmentation de l'efficacité de la transformation atomes-ions pour utiliser au mieux les noyaux radioactifs produits dans la cible et/ou produire plus de noyaux dans la cible en augmentant l'intensité du faisceau primaire.

- Augmenter l'efficacité pourrait être envisagé au travers du processus de diffusion, d'effusion et d'ionisation. L'expérience montre que l'espérance de vie de la cible à la température fixée en cours d'exploitation n'est pas très supérieure aux quinze jours actuellement autorisés (pour des raisons de règles d'exploitation). L'efficacité de diffusion ne pourra donc pas être augmentée, particulièrement si la durée d'exploitation est allongée. Dans ce cas, il sera peut être nécessaire de diminuer la température d'exploitation de la cible pour que sa durée de vie soit au moins égale à la durée d'exploitation. S'il est nécessaire de diminuer la température, l'efficacité de diffusion sera aussi réduite.
- Augmenter l'efficacité d'ionisation semble aussi difficile, car cette efficacité est déjà importante. Cependant, durant les premiers jours de démarrage de la production, le taux de production croit au fur et à mesure que le dispositif « dégaze ». Après ces quelques jours, il est nécessaire de remplacer le flux de gaz désorbé par un gaz support pour continuer d'alimenter le plasma de la source ECR. Le gaz désorbé étant moins favorable que le gaz support choisi pour l'ionisation des isotopes d'intérêt, sa présence est nuisible à la production durant les premiers jours. Une modification du système de vide côté cible pourrait, à l'instar des observations faites dans le chapitre IV sur l'effet du gaz résiduel, contribuer à améliorer le taux de production, principalement durant la période de démarrage.

L'efficacité d'effusion depuis la sortie de la cible jusqu'à l'entrée de la source semble être la principale origine de perte dans le cas de la production d'isotopes de gaz de courtes durées de vie. Améliorer cette efficacité supposerait de modifier la zone de transfert entre la cible et la source, alors que celle-ci est rendue complexe par la présence de l'injection de l'onde HF, du

tube de polarisation, de l'injection de gaz support et de la jonction entre chambre cible et chambre source qui doit être simple et fiable pour des raisons d'exploitation et de démantèlement.

Augmenter la dimension de la cible pour l'adapter à l'intensité maximale disponible au GANIL est envisageable mais le gain n'est proportionnel que pour les isotopes de longue durée de vie. Dans le cas des isotopes de courtes durée de vie, l'augmentation du volume de la cible conduit immanquablement à une augmentation de leur temps d'effusion et donc à une diminution de l'efficacité d'effusion. Utiliser une intensité plus importante avec une cible redimensionnée dans l'espoir de produire plus d'isotopes de courte durée de vie peut très bien conduire à l'effet contraire.

Pour les faisceaux restants à produire, les idées sont nombreuses, mais dans le cadre de SPIRAL 1, les contraintes imposées par l'environnement du dispositif existant limitent les solutions réellement envisageables.

Cependant, à la demande de la direction du GANIL, la possibilité de produire des ions alcalins légers a été étudiée (Chapitre III et IV).

I.3. Le Projet SPIRAL 2

Le projet spiral 2 [SpII-01] [Sai-07-01] a pour dessein de délivrer :

- ✓ Des faisceaux d'ions lourds stables très intenses qui pourront être utilisés dans le batiment AEL (Aire Expérimentale de LINAG) avec le spectromètre S³ [Vi-07-02], [Dro-07-01].
- ✓ Des faisceaux d'ions exotiques de haute intensité en utilisant le meilleur procédé pour chacun des faisceaux d'ions radioactifs. Les faisceaux radioactifs seront produits par la méthode ISOL : soit en utilisant un convertisseur (production de neutrons à partir de deutons), soit par irradiation directe de la cible de production par les particules légères (p, d, ^{3,4}He) et également par des ions lourds.
- ✓ Des noyaux très exotiques (sans être accélérés) qui pourront être étudiés dans la salle DESIR [Des-01].

La combinaison de mécanismes de réactions nucléaires (la fission induite par des neutrons rapides dans une cible d'uranium, la fusion-évaporation induite par des ions lourds, le transfert induit par des particules (p,d, ^{3,4}He) et par les ions lourds légers) devrait permettre de couvrir de larges domaines de la carte des noyaux.

Il est à noter que la méthode dite « en vol » par des ions lourds de basse énergie devrait aussi permettre de produire des ions radioactifs auprès du spectromètre S^3 . Ces ions auront au maximum l'énergie issue de la réaction. Il n'est pas actuellement prévu de les ré-accélérer.

I.3.a. Production de noyaux exotiques riches neutrons

Les atomes radioactifs riches en neutrons seront produits à partir de la réaction de fission de l'uranium ²³⁸U, fission induite par des neutrons rapides. Ces neutrons rapides (en moyenne de 14 MeV [SpII-01]) seront produits à partir de l'interaction entre des deutons de 40 MeV et un convertisseur en carbone. Ce procédé a déjà été utilisé à plus basse énergie et intensité à l'installation PARRNe 2 à l'IPN d'Orsay [Ip-01]. Le but est de produire au mieux les faisceaux radioactifs riches en neutrons en utilisant des cibles de UCx (carbure d'uranium) les plus appropriées quant à la diffusion de ces éléments. La limite maximale de 10¹⁴ fissions/s est fixée par le cahier des charges. Différentes compositions (densité, microstructure, épaisseur) d'UCx sont testées à Gatchina en collaboration avec l'Institut de Physique Nucléaire de Saint-Pétersbourg (PNPI), le laboratoire national de Legnaro (INFN-LNL), l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay (IPNO) et le GANIL. Bien que cela ne fasse pas l'objet de cette thèse, j'ai participé à la prise de données lors de deux expériences. Les résultats de ces travaux sont reportés dans les rapports [Lhe-07-01] et [Tec-07-01]. A ce jour, deux types de cibles d'UCx sont à l'étude pour SPIRAL 2 : une « cible basse densité » et une « cible haute densité ».

- La « cible basse densité » est basée sur la technologie utilisée à PARRNe [Lau-03-02] et ISOLDE [Is-01]. La densité d'uranium est d'environ 2,3 g/cm³. Ce type de matériau présente l'avantage d'avoir déjà été utilisé depuis plusieurs décennies à ISOLDE. Cette cible donne cependant un taux de fissions moindre que la cible haute densité pour le même volume. Elle peut être utile si elle s'avère plus rapide pour certains éléments de très courte période ou si le nombre total de fissions est à diminuer en raison de l'extraction intense d'un faisceau radioactif à limiter du point de vue radioprotection.
- La « cible haute densité » sera composée d'UCx de densité de l'ordre de 11 g/cm³. Ce type d'UCx est actuellement disponible en Russie. Elle permettrait d'obtenir un taux de fission supérieur à 5.10¹³ f/s d'après les simulations effectuées avec le code MCNPx [Fad-07-01].

Ces cibles seront composées de pastilles d'UCx placées dans de nombreuses colonnes (19 au maximum) dans un containeur en carbone (80 mm de diamètre et 80 mm de long). Chaque colonne comporte un empilement de pastilles (au maximum 60).

Pour augmenter la vitesse de diffusion et d'effusion des atomes radioactifs produits, la cible UCx est chauffée à haute température (environ 2200°C) d'une part par l'énergie des produits de fission, d'autre part par un four externe assurant un chauffage ohmique. Des mesures de temps de relâchement ont été effectuées sur des cibles d'UCx haute densité et faible densité au PNPI à Gatchina [Lhe-07-01].

Les ions sont produits par différents types de sources, chacune permettant d'obtenir la meilleure efficacité selon la nature de l'élément d'intérêt :

✓ Une source de type FEBIAD (Forced Electron Beam Ion Arc Discharge) est qualifiée de source « universelle ». L'IPN d'Orsay développe une telle source IRENA avec le challenge d'augmenter la durée de vie des cathodes [Chei-06-01].

- ✓ Une source ECR 1⁺ Monobob pour les éléments gazeux est à la charge du GANIL (voir figure I.8).
- ✓ Une source d'ionisation de surface est bien adaptée aux alcalins (en particulier les Rb et Cs). Une telle source est à la charge du GANIL. Le challenge est d'éviter la dégradation des surfaces par la présence de dépôts venant de la cible et des impuretés. Nous avons contribué à la conception et à la réalisation d'une source modulaire de tests hors ligne qui sera décrite au chapitre V.
- ✓ Les sources laser sont efficaces pour la sélectivité des éléments métalliques. Une collaboration internationale est en cours de formation. Un banc de test hors ligne est proposé au hall D du GANIL.

Les sources d'ions de type ECR sont celles qui présentent les meilleures efficacités pour les gaz nobles. La source ECR développée dans le cadre de SPIRAL 2 est la source Monobob II [Ler-07-01] [Hue-05-01] (voir figure I.8). Comme cette source n'a pas été utilisée durant cette thèse, nous citons uniquement ici le descriptif de cette source. Le principe de la source ECR est rappelé dans le chapitre IV. Le confinement magnétique du plasma ECR est réalisé non plus à partir d'aimants permanents comme dans le cas de Nanogan III mais à partir de bobines. En effet, les aimants permanents peuvent être démagnétisés en présence d'un flux important de neutrons.



Figure I.8 : Coupe de l'ensemble cible UCx et source ECR MONOBOB II.

Cette source ECR a donc été testée [Hue-05-01], hors ligne, pour des gaz nobles (Ar, Ne et He). Les efficacités d'ionisation obtenues lors de premiers tests, sont résumées dans le tableau I.4. L'erreur est de l'ordre de 15 %.

Noyaux	Gaz support	Efficacité d'ionisation
$^{40}{\rm Ar}^{1+}$	⁴ He	65%
$^{40}{\rm Ar}^{1+}$	N ₂	72%
20 Ne ¹⁺	⁴ He	35%
20 Ne ¹⁺	N ₂	32%
${}^{4}\text{He}^{1+}$	³ He	8%

*Tableau I.4 : Efficacité d'ionisation de la source ECR MONOBOB II en fonction de la nature du gaz support (⁴He, N₂ et ³He) pour l^{*40}Ar, le ²⁰Ne et ⁴He.*

La source ECR Monobob II est optimale pour les gaz nobles, les éléments pouvant être transportés jusqu'à la source sous forme de molécules neutres, et les éléments non condensables à la température du tube de transfert entre la cible et la source.

Elle devrait être remplacée par une source à ionisation de surface particulièrement efficace dans le cadre de la production de faisceaux d'ions alcalins monochargés (rubidium et césium) pour SPIRAL 2.

le faisceau d'ions sera séparé en masse avec une résolution d'environ 1/250. L'injection des ions 1⁺ dans le plasma d'une source ECR N⁺ permet d'obtenir des états de charge plus élevés nécessaires pour une post-accélération avec un cyclotron. Cette transformation $1^+/N^+$ est en charge du LPSC de Grenoble [Lam-06-01]. Le GANIL a plus particulièrement en charge le développement de la source ECR 1^+ et de la source à ionisation de surface. Le contrôle des espèces produites sera effectué par des stations d'identification.

I.3.b. Production de faisceaux radioactifs déficients en neutrons et de faisceaux légers

Les atomes radioactifs riches en protons seront produits à partir des réactions de fusion-évaporation induites par des ions lourds. Ce mécanisme de réaction a été utilisé pendant de nombreuses années à l'installation ISOL de l'Unilac à GSI [Kir-87-01]. Les fortes intensités de faisceaux stables d'ions lourds qui seront délivrés par le LINAG de SPIRAL 2 devraient permettre d'augmenter les intensités d'un facteur 10 à 50 par rapport à GSI. Le challenge est de réussir à dissiper la puissance faisceau alors que le parcours des ions lourds est seulement de l'ordre de la dizaine de μ m. Ces optimisations sont à la charge du CENBG à Bordeaux qui développe une source Febiad dans la continuité de GSI.

Les faisceaux légers proches de la vallée de stabilité pourront être produits par des réactions induites par les particules légères (p, d, ^{3,4}He) comme déjà réalisé au Centre de Recherche du Cyclotron de Louvain-la-Neuve [Lou-01] et par fusion - évaporation comme à Oak Ridge [Or-02]. Ceci sera réalisé en collaboration avec les instituts d'Israël (SOREQ NRC [Na-01]) pour les faisceaux radioactifs d' ⁶He et de ^{14,15}O.

I.4. Conclusion et perspectives

Ce chapitre a exposé la méthode ISOL ainsi qu'un ensemble de solutions instrumentales, dont celles retenues par SPIRAL 1 et SPIRAL 2 pour produire des faisceaux d'ions radioactifs. La complexité des mécanismes en jeu et la variété des caractéristiques physico-chimiques des isotopes à produire imposent l'utilisation de techniques de production très variées. Quelque soit la solution instrumentale retenue, l'optimisation de cette solution passe par l'utilisation du retour d'expérience et par une étude au cas par cas, car aucune solution ne semble universelle. Cette thèse a pour ambition de montrer comment il a été possible de progresser dans le domaine de la production d'ions radioactifs à GANIL en appliquant ces principes

Le chapitre suivant vise donc la compréhension et l'amélioration des intensités existantes d'isotopes d'Ar avec SPIRAL 1 au travers de l'étude de la diffusion.

Chapitre II :

Caractéristiques de diffusion de l'Ar

dans une matrice en carbone graphite :

TARGISOL

II.1. Introduction

La diffusion d'atomes dans les cibles des systèmes de production ISOL est un problème qui fait intervenir de nombreux paramètres physico-chimiques propres au couple atome diffusant-milieu diffuseur (taille de l'atome, nature chimique de l'atome et du milieu, structure microscopique du milieu, impureté, porosité, etc.). C'est la première étape dans le processus de transformation atomes-ions radioactifs. La connaissance des caractéristiques de diffusion est donc impérative si l'on veut développer ou optimiser l'efficacité de production d'un dispositif ISOL.

Le besoin de comprendre le comportement de matériaux existants et d'étudier de nouveaux matériaux cibles a conduit à la réalisation d'un dispositif de mesures à GANIL dans le cadre de la collaboration TARGISOL. Le but de cette collaboration était l'étude des propriétés de relâchement des matériaux cibles candidats pour la méthode ISOL et le développement de nouveaux faisceaux au travers de :

- La caractérisation des matériaux.
- La mesure de relâchement (sous faisceau et hors faisceau) à partir de traceurs radioactifs [Kir-97-01], ou stables hors de la matrice cible (processus de diffusion) (ISOLDE, GANIL GSI-MSP).
- Les mesures de chromatographie pour caractériser l'effusion dans la cavité cible et dans un tube de transfert (processus d'effusion) (PSI Paul Scherrer Institut).
- La préparation d'échantillons de cibles (LMU, Munich).
- La réalisation d'un code de calcul « Monte-Carlo » pour simuler le relâchement complet d'un ensemble cible-source [Lei-05-01].
- La réalisation d'une base de données contenant les paramètres de diffusion et de désorption (IEM, CSIS).
- L'amélioration du modèle semi-empirique de Eichler-Miedema pour la prédiction des paramètres de désorption.
- Le test en ligne de cibles-sources optimisées (ISOLDE, GANIL GSI-MSP).

Le dispositif de mesure (paragraphe II.4) a été initialement conçu sur la base des idées suivantes :

- Etre aussi simple que possible pour que la description de la transformation atomeion puisse être faite au travers d'un modèle analytique existant (paragraphe II.3).
- Pouvoir tester plusieurs cibles au cours de la même période d'expérience, dans des conditions expérimentales aussi proches que possible pour obtenir des résultats qui puissent être au minimum comparés, et au mieux conduire aux valeurs absolues des caractéristiques de diffusion.

Les conditions expérimentales (faisceau primaire, élément diffusant, cible) ont été déterminées au regard des caractéristiques du dispositif expérimental et de différentes attentes concernant la production de nouveaux faisceaux et la connaissance de la diffusion dans le carbone graphite dans le but d'améliorer les taux de production de SPIRAL 1. Ces attentes sont exposées dans les paragraphes suivants.

II.1.a. Production de nouveaux faisceaux

La production de faisceaux autres que les gaz nobles sur SPIRAL 1 est un objectif important pour GANIL. La contribution du GANIL à la collaboration TARGISOL a donc consisté à produire des faisceaux d'oxygène riches en neutrons [Gan-01] et [Ko-05-01] à l'aide de l'ensemble cible-source standard de SPIRAL 1 (cible carbone graphite grain 1 μ m et source Nanogan III, voir chapitre I). Cette étude fait suite au travail de thèse de S. Gibouin [Gib-03-01] qui avait mesuré les taux de production d'¹⁴O et d'¹⁵O, montrant ainsi que ces faisceaux pouvaient être extraits sous forme moléculaire CO.

Pour produire des isotopes de carbone avec le dispositif TARGISOL et en utilisant le même principe de transport moléculaire que pour l'oxygène, il était nécessaire de disposer d'une cible sans carbone. De nouvelles cibles de HfO₂, ZrO₂, Al₂O₃ et C-Aérogel ont donc été réalisées pour être montées dans le dispositif TARGISOL. (Pour pouvoir transposer les résultats obtenus à la production de nouveaux faisceaux SPIRAL 1, il faudra au préalable étudier des cibles de tailles plus importantes et obtenir l'autorisation de les utiliser sur SPIRAL 1).

II.1.b.Données existantes sur les coefficients de diffusion pour du carbone graphite

Une base de données sur les caractéristiques de diffusion des atomes dans les solides a été créée dans le cadre de la collaboration TARGISOL [Tar-02]. Mais le nombre important de couples « atome diffusant-milieu diffuseur » et la difficulté de réaliser des mesures à haute température font que peu d'informations sont disponibles sur la diffusion d'atomes dans le carbone graphite sur cette base de données et de façon générale dans la littérature scientifique. Des mesures d'efficacité de diffusion-effusion ont donc été réalisées lors de la période de conception de SPIRAL 1 en fonction de la température de la cible et pour différentes tailles de grains : 4 μ m et 15 μ m (puissance faisceau 400 W + four externe [Ma-98-01]), 1 μ m (puissance faisceau 1,5 kW + chauffage par l'axe [Pel-01-01]). Ces résultats sont présentés dans la figure II.1.


Figure II.1 : Mesures expérimentales d'efficacité de diffusion de l'³⁵Ar (1,775s) pour les cibles en carbone graphite de grain de taille 1 μ m, 4 μ m et 15 μ m en fonction de la température [Pel-01-01].

Ces résultats montrent que l'efficacité de diffusion pour une température donnée augmente lorsque la taille des grains de la cible diminue. Pour une taille de grain de $1\mu m$, l'efficacité de diffusion atteint 100% à une température de 1800°C.

Pour la cible de grain 1 μ m, la courbe montre une allure différente de celles réalisées pour les cibles de microstructure 4 et 15 μ m. Plusieurs interprétations sont possibles. Les cibles 4 et 15 μ m sont fabriquées par l'entreprise *Carbone Lorraine* et la cible 1 μ m est fabriquée par l'entreprise *POCO Graphite Industrie*. Les liants et la porosité de ces deux types de carbone sont différents [Pel-01-01]. Une différence dans le mode de préparation du carbone peut-elle induire une différence sur la diffusion en fonction de la température ?

D'autre part, les conditions de température pour les mesures du coefficient de diffusion de la cible $1\mu m$ et pour les cibles 4 et $15\mu m$ étaient différentes. La cible $1\mu m$ était chauffée par l'axe ce qui induit un gradient de température dans la cible. Les cibles 4 et $15\mu m$ étaient chauffées par un four externe en carbone graphite destiné à homogénéiser la température de la cible. La différence du mode de chauffage peut-elle conduire à une différence sur la diffusion en fonction de la température ?

Des mesures supplémentaires semblaient nécessaires pour répondre à ces questions.

II.1.c. Amélioration des faisceaux existants sur SPIRAL 1

L'estimation des taux de production en sortie du dispositif SPIRAL 1 nécessite la connaissance précise des caractéristiques de diffusion de l'atome d'intérêt dans la cible de carbone graphite utilisée. Cette connaissance est d'autant plus importante pour l'estimation des intensités des isotopes de courte durée de vie (tels que l'³¹Ar, $T_{1/2} = 15$ ms par exemple) pour lesquels une erreur sur la valeur du temps caractéristique de diffusion peut entraîner une erreur importante sur l'estimation de l'efficacité de diffusion.

Le travail d'étude et de réalisation du dispositif TARGISOL à GANIL est antérieur à cette thèse [Du-04-01]. Mon travail a consisté à préparer les expériences, à y participer et à analyser la partie des résultats correspondant à la diffusion de l'³⁵Ar dans les cibles de carbone graphite de différentes tailles de grains et à différentes températures.

Les résultats obtenus avec les cibles de HfO_2 , ZrO_2 , Al_2O_3 et C-Aérogel au cours de l'expérience TARGISOL réalisée au GANIL ne sont pas exposés dans ce mémoire. Ils font l'objet d'une partie de la thèse de H. Franberg, et ont été présentés sur un poster à Giens [Fra-06-01].

II.2. Etude du relâchement des atomes

II.2.a. Diffusion dans un solide

Durant l'étude du relâchement des atomes dans une matrice solide, nous faisons les hypothèses suivantes :

- L'implantation des atomes est réalisée de manière homogène dans la matrice solide.
- La propagation des atomes implantés dans la matrice solide est isotrope.
- > Il n'existe pas de gradient de température au sein de la matrice solide.
- La structure du matériau n'est pas modifiée à cause de la présence des atomes diffusants.

Si ces hypothèses sont respectées, le processus de diffusion obéit à la première loi de Fick :

$$J = -D.Grad(C) \tag{II.1}$$

J représente le flux d'atomes relâchés et Grad(C) le gradient de concentration. Cette première loi de Fick nous permet de calculer un flux de particules émergeant d'une feuille de matériau d'épaisseur d et de coefficient de diffusion D (cm².s⁻¹) [Ben-03-02] :

$$f(t) = \lambda_D C_0 . d.S.8 \sum_{n=0}^{\infty} e^{-k_n \lambda_D . t}$$
(II.2)

 λ_D (s⁻¹) est le taux de diffusion, égal à D/d^2 . k_n est égal à $\pi^2(2n+1)^2$.

S est la surface totale de la feuille (en cm^2).

 C_0 est la concentration d'atomes à t = 0 (en atomes par cm³).

Cette expression suggère que tout peut être mathématiquement décrit comme si le flux total relâché était équivalent à la somme des flux de n couches constituant chacune un réservoir séparé d'où les atomes sortiraient par effusion pure, c'est-à-dire avec un flux proportionnel au contenu du réservoir. Le nombre d'atomes N_n contenus dans chaque réservoir serait égal à :

$$N_n = \frac{8C_0 Sd}{(2n+1)^2 \pi^2}$$
(II.3)

Le flux relâché par chaque réservoir serait égal à :

$$f_n(t) = \lambda_{Dn} N_n \cdot e^{-\lambda_{Dn} \cdot t}$$
(II.4)

Et le flux total serait égal à :

$$f(t) = \sum_{n=0}^{\infty} f_n(t)$$
(II.5)

Le taux de diffusion λ_{Dn} serait alors égal à :

$$\lambda_{Dn} = (2n+1)^2 \pi^2 \lambda_D. \tag{II.6}$$

Les faibles valeurs de n correspondent aux couches profondes pour lesquelles le relâchement est plus long. Les valeurs de n infini correspondent aux couches externes d'où les atomes sortent très rapidement mais dans lesquelles le nombre d'atomes contenus est faible. Il est important de souligner que la fonction f(t) n'est pas une fonction exponentielle mais une somme d'exponentielles. Du point de vue macroscopique, c'est cette différence avec une exponentielle pure qui distingue le processus de diffusion du processus d'effusion.

Si les atomes sont radioactifs, f(t) prend la forme suivante :

$$f(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \lambda_{Dn} N_n \cdot e^{-(\lambda_{Dn} + \lambda) \cdot t}$$
(II.7)

Où λ est le taux de décroissance radioactive.

Dans le cas où les noyaux radioactifs diffusent hors d'une feuille, le rapport entre le nombre d'atomes implantés à t = 0 et le nombre d'atomes qui sont sortis de la feuille à un temps infini (rapport appelé efficacité de diffusion) s'exprime [Fu-81-01] :

$$\varepsilon_{diff} = 2 \cdot \sqrt{\frac{\lambda_D}{\lambda}} t h \left(\frac{1}{2} \sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_D}} \right)$$
(II.8)

La variation du coefficient de diffusion *D* avec la température du matériau obéit à la loi d'Arrhénius [Lan-70-01] :

$$D = D_0 e^{-\left(\frac{E_a}{KT}\right)} \tag{II.9}$$

Le coefficient D_0 (cm².s⁻¹) représente la limite du coefficient de diffusion lorsque la température tend vers l'infini ou lorsque l'énergie d'activation tend vers 0. E_a (eV) est l'énergie d'activation du processus. Ils dépendent tous deux du couple atome diffusant-milieu diffuseur. Une étude du coefficient de diffusion en fonction de la température permet théoriquement de déterminer les coefficients D_0 et E_a . Ils sont indépendants de la température et de la forme géométrique du matériau diffusant.

La diffusion dans un solide est principalement gouvernée par un mécanisme lacunaire et par un mécanisme interstitiel. Les atomes implantés diffusent de défaut en défaut présents dans la structure cristalline ou diffusent entre les différents plans atomiques. Pour un mécanisme interstitiel de déplacement des atomes, l'énergie d'activation (E_a) représente l'énergie qu'il faut apporter aux noyaux implantés pour qu'ils puissent migrer entre les différents plans atomiques. Dans le cas de la diffusion par mécanisme lacunaire, l'énergie d'activation représente l'énergie qu'il faut apporter au système pour former des lacunes dans la structure cristalline et l'énergie qu'il faut apporter aux atomes diffusants pour qu'ils se déplacent dans ces lacunes [Mo-04-01].

L'expression II.2 montre que dans tous les cas, plus la température de la cible est élevée et plus la vitesse de diffusion est importante. La limitation en température est déterminée par les caractéristiques physiques du matériau.

A l'échelle microscopique, le carbone graphite ne répond pas aux hypothèses d'homogénéité. La structure microscopique des grains peut varier (structure cristalline, type de cristal ? carbone amorphe ?) et le contenu des zones entre grains est mal connu (-vide ? zone amorphe ? liaison inter-grain ?). Cependant, dans un matériau polycristallin, on peut distinguer nettement deux types de matériaux (voir figure II.2), l'une constituée de grains (zone gris claire) et l'autre constituée de joints de grains (réseau noir).



Figure II.2 : Image de la structure polycristalline d'un matériau [Mo-04-01].

Les atomes implantés dans ce type de matériau peuvent, par l'effet d'une agitation thermique due à la haute température, se déplacer de manière aléatoire dans les grains et dans les joints de grains. La distinction du déplacement dans les deux zones semble difficile. Il faudrait pour cela connaître la nature physico-chimique de chaque zone, leur donner un poids relatif, connaître les paramètres des mécanismes élémentaires qui régissent la diffusion dans chaque zone pour en déduire un coefficient de diffusion global à l'échelle macroscopique. Une approche a été menée antérieurement [Ma-98-01] en considérant que la diffusion dans les grains de la matière est le processus prédominant et que la diffusion inter-grains assimilable à de l'effusion était négligeable. Dans cette approche, les grains sont assimilés à des sphères. La diffusion correspondait alors à la seule diffusion dans les grains de rayon *a* et l'efficacité était donnée par l'expression :

$$\varepsilon_{diff} = 3 \frac{\left(\sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_D}} \coth\sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_D}} - 1\right)}{\frac{\lambda}{\lambda_D}}$$
(II.10)

Où le taux $\lambda_D = \frac{D}{a^2}$.

Dans le cas des cibles formées à partir de poudre telle que le carbone graphite, on considérera dans ce mémoire que si les plus petites dimensions des cibles (typiquement 1 mm) sont très importantes devant les dimensions de la structure microscopique (typiquement quelques μ m), le matériau cible est homogène à l'échelle macroscopique. Le coefficient de diffusion est alors considéré comme un paramètre macroscopique [Ben-03-01] et [Ja-06-01] résulte de la moyenne des mécanismes qui interviennent à l'échelle de la structure microscopique. Nous nous limiterons dans l'analyse des résultats à l'extraction du coefficient *D* à partir des taux de diffusion et de l'épaisseur *d* des cibles : $D = \lambda_D d^2$.

II.2.b.Effusion

L'effusion est le nom généralement utilisé pour caractériser le déplacement d'atomes dans un milieu peu dense. Dans le cas d'un réservoir à très basse pression (libre parcours moyen supérieur aux dimensions du réservoir) et de forme proche d'une sphère, le flux d'atomes qui effusent en dehors du réservoir au travers d'un orifice de longueur nulle est proportionnel au nombre d'atomes contenus dans le réservoir. La variation du flux émergeant en fonction du temps est alors décrit par une exponentielle unique.

Par agitation thermique, les atomes radioactifs décrivent des mouvements aléatoires qui sont composés de trajectoires rectilignes et de collisions sur les parois de l'ensemble cible-source. Le temps entre deux collisions est appelé « temps de vol » et il est défini à partir de l'expression suivante :

$$\tau_v = D_v \sqrt{\frac{m}{3k_B T}} \tag{II.11}$$

Où D_v représente le libre parcours moyen (distance moyenne parcourue entre deux collisions), *m* est la masse de l'élément effusant et *T* la température de thermalisation du noyau.

Durant chaque collision, l'atome est adsorbé par la paroi. Ce temps d'adsorption est appelé « temps de collage », il s'exprime de la façon suivante [Boe-69-01] :

$$\tau_c = \tau_0 \exp\left(\frac{\Delta H_a}{k_B T}\right) \tag{II.12}$$

Avec ΔH_a l'enthalpie d'adsorption, qui représente l'énergie d'activation pour la désorption de l'élément radioactif adsorbé.

 τ_0 est appelé la période de vibration normale à la surface de la particule adsorbée.

L'enthalpie d'adsorption dépend du couple élément adsorbé - surface adsorbante. Elle est considérée comme négligeable pour les gaz nobles et elle est élevée pour les éléments condensables.

Le temps moyen d'effusion est déterminé à partir de l'expression suivante :

$$T_{eff} = \frac{\ln 2}{\lambda_{eff}} = \chi (\tau_v + \tau_c) \ln 2$$
(II.13)

 χ représente un nombre moyen de collisions entre les lamelles de la cible de production et également sur les surfaces de la zone de transfert entre la cible et la source d'ions.

 τ_v est le temps de vol, il est défini comme le temps moyen entre deux collisions.

Au niveau du processus d'effusion, il y a une compétition entre le temps d'effusion et la période radioactive de l'élément d'intérêt. L'efficacité d'effusion a donc pour expression [Kir-92-01] :

$$\varepsilon_{effusion} = \frac{\lambda_{eff}}{\lambda_{eff} + \lambda} = \frac{1}{1 + \frac{T_{eff}}{T_{1/2}}} = \frac{1}{1 + \frac{\chi(\tau_v + \tau_c)\ln 2}{T_{1/2}}}$$
(II.14)

Lorsque la température augmente, le temps moyen d'effusion diminue et par conséquent l'efficacité d'effusion augmente. Des approches numériques qui utilisent des codes de calcul [Mus-03-01] [Leit-05-01] [Zha-05-01] basés sur une simulation « Monté-Carlo » permettent d'estimer le nombre de collisions dans un ensemble cible-source et également le temps moyen d'effusion. Il faut toutefois connaître le temps de collage. A notre connaissance, il n'existe que le modèle semi empirique de B. Eichler mais il n'est pas valable pour tous les couples éléments diffusants-matériaux.

II.2.c. Méthodes de mesure de l'efficacité de relâchement de la cible

Deux méthodes sont fréquemment utilisées au GANIL et dans d'autres laboratoires [Let-03-01] [Lhe-06-01] [Rou-02-01] [Rou-06-01] pour mesurer le coefficient de diffusion des atomes dans les cibles ISOL. Dans les deux cas, des atomes sont implantés dans la cible. La cible est chauffée pour accélérer leur sortie. Les atomes sont ensuite ionisés pour faciliter la mesure de la quantité relâchée (courant d'ions).

La mesure peut être faite en régime continu [Lec-97-01] : un flux connu d'atomes est continûment implanté dans la cible. Le flux d'ions en sortie de l'ensemble cible-source est mesuré. Le rapport du flux émergeant sur le flux implanté, corrigé des efficacités d'effusion, d'ionisation, de transport et de détection conduit à l'efficacité de diffusion. A partir de la valeur de l'efficacité de diffusion, il est possible de déterminer le coefficient de diffusion en utilisant un modèle qui tient compte de la forme de la cible (sphère, lamelle ou fibre) [Kir-92-01] et [Fu-81-01].

La seconde méthode consiste à effectuer une mesure dynamique. Le flux implanté dans la cible passe quasiment instantanément de zéro (faisceau pulsé) à une valeur donnée, ou de cette valeur à zéro. On enregistre l'évolution du courant d'ions en sortie du dispositif (Voir figure II.3).



Figure II.3 : Structure temporelle du faisceau primaire et du signal enregistré dans la méthode dynamique.

La réponse en temps résulte de la convolution des réponses en temps des processus de radioactivité, de diffusion, d'effusion et d'ionisation (on néglige les réponses en temps des transports et de la détection). Pour extraire la contribution de la diffusion à partir de la réponse globale, il faut alors disposer d'un modèle descriptif du comportement dynamique du système cible-source.

Pour chacune de ces méthodes, il est intéressant de pouvoir faire varier :

- La température de la cible pour connaître l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de la température, et donc de pouvoir en déduire les coefficients fondamentaux de la diffusion E_a et D_0 .
- Les isotopes radioactifs et par donc leur durée de vie. Ce qui permet de comparer le temps de diffusion à une échelle de temps donnée par les périodes radioactives.

Le principal avantage de la méthode dynamique est d'extraire le coefficient de diffusion D à partir de l'amplitude et de la forme de la réponse en temps. Cette fonction du temps est à priori plus riche en information qu'une simple efficacité. Les paramètres extraits de cette

réponse en temps permettent de vérifier la cohérence avec les paramètres extraits de la méthode en régime continu.

Enfin, les principaux avantages et inconvénients liés au choix du faisceau implanté sont énoncés dans le tableau II.1.

Faisceau d'ions incident	Ions mesurés après séparateur de masse	Avantages	Inconvénients
Stables	Stables (noyaux identiques au faisceau incident)	Stabilité du faisceau. Intensité importante. Mesure non interceptive et simultanée du faisceau incident.	Forte intensité nécessaire pour la mesure de courant à partir d'une cage de Faraday => température cible inhomogène
Radioactifs	Radioactifs (noyaux identiques au faisceau incident)	Choix de la durée de vie de l'isotope. Intensité mesurable après séparateur.	Stabilité du faisceau incident. Nombreux réglages pour chaque faisceau incident radioactif.
Stables	Radioactifs produits dans la cible	Choix de la durée de vie de l'isotope. Faible intensité mesurable après séparateur. Stabilité du faisceau incident. Intensité importante des radioactifs. Mesure d'intensité non interceptive et simultanée du faisceau incident	Précision valeurs sections efficaces de production. Faisceau primaire intense => température inhomogène. Population par les parents et influence de leur relâchement sur la diffusion de l'élément d'intérêt.

Tableau II.1 : Avantages et inconvénients pour la mesure du coefficient de diffusion au GANIL selon le type de faisceau incident.

II.3. Transformation des atomes en ions dans un ECS : Réponse dynamique

Des atomes de gaz rare sont implantés dans la cible à t = 0. Ils diffusent en dehors de la cible, effusent jusque dans la source d'ionisation. Certains peuvent être ionisés puis sortent de la chambre de la source d'ionisation, par effusion ionique (cône de perte, [Chen-84-01]). Ceux qui ne sont pas ionisés sortent par effusion atomique.

Le modèle de transformation des atomes en ions présenté dans ce paragraphe est celui qui a été utilisé pour l'analyse des mesures de ce chapitre. Il repose sur les hypothèses suivantes :

1 – Les atomes sont implantés de façon homogène dans le volume de la cible.

2 – La cible est constituée de feuilles jointives. Le flux d'atomes relâchés par la cible en fonction du temps est donc donné par l'expression :

$$f(t) = \lambda_D C_0 . d. S.8 \sum_{n=0}^{\infty} e^{-(k_n \lambda_D + \lambda).t}$$
(II.15)

3 – Une fois sortis de la cible, les atomes ont une probabilité de rediffuser dans la cible négligeable comparée à la probabilité qu'ils ont de sortir de l'Ensemble Cible Source (ECS). Cette hypothèse s'appuie sur le fait que les temps de sortie des atomes de l'ECS par effusion sont généralement beaucoup plus faibles que les temps de sortie de la cible. Les processus de diffusion et d'effusion-ionisation sont donc considérés comme consécutifs.

4 – L'effusion des atomes dans la chambre de l'ECS est uniquement gouvernée par le volume de la chambre de l'ECS, la section du trou de sortie de l'ECS, la masse des atomes et la température moyenne du milieu. Des mesures antérieures [Ja-03-01] d'effusion ont confirmé que l'effusion de l'ECS était gouvernée par la conductance de sortie de l'ECS (ce n'est pas la conductance de l'entrée qui limite l'effusion). De plus, cette hypothèse implique des géométries de cible aussi simples que possible pour ne pas ralentir le processus d'effusion.

5 – Les processus d'effusion et d'ionisation sont en compétition. Cette hypothèse associée à l'hypothèse 3 induit que l'efficacité totale de transformation des atomes en ions sera le produit d'une efficacité de diffusion et d'une efficacité d'effusion-ionisation.

6 – Les variations temporelles des populations d'atomes et d'ions sont reliées linéairement à ces populations par des taux $\lambda_{process}$ qui dépendent des processus considérés.

7 – Pour des conditions de fonctionnement fixées, les $\lambda_{process}$ sont constants.

Sur la base de ces hypothèses, la variation des populations d'atomes et d'ions dans l'ECS s'exprime [Jar-06-01] :

$$\frac{dx_a}{dt}\Big|_{source} = \lambda_D N_0 8 \sum_{n=0}^{\infty} e^{-(k_n \lambda_D + \lambda).t} + \lambda_0 x_i - (\lambda_i + \lambda_{eff} + \lambda).x_a$$
(II.16)
$$\frac{dx_i}{dt}\Big|_{source} = \lambda_i x_a - (\lambda_0 + \lambda_{ieff} + \lambda).x_i$$

 x_a et x_i sont respectivement les populations d'atomes et d'ions dans l'ECS.

 λ_D est le taux qui caractérise la diffusion des atomes dans la cible. Ce taux dépend de la nature physico-chimique du couple atome-cible, de la constitution de la cible et de sa température. λ_D change peut être avec la masse de l'isotope, faute d'argument pour le confirmer ou l'infirmer, nous le considérons indépendant de la masse des isotopes d'un élément.

 λ_{eff} est le taux de sortie des atomes qui effusent dans la chambre de l'ECS. Il dépend du volume V de la chambre de l'ECS, de la surface S du trou de sortie de l'ECS, de la masse M des atomes et de leur température T. λ_{eff} est calculé à l'aide de la relation :

$$\lambda_{eff} = \frac{S}{V} \sqrt{\frac{kT}{2\pi M}}$$
(II.17)

 λ_i est le taux de transformation des atomes en ions dans la source. λ_0 est le taux de neutralisation des ions à l'intérieur de l'ECS. λ_{ieff} est le taux de sortie des ions hors de l'ECS par effusion ionique. Ils dépendent tous les trois des caractéristiques du plasma ECR. λ est la largeur de décroissance radioactive.

L'expression du flux d'ions en sortie d'un ECS a été établie pour l'analyse des réponses en temps enregistrées au cours des phases de collection et de relâchement pour un gaz stable injecté avec une fuite calibrée.

$$x_{i}(t)_{sortie} = No \frac{\lambda_{i} \lambda_{ieff}}{(\phi_{+}, \phi_{-})} \exp(\phi_{+}t) (1 - \exp(\phi_{-} - \phi_{+})t)$$
(II.18)

 ϕ_+ et ϕ_- sont des combinaisons des taux λ_i , λ_{ieff} , λ_0 , λ_{eff} et λ :

$$\phi_{+\!/_{-}} = \frac{1}{2} \left(\alpha_a + \alpha_i + \!/_{-} \sqrt{(\alpha_a - \alpha_i)^2 + 4\lambda_i \lambda_0} \right)$$
(II.19)
$$\int_{\alpha} \operatorname{et} \alpha_i = -\left(\lambda_0 + \lambda_{i\alpha\beta} + \lambda_i \right)$$

avec $\alpha_a = -(\lambda_i + \lambda_{eff} + \lambda)$ et $\alpha_i = -(\lambda_0 + \lambda_{ieff} + \lambda)$

La figure II.4 représente la forme du courant d'ions Ar^+ extraits d'un ECS en fonction du temps. Dans cette expérience, un pulse de N_0 atomes de gaz Ar est injecté dans le volume de l'ECS à t = 0. On observe une phase de montée, dont la pente est caractérisée par la valeur de $\phi_- - \phi_+$, puis une phase de descente caractérisée par la valeur de ϕ_+ .



Figure II.4 : Mesure expérimentale (en gras) du courant d'ions ⁴⁰Ar⁺ extraits de la source ECR Mono 1000 en fonction du temps après injection d'un pulse d'atomes d'⁴⁰Ar. Le fit (en clair) est réalisé selon l'équation II.18.

Le recouvrement des réponses en temps calculées et mesurées montre que l'évolution du courant d'ions en sortie de la source est correctement décrite à l'aide de l'équation (II.18).

L'intégrale de cette courbe correspond au nombre total d'ions extraits N_i . L'efficacité d'effusion-ionisation est définie comme le rapport $\varepsilon_{ai} = N_i / N_0$ qui est aussi égal à :

$$\varepsilon_{ai} = \frac{\lambda_i \lambda_{ieff}}{\left(\lambda_i + \lambda_{eff} + \lambda\right) \left(\lambda_0 + \lambda_{ieff} + \lambda\right) - \lambda_0 \lambda_i}$$
(II.20)

Dans le cas où N_0 atomes sont implantés dans la cible à t = 0, on obtient comme expression de l'efficacité totale ε_{ai} tot de l'ECS :

$$\varepsilon_{ai}tot = \left[2.\sqrt{\frac{\lambda_D}{\lambda}} \tanh\left(\frac{1}{2}\sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_D}}\right)\right] \cdot \frac{\lambda_i \lambda_{ieff}}{(\lambda_i + \lambda_{eff} + \lambda)(\lambda_0 + \lambda_{ieff} + \lambda) - \lambda_0 \lambda_i}$$
(II.21)

On remarque que l'efficacité totale est le produit de l'efficacité de diffusion ε_{diff} (voir expression II.8) et de l'efficacité d'effusion-ionisation ε_{ai} (voir expression II.20). Par simplification, cette dernière est souvent appelée « efficacité d'ionisation ».

Pour déterminer les valeurs des taux λ_i , λ_{ieff} , λ_0 pour un isotope stable de gaz rare, on injecte un pulse de ce gaz dans l'ECS. La forme de la réponse en temps du courant en sortie de l'ECS permet de déduire ces taux à l'aide des expressions suivantes :

$$\lambda_{i} = -\left[\phi_{+} + \phi_{-} + \frac{\phi_{+}\phi_{-}}{\lambda_{eff}} (1 - \varepsilon_{ai}) + \lambda_{eff}\right]$$
(II.22)

$$\lambda_{ieff} = \frac{\phi_+ \phi_-}{\lambda_i} \varepsilon_{ai} \tag{II.23}$$

$$\lambda_0 = \frac{\phi_+ \phi_-}{\lambda_{eff}} (1 - \varepsilon_{ai}) - \lambda_{ieff}$$
(II.24)

Les formules II.22, II.23 et II.24 sont déduites des équations II.19 et II.20.

Des mesures de ϕ_+ et ϕ_- effectuées avec différentes sources ECR ont montré que sur un large domaine d'efficacité d'ionisation, $|\phi_-| \ge 8 |\phi_+|$. A partir de la figure II.5 et de l'exemple où $|\phi_+|=10.5 \text{ s}^{-1}$ et $|\phi_-|=286 \text{ s}^{-1}$, on déduit qu'il est possible au premier ordre de négliger le temps de montée par rapport au temps de descente.



Figure II.5 : Rapport des taux ϕ_+ et ϕ_- en fonction de l'efficacité d'ionisation de la source et pour différentes sources ECR : Minimono [Gau-03-01], Mono1000 [Ja-02-01] et NanoganIII [Ler-04-01].

Cette approximation présente l'avantage de pouvoir relier de façon très simple le taux ϕ_+ à la valeur de l'efficacité d'ionisation par la relation (II.25) [Ja-04-01], et donc de pouvoir déterminer ϕ_+ par la simple mesure de l'efficacité d'ionisation puisque la valeur de λ_{eff} est connue de l'équation II.17 :

$$\phi_{+stable} = -\frac{\lambda_{eff}}{(1 - \varepsilon_{ai})} \tag{II.25}$$

46

Dans cette expression, le terme ε_{ai} correspond à l'efficacité du processus effusion-ionisation pour un noyau stable.

La détermination de $\phi_{-stable}$ est alors faite en posant que :

$$\phi_{-stable} \approx 10 \phi_{+stable}$$

Connaissant les valeurs de $\phi_{+stable}$ et de $\phi_{-stable}$, on peut déterminer les valeurs des taux λ_i , λ_0 , et λ_{ieff} qui caractérisent le plasma de la source (voir tableau II.2).

			Effusion	Taux	Effusion	Taux de
			atomique	d'ionisation	ionique	neutralisation
$\boldsymbol{\varepsilon}_{ai}$	$\phi_{+stable}$	$\phi_{{}_{-stable}}$	λ_{eff}	λ_i	λ_{ieff}	λ_0
0,7	-5,5	-55	1,65	3,85	55	0

Tableau II.2 : Exemple de valeurs des différents taux pour une efficacité d'ionisation de 70% et pour un λ_{eff} égal à 1,65 s⁻¹. Cette valeur de λ_{eff} est déterminée à partir des caractéristiques géométriques de la source ECR Mono1000.

L'utilisation des paramètres obtenus dans le cas d'isotopes stables pour la détermination des taux dans le cas d'isotopes radioactifs, implique que leur valeur ne change pas avec l'isotope, ce qui n'est pas parfaitement rigoureux pour λ_{eff} . Si la masse de l'isotope change, le taux d'effusion λ_{eff} change en fonction de la masse mais nous en tiendrons compte en utilisant l'expression (II.17).

Le taux d'ionisation λ_i dépend du potentiel d'ionisation des atomes (qui ne dépend pas de la masse des isotopes d'un élément) et de la section efficace d'ionisation qui dépend de la vitesse relative des partenaires de la collision. La vitesse de déplacement des atomes dans la chambre de l'ECS change avec la masse mais ne devrait pas modifier le taux d'ionisation. En effet, la vitesse des électrons ioniseurs dans le plasma d'une source ECR (à Résonnance Cyclotronique Electronique) reste dans tous les cas très supérieure à la vitesse de déplacement des atomes (supérieur à quelques dizaines d'eV pour les électrons, à comparer à une énergie cinétique des atomes de l'ordre de 1eV).

Le taux d'effusion ionique λ_{ieff} dépend de l'orientation du vecteur vitesse des ions [Chen-84-01]. Comme la vitesse des ions dépend de la masse pour un plasma donné, cette orientation pourrait être sensible à la masse des isotopes. Le taux d'effusion ionique dans le plasma serait sensible à l'isotope considéré. Cet effet est difficile à évaluer. Par la suite, nous négligerons cette sensibilité.

II.4. L'expérience TARGISOL

Le système d'étude TARGISOL reprend le principe d'un système ISOL. Il comprend, principalement, une cible, un système de chauffage de la cible et une source d'ionisation. Le chauffage est souvent obtenu sur les dispositifs ISOL par le dépôt de puissance du faisceau primaire. Dans le cas de la détermination du coefficient de diffusion caractéristique du matériau, il est préférable de chauffer la cible artificiellement pour obtenir une température homogène. Il est donc nécessaire que la puissance due à l'implantation ou à la production d'atomes dans la cible soit négligeable par rapport à la puissance apportée par le système de chauffage de la cible, et que le gradient de température dans le volume de la cible soit aussi faible que possible. Durant l'expérience, le dépôt de puissance du faisceau radioactif d'³⁵Ar fournie par l'installation SISSI était de 0,14 mW. La puissance déposée par le faisceau primaire est donc négligeable par rapport à la puissance du chauffage ohmique (environ 2,5 kW). La puissance déposée par le faisceau primaire ne perturbe donc pas la mesure de diffusion.

• Pour effectuer les mesures de diffusion avec plusieurs cibles au cours de la même expérience, un distributeur de cibles permet d'insérer (à distance) la cible choisie dans le four (paragraphe II.4.a).

• La source d'ionisation est une source ECR 1⁺, choisie pour son efficacité d'ionisation importante des gaz rares (MONO 1000) [Ja-04-01].

• Les ions extraits de l'ECS sont séparés en fonction de leur rapport masse sur charge puis implantés sur une bande. Leurs transitions gamma, issue de la décroissance radioactive sont caractéristiques de chaque noyau et leur analyse conduit à un taux de production [Lec-97-01].

• Le signal en sortie du dispositif peut être mesuré en régime continu ou en régime dynamique par modification du faisceau primaire.

Pour que les résultats des mesures puissent être analysés au travers du modèle du paragraphe II.3, certaines hypothèses devaient être techniquement respectées lors de la conception du dispositif expérimental. Elles sont reprises au cours des paragraphes suivants.

II.4.a. Dispositif technique

Ce dispositif (voir figure II.6) a été élaboré dans le but de mesurer les caractéristiques de diffusion et de production de cibles différentes (jusqu'à 12) durant la même expérience et dans des conditions expérimentales aussi proches que possible [Du-04-01]. Pour minimiser les interventions sur le dispositif, les opérations de changement de cible ont été automatisées (voir figure II.7), et le dispositif a été conçu pour que ces opérations maintiennent le dispositif sous vide.

L'hypothèse 4 du paragraphe II.3 impose au dispositif que la chambre cible et la chambre source soient confondues. La cible et le four ont donc été placés entre les couronnes d'aimants de la source ECR, mettant en regard direct la chambre cible et la chambre source au travers d'une ouverture dont le diamètre (environ 30 mm) est très supérieur à l'orifice de sortie de l'ECS (7 mm).



Figure II.6 : Schéma de l'ensemble cible-source utilisé pour l'expérience TARGISOL. Association d'une partie « insertion cibles » et de la source plasma Mono1000.



Figure II.7 : Distributeur de cibles.

Le mouvement des cibles se décompose en deux parties : une rotation permet de sélectionner la cible que l'on souhaite étudier et de l'aligner avec l'ouverture du four. Une translation permet ensuite d'insérer et de retirer la cible dans la zone du four.



Figure II.8 : Schéma de l'ensemble cible, container et four.

La figure II.8 présente un schéma de l'ensemble cible, container et four. Le faisceau arrive par la gauche de la figure.

i) <u>*Le container*</u>

Pour limiter les risques d'endommagement de la cible par réaction avec le carbone évaporé par le four, chaque cible est incluse dans un container dont le matériau ne réagit pas avec la cible. Pour les cibles en carbone, le container (voir figure II.9) est fabriqué à partir de carbone graphite dont la taille des grains est de 4μ m. Pour les cibles en oxyde, le container est fabriqué en molybdène. Quelque soit le matériau cible, le container conserve la même géométrie. Sa longueur interne est de 35 mm et son diamètre intérieur est de 15 mm.



Figure II.9 : Schéma du container en carbone.

ii) <u>Le four</u>

Le four (voir figure II.10) est un cylindre en carbone (point de fusion supérieur à 2300 K). A haute température, le carbone présente une bonne tenue mécanique, contrairement à d'autres matériaux métalliques qui perdent en rigidité à haute température. Le four étant traversé par un courant important et étant situé dans une zone de fort champ magnétique, la force exercée sur un four manquant de rigidité aurait pu conduire à sa déformation puis à un contact avec son environnement.

Pour l'élaboration de ce four, la résistivité élevée du carbone $(1,3.10^{-5} \Omega.m)$ permet l'utilisation de fours dont la section est relativement importante. Le four est alimenté par ses extrémités, le courant circule à travers le cylindre. La résistance totale du four est augmentée par les fentes réalisées sur le pourtour du cylindre.



Figure II.10 : Four en carbone de l'ECS TARGISOL pouvant accepter jusqu'à 2,5 kW de puissance.

La puissance du four est de 2,5 kW, ce qui permet d'atteindre une température de cible de 2100 K [Tar-01].

iii) Caractéristiques thermiques

Les simulations thermiques pour une cible en carbone réalisées avec chauffage ohmique et sans dépôt de puissance du faisceau primaire ont montré un gradient de température inférieur à 20 K.mm⁻¹ [Tar-01] lorsque la cible est portée à une température de 2000 K. Dans le cadre de l'expérience Targisol, le dépôt de puissance issu du faisceau primaire est seulement de 0,14 mW, à comparer à une puissance de four de 2,5 kW. On négligera donc la perturbation thermique causée par le faisceau primaire et l'influence du gradient thermique sur le processus de diffusion conformément à l'hypothèse du paragraphe II.3. Des mesures thermiques au niveau de la cible en fonction de la puissance du four ont été réalisées avant l'expérience sous faisceau [Tar-01].

II.4.b.Principe de production du faisceau radioactif incident sur cible

Durant l'expérience TARGISOL, un faisceau d'ions radioactifs d'³⁵Ar est directement implanté dans la cible que l'on désire étudier. Le principe de cette méthode est décrit en détail dans la thèse de N. Lescene [Lec-97-01]. Le faisceau d'ions radioactifs incident a été produit à partir d'un faisceau d'ions stables d'³⁶Ar (95 MeV/A) par l'installation SISSI « Source d'Ions Secondaires à Supraconducteur Intense » placée entre le cyclotron CSS2 et le spectromètre ALPHA. SISSI est composée de deux solénoïdes utilisés comme lentilles de distance focale très courte (0,6 m). Les atomes radioactifs sont produits par fragmentation du projectile sur une cible de production placée entre deux solénoïdes supraconducteurs. La première lentille permet de focaliser le faisceau primaire sur la cible de production avec un diamètre de \pm 0,2 mm. Le second solénoïde permet de récupérer les fragments produits jusqu'à 80 mrad de divergence.

L'atome radioactif d'intérêt sort de la cible de production en compagnie d'autres noyaux. Il est donc indispensable de purifier le faisceau avant l'implantation dans la cible. Cette purification est réalisée par le spectromètre ALPHA et un dégradeur placé entre les deux dipôles de ce spectromètre dans la zone dispersive en énergie. La première partie du spectromètre permet de choisir la valeur de la rigidité magnétique ($B\rho$) pour sélectionner l'élément d'intérêt selon le rapport charge sur masse. Le ralentissement des ions dans le dégradeur achromatique introduit une dispersion en énergie selon le Z des éléments. L'ensemble constitué par la première partie du spectromètre, le dégradeur achromatique et la deuxième partie du spectromètre, aboutit quasiment à une sélection en isotone de la région choisie. Les autres noyaux sont perdus dans les différentes fentes du spectromètre.

Des détecteurs escamotables situés dans la boite diagnostique de la ligne haute énergie du séparateur SIRa comptabilisent et identifient les particules juste avant l'implantation dans la cible étudiée.

Une identification en énergie et temps de vol des différents noyaux est réalisée avec une détection silicium escamotable. Ce silicium permet, grâce à une haute résolution, une identification des noyaux produits par SISSI avec et sans dégradeur. Ce détecteur n'est utilisable que pour un taux incident réduit de 10⁴ pps. Le scintillateur plastique est ensuite utilisé pour comptabiliser les noyaux d'³⁵Ar produits avec dégradeur. Ce scintillateur présente l'inconvénient de ne pas avoir une bonne résolution en énergie, il est donc utilisable uniquement lorsque quelques noyaux sont sélectionnés avec dégradeur. Il présente l'avantage

de pouvoir compter des noyaux produits jusqu'à un taux de 10^6 pps. Un tel taux est possible en insérant des réducteurs d'intensité pour le faisceau primaire. Lors des expériences de diffusion, ces réducteurs d'intensité sont supprimés pour utiliser la plus haute intensité possible des faisceaux radioactifs. Pour la détermination du nombre de noyaux implantés, l'étalonnage des réducteurs en intensité et l'alignement du collimateur du plastique par rapport à la cible sont importants.

II.4.c. Conditions expérimentales

Les conditions du faisceau d'³⁵Ar durant l'expérience TARGISOL sont résumées dans le tableau II.3.

Faisceau primaire	Energie	Cible primaire	Brho1 (Tm)	Dégrad eur	Fente image	Brho2 (Tm)	Emittance Alpha	Fente sortie Alpha
³⁶ Ar	95MeV/A	Carbone 579 mg/cm ²	2,0364	Al 250 μm	+/- 20 mm	1,91	5.5 pi.mm.mra d	+/-5 mm
Energie ³⁵ Ar	Parcours C (1,8 mg/cm ²)	Dispersion d'implant ation	Taux mesuré total sur plastique	Collima -teur D2	Taux sur pla	d' ³⁵ Ar astique		
43MeV/ A	1345 µm	60 µm	10 ⁵ Hz	Ф=10 mm	7,5.10 (pour 1 40 +/-1	0 ⁴ pps 36Ar= 0 nAe)		

Tableau II.3 : Conditions du faisceau d'³⁵Ar durant l'expérience TARGISOL.

Les conditions de faisceau durant l'expérience TARGISOL, montrent que les noyaux sont implantés dans la cible, de façon homogène, uniquement sur une zone d'épaisseur de 60 μ m dans la cible.

Le modèle théorique de la diffusion sur lequel repose l'analyse des temps de relâchement de la cible est valable pour une distribution homogène des noyaux implantés dans toute l'épaisseur de la cible. Pour le moment, nous n'avons pas à notre disposition un modèle théorique prenant en compte une inhomogénéité dans la cible. Par la suite, l'analyse des temps de relâchement des différentes cibles est réalisée tout en ayant conscience de cet écart par rapport à la théorie qui conduira immanquablement à une sous estimation des coefficients de diffusion.

Les efficacités de diffusion des cibles présentées dans ce chapitre ont été mesurées en régime continu et en régime dynamique. Le tableau II.4 présente les caractéristiques géométriques des cibles en carbone étudiées à partir des mesures en régime continu et en régime dynamique. La forme des cibles en carbone a été choisie pour répondre aux hypothèses du modèle (cible en feuille, géométrie simple). Le tableau II.5 montre dans quelles conditions expérimentales ces mesures ont été effectuées.

Fournisseurs	Taille des grains (μm)	Nombre de lamelles X épaisseur (mm)
РОСО	1	1 × 3mm 1 × 0.5mm
Carbone Lorraine	4	4 × 0.5mm
Carbone Lorraine	16	4 × 0.5mm

Tableau II.4 : Cibles en carbone 1µm, 4µm et 16µm étudiées par la méthode en régime continu et par la méthode en régime dynamique.

Cibles	Température (°C)	Régime	I (µAe)	Efficacité d'ionisation Mono 1000	Efficacité de transport
	900	Continu	0,8	30 %	25 %
1	1200	Dynamique/Continu	0,89/0,90	30 %	25 %
īμm	1500	Dynamique/Continu	1,05/0,9	30 %	25 %
	1800	Dynamique/Continu	1,45/0,9	30 %	25 %
	900	Continu	1,3	56 %	42 %
4µm	1200	Dynamique/Continu	1,38/1,3	56 %	42 %
	1800	Dynamique/Continu	2,33/1,3	56 %	42 %
	900	Continu	1,5	88 %	40 %
16um	1200	Continu	1,4	88 %	40 %
τομπ	1500	Continu	1,2	88 %	40 %
	1800	Dynamique/Continu	1,3/1,2	88 %	40 %

Tableau II.5 : Conditions expérimentales durant les mesures en régime continu et en régime dynamique : température de la cible, intensité du faisceau primaire, efficacité d'ionisation de la source Mono 1000 et efficacité de transport jusqu'au point de détection.

II.4.d.Acquisition des données expérimentales

L³⁵Ar, le ³⁴Cl et le ³³S sont implantés dans la cible. Après l'ensemble cible-source, le séparateur de masse permet de sélectionner uniquement l³⁵Ar. Le spectre de désintégration de l³⁵Ar présente une raie à 1219 keV avec un rapport d'embranchement égal à 1,35% ainsi que la raie 511keV avec un rapport d'embranchement de 200% correspondant à l'annihilation du positron dans la matière.

La mesure du nombre de noyaux transmis au point de détection, après diffusion dans de la cible et ionisation, est réalisée par un détecteur en germanium. En effet, l'³⁵Ar est identifié à partir de deux raies γ : 1219 keV et 511keV. La raie 511 keV provient de l'annihilation dans la matrice du β^+ . Cette raie γ est présente pour tous les émetteurs β^+ et donc aussi pour le polluant ³⁴Cl. Le ³⁴Cl est aussi produit et implanté dans la cible à étudier. Le ³⁴Cl peut certainement effuser jusqu'à la source ECR Mono 1000 et y être ionisé. Cependant, le réglage en Bp de la ligne basse énergie de SIRa sur la masse 35 et l'état de

charge 1⁺ ne permet pas de transmettre le ³⁴Cl. La mesure du nombre d'évènements permet de connaître le nombre d'³⁵Ar au point de détection.

Dans les conditions de mesure du temps de relâchement par la méthode en régime dynamique, on irradie la cible pendant un temps limité jusqu'à atteindre un équilibre entre le nombre de noyaux implantés et les différents processus (diffusion, effusion, ionisation et désintégration radioactive). Ce cycle d'irradiation est répété plusieurs fois afin d'obtenir une statistique suffisante.

Les courbes de relâchement et de collection sont obtenues en conditionnant l'information temps fournie par une horloge pendant la phase de collection et la phase de relâchement pour la raie 511 keV. Une coupure propre en temps est aussi réalisée pour que les données brutes de l'acquisition soient conditionnées par un nombre de cycles entiers.

Les taux de l'³⁵Ar en sortie de l'ensemble cible-source sont obtenus à partir de l'analyse de la raie à 1219 keV et de la raie à 511 keV. Le pas en temps durant l'acquisition était de 10 ms. Les données sont regroupées sur les spectres avec un canal en temps de 100 ms. Les autres conditions expérimentales sont données dans le paragraphe II.5.

II.5. Principe d'analyse des mesures

II.5.a. Expressions de référence pour l'analyse

Le faisceau d'ions radioactifs est implanté dans la cible en carbone. L'intensité du faisceau en fonction du temps est en forme de créneaux, 20 s d'implantation puis 30 s sans faisceau. L'évolution du courant d'ions est mesurée en sortie de la source en fonction du temps. Le temps d'implantation est appelé « phase de collection » et le temps durant lequel le faisceau est absent de la cible est appelé « phase de relâchement ». Pendant ces deux phases, les ions qui émergent de l'ECS sont collectés sur la bande d'un système (constitué d'un dérouleur de bande et d'un détecteur) qui permet d'identifier les noyaux en fonction de leur décroissance radioactive [Kan-99-01]. Pour que les équations que nous allons utiliser pour l'analyse correspondent aux conditions expérimentales, il est nécessaire de tenir compte de l'accumulation des noyaux radioactifs sur la bande, donc d'intégrer la réponse correspondant à un pulse sur la durée du créneau. Enfin, il est nécessaire de tenir compte du fait que le flux de particules mesuré au niveau du dérouleur est déterminé à partir de l'activité des atomes implantés et non par une mesure instantanée du courant électrique. Ce qui implique de prendre en compte la décroissance radioactive de l'élément diffusé. Ces remarques prises en compte, on obtient deux expressions :

- ✓ La première (II.26) qui décrit l'évolution de l'activité perçue par le système d'identification pendant la phase de collection en fonction des caractéristiques de la source (efficacité d'ionisation, temps de montée et de descente au sein du plasma source), du temps de diffusion dans la cible de production et des caractéristiques de l'ion radioactif étudié.
- ✓ La seconde (II.27) qui décrit l'évolution de l'activité perçue par le système d'identification pendant la phase de relâchement en fonction des mêmes paramètres physiques.

Phase de collection :

$$x_i(t)\Big|_{bande} = 8.I_0 \Delta_t \frac{\lambda \lambda_i \lambda_{ieff} \lambda_D}{\phi_+ - \phi_-} \sum_{n=0}^{\infty} \left(\chi_+^n - \chi_-^n\right)$$
(II.26)

Où :

$$\chi_{+}^{n} = \frac{1}{\phi_{+} + \lambda_{D}^{n} + \lambda} \left[\frac{1}{\phi_{+} + \lambda} \left\{ \frac{e^{\phi_{+}t} - 1}{\phi_{+}} + \frac{e^{-\lambda t} - 1}{\lambda} \right\} + \frac{1}{\lambda_{D}^{n}} \left\{ \frac{e^{-\lambda t} - 1}{\lambda} - \frac{e^{-\left(\lambda_{D}^{n} + \lambda\right)} - 1}{\lambda_{D}^{n} + \lambda} \right\} \right]$$
$$\chi_{-}^{n} = \frac{1}{\phi_{-} + \lambda_{D}^{n} + \lambda} \left[\frac{1}{\phi_{-} + \lambda} \left\{ \frac{e^{\phi_{-}t} - 1}{\phi_{-}} + \frac{e^{-\lambda t} - 1}{\lambda} \right\} + \frac{1}{\lambda_{D}^{n}} \left\{ \frac{e^{-\lambda t} - 1}{\lambda} - \frac{e^{-\left(\lambda_{D}^{n} + \lambda\right)} - 1}{\lambda_{D}^{n} + \lambda} \right\} \right]$$

Phase de relâchement :

$$x_i(t)\Big|_{bande} = 8.I_0 \Delta_t \frac{\lambda \lambda_i \lambda_{ieff} \lambda_D}{\phi_+ - \phi_-} \sum_{n=0}^{\infty} \left(\beta_+^n - \beta_-^n\right)$$
(II.27)

Où :

$$\beta_{+}^{n} = \frac{1}{\phi_{+} + \lambda_{D}^{n} + \lambda} \left[\frac{1}{\phi_{+} + \lambda} \left\{ \frac{e^{\phi_{+}t} \left(e^{\phi_{+}T} - 1 \right)}{\phi_{+}} + \frac{e^{-\lambda t} \left(e^{-\lambda T} - 1 \right)}{\lambda} \right\} + \frac{1}{\lambda_{D}^{n}} \left\{ \frac{e^{-\lambda t} \left(e^{-\lambda T} - 1 \right)}{\lambda} - \frac{e^{-\left(\lambda_{D}^{n} + \lambda\right)} \left(e^{-\left(\lambda_{D}^{n} + \lambda\right)^{T}} - 1 \right)}{\lambda_{D}^{n} + \lambda} \right\} \right]$$
$$\beta_{-}^{n} = \frac{1}{\phi_{-} + \lambda_{D}^{n} + \lambda} \left[\frac{1}{\phi_{-} + \lambda} \left\{ \frac{e^{\phi_{-}t} \left(e^{\phi_{-}T} - 1 \right)}{\phi_{-}} + \frac{e^{-\lambda t} \left(e^{-\lambda T} - 1 \right)}{\lambda} \right\} + \frac{1}{\lambda_{D}^{n}} \left\{ \frac{e^{-\lambda t} \left(e^{-\lambda T} - 1 \right)}{\lambda} - \frac{e^{-\left(\lambda_{D}^{n} + \lambda\right)} \left(e^{-\left(\lambda_{D}^{n} + \lambda\right)^{T}} - 1 \right)}{\lambda_{D}^{n} + \lambda} \right\} \right]$$

T est la durée du créneau d'implantation des ions dans la cible.

 $T_{1/2} = \ln 2/\lambda \text{ est la période radioactive.}$ $T_{montée} = \ln 2/(\phi_{+} - \phi_{-}) \text{ est le temps de montée de la réponse de la source.}$ $T_{descente} = \ln 2/\phi_{+} \text{ est le temps de descente de la réponse de la source.}$ $\lambda_{D}^{n} = \pi^{2} * (2n+1)^{2} * \lambda_{D} \text{ est le taux de relâchement d'ordre } n.$ $\lambda_{D} = \frac{D}{d^{2}} \text{ est le taux de diffusion d'ordre } 0, \text{ où } D \text{ est le coefficient de diffusion des atomes}$ dans la cible (cm².s⁻¹) et *d* est l'épaisseur des lamelles de la cible de diffusion. $I_{0} \text{ est le nombre d'atomes implantés par seconde dans la cible de diffusion.}$ $\Delta_{t} \text{ est le pas de temps de l'acquisition.}$ Le système de mesure implique le cumul d'un nombre de désintégrations sur un intervalle de temps Δ_t donné (valeur canal du spectre). Les relations utilisées (voir expressions II.26 et II.27) pour le fit des phases de collection et des phases de relâchement sont données par le rapport dN/dt multiplié par Δ_t . Dans notre cas, la valeur de Δ_t était égale à 100 ms.

Il est important de préciser que, de manière générale, cette façon de procéder n'est valable que si Δ_t est significativement inférieur au temps de réponse global du système (principalement gouverné par le relâchement de la cible dans notre cas) et à la durée de vie. Cette condition est respectée dans notre cas puisque l'intervalle en temps est de 100 ms, que le temps de réponse global mesuré est de l'ordre de la seconde et que la durée de vie de l'³⁵Ar est de 1,775 s. Pour une durée de vie plus courte, le dispositif permettrait d'utilser un canal en temps de seulement lms.

II.5.b.Fit des courbes de relâchement

Les conditions expérimentales (température de la cible, intensité du faisceau primaire nombre de cycles d'irradiation et nombre de noyaux d'³⁵Ar par seconde implantés dans la cible) pour lesquelles les mesures en régime dynamique ont été réalisées, sont présentées dans le tableau II.6.

Cibles	Température (°C)	I (μAe) pendant la phase de collection	Nombre de cycles d'irradiation	³⁵ Ar (pps) Pour I*Nb cycles
	1200	0,89	21	$2,3.10^7$
1µm	1500	1,05	29	3,8.10 ⁷
	1800	1,45	24	4,6.10 ⁷
1	1200	1,38	42	7,6.10 ⁷
4μm	1800	2,33	29	8,7.10 ⁷
16µm	1800	1,3	47	$7,5.10^{7}$

Tableau II.6 : Conditions expérimentales pendant les mesures en régime dynamique : températures des cibles en carbone, intensité faisceau primaire d^{,36}Ar, nombre de cycles d'irradiation de la cible et nombre de noyaux d^{,35}Ar implantés par seconde.

Les paragraphes suivants concerneront uniquement le traitement des données pour la cible carbone de 1µm et pour une température de 1500°C. Les traitements des données pour les autres cibles en carbone sont présentés dans l'annexe rattachée à ce chapitre.

i) Correction des courbes de relâchement dû au temps mort

Pour chaque γ détecté à partir d'un détecteur germanium, son énergie et son instant de détection sont enregistrés événement par événement.

Avant de réaliser le fit des temps de collection et des temps de montée, les spectres des phases de relâchement et des phases de collection sont corrigés du temps mort.

Pour cela, un générateur de pulses à fréquence fixe est relié au préamplificateur du détecteur germanium. Les pulses correspondants apparaissent sous forme d'un pic dans le spectre

d'énergie des γ . En l'absence de temps mort, le spectre en temps correspondant à ce pic est plat. Si le nombre d'événements perçus par l'acquisition varie au cours du temps, le spectre de temps mort varie en fonction du temps. Dans notre cas, il peut être ajusté à partir des expressions suivantes :

Pendant la phase de collection ($0s \le t \le 20s$) : le taux d'acceptation (inverse du temps mort) correspond à :

$$Tauxacceptation = \frac{A}{A+B} + \frac{B}{A+B} \exp(Ct)$$
(II.28)

Pendant la phase de relâchement $(20s \le t \le 50s)$:

$$Tauxacceptation = \frac{A}{A+B} + \frac{B}{A+B} \left(1 - \exp\left(-D\left(t - 20000\right)\right)\right)$$
(II.29)

Les valeurs des constantes A, B, C et D sont déterminées par le fit réalisé sur le spectre (voir figure II.11) en temps associé au générateur d'impulsion, conditionné par un nombre de cycles complets.



Figure II.11 : Fit du spectre du générateur d'impulsions correspondant à l'acquisition des phases de collection et de relâchement durant l'étude de la cible en carbone de 1µm et pour une température de 1500°C.

Les valeurs des constantes A, B, C et D correspondant au spectre du générateur d'impulsion durant l'acquisition du temps de réponse pour une cible carbone $1\mu m$ sont respectivement égales à 105, 31, 2,8.10⁻⁴s⁻¹ et 2,2.10⁻⁴s⁻¹.

Les fonctions de fit du taux d'acceptation ont des valeurs d'exponentielles différentes (notées C et D). Par la suite, la variation de cette valeur permettra d'estimer l'erreur induite sur la détermination du temps de diffusion.

ii) <u>Programmation des fonctions de fit pour la réponse en temps</u> <u>durant la collection et durant le temps de relâchement</u>

La fonction, programmée en utilisant le programme ROOT [Roo-01], est exprimée en fonction de la durée de vie du noyau, de l'efficacité d'ionisation ε_{ai} pour l'³⁵Ar, des paramètres source ϕ_+ et ϕ_- et de la variable de diffusion λ_D .

Les expressions de la phase de collection et de relâchement peuvent s'écrire de la façon suivante :

$$x_{i}(t)\Big|_{bande} = 8I_{0}\Delta_{t} \frac{\lambda\lambda_{i}\lambda_{ieff}\lambda_{D}}{\phi_{+}-\phi_{-}} \sum_{0}^{\infty} f(\lambda_{D}^{n},\lambda,\phi_{+},\phi_{-},t)$$
(II.30)

En faisant l'hypothèse d'un bruit de fond constant, on obtient donc :

$$x_{i}(t)\Big|_{bande} = C_{fond} + 8. \frac{\ln 2\phi_{+}\phi_{-}\varepsilon_{ai}}{T_{1/2}(\phi_{+} - \phi_{-})} I_{0}\Delta_{t}\lambda_{D}. \sum_{0}^{\infty} f(\lambda_{D}^{n}, \lambda, \phi_{+}, \phi_{-}, t)$$
(II.31)

L'intérêt de cette expression est de faire apparaître les paramètres constants tels que ϕ_+ , ϕ_- et l'efficacité d'ionisation afin de mettre en évidence que le fit n'a plus que trois degrés de liberté : C_{fond} , I_0 et λ_D .

Le temps de collection et le temps de relâchement sont traités de manière indépendante.

Après traitement des données corrigées du temps mort, le programme de fit précise les valeurs de λ_D et de I_0 correspondant à une valeur minimum du Khi².

L'estimation des erreurs sur la valeur de λ_D est obtenue à partir de la variation de l'efficacité d'ionisation et des constantes du taux d'acceptation du générateur.

L'incertitude sur la valeur du coefficient de diffusion est aussi déterminée à partir des écarts mesurés entre la phase de collection et la phase de relâchement.

L'erreur sur λ_D donnée par le résultat du fit (de l'ordre de 1 %) des phases de collection et des phases de relâchement, liée à la dispersion des valeurs expérimentales autour de la courbe théorique, sont négligées dans l'estimation de l'incertitude sur la valeur du coefficient de diffusion.

iii) <u>Variation du taux de diffusion</u> λ_D en fonction de n

Le taux de diffusion λ_D extrait du fit dépend du nombre *n* de termes pris en considération dans l'équation II.31. Etudier la variation de λ_D en fonction de *n* nous permet d'estimer l'erreur systématique due à l'analyse des données expérimentales avec un nombre *n* limité (voir figure II.12).



Figure II.12 : Variation de λ_D en fonction de n durant l'analyse des données concernant la cible en carbone de $1\mu m$ à une température de 1500°C.

On remarque que pour *n* supérieur à 15, la valeur de λ_D est proche de la saturation et que l'erreur sur la valeur du coefficient de diffusion reste faible (inférieure à 2% d'erreur) si l'on néglige les exponentielles d'ordre *n* supérieures.

De façon à limiter le temps de calcul d'un facteur 4, le nombre de termes a été limité à 15 et l'erreur systématique due au traitement des données pour n égal à 15 n'apparaît pas.

iv) <u>Détermination des valeurs de</u> ϕ_+ et de ϕ_- en tenant compte de <u>la période radioactive de l'³⁵Ar (T1/2 égal 1,775 s)</u>

La détermination des valeurs ϕ_+ et ϕ_- pour l'⁴⁰Ar est obtenue avant l'expérience à partir de la méthode d'analyse de la réponse en temps de la source Mono1000 décrite au paragraphe II.3 suite à l'injection d'un pulse calibré d'⁴⁰Ar dans la source d'ions. Les efficacités d'ionisation en régime permanent ont été mesurées durant l'expérience pour l'⁴⁰Ar. La figure II.13 présente les valeurs des efficacités d'ionisation correspondent aux efficacités d'ionisation mesurées à différents instants de l'expérience TARGISOL. Les points correspondent aux heures des mesures reportées dans ce chapitre. La grande dispersion correspond aux réglages au court du temps de la source Mono1000, suite au dégazage du dispositif TARGISOL.



Figure II.13 : Efficacités d'ionisation en régime permanent mesurées pour $l^{40}Ar$ durant l'expérience Targisol. Les points indiquent l'heure des mesures dynamiques pour $l^{35}Ar$.

Les valeurs de ϕ_+ et de ϕ_- sont calculées pour l'³⁵Ar en tenant compte de la période radioactive (voir tableau II.7) à partir de l'équation II.19. λ_{eff} est corrigé de la différence de masse

Efficacité d'ionisation pour l' ⁴⁰ Ar en régime permanent	T1/2 (s) (³⁵ Ar)	$\phi_{+} s^{-1}$ (³⁵ Ar)	$\phi_{-} s^{-1}$ (³⁵ Ar)
0,30	1,8	-3,26	-28
0,56	1,8	-4,8	-44,4
0,65	1,8	-6,22	-57,6
0,88	1,8	-18,9	-184

Tableau II.7 : ϕ_+ *et* ϕ_- *en fonction de l'efficacité d'ionisation.*

v) Influence du taux d'acceptation sur la détermination du temps de relâchement de la cible pour la phase de collection et la phase de relâchement

Le temps de relâchement et le temps de collection sont analysés séparément afin de pouvoir comparer les valeurs de λ_D et de I_0 propres aux deux phases. Cette analyse est effectuée pour la cible carbone 1µm à une température de 1500°C. Dans ce cas, les paramètres correspondant aux efficacités d'ionisation en ⁴⁰Ar et les temps de réponse de la source ϕ_+ et ϕ_- sont respectivement 30 %, -3,26 s⁻¹ et -28 s⁻¹.

L'analyse de la réponse en temps de l'³⁵Ar est réalisée pour différents paramètres du taux d'acceptation présentés au tableau II.8. La détermination de ces paramètres est présentée dans le paragraphe II.5.b.i

Paramètres « taux d'acceptation »		Paramètres taux d'acceptation			
		В	С	D	
Valeur du fit du taux	105	31	2,80.10 ⁻⁴	2,20.10 ⁻⁴	
d'acceptation			Cfit		
Valeur minimum	105	31	2,80	.10 ⁻⁴	
Valeur moyenne	105	31	2,50	.10 ⁻⁴	
Valeur maximum	105	31	2,20	.10 ⁻⁴	

Tableau II.8 : Paramètres d'entrée pour déterminer l'influence du taux d'acceptation sur le temps de relâchement de la cible.

Les différentes valeurs de I_o issues de l'analyse des phases de collection et des phases de relâchement sont corrigées de l'efficacité du détecteur en germanium, du rapport d'embranchement et de l'efficacité de transport (voir tableau II.9).

Efficacité	Taux	Efficacité
Germanium	embranchement	transport
0,00617	1,98	0,253

Tableau II.9 : Efficacité du détecteur en germanium, rapport d'embranchement et efficacité de transport durant l'étude de la cible en carbone de 1µm à une température de 1500°C.

Paramètres « taux d'acceptation»	$\lambda_D(s^{-1})$	khi ² réduit	I_{θ} (pps)
Valeur minimum	4,24.10 ⁻²	1,26	2,6.10 ⁷
Valeur moyenne	3,8910 ⁻²	1,28	2,7.10 ⁷
Valeur maximum	3,5410 ⁻²	1,32	2,8.10 ⁷

Tableau II.10 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30%.

Le tableau II.10 présente les valeurs de λ_D , Khi² réduit et le flux d'³⁵Ar implantés dans la cible, déduites du fit pour différentes valeurs des paramètres du taux d'acceptation du générateur d'impulsion durant la phase de collection.

$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	$< I_0 > (pps)$	$\Delta I_0 / < I_0 >$
0,039	9%	2 , 7 .10 ⁷	3%

*Tableau II.11 : Valeur moyenne du taux de diffusion et du flux d'*³⁵*Ar et erreur relative due au taux d'acceptation.*

L'erreur due à l'incertitude sur le taux d'acceptation est de 9% sur la détermination de λ_D et de 3% sur la détermination de I_0 comme indiqué dans le tableau II.11.

Paramètres « taux d'acceptation »	$\lambda_D(\mathbf{s}^{\cdot 1})$	khi ² réduit	Io
Valeur minimum	2,77.10 ⁻²	1,14	2,98.10 ⁷
Valeur moyenne	2,76.10 ⁻²	1,13	3,01.10 ⁷
Valeur maximum	2,71.10 ⁻²	1,13	3,05.10 ⁷

Tableau II.12 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30%.

Le tableau II.12 présente les valeurs de λ_D , Khi² réduit et le flux d'³⁵Ar implantés dans la cible déduites du fit pour différentes valeurs des paramètres du taux d'acceptation du générateur d'impulsion durant la phase de relâchement.

Le tableau II.13 montre les erreurs sur λ_D et I_0 dues à l'erreur sur le taux d'acceptation durant la phase de relâchement.

$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	$< I_0 > (pps)$	$\Delta I_0 / < I_0 >$
0,027	1%	3.10 ⁷	1,2%

 Tableau II.13 : Valeur moyenne du taux de diffusion et du flux d'³⁵Ar et erreur relative due au taux d'acceptation.

Selon ces valeurs, la phase de relâchement présente moins d'écart à la courbe théorique que la phase de collection. L'écart entre les deux valeurs de λ_D pour la phase de collection et la phase de relâchement est égal à 21%. L'écart entre les deux valeurs de I_0 est de 14% (voir tableau II.14).

Phase	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	< I ₀ > (pps)	$\Delta I_0 / < I_0 >$
Collection	0,039	9%	2 , 7 .10 ⁷	3%
Relâchement	0,027	1%	3.10 ⁷	1,2%
Valeur moyenne retenue	0,033	21%	2,8 .10 ⁷	14%

Tableau II.14 : Ecart entre les valeurs de λ_D et de I_0 pour les phases de collection et de relâchement.

vi) Influence de l'efficacité d'ionisation sur la détermination du temps de relâchement de la cible

Pour obtenir les valeurs précédentes, l'efficacité d'effusion-ionisation a été prise égale aux valeurs reportées figure II.13. On a supposé que les conditions de fonctionnement de la source plasma étaient constantes entre les phases de collection et de relâchement, c'est-à-dire que la présence du faisceau sur la cible et au travers du plasma de la source ECR n'influençait pas son fonctionnement. Afin d'estimer quelle serait l'influence d'une détermination erronée de l'efficacité d'ionisation sur l'analyse des phases de collection et des phases de relâchement, l'analyse a été menée une seconde fois avec des valeurs d'efficacité d'ionisation volontairement très différentes des valeurs précédentes mais toujours cohérentes avec les valeurs d'efficacités généralement observées avec cette source ECR (autour de 50 % pour l'argon). Les paramètres λ_0 , λ_i et λ_{ieff} propres à la source ECR ont été recalculés. Puisque pour l'exemple traité la valeur de l'efficacité d'ionisation était de 30 %, une valeur arbitraire de 65 % a été choisie. Les figures II.14 et II.15 montrent le résultat de l'analyse des phases de collection et des phases de relâchement pour cette nouvelle valeur de l'efficacité d'ionisation.



Figure II.14 : Fit de la phase de collection pour une cible en carbone de $1\mu m$, une température de 1500°C et une efficacité d'ionisation de 65%.



Figure II.15 : Fit de la phase de relâchement pour une cible en carbone de $1\mu m$, une température de 1500°C et une efficacité d'ionisation de 65%.

Efficacité d'ionisation	$\phi_+(s^{-1})$ (³⁵ Ar)	$\phi_{-}(s^{-1})$ (³⁵ Ar)	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	$< I_0 > (pps)$	$\Delta I_0 /\! < I_0 >$
30%	-3,26	-28	0,033	21%	2,8.10 ⁷	14%
65%	-6,22	-57,6	0,021	20%	1,6.10 ⁷	24%

Tableau II.15 : Comparaison entre les valeurs mesurées de λ_D et de I_0 pour une efficacité d'ionisation de 30% et de 65%.

D'après le tableau II.15, une erreur systématique de 50 % sur la détermination de l'efficacité d'ionisation implique une erreur de 20 % sur la détermination de λ_D .

Pour voir l'influence du temps de réponse de la source, sur la détermination du temps de relâchement, les courbes des phases de collection et de relâchement ont également été analysées pour une efficacité d'ionisation de 100 % (correspond à un temps de réponse de la source négligeable). Les résultats présentés dans le tableau II.16 montrent que les valeurs de λ_D obtenues pendant les phases de montée et de descente sont alors totalement différentes. Le fit de la phase de collection est détérioré et donne une valeur de λ_D très éloignée de la valeur attendue. La prise en compte des temps de montée et de descente de la source est donc importante. La phase de collection paraît plus sensible au temps de réponse de la source que la phase de relâchement.

Phases	λ_D	Khi ²	I ₀	
Montée	5,95.10 ⁻⁴	1,5	7,4.10 ⁸	
Descente	1,88.10 ⁻²	1,17	1,2.10 ⁷	

Tableau II.16 : Analyse des phases de montée et de descente pour une cible en carbone de 1µm à une température de 1500°C et pour une efficacité d'ionisation de 100%.

vii) Comparaison du flux I₀ déduit du plastique et des fits

Trois mesures indépendantes sur le plastique permettent de déterminer un taux d'³⁵Ar de 1840 pps pour un faisceau primaire d'³⁶Ar de 1 nAe. L'erreur associée à cette mesure est estimée à 34 %. Cette erreur prend en compte la dispersion des différentes mesures plastiques (24 %) et l'erreur sur la mesure du courant du faisceau primaire (10 %).

On a cependant retenu la valeur correspondante au run plastique le plus proche de la mesure du temps de relâchement. Le tableau II.17 présente le nombre d'³⁵Ar implantés dans la cible déduit de l'analyse en pulsé pour une efficacité d'ionisation de 30 % et de la mesure de la détection par scintillateur plastique.

L'erreur sur la détermination de I_0 par la méthode du temps de réponse de l'ensemble cible source ne prend pas en compte les erreurs sur l'efficacité du détecteur en germanium (environ 5%) et sur l'efficacité de transport.

Méthode	< <i>I</i> ₀ >	$\Delta I_{\theta} / < I_{\theta} >$
Dynamique (fit)	2 ,8.10 ⁷	14%
Continu (plastique)	3,8.10 ⁷	34%

Tableau II.17 : Comparaison des valeurs du nombre $d^{,35}Ar$ implantés dans la cible à t=0s déduites à partir de la méthode en régime dynamique et à partir de la détection plastique.

La valeur du nombre de noyaux implantés dans la cible, issue du fit des phases de collection et des phases de relâchement, est inférieure à la valeur du nombre de noyaux implantés dans la cible déduite à partir du run plastique.

Ces deux valeurs sont compatibles en tenant compte des barres d'erreur. On verra dans le paragraphe II.6.b que dans d'autres conditions expérimentales (cibles et/ou températures différentes), les deux valeurs de I_0 ne sont pas compatibles.

II.6. Résultats de l'analyse

II.6.a. Coefficients de diffusion

L'ensemble des résultats obtenus pour l'analyse des relâchements des différentes cibles de carbone graphite est présenté en fonction de la température dans le tableau II.18.

Cibles	Température de la cible	E _{ai}	$<\lambda_D>$ (s ⁻¹)	χ²	$\frac{\Delta \lambda_D}{<\lambda_D>}$	<i<sub>0> (pps)</i<sub>	$\frac{\Delta I_0}{< I_0 >}$	$\frac{D}{(\mathrm{cm}^2.\mathrm{s}^{-1})}$
	1200%	30%	1,5.10-4	1,04	48%	1,7.10 ⁸	41%	1,4.10 ⁻⁵
1	1200°C	65%	5,2.10 ⁻⁵	1,06	15%	$1,4.10^8$	11%	$4,7.10^{-6}$
1µm Engissour	1500%	30%	0,033	1,13	21%	2,8.10 ⁷	14%	3.10 ⁻³
de 3mm	1500°C	65%	0,021	1,12	20%	1,6.10 ⁷	24%	1,9.10 ⁻³
ue Sinni	1800°C	30%	0,1	1,3	40%	2,9.10 ⁷	4%	9.10⁻³
		65%	0,069	1,21	21%	$1,5.10^7$	5%	6,2.10 ⁻³
120000	120090	56%	1,5.10 ⁻⁵	1,28	25%	8,5.10 ⁷	14%	3,8.10⁻⁸
4µm Engissour	m 1200°C	30%	2,9.10 ⁻⁵	1,28	35%	8,5.10 ⁷	14%	7,3.10 ⁻⁸
de 0,5mm	1800°C	56%	3,8.10 ⁻⁴	1,1	26%	9,8.10 ⁷	13%	9,5.10 ⁻⁷
		30%	1,1.10 ⁻³	1,11	27%	9,8.10 ⁷	13%	2,8.10-7
16µm		88%	0,018	1,01	44%	4,4.10 ⁶	14%	4,5.10 ⁻⁵
Epaisseur de 0,5mm	1800°C	30%	0,039	1.23	25%	9.10 ⁶	9%	9,8.10 ⁻⁵

Tableau II.18 : Valeurs de λ_D , N_0 et D pour les cibles en carbone de 1µm, 4µm et 16µm pour des températures de 1200°C, 1500°C et 1800°C. Les lignes en gras correspondent aux valeurs mesurées de l'efficacité d'ionisation.

Pour les cibles 4 et 16 μ m, l'efficacité d'ionisation a également été prise égale à 30 %, afin d'estimer (comme dans le cas de la cible 1 μ m), l'influence d'une détermination « erronée » de l'efficacité d'ionisation (voir figure II.13).

Les erreurs données dans le tableau II.18 résultent de l'écart maximum entre valeurs de λ_D et I_0 obtenues pour les phases de collection et de relâchement, et de l'écart maximum entre valeurs de λ_D et I_0 pour les valeurs extrêmes de correction du taux d'acceptation.

Les valeurs des coefficients de diffusion macroscopiques extraites de cette analyse paraissent très importantes au regard de coefficients de diffusion extraits en considérant que la diffusion

n'intervient que dans les grains (microscopique). Cet écart vient du modèle utilisé pour déterminer le coefficient de diffusion. On détermine par la mesure un taux de diffusion λ_D qui, multiplié par le carré de l'épaisseur de la cible, donne le coefficient de diffusion. Le coefficient de diffusion est évidemment beaucoup plus important si le taux de diffusion mesuré est multiplié par le carré de 0,5 mm que par le carré de 1 µm (par exemple).

Le choix de multiplier par l'épaisseur de la feuille cible plutôt que par la taille du grain est directement lié au choix de l'approche du processus de diffusion. Multiplier par l'épaisseur (au carré) de la feuille cible implique que l'on considère la diffusion comme un processus macroscopique qui englobe l'ensemble des mécanismes microscopiques qui amène les atomes à sortir de la feuille cible. Alors que multiplier le taux de diffusion par la taille du grain (au carré) suppose que la diffusion est un processus qui n'intervient que dans le grain (c.f. paragraphe II.2.a).

II.6.b.Comparaison en régime continu et en régime dynamique

Les efficacités de diffusion déduites des valeurs du tableau II.18 (mesures en régime dynamique) et des mesures en régime continu ont été reportées sur la figure II.16 en fonction de la température de la cible 1 µm pour une épaisseur de cible de 3 mm.



Figure II.16 : Efficacité de diffusion dans la cible de carbone graphite 1 μ m d'une épaisseur de 3 mm en fonction de la température obtenue en régime dynamique et en régime continu.

L'erreur commise sur l'efficacité a été calculée pour chaque point à partir de la valeur des erreurs estimées sur λ_D et en utilisant l'expression II.8. En régime continu et en régime dynamique cette erreur est estimée en prenant une erreur de 50 % sur l'efficacité d'ionisation. En régime continu, on tient également compte de l'erreur sur l'intensité du faisceau primaire

stable incident sur la cible de SISSI (10 %), de l'erreur sur l'efficacité de transport (10 %) et de l'erreur sur la détection (10 %) et en régime dynamique de l'erreur issue de l'analyse des données (voir tableau II.18). Ces valeurs sont en général estimées durant l'expérience.

Dans les deux cas, on observe comme attendu une augmentation de l'efficacité de diffusion avec la température, jusqu'à atteindre pour la cible 1 μ m une valeur proche de 100 % à 1500°C. Cependant, on note à une température de 1200°C, un écart d'un facteur 4 sur l'efficacité de diffusion entre les deux méthodes.

En effet, le tableau II.19 montre pour la cible 1 μ m à une température de 1200°C, mais également pour la cible 16 μ m à une température de 1800°C une incohérence entre les valeurs de I_0 mesurées en régime continu et en régime dynamique.

Cibles	Température (°C)	< <i>I</i> ₀ > Régime continu	< <i>I</i> ₀ > Régime dynamique
	1200	$2,3.10^7(0,8)$	1,7.10 ⁸ (0,7)
1µm	1500	$3,8.10^7$ (1,3)	$2,8.10^{7}(0,4)$
	1800	$4,6.10^7(1,6)$	$2,9.10^{7}(0,1)$
4µm	1200	$7,6.10^7(2,6)$	8,5.10 ⁷ (1,2)
	1800	$8,7.10^7(3,0)$	9,8.10 ⁷ (1,3)
16µm	1800	7,5.10 ⁷ (2,6)	4,4.10 ⁶ (0,6)

Tableau II.19 : Comparaison des valeurs de I_0 mesurées en régime continu et en régimedynamique.

La comparaison des efficacités de diffusion entre les deux méthodes pour la cible 4 μ m en fonction de la température est montrée sur la figure II.17.



Figure II.17 : Efficacité de diffusion en fonction de la température pour les cibles en carbone de 4µm : Comparaison entre les efficacités de diffusion obtenues en régime continu et en régime dynamique.

Les efficacités de diffusion mesurées en régime continu et en régime dynamique sont cohérentes entre elles. Le temps de relâchement pour la cible 16 µm en régime dynamique a été mesuré à une température de 1800°C. L'efficacité résultante (43 %) est incohérente avec celle mesurée en régime continu soit 14 %. Ces incohérences semblent reliées à la détermination de I_0 implantés dans la cible entre le régime dynamique et le régime continu (voir tableau II.19). Cependant, il ne faut pas oublier que dans la formule II.31, le produit $I_0 \lambda_D$ intervient et qu'une mauvaise détermination de λ_D implique une mauvaise détermination de I_0 . Une mauvaise détermination de λ_D peut être expliquée par une statistique insuffisante des données expérimentales. En effet, on observe que la statistique des données expérimentales en régime dynamique pour la cible 1 µm à une température de 1200°C et pour la cible 16 µm à une température de 1800°C est en moyenne deux fois moins importante que pour les autres mesures. La diffusion plus lente à basse température et/ou la taille de grains plus importante conduit à un nombre de noyaux relâchés moins important.

II.6.c. Comparaison avec les résultats antérieurs

La cible 1 μ m est constituée d'une lamelle de 3 mm d'épaisseur, alors que les autres cibles en carbone (4 μ m et 16 μ m) sont constituées de lamelles de 0,5 mm. Il est donc nécessaire de corriger l'efficacité de diffusion pour pouvoir la comparer aux efficacités des autres cibles. Au paragraphe II.2.a, nous avons vu que la relation utilisée pour calculer la valeur de l'efficacité de diffusion des atomes en dehors d'une feuille était égale à :

$$\varepsilon_{diffusion} = 2\sqrt{\frac{\lambda_D}{\lambda}} th\left(\frac{1}{2}\sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_D}}\right)$$
 (II.32)

Le taux de diffusion λ_D est lié au coefficient de diffusion D et à l'épaisseur de la cible d par la relation $\lambda_D = D/d^2$. Pour connaître l'efficacité de diffusion qui aurait été obtenue avec une feuille de 0,5 mm plutôt qu'avec une feuille de 3 mm, nous avons utilisé le rapport suivant :

$$\varepsilon_{diff}(0,5mm) = \varepsilon_{diff}(3mm) \cdot \frac{3}{0,5} \frac{\tanh\left(\frac{1}{2}\frac{0,5}{3}\sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_{D3}}}\right)}{\tanh\left(\frac{1}{2}\sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_{D3}}}\right)}$$
(II.33)

Il est donc possible de comparer l'efficacité de diffusion de la cible 1 μ m en carbone mesurée à partir de l'expérience TARGISOL avec les données issues des thèses précédentes mesurées en régime continu. Les données expérimentales de la cible 1 μ m d'une épaisseur de 0,5 mm sont issues de la référence [Pel-01-01]. La courbe théorique issue de la référence [Ma-98-01] représente l'extrapolation de l'efficacité de diffusion du carbone 1 μ m à partir des coefficients d'Arrhenius du carbone 4 et 16 μ m (E_a égal à 2,38 eV et logD₀ égal à -3,6 cm².s⁻¹) et à partir d'une approche microscopique (cf expression II.10). La comparaison des efficacités de diffusion pour la cible 1 μ m en fonction de la température est montrée sur la figure II.18.



Figure II.18 : Efficacité de diffusion en fonction de la température pour les cibles en carbone de 1 µm : Comparaison entre les efficacités obtenues à partir de TARGISOL et les efficacités obtenues dans les références [Ma-98-01] et [Pel-01-01].

La distribution en température au niveau de la cible TARGISOL est homogène. Cette condition se rapproche donc de celle de l'expérience menée durant la thèse de L. Maunoury [Ma-98-01].

Au contraire durant la thèse de F. Pellemoine [Pel-01-01], la cible était chauffée par l'axe ce qui induit un gradient de température au niveau de la cible. Les barres d'erreurs indiquées prennent en compte ce gradient de température.

Les conditions de température pourraient expliquer la différence pour une cible carbone de 1 μ m entre la variation de l'efficacité de diffusion mesurée en fonction de la température (issue de la référence [Pel-01-01]) et la courbe extrapolée à partir des coefficients expérimentaux D_o et E_a).

L'efficacité de diffusion obtenue à partir de l'approche macroscopique utilisée pour l'analyse des données TARGISOL, est relativement cohérente avec la courbe extrapolée pour la cible 1 μ m à partir des données 4 et 16 μ m. Elle n'est pas cohérente à basse température avec les données de F. Pellemoine.

La comparaison des efficacités de diffusion pour la cible 4 μ m en fonction de la température est montrée sur la figure II.19.



Figure II.19 : Efficacité de diffusion en fonction de la température pour les cibles en carbone de 4 µm : Comparaison entre les efficacités obtenues à partir de TARGISOL et les efficacités obtenues dans la référence [Ma-98-01].

Nous observons un écart maximum d'un facteur 7 entre les données issues du travail de L. Maunoury et les données issue de TARGISOL. Cet écart pourrait être expliqué par une dérive de l'intensité du faisceau primaire au cours de l'acquisition des données pour la cible 4 μ m. En effet, l'intensité du faisceau d'³⁵Ar implanté dans la cible n'a été mesurée qu'après la série de mesures d'efficacité et de mesures de relâchement 4 μ m. Cette mesure a montré une baisse importante de l'intensité du faisceau d'³⁵Ar par rapport à la dernière mesure run plastique effectuée pour la cible 1 μ m. Cela entraîne donc une erreur importante sur la normalisation des noyaux relâchés par la cible et par conséquent sur l'efficacité de diffusion. Une autre hypothèse serait l'inversion des cibles 4 et 16 μ m dans le barillet cible.

II.6.d.Evolution du coefficient de diffusion avec la température

Malgré ces incohérences, nous avons voulu regarder l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de la température. La figure II.20 montre que le coefficient de diffusion pour la cible 1 μ m augmente lorsque la température augmente. En effet, la valeur de *D* est reliée avec la température selon la relation suivante :

$$D = D_0 e^{-\left(\frac{E_a}{k_B T}\right)} \tag{II.34}$$


Figure II.20 : Coefficient de diffusion de la cible carbone 1 µm déduit des mesures en régime continu et en régime dynamique, en fonction de la température.

Une différence d'un facteur 4 entre les deux méthodes sur l'efficacité de diffusion à 1200°C implique une différence de deux ordres de grandeur sur le coefficient de diffusion.

II.7. Utilisation des résultats pour la prédiction des taux de production des isotopes d'argon avec SPIRAL 1

Les isotopes d'argon (l'³¹Ar ($T_{1/2}$ =15ms), l'³²Ar ($T_{1/2}$ =98ms), l'³³Ar ($T_{1/2}$ =173ms), l'³⁵Ar ($T_{1/2}$ =1,8s), l'⁴⁶Ar ($T_{1/2}$ =8,4s) et l'⁴⁴Ar ($T_{1/2}$ =712s)) sont produits sur SPIRAL 1 [Gan-01] à partir d'une cible en carbone de 1 µm et d'une épaisseur de 0,5 mm que l'on associe à une source plasma d'ions multichargés. Contrairement au dispositif mis en place dans le cadre de la collaboration TARGISOL, il existe une zone de transfert entre la cible de production et le plasma de la source à une température moyenne estimée à 160°C. Le calcul de l'efficacité totale de production en fonction de la période radioactive des isotopes d'argon est réalisé à partir de l'équation suivante :

$$\varepsilon_{Totale} = \varepsilon_{diff} \cdot \varepsilon_{eff} \cdot \varepsilon_{ionisation}$$
(11.35)

L'efficacité de diffusion ε_{diff} est déduite des données de TARGISOL à partir d'une approche macroscopique. Dans la mesure où les efficacités de diffusion sont cohérentes à haute température entre la méthode en continu et la méthode en dynamique (voir figure II.18), nous avons utilisé ces résultats pour la suite de ce travail.

L'efficacité d'effusion ε_{eff} dans le tube transfert entre la cible de production et le plasma de la source est estimée pour une température moyenne de 160°C.

L'efficacité d'ionisation $\varepsilon_{ionisation}$ de la source NANOGAN III provient des mesures hors lignes.

La figure II.21 présente les efficacités totales déduites à différentes températures, ainsi que les efficacités expérimentales des argon radioactifs obtenus sur SPIRAL 1 lors de son fonctionnement (pas forcément à des températures strictement identiques). Les points expérimentaux pour les ^{44,46}Ar présentent une baisse par rapport à la tendance générale de l'efficacité totale. Ces deux noyaux sont produits à partir d'un faisceau de ⁴⁸Ca (puissance faisceau primaire de 600 W et énergie de 60 MeV/A). Cela nécessite une puissance de chauffage ohmique par l'axe supplémentaire (environ 1,6 kW) pouvant induire un gradient de température dans la cible. Contrairement aux autres isotopes, produits à partir d'un faisceau primaire d'³⁶Ar (puissance du faisceau primaire de 1,2 kW et seulement de l'ordre de 400W de chauffage par l'axe).



Figure II.21 : Efficacité totale à partir des données TARGISOL pour des températures au niveau de la cible de 1500°C, 1800°C, 2000°C et pour l'³¹Ar ($T_{1/2}=15ms$), l'³²Ar ($T_{1/2}=98ms$), l'³³Ar ($T_{1/2}=173ms$), l'³⁵Ar ($T_{1/2}=1,8s$), l'⁴⁶Ar ($T_{1/2}=8,4s$) et l'⁴⁴Ar ($T_{1/2}=712s$).

La courbe qui reproduit au mieux les données expérimentales correspondant aux Ar déficients en neutrons est celle calculée pour une température de 1800°C. La température de la cible de production est donc estimée à 1800°C.

Les coefficients D_0 et E_a déduits des références [Ma-98-01] et [Pel-01-01] nous permettent également de calculer l'efficacité totale de production des isotopes d'argon pour une température de 1800°C. Dans ce cas, le modèle utilisé pour estimer les pertes dues à la diffusion est celui de la sphère (modèle microscopique) comme pour la déduction de ces coefficients. La figure II.22 présente ces efficacités ainsi que les efficacités expérimentales obtenues sur SPIRAL 1.



Figure II.22 : Efficacité totale à partir des données TARGISOL, des données des thèses de L. Maunoury et de F. Pellemoine pour des températures au niveau de la cible de 1800°C et pour $l^{31}Ar (T_{1/2}=15ms), l^{32}Ar (T_{1/2}=98ms), l^{33}Ar (T_{1/2}=173ms), l^{35}Ar (T_{1/2}=1,8s), l^{46}Ar (T_{1/2}=8,4s)$ et $l^{44}Ar (T_{1/2}=712s)$.

Les données extraites de l'expérience TARGISOL à partir d'une approche macroscopique du processus de diffusion prédisent un taux de production de l'³¹Ar plus faible que ceux prédits à partir des données extraites dans les thèses de F. Pellemoine et de L. Maunoury et du modèle microscopique.

La figure II.23 présente les efficacités totales expérimentales et les efficacités des différents processus : diffusion, effusion en fonction de la durée de vie des isotopes d'argon comme explicité ci-dessus. L'efficacité totale prend également en compte l'efficacité d'ionisation sans tenir compte d'une éventuelle dépendance de cette efficacité avec la durée de vie. Les distributions d'états de charge de l'³⁵Ar et de l'³²Ar ne montrent aucune différence.



Figure II.23 : Efficacité expérimentale et à partir des données TARGISOL pour l'³¹Ar $(T_{1/2}=15ms)$, l'³²Ar $(T_{1/2}=98ms)$, l'³³Ar $(T_{1/2}=173ms)$, l'³⁵Ar $(T_{1/2}=1,8s)$, l'⁴⁶Ar $(T_{1/2}=8,4s)$ et l'⁴⁴Ar $(T_{1/2}=712s)$ (voir légende).

Pour l'³¹Ar d'une durée de vie de 15 ms, l'efficacité de diffusion est égale à 10 % tandis que l'efficacité d'effusion est de 7 %.

Pour les noyaux de courte durée de vie $(T_{1/2} \text{ de l'}^{31}\text{Ar égal à 15ms})$, le processus d'effusion dans le tube de transfert est aussi pénalisant.

Il est donc important d'optimiser le transfert effusif entre la cible et la source plasma, en augmentant la conductance entre la cible et la source. L'approche serait à refaire en tenant compte de l'effet du processus d'effusion-ionisation dans la source ECR.

II.8. Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre, la cible n'est plus considérée comme un simple grain sphérique isolé pour laquelle la diffusion inter-grains est négligée. La diffusion est traitée d'un point de vue macroscopique pour la lamelle de la cible en utilisant le modèle de la diffusion pour une feuille [Fu-81-01].

Cette méthode a pour vocation de déterminer un coefficient de diffusion macroscopique, c'està-dire un coefficient de diffusion « apparent » tenant compte de la diffusion dans le grain et de la diffusion inter-grain. Nous avons développé une méthode d'analyse du temps de réponse d'un ensemble cible-source basée sur une approche macroscopique du processus de diffusion puis nous l'avons utilisée pour analyser les données expérimentales issues du dispositif TARGISOL. La collaboration européenne TARGISOL a permis de mettre en place un système de mesure dans le but de déterminer le coefficient de diffusion des matériaux en les plaçant dans des conditions de mesure identiques. Ce dispositif a été utilisé durant cette thèse pour déterminer la diffusion de l'Ar dans du carbone. Il a permis de s'affranchir du processus d'effusion (cavité cible et tube de transfert). Plusieurs améliorations techniques peuvent être apportées au dispositif :

- > Augmenter la taille de la cible par rapport à la dimension du faisceau SISSI.
- Utilisation d'un container dont les propriétés diffusantes sont négligeables (le container actuellement utilisé est fabriqué à partir de carbone 4 μm).
- Fiabiliser l'insertion des cibles au niveau du four (qualité des ressorts à haute température).

Les efficacités ont été mesurées en régime de faisceau continu. Les temps de relâchement ont été déterminés à partir des réponses en temps du système cible-source. Les efficacités déduites de ces deux approches ont été comparées. La cohérence entre ces deux méthodes est observée pour les tailles de grain de 1 et 4 μ m à haute température. Cependant, l'accord est insatisfaisant pour certaines mesures (1 μ m basse température et 16 μ m haute température).

De manière rigoureuse, cette approche macroscopique de la diffusion est applicable dans le cas d'une distribution homogène dans toute l'épaisseur de la cible. Nous observons que pour les conditions expérimentales durant l'expérience TARGISOL, le faisceau d'³⁵Ar est implanté de façon homogène uniquement sur une épaisseur totale de 60 μ m. L'hypothèse d'une distribution homogène n'est donc pas respectée pour la cible 1 μ m d'une épaisseur de 3 mm mais également pour les cibles d'épaisseur de 0,5 mm. Actuellement, nous n'avons pas à notre disposition une approche théorique pouvant tenir compte de cette inhomogénéité dans la cible.

Il devrait être possible de déterminer l'efficacité de diffusion uniquement à partir de la réponse en temps du système et sans avoir recours au nombre de noyaux implantés dans la cible à condition :

- D'avoir une implantation homogène au sein de la lamelle. Ce cas est réalisable à partir de noyaux produits dans la cible à partir d'un faisceau de protons de haute énergie. Avec un faisceau d'ions lourds incident implantés, l'homogénéité par lamelle nécessite des lamelles plus minces que celles utilisées.
- De connaître la réponse en temps de la source d'ions. Cette condition peut être remplie par une mesure simple mais qu'il est nécessaire d'effectuer immédiatement avant ou après la mesure de réponse en temps globale du système.
- D'avoir une très bonne statistique durant les phases de collection et les phases de relâchement. Ceci implique d'avoir une efficacité de diffusion relativement élevée (de l'ordre de 80 %) et des temps de mesures relativement longs de manière à être sensible à la composante la plus longue du processus de relâchement de la cible. Cette condition peut être obtenue en prenant en compte le rapport entre la durée de vie du noyau implanté et le temps de diffusion qui dépend de l'épaisseur de la cible. Toute la difficulté est de choisir la sonde radioactive de période adéquate et l'épaisseur de la lamelle sans, a priori, connaître le coefficient de diffusion.

La connaissance du nombre de noyaux implantés dans la cible n'est pas impérative mais elle permet une comparaison avec le nombre de noyaux déduits de l'analyse en temps. Cela est un critère de confiance supplémentaire.

Enfin, l'analyse des résultats obtenus lors des mesures de temps de relâchement a permis de mettre en évidence les conditions expérimentales qui doivent être remplies pour que l'analyse des résultats soit la plus riche possible en termes de données et de fiabilité. A la lumière de ces enseignements, cette méthode pourrait maintenant être appliquée à un autre type d'ensemble cible-source tel que celui de SPIRAL 2 (cible UCx associée à une source d'ions mono-chargés).

L'approche macroscopique du processus de diffusion permet de prédire le taux de production de l'³¹Ar ($T_{1/2}$ égal à 15 ms) obtenu à partir de l'ensemble cible-source de SPIRAL 1.

Les résultats de cette analyse montrent également que l'origine des pertes pour la production des isotopes d'argon de courte durée de vie réside autant dans le processus d'effusion que dans le processus de diffusion. L'augmentation de la conductance au niveau du tube de transfert entre la cible de production et la source ECR Nanogan III est donc primordiale afin de diminuer le temps d'effusion.

Cette étude de diffusion est une première étape nécessaire pour optimiser l'intensité des faisceaux radioactifs. Cependant, de nombreux processus interviennent dans la réalisation d'un ensemble cible-source qui nécessitent également d'être optimisés. La production des faisceaux déjà produits sur SPIRAL 1, peut également être augmentée en utilisant une intensité de faisceau primaire plus élevée. Cette étape nécessite une étude concernant de nouvelles cibles pouvant supporter la puissance maximale du faisceau primaire (minimum entre 6 kW et 2.10^{13} pps). Une étude thermique et des tests ont déjà été réalisés pour du carbone 4 µm [Lich-98-01] [Ma-01-01]. Cette étude est à poursuivre pour le carbone 1 µm (ui n'a pas les mêmes propriétés thermiques) de manière à définir des nouvelles géométries de cible, container, tout en restant dans le volume imparti.

Chapitre III :

Production de faisceaux d'ions alcalins radioactifs monochargés à partir de l'

Ensemble Cible - Source MONONAKE

79

Un des enjeux sur SPIRAL 1 est d'étendre la palette de faisceaux d'ions radioactifs. La famille des alcalins légers (Li, Na et K) présente de nombreux isotopes intéressants soit du point de vue la structure nucléaire soit du point de vue de l'astrophysique. Le ¹¹Li est le premier noyau à halo découvert par I. Tanihata [Tan-85-01] [Tan-85-02]. La réaction 21 Na(p, γ) 22 Mg joue un rôle important dans le processus r. Que réserve comme surprise le 20 Na ? Les Na riches en neutrons voisinent avec le 32 Mg, un des noyaux les plus déformés, bien qu'ayant un nombre magique en neutrons. Les K ont seulement un proton en moins par rapport au nombre magique Z=20, conduisant à des configurations relativement simples en protons. L'étude de l'ajout de neutrons dans cette même couche (N<20) ou dans la couche supérieure (N>20) peut donner des indications sur le couplage de ce proton célibataire avec les neutrons.

Beaucoup de progrès ont été réalisés récemment par des installations maîtrisant depuis longtemps la technologie des sources à ionisation de surface : Les premiers niveaux des Na viennent d'être étudiés par excitation coulombienne avec REX Isolde au CERN [Is-01]. La réaction ²¹Na (p, γ) ²²Mg vient juste d'être mesurée [Tr-05-01]. Le ¹¹Li a fait l'objet à nouveau d'études à TRIUMF avec le détecteur MAYA du GANIL [Sa-07-01]. Le GANIL ne pourra pas être compétitif concernant le ¹¹Li puisque le taux extrait en 1⁺ à TRIUMF est supérieur au taux qu'on peut produire dans la cible de SPIRAL 1. Cette limitation est due au parcours des ions lourds dans la cible et aux intensités de faisceaux primaires autorisées.

Ces installations sont actuellement limitées en énergie pour les faisceaux radioactifs accélérés : environ 3 MeV/A pour REX ISOLDE et 1,5 MeV/A pour TRIUMF. Peut-on produire des faisceaux de Na^{N+}et K^{N+} suffisamment intenses pour se placer dans une région d'énergie où les réactions au dessus de la barrière coulombienne deviennent possibles pour étudier les caractéristiques de nouveaux états nucléaires des noyaux voisins ?

A plus haute énergie, des faisceaux radioactifs alcalins sont déjà obtenus au GANIL à l'aide de la méthode dite « en vol ». Cette méthode donne des faisceaux aux énergies intermédiaires (20 à 90 MeV/A selon les isotopes). Pour diminuer si besoin l'énergie, en dessous de 20 MeV/A, il est nécessaire de faire traverser au faisceau de la matière, ce qui conduit à introduire des pertes au niveau de l'intensité et à diminuer les qualités optiques des faisceaux. De plus, ces faisceaux ont de nombreux contaminants.

Le cyclotron CIME de SPIRAL 1 permet d'accélérer à plus haute énergie que REX Isolde ou TRIUMF. Avec la méthode ISOL à SPIRAL 1, un faisceau d'ions alcalins uniquement monochargés n'est pas suffisant pour atteindre des énergies élevées à l'aide du cyclotron. Il est absolument nécessaire de produire des ions alcalins dont les états de charge sont plus élevés pour essayer de couvrir au mieux la gamme d'énergies comprises entre 1,7 et 24,8 MeV/A (gamme d'énergie indicative dépendant du rapport q_p/M_p). La source d'ions ECR avec son tube de transfert froid constitue un piège pour les noyaux alcalins. Ils ont des temps de collage sur une paroi à température ambiante (300 K) qui rend leur temps de transfert relativement important comparé à leur durée de vie. Le présent ECS ne peut donc être utilisé seul. L'association, sans séparateur de masse, de la source MonoNaKe et d'une source à plasma de type ECR Nanogan III a donc été étudiée pour répondre à ce besoin technique. Une des possibilités était d'utiliser deux sources en série : une première ionisant une fois et avec une bonne efficacité les alcalins, la seconde acceptant dans son plasma directement les ions 1⁺ pour les transformer en ions multichargés N⁺. Un tel système, s'il s'avère opérationnel, devrait présenter l'avantage de ne pas introduire de modifications majeures pour la casemate de SPIRAL 1 du point de vue de la sûreté et de la radioprotection, du moins en ce qui

Une source à ionisation de surface est la source la plus appropriée pour la production d'ions alcalins monochargés. En effet, son fonctionnement repose sur l'interaction entre un atome et une paroi métallique portée à haute température. Le résultat de cette interaction est la formation d'un ion mono-chargé positif ou négatif. Ce chapitre présente l'étude de la source à ionisation de surface MonoNaKe. La source NanoNaKe correspondant au couplage de cette dernière avec la source Nanogan III, nécessaire pour produire des ions alcalins dans des états de charge plus élevés, sera présentée au chapitre IV.

Dans ce chapitre, nous rappellerons le principe de l'ionisation de surface. Nous montrerons ensuite, comment augmenter l'efficacité d'ionisation. Puis nous présenterons le modèle que nous avons élaboré pour calculer les caractéristiques du ioniseur. Enfin, nous décrirons la source MonoNaKe réalisée, l'expérience ayant permis de mesurer les efficacités en 1^+ en fonction des différents paramètres ainsi que les intensités de faisceaux 1^+ obtenues.

III.1. Source à ionisation de surface

III.1.a. Principe de fonctionnement

Les sources à ionisation de surface permettent de produire des ions monochargés positifs et également négatifs. Le principe physique d'une source à ionisation de surface (voir figure III.1) est le transfert de l'électron d'un atome vers une surface métallique.



Figure III.1 : Principe d'ionisation de surface positive [Ko-00-01].

Ce type de source est particulièrement adapté pour des éléments dont le potentiel de première ionisation est faible (I < 5,8 eV). Elle ne permet donc pas d'obtenir des ions multichargés puisque le potentiel de seconde ionisation est pour tous les atomes supérieur à 10 eV. Les efficacités d'ionisation les plus élevées sont obtenues pour les alcalins et les alcalinoterreux. Dans le cadre de la production de faisceaux d'ions radioactifs alcalins mono-chargés, les sources à ionisation de surface sont utilisées dans de nombreux laboratoires, en particulier à l'institut de physique de GATCHINA (Russie) [Pa-06-01], à TRIUMF (Canada) [Br-03-01], à ISOLDE (CERN) [Is-01], à PARRNe2 et à Alto (IPN-Orsay) [Lau-03-01]. Le taux d'ions positifs et négatifs est régi par la loi de Saha-Langmuir [Ar-04-01] :

$$\alpha_{s+} = \frac{N_{+}}{N_{0}} = \frac{g_{+}}{g_{0}} \exp\left(\frac{W_{s} - I}{k_{B}T}\right)$$
(III.1)

et

$$\alpha_{s-} = \frac{N_{-}}{N_{0}} = \frac{g_{-}}{g_{0}} \exp\left(\frac{A - W_{s}}{k_{B}T}\right)$$
(III.2)

A représente l'affinité électronique, Ws le travail de sortie et g_0 , g_+ , g_- sont les poids statistiques [Ph-01] des atomes neutres adsorbés et des ions produits (positifs ou négatifs). Il est important de noter que cette loi est applicable dans le cas où l'équilibre thermodynamique est atteint. Elle permet d'estimer le degré d'ionisation dans un volume fermé à une température donnée.

Dans le cas où la surface métallique est à haute température (de l'ordre de 2000 K), deux cas peuvent se produire :

- ✓ Ws est plus grand que le potentiel de première ionisation *I* de l'atome adsorbé. Un électron de valence peut être transféré par effet tunnel vers le métal, il y a formation d'un ion positif.
- \checkmark Ws est inférieur au potentiel d'ionisation *I* de l'atome adsorbé. Le phénomène inverse se produit et il y a formation d'un ion négatif.

Les expressions ci-dessus justifient l'utilisation des matériaux réfractaires à fort travail de sortie (iridium : 5,4 eV, rhénium : 4,96 eV, platine : 5,65 eV, tungstène : 4,55 eV [Ph-01] et carbone : 5 eV [Rob-74-01]) particulièrement efficaces sur les alcalins à potentiel d'ionisation (noté I) faible. Cependant, l'inconvénient majeur est que la surface chaude peut être contaminée par des dépôts de matériaux ayant un travail de sortie Ws plus faible, et donc conduisant à une efficacité d'ionisation plus faible. La surface du matériau peut être transformée chimiquement (oxydation du tungstène). Dans ce cas, il est possible d'obtenir un travail de sortie plus important (voir chapitre V).

Pour l'utilisation de ce type de sources, il est donc primordial de choisir la nature du ioniseur en fonction des éléments que l'on désire ioniser et en fonction de l'environnement de la source. Les éléments que l'on souhaite produire avec la source d'ions mono-chargés MonoNaKe sont essentiellement les isotopes de sodium ayant un potentiel d'ionisation de [Ph-01] (I : 5,139eV), les isotopes de potassium (I : 4,341eV) et certains isotopes de lithium (I : 5,392eV).

A partir de la loi de Saha-Langmuir, il est possible de calculer la probabilité par contact sur la surface chaude d'échanger un électron. Cette probabilité s'exprime de la manière suivante :

$$P_{+} = \frac{\alpha_s}{1 + \alpha_s} = \frac{1}{1 + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - W_s}{k_B T}\right)}$$
(III.3)

La figure III.2 montre pour les différents éléments (césium, rubidium, potassium, sodium et lithium), la probabilité d'échanger un électron par contact avec différentes surfaces métalliques (oxyde de tungstène, iridium, platine, carbone, rhénium et tungstène) à une température de 2000 K.



Figure III.2 : Probabilité d'échanger un électron avec différentes surfaces métalliques (oxyde de tungstène, iridium, platine, carbone, rhénium et tungstène) en fonction du potentiel d'ionisation des éléments d'intérêts césium, rubidium, potassium, sodium et lithium et pour une température de 2000 K. Cette probabilité est calculée selon la loi de Saha-Langmuir (expression III.3).

Le choix du matériau utilisé pour l'élaboration de la source à ionisation de surface doit répondre aux contraintes spécifiques liées à un ensemble cible-source de production de faisceaux radioactifs pour SPIRAL 1 :

- ✓ Le matériau ne doit pas subir d'importantes modifications des propriétés physiques et chimiques lorsqu'il est exposé aux éléments relâchés par la cible de production.
- ✓ Le matériau doit résister à une température élevée pendant un temps important (accès pour maintenance du dispositif rendu difficile voir impossible pendant les périodes d'opération).
- ✓ Le matériau doit avoir une bonne tenue mécanique à haute température (environ 2000° C).
- ✓ Le matériau doit avoir une efficacité d'ionisation élevée pour les potassium, sodium et lithium.

La cible de SPIRAL 1 est en carbone, or le carbone répond à l'ensemble de ces contraintes. Il est toutefois important de noter que selon les références, le travail de sortie du

carbone est variable : de 3,9 à 5 eV avec une valeur recommandée de 4,5 eV [Ko-00-01]. Une valeur de 5 eV a été mesurée par B. Robrieux [Rob-74-01]. En tenant compte de cette dernière valeur, la probabilité d'échanger un électron par contact à une température de 2000 K pour le sodium est seulement de 18 % et de 5 % pour le lithium ce qui engendre une perte de 82 à 95% des atomes produits dès leur passage dans le ioniseur. Il semble donc nécessaire de concevoir le ioniseur pour que l'efficacité de transformation des atomes en ions soit supérieure à la probabilité d'ionisation par contact.

III.1.b. Augmentation de l'efficacité d'une source à ionisation de surface

Différentes solutions permettent d'obtenir une efficacité de transformation atomes-ions dans une source à ionisation de surface supérieure à la probabilité d'ionisation par contact :

- ✓ Utiliser le régime de cavité chaude.
- Diminuer la probabilité de neutralisation sur les parois :
 - En faisant pénétrer le champ électrique d'extraction dans le ioniseur.
 - En mettant un champ électrique aux bornes du ioniseur.

i) Source à cavité chaude

Une source à cavité chaude fonctionne à très haute température ($T_{cavité} > 2200$ K) et la surface d'extraction des ions est très inférieure à la surface totale de la cavité de façon à augmenter le nombre de collisions dans la cavité et également d'obtenir un état proche de l'état d'équilibre thermodynamique. Pour des températures supérieures à 2000 K, il a été démontré expérimentalement que ces sources présentent des efficacités d'ionisation supérieures à celles obtenues par des sources à ionisation de surface [Bey-71-01] [Joh-73-01] décrites par la loi de Saha-Langmuir (voir relation III.3). Cet effet de cavité chaude a été étudié tant au point de vue expérimental et qu'au point de vue théorique [Kir-78-01] [Kir-81-01] [Kir-90-01] [Af-77-01] et [Hu-83-01]. Un plasma à l'équilibre thermique dans la cavité chaude permet d'obtenir un confinement des ions produits par ionisation de surface : les électrons émis par la surface métallique chaude créent au centre de la cavité un potentiel négatif. Le confinement des ions dépend du potentiel plasma Φ_p et empêche les ions de se neutraliser sur la surface de la cavité.

Dans ce cas particulier, l'efficacité d'ionisation varie en fonction d'un facteur d'amplification (noté N_{Te}) qui s'exprime de la manière suivante :

$$N_{TE} = \frac{\alpha_V}{\alpha_S} = \exp\left(\frac{-e\phi_p}{k_B T}\right)$$
(III.4)

Où α_V représente le degré d'ionisation du plasma de la cavité chaude. Cette valeur est donnée par la loi de Saha :

$$\alpha_V = \frac{2g_+}{g_0} \left(\frac{2\pi m_e}{h^2}\right)^{3/2} \frac{1}{p} \left(kT\right)^{5/2} \exp\left(-\frac{I}{k_B T}\right)$$
(III.5)

Où *p* est la pression totale dans la cavité. Elle dépend de la densité d'électrons, de neutres et d'ions : $p = (n_e + n_0 + n_+)k_BT$.

 m_e est la masse des électrons.

T est la température des parois de la cavité.

L'expression de *p* suppose que les différentes populations sont à l'équilibre thermique. Elle pourrait être appliquée dans le cas d'une cavité fermée mais une source à ionisation de surface n'est pas une cavité fermée. L'application de la formule de Saha-Langmuir aux sources à ionisation de surface trouve ici une limite.

Il est possible de calculer le facteur d'amplification (N_{TE}) en fonction de la température de la cavité, et pour un couple atome/surface métallique (W/W, Fe/Re, Sr/W,) issu des références [Hu-83-01] et [Kir-90-01] (voir tableau III.1). Dans le cas du couple Na/C, la valeur de α_{v} est calculée pour une pression totale dans la cavité en carbone de 10⁻⁶ mbar. Les différentes valeurs de α_{s+} sont calculées à partir de l'expression III.1.

Température (K)	Elément	s I (eV)	Surface Métalliqu	Ws (eV) 1e	α_{s+} formule III-1	α_v formule III-5	N _{TE}
2300	W	7,98	W	4,53	5,5.10 ⁻⁸	1,3.10 ⁻²	2,4.10 ⁵ [Hu-83- 01]
2300	Fe	7,87	Re	5,1	1,0.10 ⁻⁶	3,6.10 ⁻³	3,6.10 ³ [Hu-83- 01]
2850	Sr	5,52	W	4,53	8,9.10 ⁻³	67	7500 [Kir-90- 01]
2300	Na	5,13	С	5	0,5	0,25	2
2850	Na	5,13	С	5	0,284	118,1	415

Tableau III.1 : Valeurs de N_{TE} pour différents couples atome/surface métallique (W/W, Fe/Re, Sr/W, et Na/C) à des températures de surface égales à 2300 K et à 2850 K. La valeur de α_v pour le couple W/W est calculée à une pression de 5.10⁻⁹ mbar, pour le couple Fe/Re à une pression de 8,5.10⁻⁸ mbar et pour le couple Sr/W à une pression de 2,7.10⁻⁶ mbar.

A l'intérieur d'une cavité cylindrique dont la surface est métallique et pour des températures élevées (2200 K < T < 2800 K), un plasma à l'équilibre thermodynamique crée une zone de confinement pour les ions d'intérêt. Kirchner a montré que l'efficacité d'ionisation peut se traduire selon l'expression suivante [Kir-90-01] :

$$\varepsilon_{ion} = \frac{P_{+}N_{TE}}{1 - P_{+}(1 - N_{TE})} = \frac{N_{TE}}{N_{TE} + \frac{g_{0}}{g_{+}} \exp^{\left(\frac{I - W_{S}}{k_{B}T}\right)}}$$
(III.6)

L'efficacité d'ionisation augmente de façon significative comparée à l'ionisation simple de la formule de Saha-Langmuir (expression III.3). La figure III.3 montre l'évolution de l'efficacité d'ionisation pour différentes valeurs de N_{TE} pour un ioniseur en carbone en fonction du potentiel d'ionisation des noyaux d'intérêt.



Figure III.3 : Efficacité d'ionisation d'une source à cavité chaude calculée avec la formule III-6 en fonction du potentiel de première ionisation pour différentes valeurs de N_{TE} . Le cas N_{TE} égal à 1 correspond à une efficacité d'ionisation égale à la probabilité P_+ d'échanger un électron par contact sur une surface en carbone.

Le facteur d'amplification calculé à partir de l'équation III.4 est surestimé [Kir-90-01]. Il n'est valable que dans le cas où le plasma de la cavité chaude est en équilibre thermodynamique.

De plus dans le cas du sodium, on observe qu'à basse température (2300 K), le facteur d'amplification est égal à 2 alors qu'il serait de 415 à une température de 2850 K (voir tableau III.1). Le régime de température généralement utilisé est compris dans l'intervalle 2300-2500 K car l'évaporation du carbone à 2850 K est relativement importante [Pel-01-01]. Un plasma n'induira donc pas de facteur d'amplification important pour une source en carbone à une température de 2300 K.

ii) Facteur d'amplification d'une cavité chaude

Pour que l'équilibre thermodynamique soit atteint dans une source à ionisation de surface, il faudrait que le temps de mise à l'équilibre des différentes particules soit infiniment court par rapport au temps de transit des particules dans la source. Dans l'absolu, l'équilibre

thermodynamique du plasma qu'il est possible d'obtenir dans une cavité chaude fermée n'est donc jamais établi dans une source à ionisation puisqu'il existe un flux de particules entrant et un flux de particules sortant. Le facteur d'amplification en régime non équilibré thermiquement N_{nTE} est différent de N_{TE} . L'expression du facteur d'amplification N_{nTE} est la suivante :

$$N_{nTE} = \omega \chi \tag{III.7}$$

Où χ est le nombre moyen de collisions d'un atome contre les parois de la cavité. ω représente la probabilité qu'une particule ionisée, par ionisation de surface, sorte de la cavité en restant ionisée.

Dans ce cas, l'efficacité d'ionisation s'exprime de la manière suivante [Huy-83-01] :

$$\varepsilon_{ion} = \frac{\omega \chi}{\omega \chi + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - W_S}{k_B T}\right)}$$
(III.8)

Les efficacités expérimentales de ces sources à cavité chaude ont montré que $N_{nTE} \ll N_{TE}$ [Kir-90-01]. L'ordre de grandeur du nombre moyen de collisions χ sur les parois de la cavité est défini à partir de la géométrie de la source d'ions. Une première estimation est possible à partir de la relation suivante :

$$\chi \approx \frac{S_{cavit\acute{e}}}{S_{orifices desortie}}$$
(III.9)

Pour un nombre de collisions donné, la valeur de N_{nTE} dépend seulement de la probabilité ω . ω peut donc tendre vers 1 dans le cas où un plasma crée une zone de confinement de telle façon que les ions ne se neutralisent pas sur la surface métallique jusqu'à la sortie de la cavité [Hu-83-01]. Le produit $\omega \chi$ est relié au potentiel plasma selon :

$$\omega \chi \le \exp\left(\frac{-e\phi_p}{k_B T}\right) \tag{III.10}$$

Où ϕ_p est le potentiel du plasma formé au sein de la cavité chaude.



Figure III.4 : Calcul de l'efficacité d'ionisation en fonction du potentiel d'ionisation des éléments d'intérêt pour une température de 2000 K et pour une surface en carbone. Ce calcul d'efficacité d'ionisation est réalisé pour deux valeurs de N (1 et 20).

L'efficacité d'ionisation (voir figure III.4) est calculée en fonction du potentiel d'ionisation, pour une surface chaude (T égale à 2000 K) en carbone et en supposant une cavité (petit tube) donnant lieu à un nombre de collisions de l'ordre de 20. Le travail de sortie Ws du C est égal à 5 eV [Rob-74-01]. Le calcul est effectué pour deux valeurs du produit $\omega \chi$ (1 et 20) :

- > Un produit $\omega \chi$ égal à 20 se traduit, pour un nombre moyen de collisions atomiques dans une cavité égal à 20, par une probabilité ω égale à 100%.
- > Un produit $\omega \chi$ égal à 1 se traduit, pour un nombre moyen de collisions atomiques dans une cavité égal à 20, par une probabilité ω égale à 5%.

L'augmentation de la probabilité ω a pour effet d'augmenter significativement l'efficacité d'ionisation pour les éléments dont le potentiel d'ionisation est supérieur au travail de sortie de la surface métallique chaude. En effet, pour un ioniseur en carbone et un facteur d'amplification N égal à environ 20, le gain sur l'efficacité d'ionisation est égal à un facteur 4,5 pour le sodium (I= 5,139 eV) et un facteur 10 pour le lithium (I= 5,392 eV).

Les sources d'ionisation de surface en régime de cavité chaude peuvent donc conduire à améliorer significativement l'efficacité d'ionisation d'une source à ionisation de surface mais présentent l'inconvénient de devoir fonctionner à haute température, limitant ainsi la durée de vie de la source (ce qui n'a pas été clairement démontré).

III.2. Efficacités totales d'ionisation pour une source à ionisation de surface : Approche statistique

Pour augmenter l'efficacité d'ionisation d'une source à ionisation de surface destinée à la production d'ions radioactifs, nous avons vu que le fonctionnement en régime de cavité chaude n'est pas adapté. En effet, une très haute température n'est pas compatible avec l'espérance de vie du matériau ionisant. Nous allons maintenant montrer comment, à partir de l'application d'une description statistique de la transformation atome-ion dans une source, il a été possible de mettre en évidence l'intérêt d'un champ électrique dans l'ioniseur pour augmenter l'efficacité d'ionisation.

III.2.a. Principe

Le modèle repose sur une approche statistique valable pour les sources à ionisation [El-07-02], (voir chapitre II : Targisol), et [Ja-06-01]. Ce calcul dépend des processus d'ionisation, d'effusion atomique, d'effusion ionique et de neutralisation. Chacun de ces processus est caractérisé par un taux « $\lambda_{processus}$ » qui représente une probabilité par unité de temps exprimée en s⁻¹ au même sens que l'inverse de la période radioactive :

$$\frac{dn}{dt} = \lambda_{processus} n$$

Dans ce paragraphe, ce modèle est appliqué à une source à ionisation de surface dont la forme est supposée celle d'un tube cylindrique. Le but est évidemment d'estimer l'efficacité totale de transformation atome-ion dans la source en fonction des taux $\lambda_{processus}$ dans un premier temps, puis de tenter de relier ces taux théoriques aux paramètres physiques du dispositif.

Soient :

- ✓ n_{a0} : le nombre d'atomes injectés dans la source à t égal à 0. Ce nombre d'atomes n_{a0} est gouverné par le flux relâché par la cible de production et également par l'efficacité d'effusion entre la cible et le tube ioniseur.
- \checkmark *n_i* sortie : le nombre d'ions sortant de la source.
- \checkmark *n_a* sortie : le nombre d'atomes sortant de la source.



Figure III.5 : Schéma du tube ioniseur. Les atomes injectés dans un tube ioniseur à t égal à 0 ont une probabilité d'être ionisés, et une probabilité de rester neutres. Les ions ont également une probabilité de se neutraliser sur les parois du tube ioniseur.

Le nombre d'ions produits dans la source par unité de temps est posé proportionnel au nombre d'atomes présents dans la source à t:

$$\frac{dn_i}{dt}\Big|_{ioniseur} = \lambda_i n_a$$

Le temps caractéristique de chaque processus physique est défini comme :

$$T_{processus} = \frac{\ln 2}{\lambda_{processus}}$$
(III.11)

La variation au cours du temps du nombre d'atomes dans le tube ioniseur dn_a/dt :

- ✓ Augmente avec la neutralisation des ions en atomes (λ_0 , n_i).
- ✓ Diminue d'une part en raison de la transformation des atomes en ions (λ_{i,n_a}) et d'autre part en raison de la sortie des atomes par l'orifice de la source $(\lambda_{eff}n_a)$.

Une proportion des ions présents « quitte » la source et l'autre est neutralisée. Au total, la variation du nombre d'ions dans la source par unité de temps est :

$$\frac{dn_i}{dt}\Big|_{ioniseur} = \lambda_i n_a - (\lambda_0 + \lambda_{ieff} + \lambda) n_i$$
(III.12)

Avec :

- ✓ λ_i : Taux d'ionisation d'un atome.
- ✓ λ_0 : Taux de neutralisation d'un ion.
- ✓ λ_{eff} : Taux de sortie des atomes.
- ✓ λ_{ieff} : Taux de sortie des ions.
- ✓ λ : Taux de désintégration.

De façon similaire, la variation par unité de temps du nombre d'atomes dans la cavité résulte de la neutralisation des ions, de l'ionisation des atomes et de l'effusion des atomes en dehors de la cavité.

$$\frac{dn_a}{dt}\Big|_{ioniseur} = \lambda_0 n_i - (\lambda_i + \lambda_{eff} + \lambda)n_a$$
(III.13)

A partir des expressions des variations du nombre d'atomes et du nombre d'ions dans le tube ioniseur en fonction du temps, on obtient l'expression de l'efficacité de transformation atome-ion (voir annexe du chapitre III) du ioniseur :

$$\varepsilon_{Ionisation} = \frac{\lambda_i \lambda_{ieff}}{\lambda_i \lambda_{ieff} + \lambda_i \lambda + \lambda_{eff} \lambda_0 + \lambda_{eff} \lambda_{ieff} + \lambda_{eff} \lambda + \lambda \lambda_0 + \lambda \lambda_{ieff} + \lambda^2}$$
(III.14)

III.2.b. Passage des taux statistiques aux grandeurs physiques

La fréquence de ces processus dépend aussi du temps de collage et du temps de vol entre deux collisions. Il existe différentes probabilités par unité de temps.

i) <u>*Taux* λ_i *d'ionisation*</u>

Ce taux est calculé à partir du rapport de la probabilité qu'un atome soit ionisé à la suite d'un contact avec la paroi du tube par le temps moyen qui sépare deux de ses contacts avec la paroi [Am-90-01] :

$$\lambda_i = \frac{p_+}{\left(\tau_c + \tau_v\right)} \tag{III.15}$$

 τ_v et τ_c sont respectivement les temps moyens de vol et de collage sur les parois du ioniseur. La probabilité p_+ qu'un atome soit ionisé positivement après chaque contact sur une surface métallique est donnée par la loi de Saha-Langmuir (voir expression III.1) :

$$p_{+} = \left(1 + \frac{g_{o}}{g_{+}} e^{\left(\frac{I - W_{s}}{kT}\right)}\right)^{-1}$$
(III.16)

Dans le cas où les atomes à ioniser sont des alcalins, le rapport g_0/g_+ vaut 2 [Ra-85-01] [Ko-00-01]. Pour que la probabilité p_+ tende vers 100 % à une température de 2000 K, il faut que la différence Ws-I soit supérieure à 0,91 eV. Dans le cas du lithium, une probabilité d'ionisation de 100 % implique l'utilisation d'un matériau dont le travail de sortie est égal à 6,3 eV.

Le temps de vol entre deux collisions est exprimé en fonction de la distance moyenne D_v parcourue entre deux collages à partir de la relation suivante :

$$\tau_v = D_v \sqrt{\frac{m}{3k_B T}} \tag{III.17}$$

Où m représente la masse de l'élément effusant et T la température de thermalisation par contact avec la surface métallique.

Le temps de collage moyen représente le temps moyen pour qu'un atome se « décolle » de la surface du ioniseur. Le temps de collage des ions est supposé identique au temps de collage des atomes. Il est défini par l'équation de Frenkel [Kir-86-01] :

$$\tau_c = \tau_0 e^{\frac{\Delta Ha}{k_B T}}$$
(III.18)

 ΔH_a est le terme qui définit l'enthalpie d'adsorption et τ_0 la période de vibration normale de la particule adsorbée à la surface du matériau. Le tableau III.2 montre des temps de collage calculés à partir de la formule semi empirique de B. Eichler pour le lithium, le sodium et le potassium à une température de 300 K et de 2000 K sur des surfaces en tungstène, sodium et rhénium [Tar-02].

Noyaux	Surface	ΔHa (eV)	T (K)	$\tau_{c}(\mathbf{s})$
Li	W	2,19	300	5,95.10 ²³
Li	Re	1,64	300	3,66.10 ¹⁴
Li	Ir	2,21	300	$1,44.10^{24}$
Li	W	2,19	2000	3,28.10-8
Li	Re	1,64	2000	1,36.10-9
Li	Ir	2,21	2000	3,75.10 ⁻⁸
Na	W	1,32	300	1,35.10 ⁹
Na	Re	1,92	300	1,57.10 ¹⁹
Na	Ir	2,08	300	7,53.10 ²¹
Na	W	1,32	2000	$2,09.10^{-10}$
Na	Re	1,92	2000	6,75.10 ⁻⁹
Na	Ir	2,08	2000	1,7.10 ⁻⁸
K	W	1,9	300	7,62.10 ¹⁸
K	Re	2,6	300	$5,27.10^{30}$
K	Ir	2,68	300	$1,2.10^{32}$
K	W	1,9	2000	6,06.10 ⁻⁹
K	Re	2,6	2000	3,62.10-7
K	Ir	2.68	2000	$5.78.10^{-7}$

Tableau III.2 : Temps de collage des lithium, sodium et potassium pour des surfaces en tungstène, rhénium et iridium à une température de 300 K et de 2000 K [Tar-02].

Les temps de collage à température ambiante (T \approx 300 K) sont très élevés pour les éléments condensables comme les lithium, sodium et potassium, et diminuent fortement avec la température. Cette dépendance avec la température montre qu'un compromis sur la température d'un ioniseur doit être trouvé pour satisfaire simultanément la contrainte de température élevée nécessaire pour obtenir une probabilité d'ionisation par contact élevée et un temps de collage faible, et la contrainte de température limitée pour assurer à la source l'espérance de vie requise. Il est à noter que les enthalpies d'adsorption ne sont pas connues pour les K, Na et Li dans le cas d'une paroi en carbone et par conséquent les temps de collage non plus.

ii) <u>*Taux*</u> λ_0 <u>*de neutralisation*</u>

Lorsqu'un atome entre en contact avec une surface métallique, il a une probabilité p_+ de repartir ionisé de la paroi et une probabilité $(1-p_+)$ de repartir neutre. Le temps de précession d'un électron de couche périphérique est de l'ordre de 10^{-16} s. Le temps qu'il faut à un atome ou à un ion pour échanger un électron avec une surface métallique est donc de cette ordre de grandeur. Ce temps est court comparé aux temps de collage $(10^{-7} à 10^{-9} s)$ estimé à 2000 K

présentés dans le tableau III.2. On considère que l'état, ion ou atome, après contact avec la paroi est indépendant de l'état avant contact.

La probabilité de neutralisation par unité de temps est exprimée de la façon suivante :

$$\lambda_0 = \frac{1 - p_+}{\left(\tau_c + \tau_v\right)} + \int_0^\infty \sigma(v_e) v_e \cdot n_e \cdot f(v_e) dv_e + \int_0^\infty \sigma(v_a) n_a v_a f(v_a) d(v_a - v_i)$$
(III.19)

Les trois termes de cette équation sont respectivement :

- \checkmark Le taux de neutralisation au contact de la paroi de la source,
- ✓ Le taux de neutralisation par capture électronique à partir des électrons présents dans le volume de la source
- ✓ Le taux de neutralisation par échange de charge avec le gaz résiduel.

Les paramètres physiques pour la capture électronique sont :

- o σ_e : Section efficace de capture électronique.
- \circ v_e : Vitesse des électrons.
- \circ n_e : Densité électronique.
- o $f(v_e)$: Fonction de distribution de vitesse des électrons.

Les paramètres physiques pour l'échange de charge entre deux atomes sont :

- \circ σ_a : Section efficace d'échange électronique.
- $\circ v_a$: Vitesse des atomes.
- \circ n_a : Densité d'atomes.
- \circ $f(v_a)$: Fonction de distribution de vitesse des atomes.

Le processus de recombinaison électronique sera négligé dans la suite du calcul car les sections efficaces sont de l'ordre de $10^{-22}/10^{-20}$ cm² pour des électrons thermiques. Afin simplifier les calculs, on ne prendra pas en compte le processus de recombinaison par échange de charge dû au gaz résiduel dans le tube ioniseur malgré une section efficace qui est située entre 10^{-15} et 10^{-14} cm² [Zha-99-01].

iii) <u>Taux</u> λ_{eff} <u>d'effusion des atomes</u>

Ce processus fondamental qui dépend du nombre moyen de collisions atomiques dans le tube ioniseur ($\chi_{ioniseur}$), du temps de collage et du temps de vol, a pour expression [Boe-69-01] [Kir-86-01] :

$$\lambda_{eff} = \frac{1}{\chi_{ioniseur}(\tau_c + \tau_v)}$$
(III.20)

Le temps de vol moyen, τ_v , entre deux collages sur les parois dépend de la distance moyenne entre deux collages D_{vol} , et de la vitesse thermique de l'élément effusant. La valeur moyenne

du nombre de collisions sur les parois du ioniseur peut être grossièrement exprimée à partir du rapport de la surface du ioniseur et de la surface des orifices de sortie [Hu-83-01].

iv) <u>Taux</u> λ_{ieff} <u>d'effusion des ions</u>

Le temps d'effusion ionique peut être différent du temps d'effusion atomique si les ions sont accélérés dans le tube sous l'effet d'un champ électrique. Les ions sortiront alors du tube au bout d'un temps moyen $T_{ieff} = \ln 2/\lambda_{ieff}$ qui dépendra de la masse des ions, du champ électrique et de la géométrie du tube. Ce temps sera plus court que le temps d'effusion atomique si le champ appliqué entraîne les ions vers la sortie du tube.

Par analogie avec l'expression III.20 du temps d'effusion atomique T_{eff} , la valeur du temps d'effusion ionique est égale à :

$$T_{ieff} = \ln 2.\chi_{ion}(\tau_c + \tau_v) \tag{III.21}$$

Où χ_{ion} représente le nombre moyen de collisions qu'à subit un ion, sans tenir compte des collisions atomiques préalables à sa dernière transformation atome-ion.

 τ_v et τ_c sont respectivement les temps de vol et de collage des ions sur les parois du ioniseur. Pour la suite des calculs, nous faisons l'hypothèse que les temps de vol et de collage sur les parois du ioniseur sont équivalents à ceux des atomes. L'hypothèse pour les temps de vol semble justifiée car la masse des électrons est négligeable comparée à la masse de l'atome. L'hypothèse sur les temps de collage mériterait une étude plus poussée prenant en compte l'affinité chimique et électronique des alcalins avec le carbone. La figure III.6 montre un exemple où le nombre de collisions ioniques en présence d'un champ électrique est égal à 4 et donc inférieure au nombre de collisions atomiques (9 collisions).



Figure III.6 : Collisions ioniques en présence d'un champ électrique au niveau du ioniseur.

III.2.c. Efficacité d'ionisation du tube ioniseur

L'expression de l'efficacité d'ionisation dépend de l'ensemble des paramètres physiques intervenant dans les processus d'effusion et d'ionisation. Dans le cas le plus général, on peut

écrire l'efficacité d'ionisation en fonction de l'ensemble des paramètres physiques décrits dans les paragraphes précédents :

$$\varepsilon = \frac{\chi_{ioniseur}}{\frac{1}{P_{+}} + \chi_{ioniseur} + \frac{\chi_{ioniseur}(\tau_{c} + \tau_{v})\ln2}{T_{\frac{1}{2}}} \left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{T_{ieff}}{(\tau_{c} + \tau_{v})} \left(\frac{1}{P_{+}}(1 - P_{+}) + \frac{(\tau_{c} + \tau_{v})\ln2}{T_{\frac{1}{2}}} \left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{T_{ieff}}{T_{\frac{1}{2}}} \left(\chi_{ioniseur} + \chi_{ioniseur} \left(\frac{1}{P_{+}}(1 - P_{+})\right) + \frac{\chi_{ioniseur}(\tau_{c} + \tau_{v})\ln2}{T_{\frac{1}{2}}} \left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{(\tau_{c} +$$

L'expression III.22 peut être appliquée, non seulement à un tube ioniseur de forme cylindrique, mais également à tout autre type de géométrie. Le nombre moyen de collisions atomiques $\chi_{ioniseur}$ dépendra des caractéristiques géométriques du ioniseur.

III.2.d. Influence du temps d'effusion ionique T_{ieff}

La formule ci-dessus nous permet d'appréhender l'influence des différents paramètres physiques propres à l'ionisation de surface dans un tube chaud sur l'efficacité d'ionisation du tube. Dans la suite de ce chapitre, nous allons étudier l'influence du taux d'effusion ionique dans deux cas particuliers extrêmes :

- ✓ Le champ électrique est infini : Une fois ionisés, les ions sont extraits (*Tieff* → 0). Dans ce cas particulier, le nombre moyen de collisions ioniques (noté χ_{ions}) est très inférieur au nombre moyen de collisions atomiques (noté $\chi_{atomiques}$) sur les parois du tube ioniseur.
- ✓ Le champ électrique est nul : Les ions ont une probabilité équivalente à celle des atomes d'interagir avec les parois du tube ioniseur (*Tieff* = *Teff*). Le nombre de collisions ioniques est donc équivalent au nombre de collisions atomiques.

i) <u>Application d'un champ électrique dans le tube</u>

L'influence d'une force électrique permet d'accélérer les ions dans une direction privilégiée. Les atomes, ionisés une première fois dans la source, loin du trou d'extraction de la source pourraient selon la valeur du champ électrique être extraits sans qu'ils se reneutralisent sur les parois. Puisque les ions sont accélérés vers la sortie du tube, le taux de sortie des ions λ_{ieff} est augmenté (voir figure III.7).



Figure III.7 : Diminution du nombre de collisions ioniques sur la surface du tube ioniseur à partir d'un champ électrique au niveau du tube ioniseur.

Pour un potentiel d'accélération très important, $\chi_{ions} \ll \chi_{ioniseur}$, T_{ieff} tend vers 0.

L'expression de l'efficacité totale du tube ioniseur devient :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\chi_{ioniseur}}{1 + \chi_{ioniseur} + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - W_s}{k_B T}\right) + \frac{\chi_{ioniseur}(\tau_c + \tau_v) \ln 2}{\frac{T_1}{2}} \left(1 + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - W_s}{k_B T}\right)\right)}$$
(III.23)

Pour les noyaux de longue durée de vie $(T_{1/2} \gg \chi_{ioniseur} (\tau_c + \tau_v))$, l'expression précédente peut s'exprimer pour $\chi_{ioniseur} \gg 1$ de la manière suivante:

$$\varepsilon_{ionisation} \approx \frac{\chi_{ioniseur}}{\chi_{ioniseur} + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - W_s}{k_B T}\right)}$$
(III.24)

Cette expression peut directement être comparée à l'expression de l'efficacité d'ionisation établie dans le cas de la cavité chaude (voir paragraphe III.1.b) [Kir-81-01] pour des températures comprises entre 2200 et 2800 K :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\omega \chi}{\omega \chi + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - W_s}{k_B T}\right)}$$
(III.25)

Où ω représente la probabilité qu'une particule ionisée sorte de la cavité en restant ionisée et $\chi_{ioniseur}$ est le nombre moyen de collisions atome-paroi dans la cavité.

Lorsque les ions sont extraits sans interagir avec la paroi du ioniseur, le temps d'effusion ionique tend vers zéro, ce qui correspond, dans le cas d'une cavité chaude, à une probabilité de non contact ω qui tend vers 1.



Figure III.8 : Efficacité d'ionisation du ²⁵Na ($T_{1/2}$ égal à 59s) pour un ioniseur en carbone en fonction du nombre de collisions atomiques $\chi_{ioniseur}$ et pour une probabilité que les ions sortent du ioniseur en restant ionisés proche de 100%. Ce calcul est réalisé pour une probabilité p_+ du Na égale à 18% à une température de 2000 K.

Pour un noyau de longue durée de vie, et à partir de l'expression III.22, l'efficacité d'ionisation s'exprime de la manière suivante :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\chi_{ioniseur} / (\chi_{ion} + 1)}{(1 + \chi_{ioniseur}) / (\chi_{ion} + 1)^{+} \frac{g_{0}}{g_{+}} \exp\left(\frac{I - W_{s}}{k_{B}T}\right)}$$
(III.26)

La figure III.8 représente, à une température constante de 2000 K, l'efficacité d'ionisation du ²⁵Na ($T_{1/2}$ égal à 59s) pour un ioniseur en carbone en fonction du nombre de collisions atomiques ($\chi_{ioniseur}$) et pour une probabilité ω proche de 100%.

Pour un nombre moyen de collisions atomiques très supérieur à 1, l'expression précédente devient :

$$\varepsilon_{ionisation} \approx \frac{\chi_{ioniseur}}{\chi_{ioniseur}} (\chi_{ion} + 1) + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - W_s}{k_B T}\right)$$
(III.27)

En comparant l'expression ci-dessus avec l'expression III.25, on en déduit que la probabilité ω prise en compte dans l'efficacité d'une source à ionisation de surface en régime de cavité chaude ou dans le cas d'une source où la sortie des ions est favorisée par rapport à celle des atomes, peut être calculée à partir du nombre moyen de contacts d'un ion avec la paroi χ_{ion} :

$$\omega = \frac{1}{1 + \chi_{ion}} \tag{III.28}$$

Dans le cas où χ_{ion} est très inférieur au nombre de collisions atomiques $\chi_{ioniseur}$, l'expression III.8 montre que l'efficacité de l'ioniseur augmente avec le nombre de collisions atomiques (voir figure III.8). Un gain important sur l'efficacité d'ionisation pour les éléments dont le potentiel d'ionisation est supérieur au travail de sortie Ws peut être obtenu lorsque l'on augmente le nombre de collisions atomiques.

Dans le cas du ²⁵Na ($T_{1/2}$ égal à 59s) passant dans un tube ioniseur en carbone à 2000 K, une efficacité d'ionisation d'environ 90% peut être obtenue, ce qui représente un gain d'un facteur 5 sur la probabilité d'ionisation par contact. Le facteur d'amplification N atteint alors une valeur de 50 (voir figure III.9).



Figure III.9 : Efficacité d'ionisation en fonction du facteur d'amplification pour les potassium, sodium et lithium de longue durée de vie et pour un ioniseur en carbone à une température de 2000 K.

ii) <u>Absence de champ électrique dans le tube</u>

L'ion se comporte comme un atome neutre quant à sa propagation dans la source vers l'orifice de sortie de la source d'ions (voir figure III.10).



Figure III.10 : En l'absence de champ électrique, le nombre de collisions ioniques sur la surface du tube ioniseur est équivalent au nombre de collisions atomiques.

L'expression du temps d'effusion ionique devient équivalente à l'expression du temps d'effusion atomique :

$$T_{ieff} = T_{eff} = \ln 2. \chi_{ioniseur} (\tau_c + \tau_v)$$
(III.29)

L'expression de l'efficacité totale de l'ioniseur qui dépend de l'efficacité d'effusion et de la formule de Saha-Langmuir peut donc s'écrire de la façon suivante :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\chi_{ioniseur}}{1 + \chi_{ioniseur} + \frac{T_{eff}}{T_{1/2}}} \varepsilon_{effusion.P_{+}}$$
(III.30)

Pour un tube ioniseur dont le diamètre est très inférieur à la longueur du tube, le nombre moyen de collisions atomiques $\chi_{ioniseur}$ est très supérieur à 1.

Dans cette condition, l'expression précédente devient :

$$\varepsilon_{ionisation} \approx \frac{\chi_{ioniseur}}{\chi_{ioniseur} + \frac{T_{eff}}{T_{1/2}}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{T_{eff}}{T_{1/2}}} \cdot \frac{1}{1 + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - W_s}{k_B T}\right)}$$
(III.31)

Si l'efficacité d'effusion dans l'ioniseur est de 100% ($T_{eff} \ll T_{1/2}$), l'efficacité totale de l'ioniseur tend vers la probabilité d'ionisation par contact p_+ . Autrement dit, une augmentation du nombre de collisions atomiques sur les parois du tube ioniseur n'entraînera pas une augmentation de l'efficacité de l'ioniseur. Dans le cas d'un tube sans champ électrique, la seule possibilité pour augmenter l'efficacité d'ionisation est donc de changer la nature du matériau ioniseur ou sa température, ce qui dans la pratique peut s'avérer beaucoup plus difficile que d'appliquer un champ électrique : exemple en reprenant ²⁵Na ($T_{1/2}$ égal à 59s) passant dans un tube ioniseur en carbone à 2000 K, l'efficacité d'ionisation sans champ électrique est égale à 18 %. Pour atteindre un gain d'un facteur 2 sur l'efficacité d'ionisation, il faudrait atteindre une température de 10000 K. Il est bien évidement impossible d'atteindre ces températures dans le domaine des sources d'ions.

Les ensembles cible-source de SPIRAL 1 fonctionnent à une température maximale de l'ordre de 2000 K en raison de l'évaporation du carbone, de la fiabilité et de la durée de vie de la source souhaitées. Cette température de fonctionnement ne permet pas d'obtenir un effet de cavité chaude (voir tableau III.1). Dans le cadre du développement d'un ensemble cible-source pour la production de faisceaux d'ions alcalins radioactifs sur SPIRAL 1, la source MonoNaKe est basée sur l'association d'une cible de production en carbone et d'un tube ioniseur en carbone (cavité cylindrique). Cette source [El-07-01] a été développée de façon à utiliser un champ électrique d'extraction le long du tube ioniseur en carbone pour augmenter l'efficacité d'ionisation.

III.3. L'ensemble cible-source MonoNaKe

L'ensemble cible-source MonoNaKe a été réalisé pour la production de faisceaux d'ions monochargés de sodium et potassium radioactifs. Ce système est constitué d'une cible de production et d'un ioniseur en carbone. Le travail de sortie d'une surface en carbone a été pris égal à 5 eV [Rob-74-01]. La probabilité d'ionisation par contact est de 100% pour le potassium, de 18% pour le sodium et de 5% pour le lithium. Le carbone a été choisi car il présente de bonnes caractéristiques mécaniques à des températures élevées (de l'ordre de 2000 K) et il permet également d'éviter une contamination de l'ioniseur par un dépôt de carbone issu de l'évaporation de la cible de production et des parties environnantes.

La cible en carbone a été conçue pour la production des isotopes de sodium à partir d'un faisceau primaire de ³⁶S ou de ²⁴Mg d'une énergie de 77,5 MeV/A, et également des isotopes de potassium à partir d'un faisceau de ⁴⁸Ca d'une énergie de 60,3 MeV/A ou à partir d'un faisceau primaire de ⁴⁰Ca d'une énergie de 95 MeV/A. Cette cible est usinée dans un bloc unique en carbone d'une densité de 1,78 g/cm³, produit par la société *POCO Graphite* [Poc-

99]. Il possède une taille de grain de 1 μ m. La cible de production est dimensionnée (voir tableau III.3) pour arrêter l'ensemble des fragments radioactifs produits par fragmentation des noyaux du projectile et pour supporter une puissance de faisceau primaire de 1,5 kW. Le chauffage additionnel externe de la cible est réalisé par une résistance ohmique en carbone.

Densité	1,78 g/cm3		
Nombre de lamelles	31		
Epaisseur des lamelles	0,5 mm séparées de 0,8 mm		
Demi-angle du cône	20°		
Diamètre	28 mm		
Fenêtre d'entrée en carbone	2 mm d'épaisseur pour le ³⁶ S et ²⁴ Mg 1 mm d'épaisseur pour le ⁴⁸ Ca et ⁴⁰ Ca		

Tableau III.3 : Caractéristiques techniques de la cible de production pour l'ensemble ciblesource MonoNaKe.



Figure III.11 : Ensemble cible-source MonoNaKe. Le chauffage ohmique de la cible de production et du tube ioniseur sont indépendants. La puissance déposée dans le tube ioniseur permet de contrôler la température mais également l'intensité du champ électrique.

La source à ionisation de surface présentée dans la figure III.11 est différente de la première version fabriquée à partir de l'ensemble cible-source MONOLITHE [Gib-03-02] car le tube ioniseur en carbone est chauffé indépendamment du four de la cible (voir figure III.12). Le courant est injecté dans le tube ioniseur par l'intermédiaire de l'enveloppe de la cavité de la cible.



Figure III.12 : Circuit d'alimentation en courant du four et circuit d'alimentation en courant de l'ioniseur.

On obtient ainsi une différence de potentiel entre les extrémités du tube ioniseur, potentiel dont le but est d'augmenter l'efficacité d'ionisation de la source MonoNaKe (voir paragraphe III.2.d). Le passage du courant au travers de l'enveloppe du tube permet d'obtenir une température relativement homogène sur toute la surface du ioniseur :

- Une température de 1500°C pour une puissance ioniseur de 0 W et une puissance four de 2700 W.
- Une température de 1700°C pour une puissance ioniseur de 175 W et une puissance four de 2700 W.

La puissance de l'ioniseur est estimée à partir de la puissance délivrée par l'alimentation à laquelle on a soustrait la puissance perdue dans les câbles ainsi que la puissance perdue dans les connexions d'alimentation (estimation faite à partir des sections des différentes parties du circuit).

Le tube ioniseur a une longueur de 20 mm et un diamètre de 4 mm (voir figure III.13). Il a été nécessaire de diminuer la section des pattes du tube ioniseur de manière à diminuer les pertes par conduction thermique.



Figure III.13 : Tube ioniseur utilisé pour la source à ionisation de surface MonoNaKe d'une longueur de 20 mm et d'un diamètre de 4 mm.

Cet ensemble cible-source est également constitué d'une électrode d'extraction en carbone et d'une lentille Einzel en carbone. Ces éléments optiques sont nécessaires pour extraire le faisceau d'ions monochargés tout en limitant sa divergence pour des tensions d'extraction « élevées » (supérieures à une centaine de volts) au niveau de la sortie du tube ioniseur.

En fonction des caractéristiques géométriques du tube ioniseur, le nombre de collisions moyen est estimé à partir de la relation III.9 qui dépend du rapport entre la surface du tube ioniseur et de la surface des orifices de sortie. Ce nombre moyen de collisions atomiques est égal à 20.

Dans un premier temps, l'estimation du nombre moyen de collisions atomiques à partir de la relation III.9 est une approximation. En effet, à partir d'une application issue de la référence [Mus-03-01] basée sur le code de simulation Monte Carlo Géant 4 [Gea-03-01], il est possible d'estimer le nombre de collisions atomiques dans tout l'ensemble cible-source MonoNaKe (cavité de la cible de production et tube ioniseur). Ce code de calcul prend donc en compte les collisions dans la cavité de la cible de production, entre les lamelles de la cible et dans le tube ioniseur. Pour un ioniseur d'une longueur de 20 mm et un diamètre de 4 mm, le nombre moyen de collisions atomiques $\chi_{ioniseur}$ est estimé à environ 50 (voir figure III.14). Ce résultat implique donc une valeur maximum du facteur d'amplification égal à 50.



Figure III.14 : Nombre de collisions $\chi_{ioniseur}$ en fonction de la longueur du tube ioniseur et pour un diamètre égal à 4 mm à partir de deux types de lois : une loi en cosinus et une loi isotrope. Ces simulations sont réalisées sans tenir compte de l'effet d'un gradient de pression entre l'entrée et la sortie du tube.

Le nombre $\chi_{cavit\acute{e}}$ de collisions atome-paroi dans la cavité de la cible de production sans prendre en compte le tube ioniseur est estimé à environ 2500 collisions. L'ajout d'un tube ioniseur d'une longueur de 20 mm et d'un diamètre de 4 mm augmente le nombre de collisions d'un facteur 5, soit 12500 collisions. Ceci est dû au fait qu'une particule qui rentre dans le tube ioniseur a une probabilité non négligeable de repartir en arrière, vers la cavité de la cible de production. Une fois à nouveau dans la cavité de la cible, la particule doit retrouver l'orifice du tube ioniseur dont la surface est très inférieure à la surface totale de la cavité.

III.4. Mesures et simulations thermiques de l'ensemble ciblesource MonoNaKe

Les mesures et les simulations thermiques de l'ensemble cible-source MonoNaKe ont pour but de caractériser cet ensemble cible-source en température. Cela permet de déterminer au niveau de la cible de production mais également au niveau du ioniseur la température en fonction de la puissance déposée.

Dans un premier temps, les simulations thermiques de l'ensemble cible-source MonoNaKe sont réalisées à partir du code SYSTUS [Sy-01] par le bureau d'étude du GANIL. Les résultats de ces simulations caractérisent l'ensemble du système de production à partir du dépôt de puissance dans le four en carbone et dans le tube ioniseur en carbone. La figure III.15 montre les différents flux thermiques à partir de la cavité de la cible de production et du

tube ioniseur. A partir de ces résultats, les zones d'échanges thermiques importants sont mises en évidence pour l'ensemble du système de production. Les principales pertes sont situées à l'arrière de la cible et au niveau des connexions du ioniseur (côté électrode d'extraction).



Figure III.15 : Représentation des flux thermiques à partir du code SYSTUS pour l'ensemble cible-source MonoNaKe. Les principales pertes sont situées à l'arrière de la cible de production et au niveau des connexions du tube ioniseur (côté électrode d'extraction).

Dans un second temps, les températures du tube ioniseur et de la cavité ont été mesurées à partir d'un micro-pyromètre en fonction de la puissance de chauffage ohmique du four et de la puissance de chauffage ohmique du tube ioniseur. Le micropyromètre [Py-01] est un appareil capable de pointer précisément la surface dont on veut déterminer la température. En effet, il permet de mesurer la température en comparant le rougissement du point de mesure avec celui d'un filament chauffé étalonné en température. Pour déterminer la température de la surface visée, il faut tenir compte de son émissivité (elle dépend de la nature du matériau utilisé). Les surfaces vues par le micropyromètre sont toutes des surfaces en carbone d'une émissivité supposée égale à 0,8 [Em-01]. Un dispositif expérimental [Pi-07-01] a été mis en place dans le but d'avoir une vision au travers du tube ioniseur d'une partie des lamelles de la cible de production, de la cavité de la cible de production, du début du ioniseur (côté cible de production), du milieu du ioniseur et de la fin du ioniseur. Ces mesures réalisées hors ligne ne tiennent pas compte du dépôt de puissance au niveau de la cible de production dû au faisceau primaire.

Les températures issues de la simulation ont été comparées aux mesures thermiques réalisées sur le banc de test SIRa après l'expérience (voir paragraphe III.5) sous faisceau de ⁴⁸Ca.



Figure III.16 : Température maximale du tube ioniseur en fonction de la puissance ioniseur pour une puissance four égale à 2700 W issue des simulations à partir du code SYSTUS et des mesures de température.



Figure III.17 : Température maximale du tube ioniseur en fonction de la puissance four pour une puissance ioniseur égale à 168 W issue des simulations à partir du code SYSTUS et des mesures de température.

La figure III.16 représente la température maximale du tube ioniseur en fonction de la puissance ioniseur pour une puissance du four égale à 2700 W. Cette puissance four correspond à la puissance maximale utilisée durant les mesures d'efficacité totale de production (voir paragraphe III.6). A cette puissance du four, la température maximale du ioniseur varie entre 1500 et 1700°C pour une puissance ioniseur comprise entre 0 et 176 W. L'écart maximum entre les valeurs de températures mesurées et les valeurs de températures simulées est égal à 9 %. Il est donc important de noter que dans ce domaine de températures la

probabilité p_+ d'échanger un électron avec une paroi en carbone varie seulement de 16 % à 18 %.

Les mêmes simulations présentent cependant un écart de 400°C (voir figure annexe chapitre III) par rapport aux valeurs expérimentales mesurées à la fin du tube ioniseur (côté extraction). Cet écart montre la difficulté de réaliser une étude thermique complète d'un ensemble cible-source : prise en compte dans les simulations, des contacts, des caractéristiques des matériaux et des différentes géométries des pièces utilisées et dans les mesures : du point de visée, du pyromètre utilisé et paramètre d'emissivité.

La figure III.17 compare les valeurs expérimentales et simulées de la température du tube ioniseur en fonction de la puissance du four pour une puissance ioniseur égale à 168 W. Pour une puissance du four comprise entre 1500 et 2700 W, la température du ioniseur varie entre 1500 et 1700°C.



Figure III.18 : Température maximale de la cible de production en fonction de la puissance du tube ioniseur et en fonction de la puissance du four issue des simulations à partir du code SYSTUS (pour $P_{ioniseur}$ de 0 W à 300 W) et des mesures de température (pour $P_{ioniseur}$ égale à 160 W).

La figure III.18 montre que la température de la cible de production varie peu (un écart maximum de 12%) avec la puissance déposée dans le tube ioniseur pour une puissance four comprise entre 1,5 et 8 kW. La température mesurée de la cible de production est égale à 1700°C pour une puissance four de 2700 W et pour une puissance ioniseur égale à 160 W. L'écart maximum entre la température de la cible de production mesurée pour une puissance du ioniseur de 160 W et la température de la cible de production simulée pour une puissance du ioniseur de 168 W est égal à 7%. D'après les simulations thermiques, la puissance déposée dans le four doit être égale à 8 kW pour atteindre une température au niveau de la cible de production égale à 2100°C. Durant les mesures d'efficacité totale de production sur SIRa en fonction de la puissance du four, la température de la cible de production, sans tenir compte de la puissance déposée par le faisceau primaire, est égale à environ 1700°C. Ces mesures de caractérisation de l'ensemble cible-source MonoNaKe ont été réalisées à partir d'un faisceau primaire de ⁴⁸Ca de 60,3 MeV/A à une puissance maximale de 150 W (soit une intensité du faisceau primaire de 1 μ Ae). Cette limitation a été nécessaire en raison de l'utilisation de la salle SIRa prévue quatre mois après cette expérience.



Figure III.19 : Température maximale de la cible de production en fonction de la puissance du four et en fonction de la puissance déposée par un faisceau primaire de ⁴⁸Ca simulée à partir du code SYSTUS (pour P_{faisceau} égale à 0 W, 15 W, 75 W, et 150 W).

Pour une puissance maximum de 150 W déposée dans la cible de production par un faisceau primaire de ⁴⁸Ca, la température de la cible de production est égale à 1800°C pour une puissance four de 2700 W (voir figure III.19). L'écart par rapport à la température de la cible mesurée sans dépôt de puissance du faisceau primaire pour une puissance four de 2700 W est de 6%.



Figure III.20 : Température maximale du tube ioniseur pour une puissance ioniseur de 168 W en fonction de la puissance du four et pour une puissance déposée de 150W par un faisceau primaire de ⁴⁸Ca simulée à partir du code SYSTUS.

A une puissance faisceau de 150 W de ⁴⁸Ca, la température du tube ioniseur varie entre 1500 et 1700°C pour une puissance four comprise entre 1,5 et 2,7 kW (voir figure III.20). Pour une puissance de 150 W de ⁴⁸Ca déposée, la température du tube ioniseur n'est pas influencée par ce dépôt de puissance dans la cible de production. D'après les simulations thermiques, la température du tube ioniseur peut atteindre 2000°C pour une puissance four égale à 6 kW.
Cependant, ce résultat n'a pas été confirmé par des mesures thermiques pour une puissance four de 6 kW.

Ces simulations thermiques ont également montré que dans le cas où l'on désire utiliser un faisceau primaire de ³⁶S pour produire des sodium riches en neutrons, la puissance devra être limitée à 1,5 kW (voir peut être moins). En effet, pour cette valeur de puissance, la température de la cible peut atteindre une température limite de 2500°C. Cet ensemble cible-source sera donc utilisable pour une puissance de faisceau primaire inférieure à 1,5 kW, soit un facteur 2 en moins par rapport à la puissance maximale de ³⁶S pouvant être fournie au GANIL.

Une des possibilités pour utiliser des puissances de faisceau primaire plus élevées serait de supprimer le four et le réflecteur en carbone permettant ainsi d'agrandir la cavité de la cible. Cependant, cette solution présente l'inconvénient de ne plus disposer d'un chauffage ohmique annexe dans le cas où la puissance du faisceau primaire serait insuffisante pour chauffer la cible de production.

A la suite de cette caractérisation thermique de l'ensemble du système de production MonoNaKe, les mesures d'efficacité totale de production de potassium (${}^{36,37,47}K^{1+}$), sodium (${}^{25,26,27,28,29,30}Na^{1+}$) et lithium (${}^{8,9}Li^{1+}$) radioactifs ont donc été effectuées à partir d'un faisceau primaire de ${}^{48}Ca$ à 60,3 MeV/A.

III.5. Estimation des taux de production des noyaux d'alcalins radioactifs arrêtés dans la cible de production

L'ensemble cible-source MonoNaKe ayant été caractérisé à partir d'un faisceau primaire de ${}^{48}Ca^{19+}$ de 60,3 MeV/A et d'une puissance maximale de 150 W, les taux de production sont donc estimés pour l'ensemble des isotopes produits dans la cible.

Le faisceau de ⁴⁸Ca nous permet de produire à la fois :

- \blacktriangleright Les potassium riches en neutrons et déficients en neutrons par fragmentation du ⁴⁸Ca.
- \blacktriangleright Les sodium riches en neutrons et déficients en neutrons par fragmentation du ⁴⁸Ca.
- Les lithium de masse 8 et 9 à partir de la fragmentation de la cible de production en carbone.

L'efficacité totale de cet ensemble cible-source est mesurée uniquement pour un état de charge 1^+ de certains isotopes de sodium, potassium et lithium. Cet ensemble de données devrait nous permettre de caractériser la source 1^+ et également d'extrapoler pour des puissances de faisceau plus importantes les taux de production des ions 1^+ pour les alcalins sur SPIRAL 1.

La densité du carbone utilisé pour la cible de production est de 1,78 g/cm³. La fenêtre d'entrée de la cavité de la cible de production a une épaisseur en carbone de 1 mm. Les taux des noyaux alcalins ont été estimés à partir du code de calcul Sigma-Sira utilisant la paramétrisation de Sümmerer [Su-00-01]. La fragmentation du projectile a été considérée

comme ayant lieu pour des énergies du faisceau incident couvrant la gamme de 60,3 à 20 MeV/A.

Les taux de production de K et Na sont calculés en considérant uniquement la fragmentation du projectile (voir tableau III.4 et tableau III.5). Tous les K et Na produits dans la paroi de la cavité de la cible de production s'arrêtent dans les lamelles de la cible de production en carbone. Contrairement aux isotopes de K et de Na, les isotopes de Li sont produits à partir de la fragmentation de la cible. En effet, les ^{8,9,11}Li produits par fragmentation du projectile (voir tableau III.6), en raison de leur long parcours, ne s'arrêtent pas dans la cible de production. Les ^{8,9}Li produits par fragmentation de la cible sont arrêtés dans les lamelles de la cible (à l'exception de ceux produits dans la fenêtre d'entrée).

⁴⁸ Ca 400W		Taux total (pps)	Taux total (pps)	Taux attendu dans cible (pps)
	Range MeV/A	60,3-0	20-0	60,3-20
	T1/2			
⁴⁷ K	17,5s	3,13.10 ⁸	$4,88.10^7$	$2,64.10^8$
⁴⁶ K	105s	4,68.10 ⁸	7,31.10 ⁷	3,95.10 ⁸
⁴⁵ K	17,3mn	5,41.10 ⁸	8,44.10 ⁷	$4,57.10^{8}$
⁴⁴ K	22,13mn	5,43.10 ⁸	8,48.10 ⁷	4,58.10 ⁸
⁴³ K	22,3h	4,71.10 ⁸	7,36.10 ⁷	3,97.10 ⁸
42 K	12,3h	3,26.10 ⁸	$5,10.10^7$	$2,75.10^{8}$
³⁸ K	7,636mn	2,38.10 ⁶	3,72.10 ⁵	$2,01.10^{6}$
^{38m} K	923ms			
³⁷ K	1,22s	2,46.10 ⁵	3,85.10 ⁴	2,08.10 ⁵
³⁶ K	342ms	1,90.10 ⁴	$2,97.10^3$	$1,60.10^4$
³⁵ K	190ms	$1,45.10^3$	$2,27.10^2$	$1,22.10^3$

Tableau III.4 : Estimation des taux de production des isotopes de potassium, arrêtés dans la cible en carbone, pour un faisceau primaire de ⁴⁸Ca de 60,3 MeV/A d'une puissance de 400 $W(2,626 \mu Ae)$.

⁴⁸ Ca 400W		Taux total (pps)	Taux total (pps)	Taux attendu dans cible (pps)
	Range MeV/A	60,3-0	20-0	60,3-20
	T1/2			
³⁵ Na	1,5ms	0,9	0,15	0,75
³⁴ Na	5,5ms	9,9	1,55	8,35
³³ Na	8,2ms	98	15	83
³² Na	13,2ms	8,96.10 ²	$1,40.10^2$	$7,56.10^2$
³¹ Na	17ms	7,37.10 ³	$1,15.10^3$	$6,22.10^3$
³⁰ Na	48ms	5,38.10 ⁴	8,40.10 ³	4,54.10 ⁴
²⁹ Na	44,9ms	3,43.10 ⁵	5,35.10 ⁴	$2,90.10^5$
²⁸ Na	30,5ms	$1,86.10^{6}$	$2,90.10^5$	$1,57.10^{6}$

²⁷ Na	301ms	8,37.10 ⁶	1,30.10 ⁶	$7,07.10^{6}$
²⁶ Na	1,072s	$3,02.10^7$	$4,71.10^{6}$	$2,55.10^7$
²⁵ Na	59,1s	8,33.10 ⁷	1,30.10 ⁷	7,03.10 ⁷
²⁴ Na	14,95h	1,63.10 ⁸	$2,54.10^7$	$1,38.10^8$
^{24m} Na	20.20ms			
²² Na	2,6 y	9,61.10 ⁷	$1,50.10^7$	8,11.10 ⁷
²¹ Na	22,49s	$2,84.10^7$	4,43.10 ⁶	$2,40.10^7$
²⁰ Na	447,9ms	$4,71.10^{6}$	7,35.10 ⁵	$3,97.10^{6}$

Tableau III.5 : Estimation des taux de production des isotopes de sodium, arrêtés dans la cible en carbone, pour un faisceau primaire de ⁴⁸Ca de 60,3 MeV/A d'une puissance de 400 $W(2,626 \mu Ae)$.

	Range MeV/A	Taux fragmentation cible de production (pps) 43,8-20
	T1/2	
¹¹ Li	8,5ms	0
⁹ Li	178ms	1,61.10 ⁶
⁸ Li	838ms	$7,58.10^{6}$

Tableau III.6 : Estimation des taux de production des isotopes de lithium obtenus par fragmentation des noyaux de la cible de production en carbone pour un faisceau de ⁴⁸Ca de 60,3 MeV/A et d'une puissance de 400 W (2,626 μ Ae).

III.6. Résultats expérimentaux

III.6.a. Efficacité totale de production des faisceaux d'ions alcalins radioactifs en fonction des paramètres de fonctionnement de la source MonoNaKe (puissance du four et puissance du tube ioniseur)

Le but de cette expérience est de déterminer l'efficacité totale de l'ensemble ciblesource MonoNaKe pour des isotopes de sodium, de potassium et de lithium en fonction de la puissance de chauffage ohmique déposée au niveau du four et de la puissance de chauffage ohmique déposée au niveau du ioniseur.

L'efficacité totale du système s'exprime de la manière suivante :

$$\varepsilon_{totale} = \frac{\tau_{mesurés}}{\tau_p}$$
(III.32)

Où τ_p est le taux (pps) produit dans la cible (voir tableaux III.4, III.5 et III.6) et $\tau_{mesurés}$ est le taux de production mesuré en sortie du dispositif de production. La mesure de $\tau_{mesurés}$ est réalisée à partir du système de détection installé sur le banc de test SIRa. L'implantation des noyaux radioactifs est effectuée dans la bande de mylar ou sur une feuille d'aluminium devant

les scintillateurs plastiques. Un détecteur germanium est utilisé pour la détection γ ou un scintillateur plastique pour la détection β [Lec-97-01].

Des mesures de taux de production des faisceaux de ^{36,37,47}K¹⁺, ^{25,26,27,28,29}Na¹⁺, ^{8,9}Li¹⁺ et également de ^{28,29,30,31}Al¹⁺ ont donc été obtenues en fonction de la puissance du four et de la puissance du ioniseur. Les barres d'erreurs sur les taux de production sont calculées à partir de l'erreur sur l'intensité du faisceau primaire, l'erreur liée au détecteur, l'erreur due au fit du pic gamma et l'erreur sur le taux d'embranchement.

<u>i) Efficacité totale du ²⁶Na¹⁺ ($T_{1/2}$ égal à 1,072 s) en fonction de la puissance de l'ioniseur</u>

La figure III.21 montre pour le ²⁶Na¹⁺ la variation de l'efficacité totale en fonction de la puissance de l'ioniseur. La puissance du four est maintenue constante à 2700 W ce qui correspond du point de vue thermique à une température comprise entre 1600 et 1700°C au niveau de la cible de production. L'intensité du faisceau est de 220 ± 20 nAe (soit 30 W de puissance faisceau). On observe que l'efficacité atteint un plateau à 18% pour une puissance du ioniseur d'environ 135 W. La puissance ohmique apportée au ioniseur est donc utile. En effet, le gain est un facteur 9 sur l'efficacité totale de production pour une puissance ioniseur comprise entre 0 et 160 W. Dans ce domaine de puissance, la température du ioniseur varie seulement entre 1600 et 1710°C, et la probabilité p_+ pour le sodium varie seulement entre 16 et 18 %. Une si faible variation de la température ne peut pas expliquer une telle variation sur l'efficacité d'ionisation et donc sur l'efficacité totale de production du ²⁶Na¹⁺.



Figure III.21 : Variation de l'efficacité totale de production du ²⁶Na¹⁺ en fonction de la puissance du ioniseur. L'intensité du faisceau primaire est de 220 ±20 nAe (30 W de puissance faisceau) et la puissance du four de 2700 W (soit une température de 1670°C au niveau de la cible).

Pour ces mesures, l'intensité du faisceau primaire a été maintenue constante à 200 ± 20 nAe. Cela correspond à une puissance du faisceau primaire de 30 W (à l'exception du point P_{ioniseur} =138 W, P_{four}=1277 W où l'intensité du faisceau primaire a été plus importante : 400nAe).

La figure III.22 montre la variation de l'efficacité totale de production du ²⁶Na¹⁺ en fonction de la puissance du four et pour différentes puissances du ioniseur. On observe :

- Un plateau sur l'efficacité totale de production qui commence à partir d'une puissance four d'environ 2500 W (soit une température de 1600°C au niveau de la cible de production), indiquant qu'a priori pour le ²⁶Na, il n'est plus nécessaire d'augmenter la puissance du four et donc que l'efficacité de diffusion et effusion dans la cible et sa cavité est proche de 100%.

- Qu'aucun gain n'est observé pour une puissance ioniseur passant de 138 à 162 W. Cela indiquerait qu'il n'est probablement plus nécessaire d'augmenter la puissance du ioniseur au delà de 138 W.

- Un point pour une puissance four égale à 1968 W et une puissance ioniseur égale à 96 W donne une efficacité plus basse (efficacité totale de production égale à 1%) que la tendance de la courbe. Ce point a été mesuré à nouveau après le point à 2700 W (soit une température de la cible de production de 1670°C) et a redonné une valeur d'efficacité totale de 6,8%. On peut supposer que l'équilibre thermique au niveau de la cible de production n'était pas atteint pour la première mesure (temps d'attente après la monté en température trop court).



Température cible °C

Figure III.22 : Efficacité totale de production du ²⁶*Na*¹⁺ *en fonction de la puissance du four et à différentes puissances du ioniseur (0 W, 96 W, 138 W et 162 W).*

III.6.b. Efficacités obtenues en fonction des durées de vie des isotopes de sodium (^{25,26,27,28}Na)

Température cible °C

La production des isotopes de ^{25,26,27,28}Na¹⁺ a été mesurée pour différentes puissances du four. La figure III.23 montre les efficacités totales en fonction de la puissance du four. La puissance du ioniseur était de 162 W pour les ^{25,27,28}Na¹⁺ et 138 W pour le ²⁶Na¹⁺.



Figure III.23 : Efficacité totale de production des ${}^{25,26,27,28}Na^{1+}$ en fonction de la puissance four et pour une puissance ioniseur de 162 W pour les isotopes ${}^{25,27,28}Na^{1+}$ et de 138 W pour le ${}^{26}Na^{1+}$.

Pour le ²⁵Na¹⁺, plusieurs points sont superposés et correspondent à l'analyse de différentes transitions « gamma » du noyau (1611,7 keV ; 974,7 keV ; 585,03 keV et 389,7 keV).

Les différences des efficacités totales en fonction des isotopes sont principalement dues à l'effet des pertes d'efficacité dues à la compétition entre le temps de vie du noyau et la durée des processus pour diffuser dans la cible de production et effuser dans la cavité de la cible. Les taux de production dans la cible sont calculés avec le programme SIGMA-SIRA basé sur les formules de fragmentation de Summerer [Su-00-01]. L'erreur sur les taux de production estimés est probablement plus importante pour un noyau loin de la stabilité (²⁸Na) que pour un noyau proche de la stabilité (²⁵Na). Les barres d'erreurs représentées ne prennent pas en compte cette erreur.

III.6.c. Efficacités totales de production de la source MonoNaKe pour les isotopes de potassium : ${}^{47}K^{1+}$ (T_{1/2}=17,5 s) et ${}^{37}K^{1+}$ (T_{1/2}=1,23 s)

Les taux de ${}^{47}K^{1+}$ (T1/2=17,5s) et de ${}^{37}K^{1+}$ (T1/2=1,23s) en sortie du dispositif de production ont été mesurés pour différentes puissances four et puissances ioniseur. La figure III.24 montre l'efficacité totale pour le ${}^{47}K^{1+}$ en fonction de la puissance du four et ce pour deux valeurs de puissance du ioniseur : 0 et 30 W. Un facteur 1,5 est gagné en augmentant la puissance ioniseur de 0 à 30 W. L'efficacité totale augmente avec la puissance du four et atteint une valeur de 70 % à une puissance four de 2750 W soit une température de la cible de 1700°C. Le plateau n'est pas clairement atteint en fonction de la puissance du four. La figure III.25 présente l'efficacité totale de production du ${}^{47}K^{1+}$ en fonction de la puissance du ioniseur. La valeur plateau de l'efficacité totale correspond à une puissance ioniseur de 30 W. Une augmentation de la température de la cible de production permettrait de confirmer que le plateau est atteint.



Figure III.24 : Efficacité totale de production du ${}^{47}K^{1+}$ en fonction de la puissance four et pour deux valeurs de puissance du ioniseur (0 W et 30 W).



*Figure III.25 : Efficacité totale de production du*⁴⁷*K*¹⁺*en fonction de la puissance ioniseur et pour une puissance du four de 2700 W.*



Température ioniseur °C

Figure III.26 : Efficacité totale de production du ${}^{47}K^{1+}$ ($T_{1/2}$ égal à 17,5s) et du ${}^{37}K^{1+}$ ($T_{1/2}$ égal à 1,23s) en fonction de la puissance du four et pour une puissance du ioniseur de 30 W.

La figure III.26 montre une évolution de l'efficacité totale de production du ⁴⁷K¹⁺ et du ³⁷K¹⁺ en fonction de la puissance four et d'une puissance du ioniseur de 30 W. L'écart entre les deux efficacités totales de production est dû à la différence entre les durées de vie du 4^{4} K¹⁺ $(T_{1/2} \text{ égal à } 17,5s)$ et du ${}^{37}K^{1+}$ $(T_{1/2} \text{ égal à } 1,23s)$ et à la différence entre leurs efficacités de diffusion et d'effusion.

Efficacités totales de production de la source MonoNaKe III.6.d. pour les isotopes de lithium : ${}^{8}Li^{1+}(T_{1/2}=838 \text{ ms})$ et ${}^{9}Li^{1+}(T_{1/2}=178 \text{ ms})$

Pour les ⁸Li¹⁺ et ⁹Li¹⁺, l'efficacité totale de production n'atteint pas de plateau pour une puissance du four de 2700 W (1700°C au niveau de la cible) et une puissance ioniseur de 168 W (1700°C max au niveau du ioniseur, voir figure III.27).



Température cible °C

Figure III.27 : Efficacité totale de production des ${}^{8}Li^{l+}$ et ${}^{9}Li^{l+}$ en fonction de la puissance four et pour une puissance du ioniseur de 168 W.



Figure III.28 : Efficacité totale de production des ⁸Li¹⁺ et ⁹Li¹⁺ en fonction de la puissance déposée au niveau du ioniseur et pour une puissance du four de 2700 W.

La figure III.28 montre pour les ^{8,9}Li¹⁺ la variation de l'efficacité totale de production en fonction de la puissance du ioniseur. Le début du plateau commence à être atteint vers 165 W.

Le maximum de l'efficacité de production des ^{8,9}Li¹⁺est atteint pour une puissance du ioniseur supérieure à celle des isotopes de potassium. Dans le cas des ^{47,37}K¹⁺, le maximum de l'efficacité de production est atteint pour une puissance du ioniseur égale à 30 W. Cette différence est due à la différence de potentiel de première ionisation entre le potassium (I égal à 4,341 eV), le lithium (I égal à 5,392 eV) et le sodium (I égal à 5,139 eV).

III.7. Effet d'un champ électrique d'extraction sur l'efficacité d'ionisation

L'efficacité totale de production du ²⁵Na¹⁺ (T_{1/2} égal à 59 s) à partir de l'ensemble cible-source MonoNaKe est égale à 43 % pour une puissance four de 2350 W et une puissance du ioniseur égale à 160 W. Dans ces conditions, la température au point le plus chaud de la cible a été mesurée à 1593°C (cette mesure a été réalisée hors ligne et sans prendre en compte le dépôt de puissance du faisceau primaire). Pour chacun des isotopes produits, l'efficacité totale de production est décrite par la relation suivante :

$$\varepsilon_{Totale} = \varepsilon_{diff} \cdot \varepsilon_{eff} \cdot \varepsilon_{ionisation} \cdot \varepsilon_{transport}$$
(III.33)

Où :

 ε_{diff} représente l'efficacité de diffusion.

 ε_{eff} est l'efficacité d'effusion entre les lamelles de la cible de production et dans la cavité de la cible.

 $\varepsilon_{transport}$ est l'efficacité de transport jusqu'au point de détection mesurée à une valeur proche de 100 % pour le ²³Na¹⁺ (isotope stable).

Dans l'hypothèse où l'efficacité de diffusion et d'effusion dans la cible et sa cavité sont proches de 100 %, une efficacité totale de 43 % conduit à une efficacité d'ionisation égale à 43 %. Dans l'hypothèse où les efficacités de diffusion et d'effusion sont inférieures à 100 %, l'efficacité d'ionisation du 25 Na¹⁺ déduite de ces mesures est donc supérieure ou égale à 43 %. Cette valeur est supérieure à la probabilité p_+ égale à 18 % estimée à partir de la loi de Saha-Langmuir pour une température de la surface de l'ioniseur de 2000 K. L'augmentation de l'efficacité totale en fonction de la puissance de l'ioniseur ne peut donc être due qu'à une augmentation du champ électrique dans le tube ioniseur.

Dans le cas du potassium, la probabilité p_+ calculée à une température de 2000 K est égale à 96 % pour un ioniseur en carbone. Les pertes sur l'efficacité totale de production du ${}^{47}K^{1+}$ (l'efficacité totale maximale mesurée est de 70 %) et sur l'efficacité totale de production du ${}^{37}K^{1+}$ (l'efficacité totale maximale mesurée est de 12 %) sont dues aux pertes liées aux processus de diffusion et/ou d'effusion.

III.8. Comparaison des efficacités totales de production des ions 1⁺ de sodium et de lithium par rapport à celles obtenues à partir de la source MonoLithe

Une première source MonoLithe à ionisation de surface 1^+ a déjà été testée au GANIL à partir d'un faisceau primaire d'³⁶Ar de 95 MeV/A [Gib-03-02]. La puissance de chauffage maximale utilisée était de 5,93 kW au niveau du four. L'ioniseur était uniquement chauffé par sa proximité avec le four de la cible de production. Aucun champ électrique n'était appliqué dans le tube ioniseur. Dans ces conditions, le temps d'effusion atomique est équivalent au temps d'effusion ionique. Par conséquent le facteur d'amplification N est égal à 1. Le tableau III.7 montre la comparaison des efficacités maximales obtenues pour ces deux sources. On observe un gain sur l'efficacité totale de production d'un facteur 4,8 pour le ²⁵Na¹⁺ et d'un facteur compris entre 9 et 13 pour les ^{26,27,28}Na¹⁺ et ceci pour une température de la cible de production moins importante (pour MonoLithe, la température de la cible de production est de 1880°C et la puissance du ioniseur est de 0 W à comparer avec MonoNaKe où la température maximale de la cible de production est mesurée à 1674°C et la puissance du ioniseur est de 162 W).

	MonoLithe Tcible=1880°C Tioniseur=1800°C	MonoNaKe Tioniseur=1685°C Tcible=1674°C $(^{26,28}Na^{1+})$ et Tcible=1593°C $(^{25,27}Na^{1+})$	Gain
25 Na ¹⁺ (59s)	9,3% (2)	43% (6)	4,8
26 Na ¹⁺ (1s)	2,3% (0,4)	20% (2)	8,7
27 Na ¹⁺ (301ms)	0.9% (0,1)	11,7% (2,5)	13
$\frac{28}{10}$ Ng ¹⁺ (30mg)	0 18% avtrapolás	1.6%(0.1)	0

	MonoLithe Tcible=1880°C Tioniseur=1800°C	MonoNaKe Tcible=1674°C Tioniseur=1685°C	Gain
${}^{8}\text{Li}^{1+}$ (838ms)	1.2% (0,2)	4.9% (0,3)	4
${}^{9}\text{Li}^{1+}$ (178ms)	0,14% (0,02)	0.99% (0,05)	7

Tableau III.8: Comparaison des efficacités totales de production du ^{8,9}Li¹⁺ obtenues avec MonoNaKe par rapport à celles obtenues à partir de MonoLithe.

Le gain sur l'efficacité totale de production est égal à 4 pour le ${}^{8}Li^{1}$, et égal à 7 pour le ${}^{9}Li^{1+}$ (voir tableau III.8). Les températures de la cible de production et du tube ioniseur étant relativement proches entre les deux sources à ionisation de surface, la différence entre les efficacités totales de production est expliquée par un effet du champ électrique au niveau du tube ioniseur. Le champ électrique, d'une valeur de 0,2 V/mm, imposé au niveau du tube ioniseur permet d'obtenir un facteur d'amplification N supérieur à 1.

III.9. Quelle est la valeur du facteur d'amplification pour la source à ionisation de surface MonoNaKe ?

III.9.a. Détermination du facteur N d'amplification pour la source MonoNaKe

La comparaison entre les taux de production des isotopes de sodium, et de lithium mesurés pour la source à ionisation de surface MonoNaKe et ceux mesurés pour la source à ionisation de surface MonoLithe a permis d'en déduire que le facteur d'amplification N est supérieur à 1.

Les taux maximums de production des isotopes de sodium et de lithium ont été mesurés pour une puissance déposée dans le tube ioniseur égale à 168 W soit une tension d'extraction égale à environ 2 Volts. Il est possible de calculer la probabilité pour un ion d'être extrait du tube ioniseur à partir d'un champ électrique sans toucher la surface du ioniseur. L'hypothèse est que l'ion quitte la surface du ioniseur avec une vitesse radiale Vy (voir figure III.29) dont la distribution de Maxwell Boltzmann est la suivante (on néglige la composante de la vitesse de l'ion selon l'axe du tube par rapport à la vitesse que lui procure le champ électrique) :

$$f(V_y) = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T}} \exp\left(-\frac{1}{2}\frac{mV_y^2}{k_B T}\right)$$
(III.34)



Figure III.29 : Composante longitudinale Vx et et radiale Vy de l'ion à la surface du ioniseur

La probabilité d'extraire du ioniseur un ion sans que celui-ci touche la paroi du tube ioniseur, revient à calculer la probabilité $P(V_y < V_{ym})$ pour que la vitesse radiale de l'ion soit inférieure à la vitesse limite *Vym* à partir de la relation suivante (voir figure III.30) :

$$P(x) = P(V_y < V_{ym}) = \frac{\int_{0}^{V_{ym}} f(V_y) dV_y}{\int_{0}^{\infty} f(V_y) dV_y}$$
(III.35)

Où $V_{ym} = \frac{D}{2} \sqrt{\frac{qE_{extraction}}{2m(L-x)}}$, avec *D* le diamètre du tube ioniseur, *L* la longueur du tube

ioniseur, *m* la masse du noyau d'intérêt, *x* la position à laquelle l'ion a été créé et $E_{extraction}$ représente le champ électrique d'extraction au niveau du tube ioniseur.



Figure III.30 : Probabilité P(x) pour un ion de ne pas toucher la surface du tube ioniseur de MonoNaKe s'il est produit à la position x. Tension d'extraction : 2 V, température de 2000 K, longueur du tube de 20 mm et diamètre de 4 mm. Cette probabilité est calculée à partir de la relation III.35.

La probabilité moyenne ω qu'un ion atteigne la sortie du tube après avoir été produit en x et sans retoucher la surface du tube ioniseur peut être exprimée de la manière suivante en fonction de la longueur *L* de l'ioniseur :

$$\omega = \frac{\int_{0}^{L} P(x) dx}{\int_{0}^{L} dx}$$
(III.36)

Pour une tension du tube ioniseur égale à environ 2 Volts (ce qui correspond dans notre cas à une puissance $P_{ioniseur}$ environ égale à 168 W) et une longueur du tube ioniseur égale à 20 mm, la valeur de ω est de 35 %. Cette valeur de ω varie très peu avec la masse de l'élément d'intérêt. Par conséquent, le nombre moyen de collisions ioniques au sein de l'ioniseur χ_{ion} calculé à partir de la relation III.28 est égal à 2.

Pour un nombre de collisions atomiques dans le tube ioniseur compris entre 20 et 50, le facteur d'amplification N ($\omega \chi_{ioniseur}$) est donc estimé entre 7 et 18. Au vu du nombre de collisions atomique, le calcul de l'efficacité d'ionisation est effectué en négligeant le facteur de perte lié au processus d'effusion au sein du tube ioniseur (le rapport entre le temps moyen d'effusion atomique dans le ioniseur et la durée de vie du noyau est supposé négligeable).

L'efficacité d'ionisation pour un ioniseur en carbone et à une température de 2000 K est alors comprise entre 61 et 80% pour les isotopes de sodium et entre 26 et 48 % pour les isotopes de lithium. La probabilité p_+ calculée à partir de la loi Saha-Langmuir pour le sodium à une température de 2000 K est de 18% et pour le lithium de 5%. Le gain sur l'efficacité d'ionisation du sodium est donc compris entre 3 et 4 et le gain sur l'efficacité d'ionisation du lithium est situé entre 5 et 10. Pour les isotopes de potassium, la probabilité p_+ à une

température de 2000 K et pour un ioniseur en carbone est égale à 96 %. Dans ce cas, le champ électrique au niveau de l'ioniseur ne peut apporter de gain significatif sur l'efficacité d'ionisation.

III.9.b. Estimation de l'efficacité de diffusion-effusion dans la cible et sa cavité pour les isotopes de sodium, de lithium et de potassium

A partir des efficacités d'ionisation de l'ordre de 61 à 80 % pour les isotopes de sodium et de l'ordre de 26 à 48 % pour les isotopes de lithium calculées au paragraphe précédent et des efficacités totales de production mesurées (tableaux III.7 et III.8), il est possible de déduire l'efficacité de diffusion-effusion des atomes dans la cible et sa cavité (tableaux III.9 et III.10) et de la comparer à celle obtenue à partir de l'ensemble cible-source MonoLithe [Gib-03-02].

Elément	N (MonoNaKe)	^ɛ ionisation (MonoNaKe)	[€] diff . [€] eff MonoNaKe	<pre> Ediff .Eeff Tsimulée cible = 1880°C MonoLithe </pre>
²⁵ Na ¹⁺ (59s) Tcible=1593°C	7 - 18	61 %- 80 %	70 % (10)-53 % (7)	88%
²⁶ Na ¹⁺ (1s) Tcible=1674°C	7 – 18	61 % - 80 %	32 % (3) – 25 % (3)	24%
27 Na ¹⁺ (301ms) Tcible=1593°C	7 – 18	61 % - 80 %	20 % (4) – 15 % (3)	13%
²⁸ Na ¹⁺ (30ms) Tcible=1674°C	7 – 18	61 % - 80 %	2,6 % (0,2) -2 % (0,1)	2,3%

Tableau III.9 : Produits de l'efficacité de diffusion et de l'efficacité d'effusion ε_{diff} . ε_{eff} pour les 25,26,27,28 Na déduits des efficacités totales et d'ionisation pour deux valeurs du facteur d'amplification N égal à 7 et N égal à 18. Comparaison aux valeurs obtenues dans la référence [Gib-03-02].

Elément	N (MonoNaKe)	^ɛ ionisation (MonoNaKe)	ε _{diff} .ε _{eff} MonoNaKe	<i>€_{diff} .€_{eff}</i> Tsimulée cible = 1880°C MonoLithe
⁸ Li ¹⁺ (838ms) Tcible=1674°C	7 - 18	26 % - 48 %	19 % (2) - 10% (1)	29%
⁹ Li ¹⁺ (178ms) Tcible=1674°C	7 - 18	26 % - 48 %	4% (0,4) - 2% (0,2)	5,6%

Tableau III.10 : Produits de l'efficacité de diffusion et de l'efficacité d'effusion $\varepsilon_{diff} \cdot \varepsilon_{eff}$ pour les ^{9,8}Li déduits des efficacités totales et d'ionisation pour une valeur du facteur d'amplification N égal à 7 et N égal à18. Comparaison aux valeurs obtenues dans la référence [Gib-03-02]. Pour un écart en température de la cible de production d'environ 200°C (290°C pour les ^{25,27}Na) entre les systèmes MonoNaKe et MonoLithe de production, les efficacités de diffusion-effusion sont donc relativement proches pour les ^{26,27,28}Na pour une valeur de N égale à 18.

La cible de production de MonoLithe est également fabriquée à partir de carbone de taille de grain de 1 μ m et l'épaisseur des lamelles de la cible est égale à 0,5 mm. Les dimensions de la cavité de la cible sont relativement proches (32 mm de diamètre, une longueur de 48 mm et un orifice de sortie de 3 mm de diamètre pour MonoLithe, 36 mm de diamètre, une longueur de 46 mm et un orifice de sortie de 4 mm pour MonoNaKe). Ces caractéristiques géométriques peuvent contribuer à l'écart entre les efficacités de diffusion-effusion.

Le tableau III.11 présente le produit de l'efficacité de diffusion-effusion pour le ³⁷K et ⁴⁷K. Aucune comparaison n'est réalisée avec les taux de production de l'ensemble cible-source MonoLithe car le faisceau primaire d'³⁶Ar utilisé dans cette expérience ne permettait pas de produire les produire par fragmentation du projectile.

Elément	N (MonoNaKe)	^ε ionisation (MonoNaKe)	ε _{diff} .ε _{eff} MonoNaKe
⁴⁷ K ¹⁺ (17,5s) Tcible=1674°C	7 - 18	96%	75% (17)
37 K ¹⁺ (1,23s) Tcible=1552°C	7 – 18	96%	13% (4)

*Tableau III.11 : Produit de l'efficacité de diffusion et de l'efficacité d'effusion pour le*⁴⁷*K et* ³⁷*K déduit de l'efficacité d'ionisation et de l'efficacité totale de production.*

III.10. Temps de relâchement des isotopes de sodium, potassium et lithium en fonction de la température de la cible

III.10.a. Mesures du temps de relâchement pour le 37 K (T_{1/2}: 1,226 s)

Des mesures de temps de temps de relâchement (voir figure III.31), telles que celles décrites dans le chapitre TARGISOL ont été réalisées à différentes températures de la cible pour la production du ³⁷K¹⁺ (1464 °C, 1606 °C et 1732°C). Le tableau III.12 montre les efficacités totales de production obtenues à ces températures en régime continu. Ces températures sont proches de celles des phases de collection et de relâchement.

Efficacités totales de production	Température de la cible (°C)
5,7% (2)	1426 ± 30°C
12% (2)	1551 ± 30°C
25% (5)	1670 ± 30°C

Tableau III.12 : Efficacités totales de production du ${}^{37}K^{1+}$ mesurées pour des températures proches de celles des phases de collection et de relâchement.



Figure III.31 : Mesure de temps de relâchement : les phases de collection (à gauche) et de relâchement (à droite) pour le ³⁷K pendant un temps t égal à 15 s pour une température de 1464°C, 1606°C et 1732°C. Les taux sont normalisés par rapport à la durée de la mesure et à l'intensité du faisceau primaire.

Durant la phase de collection et la phase de relâchement, la valeur plateau diminue d'un facteur 3 lorsque la température de la cible de production diminue de 1732 à 1464°C.

Ce résultat confirme que la perte d'un facteur 4 sur l'efficacité totale de production (voir tableau III.12), est principalement due à la perte d'un facteur 4 sur l'efficacité de diffusion-effusion du ³⁷K.

III.10.b. Mesures du temps de relâchement pour le ⁸Li ($T_{1/2}$: 839 ms)

Des mesures de temps de collection et de temps de relâchement (voir figure III.32) ont également été réalisées à différentes puissances four pour la production du ⁸Li¹⁺ : 1481°C, 1622°C et 1720°C. Le tableau III.13 montre les efficacités totales de production obtenues à ces températures en régime continu. Ces températures sont proches de celles des phases de collection et de relâchement.

Efficacités totales de production	Température de la cible (°C)
0,11% (0,01)	1422 ± 30°C
3,42% (0,30)	1626 ± 30°C
4,90% (0,30)	1671 ± 30°C

Tableau III.13 : Efficacités totales de production du ⁸Li^{<i>l+} mesurées pour des températures proches de celles des phases de collection et de relâchement.



Figure III.32 : Mesure de temps de relâchement : les phases de collection (à gauche) et de relâchement (à droite) pour le ⁸Li pendant un temps t égal à 15s pour une température de 1481°C, 1622°C et 1720°C. Les taux sont normalisés par rapport à la durée de la mesure et à l'intensité du faisceau primaire.

La hauteur du plateau diminue d'un facteur 46 lorsque la température diminue d'une valeur de 1720°C à une valeur de 1481°C. Ceci confirme que la perte d'un facteur 45 mesurée à partir des efficacités totales de production à une température de 1422°C et à une température de 1671°C est uniquement liée aux processus de diffusion et effusion.

III.10.c. Mesures du temps de relâchement pour le 26 Na (T_{1/2} : 1,072 s)

De même, les temps de collection et de relâchement (voir figure III.33) ont également été mesurés à différentes puissances four pour la production du ²⁶Na¹⁺ : 1481°C, 1622°C et 1720°C. Le tableau III.14 présente les efficacités totales de production obtenues à ces températures en régime continu.

Efficacités totales de production	Température de la cible (°C)
3 % (0,3)	1425 ± 30°C
19 % (2)	1596 ± 30°C
20 % (2)	1669 ± 30°C

Tableau III.14 : Efficacités totales de production du ²⁶Na¹⁺ mesurées pour des températures proches de celles des phases de collection et de relâchement.



Figure III.33 : Mesure de temps de relâchement : les phases de collection (à gauche) et de relâchement (à droite) pour le ²⁶Na pendant un temps t égal à 15s pour une température de 1481°C, 1622°C et 1720°C. Les taux sont normalisés par rapport à la durée de la mesure et à l'intensité du faisceau primaire.

D'après le tableau III.14, l'efficacité totale de production du ²⁶Na¹⁺ diminue d'un facteur 6 lorsque la température de la cible de production passe d'une valeur de 1669 à 1425°C. Ceci est donc confirmé par les valeurs des taux mesurés en régime permanent pour une température de la cible (durant les phases de collection et de relâchement).

Pour les températures de 1622 et de 1720°C, il est important de remarquer que l'écart entre les phases de collection et l'écart entre les phases de relâchement sont relativement faibles (environ 1,5). L'efficacité totale de production du ²⁶Na¹⁺ commence à saturer pour une température de 1622°C. Ce résultat est en accord avec les efficacités totales de production mesurées en fonction de la température.

Pour le ²⁶Na¹⁺, le comportement en fonction de la température est donc différent de celui des ⁸Li et ³⁷K pour lesquels la saturation n'est pas observée à une température de l'ordre de 1600°C. Pour une durée de vie comparable et à température identique, le ²⁶Na présente une efficacité de diffusion-effusion plus importante que le ⁸Li et le ³⁷K.

Une analyse des phases de collection et de relâchement du ³⁷K, du ⁸Li et du ²⁶Na à partir d'une méthode d'analyse du temps de réponse [El-07-02] de l'ensemble cible-source MonoNaKe est en cours. Elle devrait permettre d'extraire le temps de relâchement $(t_D = \frac{\ln 2}{\lambda_D})$ de la cible de production en fonction de la température et ainsi de déduire

l'évolution du coefficient de diffusion des atomes de 37 K, le 8 Li et le 26 Na dans une cible en carbone de taille de grains de 1 µm en fonction de la température de la cible.

III.11. Comparaison entre les taux de production attendus sur SPIRAL 1 et les autres installations : TRIUMF et ISOLDE

Le tableau III.15 compare les taux qu'il est possible d'obtenir à GANIL avec ceux obtenus avec d'autres installations : TRIUMF [Br-06-01] et ISOLDE [Is-01]. Les taux présentés pour GANIL sont les taux mesurés à 150 W et extrapolés à 400 W (colonne 3) et les taux évalués par extrapolation (colonne 4) en prenant le faisceau primaire disponible pour SPIRAL 1 qui conduirait au plus fort taux de production (en l'occurrence, un faisceau primaire de ⁴⁰Ca d'une puissance de 800 W pour la production des ^{36,37}K, et un faisceau primaire de ³⁶S d'une puissance de 1,5 kW pour la production des ^{25,26,27,28,29,30}Na).

		GANIL	GANIL	ISOLDE	TRIUMF
	T _{1/2}	Exp. ⁴⁸ Ca * normalisé 400W (pps)	Extrapolé au meilleur faisceau (pps)	Ions1 ⁺ /s/microA [Is-01]	Ions/s [Br-06-01]
		Р	OTASSIUM		
³⁶ K	342ms	2,40.10 ³	4,60.10 ⁶ ⁴⁰ Ca/800W	2,50.10 ⁵	
³⁷ K	1,226s	7,50.10 ⁴	1,20.10 ⁸ ⁴⁰ Ca/800W	7.10 ⁶	6,40.10 ⁷
⁴⁷ K	17,5s	$1,80.10^8$		2.10^{6}	$4,80.10^2$
	SODIUM				
²⁵ Na	59,1s	3,00.10 ⁷	3,30.10 ⁸ ³⁶ S/1,5kW	2,90.10 ⁸	3,20.10 ⁹
²⁶ Na	1,072s	6,50.10 ⁶	6,00.10 ⁸ ³⁶ S/1,5kW		1,20.10 ⁸
²⁷ Na	301ms	9,50.10 ⁵	6,75.10 ⁶ ³⁶ S/1,5kW	8,50.10 ⁶	2,90.10 ⁶
²⁸ Na	30,5ms	1,30.10 ⁴	0,77.10 ⁵ ³⁶ S/1,5kW	9,60.10 ⁵	4,10.10 ⁵
²⁹ Na	44,9ms	4,30.10 ³	1,98.10 ⁴ ³⁶ S/1,5kW	1,50.10 ⁵	4,60.10 ³
³⁰ Na	48ms	3,90.10 ²	1,42.10 ³ ³⁶ S/1,5kW	5,10.10 ⁴	8,70.10 ²
³¹ Na	17,0ms			4,20.10 ³	
³² Na	13,2ms			1,40.10 ²	
³³ Na	8,2ms			1,30.10 ¹	

³⁴ Na	5,5ms			2,80 SC-yields	
LITHIUM					
⁸ Li	838 ms	1,10.10 ⁶		5,80.10 ⁸	8,30.10 ⁸
⁹ Li	178 ms	3,47.10 ⁴		3,60.10 ⁷	9,40.10 ⁷
¹¹ Li	8,5 ms			7,00.10 ³	2,20.10 ⁴

Tableau III.15 : Taux de production des isotopes de K, Na et Li produits et normalisésà 400 W par l'ensemble cible-source MonoNaKe et extrapolation pour le faisceau primaire lemieux adapté. Comparaison avec les taux de production obtenus à ISOLDE et à TRIUMF.* La mesure expérimentale a été effectuée à 150 W.

L'ensemble cible-source MonoNaKe a aussi permis de produire des isotopes d'aluminium. Le tableau III.16 compare les taux de production des ^{28,29,30,31}Al¹⁺ de la source MonoNaKe extrapolés pour un faisceau primaire de ⁴⁸Ca d'une puissance de 400 W et les taux de production issus des installations ISOLDE et TRIUMF.

	T1/2	GANIL Exp. ⁴⁸ Ca * 400W (pps)	ISOLDE Ions 1 ⁺ /s/µA	TRIUMF Ions/s
²⁸ Al	2,24min	9,7.10 ⁴	$2,7.10^{6}$	$3,5.10^{7}$
²⁹ Al	6,56min	$1,8.10^{6}$	$6,5.10^{6}$	$3,4.10^7$
³⁰ Al	3,6s	5,7.10 ⁴	9,0.10 ⁴	1,6.10 ⁵
³¹ Al	644ms	$7,1.10^4$	$7,6.10^2$	$6,8.10^3$

Tableau III.16 : Taux de production des isotopes de Al (28,29,30,31 Al) produits et normalisés à
400 W par l'ensemble cible-source MonoNaKe à partir d'un faisceau primaire de 48 Ca.
Comparaison avec les taux de production obtenus à ISOLDE et à TRIUMF.
* La mesure expérimentale a été effectuée à 150 W.

III.12. CONCLUSION et PERSPECTIVES

L'ensemble cible-source MonoNaKe a permis de produire des faisceaux d'ions 25,26,27,28,29,30 Na¹⁺, 36,37 K¹⁺ et des 8,9 Li¹⁺ à partir d'un faisceau primaire de 48 Ca à 60,3 MeV/A d'une puissance de 150 W. Ce système a également permis d'obtenir des ions 28,29,30,31 Al¹⁺ avec un faisceau primaire de 150 W de 48 Ca et dans certains cas à des taux comparables aux taux obtenus à ISOLDE et TRIUMF (voir paragraphe III.11).

L'analyse des efficacités totales de production en fonction de la puissance déposée dans le tube ioniseur a permis de mettre en évidence et de quantifier l'intérêt de la présence d'un champ électrique dans le tube ioniseur, et de déduire un facteur d'amplification N de la source à ionisation de surface MonoNaKe compris entre 7 et 18. Par rapport à la première version d'une source à ionisation de surface développée au GANIL, MonoLithe, les efficacités totales de production pour les isotopes de sodium et de lithium ont augmenté d'un facteur 4 à 13 selon l'isotope considéré, pour une température de la cible de production relativement peu élevée puisqu'elle est située entre 1600 et 1700°C.

Le gain en efficacité d'ionisation obtenu grâce au champ électrique est très supérieur à celui qu'il serait possible d'obtenir par une augmentation de température du tube ioniseur. Il permet donc de réduire l'endommagement thermique du tube et d'augmenter son espérance de vie tout en permettant d'obtenir des performances d'ionisation importantes.

Le ioniseur a été utilisé hors faisceau à une puissance maximale de 300 W. Cette puissance est plus élevée que celle utilisée durant l'expérience (180 W). Il ne semble toutefois pas utile d'augmenter jusqu'à une valeur de 300 W, puisque les plateaux d'efficacité totale semblent être atteints.

On a pu observer que les efficacités de diffusion-effusion du sodium, potassium et lithium de courte durée de vie dans la cible et sa cavité restent faibles, mais devraient pouvoir être augmentées en élevant la température de la cible.

Cet ensemble cible-source ne semble pas adapté pour la production de ¹¹Li¹⁺ (T_{1/2} égale à 8,5 ms). Pour un faisceau primaire d'¹⁸O à 75MeV/A [Pel-01-01], le parcours d'arrêt du ¹¹Li dans une cible en carbone d'une densité de 1,78 g/cm³ est environ égal à 35 mm, alors que la cible de production de MonoNaKe a une épaisseur totale de 16 mm. Pour l'élaboration d'un système de production pour le ¹¹Li, il serait préférable d'augmenter l'épaisseur de la cible, voire de la séparer en une première cible dite « cible de production » refroidie et en une seconde cible dite « cible de diffusion » dans laquelle les ¹¹Li seraient arrêtés.

Le nombre calculé de collisions atomiques qui ont lieu dans la cavité cible est relativement important (environ 12500 collisions) et contribue à limiter l'efficacité d'effusion en dehors de la cavité. Du fait que le conteneur est en carbone porté à haute température, ses parois agissent comme une surface ionisante. Il serait donc intéressant d'imposer un champ électrique dans la cavité, orienté des parois vers l'orifice de sortie pour favoriser la sortie des ions et ainsi augmenter l'efficacité d'effusion.

A partir des efficacités totales de production obtenues avec l'ensemble cible-source MonoNaKe, mesurées en fonction de la température de la cible de production mais également à partir des mesures de temps de relâchement, il devrait être possible de déterminer les paramètres physiques de diffusion et d'effusion pour les différents alcalins produits en utilisant la méthode d'analyse « globale » utilisée dans la thèse de S. Gibouin [Gib-03-02] mais également en utilisant la méthode d'analyse des temps de réponse d'un système de production d'ions radioactifs. Ce travail est en cours.

Compte tenu des taux de production obtenus, sous forme d'ions 1⁺, à partir de l'ensemble cible-source MonoNaKe pour les isotopes de sodium (^{25,26,27,28,29,30}Na), potassium (^{37,47}K) et lithium (^{8,9}Li), ce système pourrait être installé dans la casemate de production de SPIRAL 1. Cette installation nécessiterait de combler par des éléments optiques la place libre laissée par l'absence de la source ECR Nanogan III. Actuellement, la cible de production a été testée à partir d'un faisceau primaire de ⁴⁸Ca d'une puissance de 150 W. D'après les simulations thermiques, la température de la cible de production atteint 2500°C pour une puissance déposée de 1,5 kW d'un faisceau primaire de ³⁶S, sans chauffage additionnel. La puissance maximum pour un faisceau de ³⁶S pouvant être fournie par le GANIL est égale à 3 kW. Il est donc indispensable de redimensionner la cible de production en carbone et de modifier son environnement (four et containeur) pour permettre à la cible de supporter une

Enfin, dans le but de fournir des faisceaux d'ions alcalins radioactifs sur SPIRAL 1, les ions doivent être multi-chargés de façon à pouvoir les accélérer à plus haute énergie par le cyclotron CIME. La source à ionisation de surface MonoNaKe a donc dû être associée à une source ECR Nanogan III, du même type que celle utilisée sur SPIRAL 1. Ce travail fait l'objet du chapitre suivant.

Chapitre IV :

Production d'ions alcalins radioactifs multichargés dans le cadre de SPIRAL 1 par la

Méthode $1^+/N^+$ Directe

IV.1. Transformation $1^+/N^+$ ou « charge breeding »

Pour augmenter l'énergie d'un faisceau d'ions, une possibilité consiste à augmenter l'état de charge des ions avant de les injecter dans un accélérateur. Pour augmenter l'état de charge d'un faisceau d'ions, trois méthodes ont montré leur efficacité :

- ✓ L'injection dans une source d'ions EBIS (Electron Beam Ion Source) [Am-03-01].
- ✓ L'injection dans une source d'ions à Résonance Cyclotronique Electronique (ECR) [Lam-02-01] (appelée « méthode $1^+/N^+$ »).
- ✓ Le passage à travers une cible mince solide ou gazeuse (appelée Stripping).

Les deux premières méthodes utilisent l'augmentation de l'état de charge des ions à partir de l'interaction entre des ions « lents » et des électrons « rapides ». Dans le cadre de la méthode $1^+/N^+$, les électrons rapides sont générés par le chauffage d'un plasma ECR à l'aide d'une onde électromagnétique. Dans le cas de l'injection des ions 1^+ dans une source EBIS, les électrons rapides sont produits à partir d'un canon à électrons. La troisième méthode utilise l'augmentation de l'état de charge des noyaux à partir de l'interaction entre des ions « rapides » et les électrons de la matière. Elle nécessite des ions prés-accélérés afin d'utiliser des épaisseurs de matière réalistes. Ce qui n'est pas le cas à SPIRAL 1, où il n'y a pas d'accélérateur avant le cyclotron CIME.

Méthodes utilisées	Avantages	Inconvénients
Injection d'ions 1 ⁺ dans une source EBIS	Court temps d'ionisation Hauts états de charge	Durée de vie de la cathode Faibles intensités 1 ⁺ Synchronisation
Injection d'ions 1 ⁺ dans une source ECR	Haute intensité faisceau 1 ⁺ Souplesse de réglage Injection continue	Pollution du spectre Etat de charge limité

Une comparaison entre les deux premières méthodes [Ke-04-01] est réalisée dans le tableau IV.1.

Tableau IV.1 : Avantages et inconvénients des méthodes d'augmentation d'état de charge.

Au GANIL, la méthode choisie pour la production de faisceaux d'ions alcalins radioactifs multichargés (isotopes de potassium, sodium et lithium) est la méthode $1^+/N^+$. La solution technique diffère de celle développée au LPSC Grenoble ou de celle utilisée à ISOLDE [Is-01] [Fri-06-01] car pour minimiser les modifications engendrées par son installation dans l'actuelle casemate de production de SPIRAL 1, et pour répondre aux contraintes de place disponible et de manutention de l'ensemble de production après utilisation (stockage dans un conteneur de plomb standard), cette solution n'utilise pas de spectromètre de masse entre la sortie de la source 1^+ et l'entrée de la source N^+ . L'ensemble $1^+/N^+$ doit donc avoir un encombrement similaire à celui de l'actuel ECS de SPIRAL 1, et respecter, d'une part, la disposition de la cible par rapport au faisceau primaire et d'autre part la sortie de la source N^+ par rapport à la ligne de faisceau basse énergie. De façon générale, l'absence de spectromètre conduit à dégrader la pureté d'un faisceau 1^+ mais ce dispositif est destiné à la production

d'alcalins qui sont initialement produits par une source à ionisation de surface (MonoNaKe) et cette source est par principe sélective. De plus, les ions multichargés produits par l'ECS de SPIRAL 1 sont accélérés dans un cyclotron qui présente un pouvoir de séparation en masse de l'ordre de 10^{-4} . Le préjudice causé à la pureté du faisceau N⁺ par l'absence de tri magnétique pour les ions 1⁺ (1/250) semble donc acceptable pour un premier dispositif. Une pollution potentielle du faisceau peut être due au dégazage engendré par la proximité d'une source et d'une cible portées à haute température. Si les parties chaudes désorbent relativement vite, leur environnement peut donner lieu à un flux de dégazage plus faible mais sur un temps beaucoup plus long. Pour que ce flux de dégazage n'atteigne pas la source N⁺ et ne pollue pas le faisceau N⁺, il est important de l'évacuer au plus près de sa zone de production. Dans l'espace situé entre la sortie de la source 1⁺ et l'entrée de la source N⁺ et d'un système de pompage en plus des servitudes existantes tels que l'injection de l'onde HF, le tube de polarisation ou encore l'injection de gaz support.

Une fois transportés jusqu'à l'entrée de la source N^+ , les ions doivent être capturés par le plasma. La capacité de capture de la source N^+ doit donc être maximum. Cette capacité de capture est d'autant plus importante dans le cas d'éléments condensables tels que les alcalins, car ils risquent de traverser la source et de coller sur ses parois s'ils ne sont pas capturés rapidement. Comment se fait cette capture ? Quelles sont les caractéristiques de la source N^+ à prendre en compte ? Quelles sont les caractéristiques du faisceau 1⁺ à prendre en compte ?

Après un rappel des expériences de validation du principe $1^+/N^+$ menées au LPSC de Grenoble qui nous ont incité à tenter la production d'ions alcalins par la méthode $1^+/N^+$ directe, ce chapitre présente les processus qui interviennent dans la capture et l'augmentation de charge dans la source ECR N⁺. Vient ensuite une description du dispositif $1^+/N^+$ réalisé au GANIL sur la base de la source MonoNaKe (décrite dans le chapitre précédent) et de la source NANOGAN III [Ler-04-01] actuellement utilisée pour l'ionisation des atomes de gaz sur SPIRAL 1. Les résultats expérimentaux obtenus lors d'expériences hors ligne et en ligne pour la production d'ions potassium et sodium multichargés sont présentés et analysés.

IV.1.a. Tests en stable en fonction de différentes sources 1⁺ : Validation du processus

Le principe de la transformation $1^+/N^+$ [Ar-00-01] [Cha-98-01] [Cha-99-01] tel que celui développé au LPSC de Grenoble est basé sur l'injection à basse énergie d'un faisceau d'ions monochargés dans le plasma d'une source ECR. Toute la difficulté de cette méthode réside dans le ralentissement des ions 1^+ à une vitesse proche de celle des ions du plasma ECR (quelques eV) pour les capturer. Plusieurs expériences [Tam-96-01] [Tam-97-01] [Cha-00-01] [Lam-98-01] [Lam-02-01] et [Lam-06-01], ont montré la faisabilité de la méthode avec des noyaux stables (LPSC) et radioactifs ISOLDE produits par différentes sources d'ions (source ECR, source à ionisation de surface et source à cathode creuse) associées à une source ECR N⁺ (MINIMAFIOS et PHOENIX).

Au LPSC de Grenoble, la source 1^+ est portée à la haute tension (entre 15 et 20 kV). Les ions 1^+ sont extraits et transportés dans une ligne située au potentiel de la terre. Cette ligne de transport est constituée d'un dipôle d'analyse, afin de sélectionner selon le rapport charge sur masse les ions 1^+ qui sont injectés dans le plasma de la source ECR, et d'émittance-mètres permettant de mesurer les caractéristiques optiques du faisceau. La source ECR N⁺ est portée à la même tension que la source 1⁺. Un tube au potentiel de la terre pénètre dans la source N⁺. Les ions 1⁺ sont ralentis par le champ électrique induit par le gradient de potentiel entre ce tube et la chambre à plasma de la source N⁺. Une légère différence de potentiel ΔV réglable est appliquée entre les deux sources pour optimiser la capture du faisceau 1⁺ par le plasma ECR (voir figure IV.1).

Les résultats (voir tableau IV.2 et IV.3) obtenus durant ces travaux ont démontré par des mesures d'efficacité de transformation $1^+/N^+$: $\mathcal{E}_{1+/N+}$ (produit entre l'efficacité de capture des ions 1^+ et de l'efficacité d'ionisation pour un état de charge donné), la faisabilité de cette méthode pour la production de faisceaux d'ions radioactifs multichargés.

Transformation 1 ⁺ /N ⁺	Source 1 ⁺	<i>ɛ</i> _{1+/<i>N</i>+}	Temps de réponse 1 ⁺ /N ⁺ (ms)	ε _{globale} (sur tous les états de charge)
$^{40}\mathrm{Ar}^{1+}/^{40}\mathrm{Ar}^{8+}$	Nanogan 10 GHz	10,4%	80	48%
⁸⁴ Kr ¹⁺ / ⁸⁴ Kr ¹¹⁺	Mono1000 2,45 GHz	9%	180	50%
⁸⁵ Rb ¹⁺ / ⁸⁵ Rb ¹⁵⁺	Ionisation de surface	5,5%	225	35%
⁶⁴ Zn ¹⁺ / ⁶⁴ Zn ¹¹⁺	Microgan 10 GHz	4,2%	100	20%
$^{26}{\rm Mg^{1+}}/^{26}{\rm Mg^{5+}}$	Microgan 10 GHz	2,8%	35	13%

Tableau IV.2 : Efficacité de la transformation I^+/N^+ (\mathcal{E}_{1+}/N_+), temps de réponse du processus de conversion I^+/N^+ et efficacité globale pour différents types de noyaux (gaz nobles, métalliques et alcalins).

$\frac{1}{1^{+}/N^{+}}$	$\varepsilon_{1+/N+}$
²⁰ Ne ¹⁺ / ²⁰ Ne ⁴⁺	7,5%
$^{39}\text{K}^{1+}/^{39}\text{K}^{6+}$	6,5%
$^{23}Na^{1+}/^{23}Na^{6+}$	1,3%
120 Sn ¹⁺ / 120 Sn ²²⁺	3,9%
$^{109}\mathrm{Ag}^{1+}/^{109}\mathrm{Ag}^{17+}$	3%
⁵⁶ Fe ¹⁺ / ⁵⁶ Fe ¹⁰⁺	2,4%

Tableau IV.3 : Efficacité de la transformation $1^+/N^+$ pour différents types de noyaux (gaz nobles, métalliques et alcalins). Couplage de sources ECR (Mono1000 et Microgan) ou de sources à ionisation de surface avec la source Phoenix [Lam-06-01].



Figure IV.1 : Schéma de principe du dispositif I^+/N^+ du LPSC à Grenoble. La source d'ions multichargés est la source ECR Phoenix

Les efficacités du processus de transformation $1^+/N^+$ (produit de l'efficacité de capture et de l'efficacité d'ionisation pour un état de charge N⁺) pour les éléments condensables sont relativement inférieures à celles des gaz nobles. Par contre, l'efficacité du processus de transformation $1^+/N^+$ des alcalins (rubidium, potassium et sodium) est comprise entre 1,3 et 6,5 % alors que concernant les gaz nobles l'efficacité de transformation $1^+/N^+$ est comprise entre 7,5 et 10,4 %. Cette différence est due aux pertes par collage des noyaux alcalins sur les parois de la source ECR à température ambiante (300 K). En effet, les gaz nobles peuvent traverser plusieurs fois le plasma de la source ECR avant d'être ionisés.

IV.1.b. Processus d'ionisation

Les sources d'ions à Résonance Cyclotronique Electronique ont été développées il y a environ 40 ans [Gel-82-01] et n'ont cessé depuis de progresser. Elles sont principalement utilisées pour produire des faisceaux d'ions stables, dans de nombreuses installations à travers le monde. Ces sources d'ions permettent une grande variété d'états de charge, et elles sont particulièrement bien adaptées à l'ionisation des gaz nobles. Leur principe repose sur l'ionisation d'atomes par collision avec des électrons énergétiques accélérés par résonnance cyclotronique électronique. Les électrons et les ions sont confinés dans un volume magnétique d'où ils s'échappent au travers du cône de pertes qui dépend des caractéristiques de la source, du plasma et des caractéristiques de vitesse des particules chargées.

Le champ magnétique est le plus souvent obtenu par la superposition d'un champ axial à un champ radial.



Figure IV.2 : Champ magnétique axial total de la source ECR Nanogan III créé par trois couronnes d'aimants permanents (une couronne à l'injection, une couronne à l'extraction et une couronne centrale) [Ler-04-01].



Figure IV.3 : Schéma de l'hexapôle central et des deux couronnes d'aimant permanent à l'injection et à l'extraction. La troisième couronne centrale entourant l'hexapôle n'est pas représenté.

Dans le cas de Nanogan III, le champ axial (voir figure IV.2) est créé par trois couronnes d'aimants permanents, une couronne à l'injection, une couronne à l'extraction et une couronne centrale. Le champ radial est créé à partir un hexapôle (voir figure IV.3).Il est utilisé dans le cas de Nanogan III pour obtenir un champ magnétique nul sur l'axe et un maximum au niveau des parois de la source ECR (voir figure IV.4).



Figure IV.4 : Champ magnétique radial de la source ECR Nanogan III créé par un hexapôle.

En l'absence de champ électrique, et de collisions inélastiques, l'énergie cinétique E_e des électrons est constante. Le moment magnétique μ_e est également invariant. Les expressions de l'énergie cinétique des électrons et du moment magnétique sont :

$$E_e = E_{//} + E_{\perp} = \frac{1}{2} m_e \left(V_{//}^2 + V_{\perp}^2 \right)$$
(IV.1)

$$\mu_e = \frac{E_\perp}{B} \tag{IV.2}$$

Lorsqu'un électron se déplace le long d'une ligne de champ magnétique dont le champ est croissant, la composante perpendiculaire de l'énergie cinétique E_{\perp} augmente tandis que la composante parallèle de l'énergie cinétique E_{\parallel} diminue. Pour un champ magnétique maximum, la composante parallèle de l'énergie cinétique devient très inférieure à la composante perpendiculaire. Dans ce cas, l'électron est repoussé vers les faibles valeurs de champ magnétique. L'électron oscille entre les deux maxima du champ axial qui jouent le rôle de miroir magnétique. Le rapport du miroir est défini par la relation suivante :

$$R = \frac{B_{\text{max}}}{B_{\text{min}}}$$
(IV.3)

Dans une source ECR, l'ionisation se produit par collision des atomes avec les électrons ou avec les ions du plasma. Les collisions atomes-ions sont négligeables. Les électrons doivent donc atteindre une énergie supérieure ou égale au potentiel d'ionisation fonction de l'état de charge désiré. Les électrons sont accélérés par résonnance cyclotronique électronique obtenue par l'injection d'une onde électromagnétique de haute fréquence dans la source. La relation entre la fréquence et le champ magnétique est donnée par :

$$B_R = \frac{2\pi . m_e}{q_e} v_{HF} \tag{IV.4}$$

Lorsque cette fréquence de giration des électrons autour des lignes de champ est égale à la fréquence de l'onde électromagnétique injectée, il y a un transfert d'énergie entre l'onde et l'électron. La valeur du champ magnétique résonnant doit être inférieure à la valeur du champ au niveau des parois de la chambre ECR et doit être comprise entre la valeur maximale et la valeur minimum du champ magnétique axial.

Une des caractéristiques importantes du plasma d'une source ECR est son potentiel plasma plasma ϕ_p . La différence de mobilité des électrons et des ions dans le plasma est à l'origine de ce potentiel.

IV.1.c. Principe de la capture du faisceau d'ions monochargés

A la sortie de la source d'ions monochargés (source ECR 1^+ , source à ionisation de surface, source FEBIAD), le faisceau d'ions 1^+ est transporté jusqu'au plasma de la source ECR N^+ au moyen d'éléments optiques.

Pour être capturés par le plasma, les ions 1^+ transportés à une énergie de quelques keV dans la ligne de faisceau 1^+ doivent être ralentis afin que leur énergie soit proche de celles des ions du plasma, de l'ordre de l'électronvolt, et que cette énergie soit suffisante pour leur permettre de franchir le potentiel plasma. Une fois capturés, les ions 1^+ peuvent être ionisés par les électrons chauds du plasma jusqu'à un état de charge N^+ . Les ions multichargés effusent ensuite vers la zone d'extraction où ils sont extraits par un champ électrique.

Plusieurs phénomènes peuvent intervenir dans le processus qui amène les ions 1^+ à être capturés : l'interaction des ions 1^+ avec le champ électrique créé par la différence de potentiel entre le tube ralentisseur et la chambre plasma, l'interaction avec le potentiel plasma, l'interaction à longue portée des ions 1^+ avec les ions et électrons du plasma et aussi

l'interaction des ions avec le champ magnétique de la source. Ces différents aspects sont discutés dans les paragraphes qui suivent.

i) <u>Le ralentissement électrostatique</u>

A l'entrée de la source ECR, les ions 1⁺ sont ralentis électrostatiquement de quelques keV jusqu'à quelques eV de façon à ce qu'ils franchissent la barrière de potentiel plasma Φ_p (voir figure IV.5). Ils sont ensuite thermalisés par collisions successives avec les ions du plasma de la source ECR. Dans le cas où l'énergie des ions incidents est très supérieure à Φ_p , le plasma devient totalement « transparent ».



Figure IV.5 : *Injection du faisceau d'ions* 1^+ *au sein du plasma ECR.*

L'énergie des ions 1⁺ lors de leur injection dans la source ECR peut être fixée par une différence de potentiel (notée $\Delta V = V_{S1+}-V_{SN+}$) entre la source 1⁺ et la source N⁺ [Cha-00-01]. En définitif, les ions 1⁺ sont extraits à une tension V+ ΔV . La figure IV.6 représente l'efficacité du processus 1⁺/N⁺ réalisé au LPSC de Grenoble (voir paragraphe V.1.a) pour différents éléments (gaz nobles et condensables) en fonction de la valeur de ΔV . Pour les gaz nobles (xénon, argon, néon et krypton), il est intéressant d'observer que l'efficacité du processus 1⁺/N⁺ atteint un plateau pour une valeur de ΔV proche du potentiel plasma. Contrairement aux éléments condensables, l'efficacité présente un maximum pour un ΔV proche du potentiel plasma et une largeur à mi-hauteur de quelques eV. Cette différence de comportement est essentiellement due au fait que les gaz nobles peuvent continuer à effuser dans la chambre de la source puis être ionisés, tandis que les condensables qui ne sont pas directement capturés par le plasma de la source ECR, restent collés sur les parois froides de la source ECR.



Figure IV.6 : Efficacité du processus $1^+/N^+$ réalisé au LPSC de Grenoble pour des gaz nobles et des éléments condensables en fonction du ΔV .

ii) <u>La thermalisation sur les ions du plasma</u>

Le calcul du coefficient de ralentissement d'un ion par un plasma [Del-94-01] est basé sur le modèle de diffusion de Rutherford (voir annexes du chapitre IV). Les hypothèses sont les suivantes : un ion « a », de charge Z_a et de vitesse W_a interagit avec un plasma constitué d'électrons et d'ions « b » de charge moyenne $\langle Z_b \rangle$ et de vitesse moyenne \overline{W}_b . Au sein du plasma, la température des électrons est considérée égale à la température des ions. Pour un plasma d'une source ECR, cette dernière hypothèse n'est pas correcte. En effet, la température électronique est de quelques keV comparée à la température ionique qui est de quelques eV. Les calculs suivants ont seulement valeur d'exemple pour aider à la compréhension du processus de thermalisation.

Les variations de la vitesse des ions incidents $\langle \Delta W_{ic} \rangle_{in e^-}$ dépendent de la fonction B(W_{ic}).

La courbe IV.7 présente la fonction $B(W_{ic})$ pour l'injection du ²³Na¹⁺ dans un plasma majoritairement constitué d'ions ⁴He¹⁺ et dont la charge moyenne $\langle Zip \rangle$ est égale à 1 en fonction de la vitesse de l'ion incident.

La courbe IV.8 montre la fonction $B(W_{ic})$ pour l'injection du ²³Na¹⁺ dans un plasma majoritairement composé d'ions ¹⁴N³⁺ et dont la charge moyenne est égale à 3, en fonction de la vitesse de l'ion incident. Cette fonction présente deux maximums. Le premier pic correspond à une vitesse de l'ion incident identique à la vitesse des ions du plasma. Tandis que le deuxième pic apparaît lorsque la vitesse de l'ion incident est équivalente à la vitesse des électrons du plasma.

Les ions du plasma ralentissent les ions 1^+ dans le cas où leurs vitesses respectives sont proches. Les deux courbes suivantes (figures IV.7 et IV.8) montrent que pour un même ion

incident, plus la charge et la masse moyenne du plasma sont élevées, plus le coefficient de ralentissement est élevé.



Figure IV.7 : Variation de $B(W_{ic})$ pour l'injection du ²³Na¹⁺ dans un plasma constitué d'ions ⁴He¹⁺ et dont la charge moyenne $\langle Zip \rangle$ est égale à 1 en fonction de la vitesse de l'ion incident. Le coefficient de ralentissement des ions 1⁺ injectés dans le plasma augmente lorsque la valeur de $B(W_{ic})$ augmente.



Figure IV.8 : Variation de $B(W_{ic})$ pour l'injection du ²³Na¹⁺ dans un plasma constitué d'ions ¹⁴N³⁺ et dont la charge moyenne <Zip> est égale à 3 en fonction de la vitesse de l'ion incident. Le coefficient de ralentissement des ions 1⁺ injectés dans le plasma augmente lorsque la valeur de $B(W_{ic})$ augmente.
Ce ralentissement pourrait également avoir lieu avec les électrons du plasma, dans le cas où l'énergie des ions incidents est d'une dizaine de keV. Dans le plasma d'une source ECR, la température des ions est seulement de quelques eV [Tam-96-01] alors que la température électronique est de quelques keV. La thermalisation des ions incidents n'est donc pas possible avec les électrons mais est essentiellement réalisée par la population ionique du plasma. En résumé, pour favoriser la capture des ions 1⁺ par le plasma de la source ECR, il faut que l'énergie des ions soit proche du potentiel plasma (une dizaine d'eV) mais pas trop élevée pour qu'ils puissent être thermalisés par les ions du plasma et ainsi capturés.

Au final, la conjugaison de deux effets : le ralentissement des ions et l'influence du champ magnétique, est primordiale pour optimiser la capture des ions 1^+ par le plasma de la source ECR. En effet, à basse énergie, les ions s'enroulent autour des lignes de champ magnétique de la source ECR. Ainsi, les ions 1^+ peuvent passer plusieurs fois au niveau de la zone de résonance du plasma et augmentent leur chance d'être thermalisés, puis multi-ionisés.

Une fois que les ions sont capturés, les électrons chauds du plasma de la source ECR assurent l'augmentation de l'état de charge des ions incidents.

IV.2. Production d'ions alcalins exotiques multichargés dans le cadre de SPIRAL 1 : Ensemble cible-source NanoNaKe

IV.2.a. Description technique du système

La première version de ce système [El-06-01] (voir figure IV.9) était constitué d'une source à ionisation de surface similaire à la source Monolithe [Gib-03-02] couplée à la source Nanogan III (ECR 10 GHz). La ligne de transport des ions 1⁺ était composée d'une électrode d'extraction, d'une lentille Einzel, d'un coude HF qui faisait également office d'électrode d'injection des ions 1⁺ au sein du plasma et d'une électrode de décélération. A la sortie de la source à ionisation de surface, le faisceau d'ions 1⁺ était accéléré, focalisé et dirigé au travers du coude HF dans lequel un trou de 2 mm de diamètre était réalisé. Ce système avait pour but d'éviter le réglage de l'injection de l'onde HF dans la source ECR. Habituellement, l'injection de l'onde est réalisée à partir d'un «cube HF» constitué d'un piston HF permettant d'optimiser la transition entre un guide d'onde rectangulaire et un guide d'onde circulaire [Gau-06-01]. Une difficulté de ce système résidait dans l'optimisation du transport des ions 1⁺ jusqu'à la source ECR tout en limitant les pertes dans la traversée du coude HF. Le second inconvénient était l'absence de système de pompage entre la source 1⁺ et la source N⁺ permettant d'évacuer le gaz résiduel (provenant du dégazage des éléments ou des gaz nobles issus des produits de réaction) au niveau de la ligne de transport. Enfin, l'onde HF injectée dans le plasma de la source ECR, le gaz résiduel provenant de la zone 1⁺ et le faisceau d'ions 1^+ se propagent dans un même volume (le tube d'injection), pouvant donner lieu à un plasma dont les conséquences sont difficiles à prédire.



Figure IV.9 : Couplage de la source à ionisation de surface basée sur la source MonoLithe et de la source ECR Nanogan III.

Un nouveau système a été développé, basé sur l'association de la source à ionisation de surface MonoNaKe [El-07-03] [Vi-07-01] avec la source ECR Nanogan III, toujours sans séparateur de masse. La source MonoNaKe a été testée à partir d'un faisceau primaire de ⁴⁸Ca de 60,3MeV/A [El-07-01] (voir chapitre III : MonoNaKe). Les taux de production des faisceaux d'ions alcalins 1⁺ ont été jugés suffisants pour réaliser le couplage avec la source ECR Nanogan III (voir figure IV.10). Comme précédemment, la ligne de transfert 1⁺/N⁺ est constituée d'une première électrode d'extraction en carbone, d'une lentille Einzel en carbone, et d'un tube d'injection des ions dans la source ECR. Cette ligne comprend également un « cube HF » [Gau-06-01] : il transforme le mode de propagation de l'onde, passant d'un guide d'onde rectangulaire à un guide d'onde coaxial (et non plus circulaire). Ce cube a été modifié pour injecter le gaz support. De plus, un orifice, en regard de la source 1⁺, a été réalisé pour prevenant de l'ECS MonoNaKe.

Il est possible de régler la différence de potentiel (entre 0 et +120 V) entre la source 1^+ et la source N^+ afin d'adapter l'énergie des ions 1^+ lors de l'injection dans la source N^+ (voir figure IV.11).



Figure IV.10 : Ensemble cible-source NanoNaKe : couplage de la source à ionisation de surface MonoNaKe et de la source ECR Nanogan III. La ligne de transport entre la source 1⁺ et la source N⁺ est constituée d'une électrode d'extraction en carbone, d'une lentille Einzel en carbone, et d'un tube d'injection des ions 1⁺ en cuivre. Le système de pompage niveau de la ligne de transport 1⁺/N⁺ est connecté en regard de la source 1⁺.



Figure IV.11 : Schéma électrique de l'ensemble cible-source NanoNaKe : représentation des paramètres de réglage entre la source 1^+ et la source N^+ qui sont : le delta V, la tension de l'électrode d'extraction, la tension de la lentille Einzel et la tension du tube d'injection des ions.

IV.2.b. Simulations de transport entre la source MonoNaKe et Nanogan III

i) <u>*Calcul de l'efficacité de transport* $1^+/N^+$ </u>

Pour déterminer les valeurs des différentes tensions des électrodes de la ligne de transport du faisceau 1⁺, nous avons utilisé le code de calcul SIMION [Si-01]. Ce code permet de simuler le transport en prenant simultanément en compte l'effet des champs électrostatique et magnétique sur la propagation d'un faisceau d'ions. Par contre, ce code ne tient pas compte de l'interaction entre particules chargées.

Les simulations ont permis de déterminer un jeu de paramètres pour optimiser le transport du ${}^{47}K^{1+}$ jusqu'à la source ECR. L'efficacité de transport est le rapport entre le nombre de particules à la sortie de la source 1^+ et le nombre de particules à l'entrée de la source ECR (voir figure IV.12).



Figure IV.12 : Simulation de trajectoire des ions ${}^{47}K^{1+}$ jusqu'à l'entrée de la source ECR pour un ΔV de 10V, une tension d'extraction de 0V, une tension Einzel de -410V, une tension du tube d'injection de -1500V et une tension aux bornes du tube ioniseur de -2V.

L'efficacité de transport maximale de 75 % est obtenue pour un deltaV de 10 Volts, une tension d'extraction égale à 0 V, une tension Einzel de -410 V, une tension du tube d'ions de -1500 V et pour une tension aux bornes du tube ioniseur de -2 V. Cette tension du ioniseur correspond à une puissance de chauffage égale à environ 180 W. La distance de séparation entre les électrodes a également été calculé de façon à optimiser le transport entre les deux sources : la distance de séparation entre la sortie du tube ioniseur et l'électrode d'extraction a été fixée à 2 mm et celle entre la lentille Einzel et le tube d'injection des ions à 3 mm.

A la sortie du tube d'injection des ions, les ions ${}^{47}K^{1+}$ subissent une forte décélération qui entraînerait un éclatement du faisceau et des pertes sur la paroi de la chambre ECR contrairement aux réglages 1+/N+ de Grenoble.

De façon à tenir compte de l'interaction de Lorentz entre les ions 1^+ injectés et le champ magnétique de la source d'ions multichargés Nanogan III, une carte de champ magnétique de la source Nanogan III en trois dimensions (Bx, By, Bz) a été prise en compte dans le code de calcul.

Ce calcul a été fait pour deux configurations magnétiques différentes :

✓ La première configuration (voir figure IV.13) correspond à la configuration magnétique optimale pour obtenir une distribution des états de charge de l'⁴⁰Ar qui présente un maximum en µAe sur l'⁴⁰Ar⁸⁺ (2µAe). C'est la configuration standard de fonctionnement sur SPIRAL 1 avec laquelle les tests ont débuté. La fréquence de l'onde électromagnétique associée à cette configuration est de l'ordre de 10 GHz. A cette fréquence, la valeur du champ magnétique de résonance est égale à 3530 Gauss (cette valeur est calculée à partir de la relation IV.5).



Figure IV.13 : Position standard de la couronne centrale d'aimants permanents par rapport à la couronne d'aimants permanents du côté de la source à ionisation de surface afin d'obtenir la configuration magnétique optimale.

La norme du champ magnétique sur l'axe correspondant à la configuration standard a été calculée à partir du code Radia [Rad-01] avec Mathematica [Mat-01]. Il est représenté à la figure IV.14. La zone de confinement du plasma ECR est comprise entre -210 mm (côté source à ionisation de surface) et -60 mm (côté extraction de la source ECR). Cette zone est située entre deux maxima de champ magnétique : un premier maximum de champ longitudinal côté source à ionisation de surface égal à environ 8000 Gauss et un deuxième maximum côté extraction des ions multichargés égal à environ 7500 Gauss. Entre ces maxima, le minimum de champ magnétique est d'environ 3000 Gauss.



Figure IV.14 : Champ magnétique sur l'axe pour une configuration magnétique optimale en fonction de l'axe z. La couronne centrale est située à x égal -160 mm. Le faisceau d'ions 1⁺ est injecté de la gauche vers la droite.

La position du tube d'injection est représentée sur la figure IV.14. Elle a été choisie en faisant l'hypothèse que la probabilité de capture des ions par le plasma pourrait être favorisée par l'injection des ions dans la zone de la source où la densité électronique est la plus importante et où les électrons sont accélérés. La distance de séparation entre la sortie du tube d'ions et la zone de résonance du plasma ECR a donc été choisie égale à 30 mm. Des mesures expérimentales seraient à réaliser pour vérifier ce choix.

► La seconde configuration (voir figure IV.15) permet d'obtenir une distribution des états de charge de l'⁴⁰Ar qui présente un maximum à 2 μ Ae sur les ⁴⁰Ar³⁺ et ⁴⁰Ar⁴⁺ (voir spectre sur la figure IV.16). Cette seconde configuration est la configuration magnétique utilisée pendant l'expérience de caractérisation de l'ensemble cible-source NanoNaKe à partir d'un faisceau primaire de ⁴⁸Ca (voir paragraphe V.3). Elle permettrait d'accroître le volume du plasma de la source ECR en augmentant la fréquence de l'onde électromagnétique de résonance associé à cette configuration, soit une valeur de 4945 Gauss est donnée pour une valeur de z égale à -80 mm et égale à -160 mm. Nous avons fait l'hypothèse qu'une augmentation du volume du plasma ECR.



Figure IV.15 : La couronne centrale d'aimants permanents est « collée » à la couronne d'aimants permanents du côté de la source à ionisation de surface.



Figure IV.16 : Spectre source dans une configuration magnétique « non optimale » de la source NANOGAN III et pour une fréquence de 14 GHz.

A partir du spectre source présenté sur la figure IV.14, il a été possible de déterminer une efficacité d'ionisation sur tous les états de charge de l'⁴⁰Ar de 73 % (somme sur tous les états de charge) pour la source NANOGAN III dans une configuration « non optimale ».

Cette efficacité d'ionisation totale relativement faible (cette source conduit normalement à une efficacité d'ionisation totale de 100%) démontre que si la zone de plasma a été étendue, cette zone est globalement moins efficace pour l'ionisation des gaz rares donc aussi probablement pour l'ionisation des autres éléments.

Pour cette configuration, la valeur du champ magnétique totale en fonction de l'axe z est représentée sur la figure IV.17. La zone de confinement du plasma est délimitée par deux maxima de champ magnétique situés respectivement à z égal à -210 mm et à z égal à -60 mm. Dans cette zone de confinement, le minimum de champ magnétique est égal à environ 2500 Gauss.



Figure IV.17 : Champ magnétique sur l'axe pour la configuration magnétique de la figure IV.15.

Pour les deux configurations magnétiques étudiées, il est important de remarquer que le champ magnétique de fuite côté source 1^+ (valeur du champ magnétique pour z compris entre -250 mm et -500 mm) peut atteindre une valeur maximum de 0,8 T. Le tube d'injection des ions étant situé entre z égal à -400 mm et -190 mm, ce champ magnétique recouvre toute la ligne d'injection des ions 1^+ jusqu'à l'entrée de la source ECR. Les simulations précédentes du transport des ions dans la ligne 1^+ tiennent compte de ce champ magnétique de fuite.

Dans le cas des sources d'ions ECR utilisées en mode $1^+/N^+$, les ions peuvent sortir de la source du côté de la ligne de faisceau N^+ et du côté de la ligne d'injection des ions 1^+ . Ce flux d'ions génère un courant émis vers la source 1^+ dont on peut supposer être du même

ordre de grandeur que celui mesuré du côté extraction de la source N^+ (de l'ordre de 1mAe dans le cas de la source NANOGAN III). L'interaction coulombienne entre ce faisceau d'ions et les ions alcalins 1^+ est susceptible de perturber le transport des ions 1^+ jusqu'à la source N^+ . Les simulations ne prennent pas en compte cette interaction. Le transport entre la source 1^+ et la source N^+ de 75% est donc probablement surestimé par la simulation.

ii) <u>Calcul de l'émittance à l'entrée de la source ECR</u>

L'émittance à l'entrée de la source ECR est un paramètre important pour la capture du faisceau d'ions 1⁺ par le plasma. Les mesures d'efficacité de transformation 1⁺/N⁺ effectuées au LPSC de Grenoble montrent qu'une augmentation de l'émittance du faisceau d'ions 1⁺ peut avoir un effet sur le rendement du processus de conversion 1⁺/N⁺ (voir tableau IV.4) [Cha-00-01]. Ce phénomène s'applique tout particulièrement aux éléments condensables. Par contre, pour les gaz nobles, l'émittance a un moindre effet sur l'efficacité de transformation 1⁺/N⁺ car ceux-ci peuvent être ionisés après leur premier passage dans le plasma.

$\begin{array}{c} {\rm Transformation} \\ {\rm 1^+/N^+} \end{array}$	Source 1 ⁺	Emittance (π.mm.mrad)	Efficacité 1 ⁺ /N ⁺	
$^{40}\mathrm{Ar}^{1+/8+}$	Nanogan 10 GHz	55 (5)	10,4 (0,7) %	
$^{40}\mathrm{Ar}^{1+/8+}$	Mono1000 2,45 GHz	15 (1,4)	10,4 (0,7) %	
$^{64}Zn^{1+/11+}$	Microgan 10 GHz	13,5 (1,2)	4,2 (0,3) %	
$^{64}Zn^{1+/11+}$	Microgan 10 GHz	28 (2,5)	3 (0,2) %	

Tableau IV.4 : Mesures de l'efficacité de transformation $1^+/N^+$ *en fonction de l'émittance de* $l^{+40}Ar^{1+}$ *et du* $^{64}Zn^{1+}$ [Ch-00-01]. La source N^+ utilisée est la source Minimafios.

La figure IV.19 montre l'émittance transverse verticale obtenue dans le plan (y,y') du faisceau d'ions 1⁺ calculée au niveau du tube d'injection des ions 1⁺ (voir figure IV.18), dans le cas de la configuration magnétique utilisée au cours de l'expérience en ligne, pour une valeur de ΔV de 10V et pour une tension du ioniseur égale à 2V. La valeur de l'émittance géométrique au niveau du tube d'injection des ions dont le diamètre est de 10 mm et pour une tension d'accélération égale à 1500V est de l'ordre de 180 π .mm.mrad. Un calcul d'émittance réalisé dans les mêmes conditions mais sans prendre en compte le champ magnétique de fuite de la source ECR (voir figure IV.20) donne une valeur de 20 π .mm.mrad. Le champ magnétique de fuite a pour effet, comme attendu, d'augmenter l'émittance du faisceau d'ions 1⁺ (d'un facteur 9). L'éclatement induit par le champ magnétique sur le faisceau lorsque celui-ci sort du tube d'injection contribue à la capture des ions 1⁺ par le plasma, alors que l'effet du champ de fuite, c'est-à-dire sur la longueur du tube d'injection, altère le transport du faisceau d'ions 1⁺. Nous n'avons actuellement envisagé aucune solution technique pour nous affranchir de l'influence du champ magnétique de fuite sur le transport du faisceau d'ions 1⁺.



Figure IV.18 : Simulation du transport entre la source 1^+ et la source N^+ . L'émittance est simulée pour un faisceau de ${}^{47}K^{1+}$ juste avant la décélération dans la chambre du plasma *ECR*.



Figure IV.19 : Calcul de l'émittance du faisceau d'ions 1⁺ à l'entrée de la source ECR pour une valeur de deltaV de 10V, Vextraction de 0V, VEinzel de -410V, Vtube ions de -1500V et une puissance ioniseur de 180 W en prenant en compte le champ magnétique de fuite de la source ECR (Au niveau de la ligne de transport des ions 1⁺, le champ magnétique de fuite de la source ECR peut atteindre une valeur maximale de 0,8 T).



Figure IV.20 : Calcul de l'émittance (20π .mm.mrad) du faisceau d'ions 1^+ à l'entrée de la source ECR sans prendre en compte l'interaction entre le champ magnétique de fuite de la source ECR et le faisceau d'ions 1^+ .

IV.3. Résultats expérimentaux de l'ensemble cible-source NanoNaKe

IV.3.a. Test hors ligne avec un faisceau d'ions monochargés de ²³Na

Les expériences hors faisceau primaire ont été effectuées sur SIRa, en injectant préalablement quelques grains de NaCl dans la chambre de la cible de MonoNaKe pour deux configurations magnétiques (voir paragraphe IV.2.b). De nombreux tests ont été menés mais faute de résultats concluants, ils ne sont pas rapportés en détail dans ce mémoire. La principale observation qui a été faite au cours de ces tests est que l'utilisation d'un faisceau de sodium stable produit à partir de NaCl ne permettait pas de mettre en évidence la capture des ions Na⁺ par la source N⁺, et encore moins de quantifier la conversion $1^+/N^+$ si elle avait effectivement lieu. La principale raison semblait être la présence de sodium déposé dans différentes parties du dispositif et recyclé en fonction des paramètres de réglage de l'ensemble de production NanoNaKe.

L'étude de l'injection d'un faisceau d'ions Na⁺ dans NANOGAN III au travers de la ligne de faisceau 1⁺ doit être reprise sur le banc de test de SPIRAL 1, à l'aide d'une source à ionisation de surface du commerce [Ca-01] dont le flux d'ions alcalins monochargés sera préalablement caractérisé. Il sera ainsi possible d'évaluer l'efficacité de conversion $1^+/N^+$ (transport et charge breeding confondus) en faisant le rapport entre un courant d'ions connu émergeant de la source 1^+ et le courant d'ions multichargés mesuré en sortie de la source N^+ .

Malgré l'absence de résultats obtenus hors ligne, les tests en ligne ont été maintenus car l'utilisation d'ions radioactifs à la place d'ions stables laissait espérer de s'affranchir du recyclage des atomes collés sur les parois grâce à leur courte durée de vie et d'observer plus significativement l'influence de la variation des paramètres sur le taux extraits. Une autre difficulté rencontrée est le faible taux de ²³Na^{1+,2+,3+} extraits et détectables sur une cage de faraday par rapport au fond dû aux impuretés voisines.

IV.3.b. Test en ligne à partir d'un faisceau primaire de ⁴⁸Ca de 60MeV/A

Le but de ce test était de caractériser la conversion $1^+/N^+$ d'ions radioactifs de sodium et potassium produits dans la cible de MonoNaKe à l'aide d'un faisceau primaire de ⁴⁸Ca à 60,3 MeV/A et d'intensité maximum de 200 nAe (30 W). L'intensité du faisceau primaire a été volontairement limitée de façon à limiter l'activation du système de production en vue d'un démontage rapide. Le choix du faisceau primaire a été fait pour se placer dans les mêmes conditions expérimentales (voir chapitre III : Alcalins) de production des ions alcalins monochargés qu'avec l'ensemble cible-source MonoNaKe. En effet, la connaissance des taux de production des isotopes de sodium, potassium et lithium pour un état de charge 1⁺, rend possible l'évaluation de l'efficacité de capture 1⁺ et de transformation N⁺ par le plasma de la source ECR Nanogan III.

Le ²⁶Na présente l'avantage d'avoir une période radioactive courte (1s), de l'ordre de grandeur supposé du temps de processus de production entre l'instant de formation du noyau dans la cible et de son extraction de la source N⁺. Cette période courte permet d'avoir une réponse rapide à toute modification de réglage. Le ⁴⁷K a une durée de vie plus longue (de 17,5s). Il faut donc attendre de l'ordre de la minute après modification des réglages pour observer un effet, ce qui reste acceptable au regard du temps d'expérience (3 jours).

Par rapport au ²⁶Na, le ⁴⁷K présente l'avantage d'être produit en plus grande quantité dans la cible et d'être plus facile à ioniser par ionisation de surface, ce qui est un atout pour la durée des mesures sous faisceau et la statistique. Il présente aussi l'avantage d'être produit directement dans la cible, sans contribution radioactive de son précurseur ⁴⁷Ar (qui n'est pas produit par le ⁴⁸Ca). Ce n'est pas le cas du ²⁶Na dont une partie peut, au point de mesure, venir de son parent le ²⁶Ne. Les sources 1⁺ et N⁺ étant très proches, une partie du ²⁶Ne peut effuser sous forme neutre de la cible à la source N⁺, y être ionisée, extraite et transmise au point de mesure, puis décroître vers le ²⁶Na (compliquant la mesure en ligne de la production de ²⁶Na). Des mesures du taux de production du ⁴⁷K⁵⁺ à partir de l'ensemble cible-source NanoNaKe ont donc été réalisées. L'état de charge 5⁺ du ⁴⁷K a été choisi car il n'est pollué par aucun autre élément stable ou radioactif de même rapport charge sur masse et il est un des états de charge les plus produits.

i) <u>Production d'un faisceau de ${}^{47}K^{5+}(T_{1/2}=17,5s)$ </u>

α <u>Paramètres de transport 1⁺/N⁺ optimum</u>

Dans un premier temps, les paramètres de transport entre la source 1^+ et la source ECR (potentiel de l'électrode d'extraction, potentiel de la lentille Einzel, potentiel du tube d'injection) sont déterminés pour optimiser le taux de production du ${}^{47}K^{1+}$ en sortie de la source ECR alors que celle-ci est éteinte. Les ions 1^+ traversent donc la source ECR sur son axe et ressortent par le trou de l'électrode plasma. Le taux déduit des mesures en sortie de la source 1^+ est de 2.10^8 pps, et le taux maximum observé en sortie de la source N⁺ est de

l'ordre de $1,4.10^6$ pps, ce qui conduit à une efficacité de transmission de 0,7 % pour une puissance ioniseur de 180 W. Les paramètres de transport correspondant au maximum de transmission sont : 0 Volt pour l'électrode d'extraction, -410 Volts pour la lentille Einzel, - 1500 Volts pour le tube d'injection et un ΔV de 10Volts. Les simulations de transport à partir de ces paramètres optiques permettent d'estimer une transmission maximale de 0,8 %. Les paramètres de transport expérimentaux sont donc en accord avec les paramètres de transport théoriques. Ces mêmes paramètres conduisent à une efficacité de transport maximale entre la source 1^+ et la source N^+ d'une valeur de 75 % (voir paragraphe V.2.b) lorsque la source est « éteinte » (sans gaz et puissance HF nul)

β Paramètres de fonctionnement initiaux de la source ECR

Le processus de capture a été « observé » pour la première fois pour une onde HF d'une fréquence de 14,35 GHz et une puissance de 100W, et pour une puissance ioniseur de 180 W Le taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ semblait présenter un maximum pour une valeur ΔV d'environ 20 V. (voir figure IV.21).



Figure IV.21 : Taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ pour une onde HF de 14,35 GHz, une puissance HF de 100 W et une puissance ioniseur de 180 W.

En partant de ce réglage, nous avons mesuré le taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ en fonction des différents paramètres à notre disposition.

ii) <u>Taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ en fonction du ΔV pour différentes valeurs</u> <u>de puissance déposées dans le tube ioniseur</u> L'efficacité optimale de la méthode $1^+/N^+$ est obtenue lorsque la plus grande part du faisceau d'ions 1^+ est directement capturée par le plasma ECR pour ressortir dans un état de charge plus élevé. Cette capture directe (voir figure IV.22) présente un optimum en fonction de ΔV relativement étroit.



Figure IV.22 : Taux de production du ⁴⁷K⁵⁺ pour différentes valeurs de puissance ioniseur (0W, 15W, 35W, 50W, et 180W). L'onde HF injectée dans le plasma ECR a une fréquence de 14,35 GHz et une puissance de 100 W.

Le maximum du taux de production est obtenu pour une valeur de ΔV égale à environ 11 V. La valeur de la largeur à mi-hauteur représente la largeur d'acceptance en énergie (environ 3 eV) du dispositif expérimental pour le processus de conversion $1^+/N^+$.

Il semble aussi qu'apparaisse un deuxième maximum pour une valeur de ΔV de 20 V. Deux hypothèses sont avancées :

- ✓ L'existence d'une deuxième zone de capture. les deux valeurs de ΔV (11 Volts et 20 Volts) nous renseignent sur l'énergie nécessaire aux ions ${}^{47}K^{1+}$ pour franchir les barrières de potentiel qu'ils rencontrent.
- \checkmark L'élargissement de la dispersion en énergie des ions 1⁺ injectés due au gaz résiduel.

Une décroissance du taux de ${}^{47}K^{5+}$ est observée lorsque la puissance du ioniseur augmente de 0 W à 180 W, ainsi qu'un élargissement de la largeur d'acceptance. Le pic de capture n'apparaît plus à 180 W. Cette diminution n'avait pas été observée durant les tests de caractérisation de la source à ionisation de surface MonoNaKe. Au contraire, ces tests ont montré une augmentation d'un facteur 2 de l'intensité du faisceau extrait d'ions ${}^{47}K^+$ lorsque l'on augmente la puissance injectée dans le tube ioniseur. La diminution du taux de ${}^{47}K^{5+}$ n'est donc pas attribuée à un disfonctionnement de la source 1⁺.

Il a été possible d'observer une largeur d'acceptance d'environ 3 V à mi-hauteur alors que le champ électrique dans la source à ionisation de surface était nul, donc la dispersion en énergie

à la sortie de la source à ionisation de surface était elle aussi nulle. Le seul paramètre changé a été la tension appliquée aux bornes du ioniseur. Cette tension a plusieurs conséquences :

1 - Augmenter la dispersion en énergie des ions en sortie du ioniseur 1^+ . La dispersion en énergie longitudinale des ions à la position de la zone de résonance a été calculée pour deux valeurs extrêmes de la puissance ioniseur : 0 W et 180 W. La figure IV.23 montre l'influence du champ magnétique de la source ECR sur les ions 1^+ pour une configuration magnétique utilisée lors de l'expérience en ligne.



Figure IV.23 : Simulation des trajectoires d'ions ${}^{47}K^{1+}$ dans la ligne 1⁺ et à l'entrée de la source ECR N+ en tenant compte des champs électrique et magnétiques pour la configuration magnétique de la figure IV.14.

Le résultat des simulations de transport montre que la dispersion en énergie longitudinale (voir figure IV.24) pour un faisceau de ${}^{47}K^{1+}$ est égale au maximum à 4 eV pour une valeur de la tension du ioniseur de 2 V. Ce calcul a été fait pour une tension d'extraction de 0V, une tension de lentille Einzel de -410V, une tension du tube d'injection de -1500V et un ΔV de 10V. L'énergie moyenne des ions ${}^{47}K^{1+}$ au niveau de la zone de résonance des électrons du plasma ECR est de 10 eV pour un ΔV de 10 V.



Figure IV.24 : Dispersion en énergie des ions ${}^{47}K^{1+}$ au niveau de la zone de résonance du plasma ECR pour une tension aux bornes du ioniseur de 2V.

Le transport électrostatique des ions ${}^{47}K^{1+}$ n'entraîne donc pas une dispersion en énergie qui permettrait d'expliquer l'élargissement observé de plus de 10 V.

2 – Augmenter la température du ioniseur. La dispersion en énergie des ions liée à une augmentation de leur température est très inférieure à l'électron volt et n'est donc pas à même de justifier l'élargissement observé.

3 – Augmenter la température du ioniseur et donc la température de son environnement et de cette façon stimuler la désorption des parois. Cette dernière hypothèse a été considérée comme la plus crédible et est étudiée plus précisément ci-dessous.

On suppose que cet élargissement de la distribution en énergie peut s'expliquer par l'interaction entre le faisceau d'ions 1^+ extrait de la source à ionisation de surface et le gaz résiduel désorbé par les parois. Il est possible à partir d'une approche empirique [Ya-91-01] (voir annexes du Chapitre IV) de calculer cette dispersion en énergie pour des faisceaux d'ions de très basse énergie. Etant donné le domaine d'application en énergie (inférieure à 1 MeV/A, mais supérieure à 30 keV/A) de cette approche empirique, ces calculs constituent seulement une estimation. Les figures IV.25 et IV.26 présentent la pression au niveau de ligne de transport $1^+/N^+$, pour un gaz de Z_{moyen} égal à 11 et pour un gaz de Z_{moyen} égal à 6.



Figure IV.25 : Dispersion en énergie induite par l'interaction, à différentes énergies incidentes (10 eV, 200 eV et 400 eV), du faisceau d'ions ⁴⁷K¹⁺ avec un gaz résiduel de Z_{moyen} égal à 11 en fonction de la pression entre la source 1⁺ et la source N⁺. Les énergies incidentes 10 eV, 200 eV et 400 eV correspondent à trois valeurs d'énergie cinétique des ions 1⁺ entre l'électrode d'extraction et la lentille Einzel.



Figure IV.26 : Dispersion en énergie induite par l'interaction, à différentes énergies incidentes (10 eV, 200 eV et 400 eV), du faisceau d'ions ⁴⁷K¹⁺ avec un gaz résiduel de Z_{moyen} égal 6 en fonction de la pression entre la source 1⁺ et la source N⁺. Les énergies incidentes 10 eV, 200 eV et 400 eV correspondent à trois valeurs d'énergie cinétique des ions 1⁺ entre l'électrode d'extraction et la lentille Einzel.

Les résultats suivants montrent qu'une pression entre la source 1⁺ et la source N⁺ comprise entre 10^{-4} et 10^{-3} mbar peut induire, selon la nature du gaz (CO, H₂O, N₂,...), une dispersion en énergie des ions ${}^{47}K^{1+}$ comprise entre 4 et 14 eV. Une amélioration de la capacité de pompage entre la source 1⁺ et la source N⁺ permettrait d'évacuer le gaz résiduel entre les deux sources. La dispersion en énergie des ions ${}^{47}K^{1+}$ étant inférieure à 4 eV pour une pression inférieure à environ 10^{-4} mbar, la pression devrait être inférieure à 10^{-4} mbar pour une puissance déposée dans le tube ioniseur de 180 W soit une température d'environ 1700° C.

Le risque lié à une pression élevée due à l'absence de pompage dans cette zone avait été envisagé avant l'expérience sous faisceau. Une voie de pompage, équipée d'une vanne commandable à distance, avait donc été ajoutée entre les sources 1^+ et N^+ . Des mesures du taux de comptage du ${}^{47}K^{5+}$, vanne ouverte et fermée, sont reportées dans le tableau IV.5. Ces résultats montrent l'effet de l'interaction avec le gaz résiduel sur le taux de ${}^{47}K^{5+}$ en sortie de la source N^+ . La seconde mesure vanne ouverte a été faite pour vérifier que les conditions de la première mesure n'avaient pas changées.

	Taux ⁴⁷ K ⁵⁺ (pps)
Vanne ouverte	5483 ± 419
Vanne fermée	3380 ± 348
Vanne ouverte	5791 ± 529

Tableau IV.5 : Mesures du taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ *vanne* $1^+/N^+$ *fermée et vanne* $1^+/N^+$ *ouverte.*

L'interaction entre le faisceau d'ions ${}^{47}K^{1+}$ et le gaz résiduel a une conséquence sur la dispersion en énergie des ions 1⁺ et sur la neutralisation des ions 1⁺. Un calcul basé sur une approche empirique [Bar-93-01] [Me-77-01] [Mul-77-01] estime que pour un faisceau de ${}^{47}K^{1+}$ à une énergie de 1,5 keV passant dans un gaz de N₂ sur une longueur de 190 mm, le

processus de neutralisation est négligeable tant que la pression est inférieure à 10^{-4} mbar. En effet, la transmission calculée est de 95% pour une pression de 10^{-4} mbar. Par contre, la transmission décroît jusqu'à 65% pour une pression de 10^{-3} mbar. Il est donc primordial pour ce système de couplage direct, d'assurer un niveau de vide suffisant entre les deux sources.

iii) <u>Détermination des paramètres optimum de la source ECR pour</u> <u>le processus de capture et d'ionisation</u>

Le but est maintenant de déterminer les conditions de fonctionnement de la source ECR qui conduisent au maximum de conversion ${}^{47}K^{1+->5+}$. Dans un premier temps, on fixe le ΔV à une valeur proche de 11 V, valeur qui semblait correspondre à l'optimum de conversion ${}^{1+}/N^+$, et pour une fréquence HF de 14,35 GHz. Le taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ est alors mesuré en fonction de la puissance HF injectée dans le plasma ECR. Un gain de l'ordre de 20% (voir figure IV.28) est obtenu pour une augmentation de la puissance HF injectée dans le plasma de la source ECR de 100 à 200 W. Dans un second temps, un gain de l'ordre de 60% est mesuré pour une augmentation de la fréquence de l'onde HF de 14,35 à 14,64 GHz.



Figure IV.27 : Taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ pour un ΔV égal à 11 V et une puissance ioniseur égal à 35 W en fonction de la puissance HF injectée dans la source ECR. Cette mesure correspond à une fréquence de l'onde électromagnétique de 14,35 GHz.



Figure IV.28 : Taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ en fonction de ΔV pour une puissance ioniseur de 35 W, une onde HF de 14,64 GHz et une puissance HF de 200 W (zoom en x de 0 à 14 V contrairement à la figure IV.22).



Figure IV.29 : Taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ en fonction de ΔV pour une puissance ioniseur de 2 W, une onde HF de 14,64 GHz et une puissance HF de 200 W (zoom en x de 0 à 14 V contrairement à la figure IV.22).

D'après les figures IV.28 et IV.29, réalisées pour une onde HF de 14,64 GHz et une puissance HF de 200 W, le taux de production maximum du ${}^{47}K^{5+}$ est obtenu pour une différence de potentiel entre les deux sources d'environ 8 V. En modifiant les paramètres de la source ECR (puissance et fréquence de l'onde HF), les caractéristiques physiques du plasma ECR sont modifiées, et probablement la valeur du potentiel plasma. Ces modifications entraînent un élargissement de la bande d'acceptance en énergie du dispositif (la largeur à mi hauteur est égale à 5 eV). Les différentes augmentations des taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ sont résumées dans le tableau IV.6.

Paramètres source ECR	Pioniseur=35W Normalisé à 400 W de ⁴⁸ Ca (pps)	Pioniseur=2W Normalisé à 400 W de ⁴⁸ Ca (pps)	Pioniseur=0W Normalisé à 400 W de ⁴⁸ Ca (pps)	
14.35GHz - 100W	13883 ± 658	17278 ± 680		
14.35GHz - 200W	16266±681			
14.64GHz - 200W	25772 ± 1038	32756±1285	40614±2388	

Tableau IV.6: Variation du taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ en fonction des paramètres de la source ECR (fréquence et puissance de l'onde HF).

iv) <u>Efficacité de la conversion ${}^{47}K^{1+->5+}$ </u>

Le taux de ⁴⁷K⁵⁺ en sortie de la source ECR est donné par l'expression suivante :

$${}^{47}K^{5^+} = {}^{47}K_{\text{Pr} od} * \varepsilon_{diff} * \varepsilon_{eff} * \varepsilon_{1+} * \varepsilon_{transp1+} * \varepsilon_{capt1+} * \varepsilon_{N+} * \varepsilon_{transp}$$
(IV.14)

où ${}^{47}K_{Prod}$ est le taux de production des atomes de ${}^{47}K$ dans la cible en carbone, calculé à partir du code Sigma-Sira basé sur la paramétrisation de Sümmerer [Su-00-01].

 ε_{diff} est l'efficacité de diffusion en dehors de la cible de production,

 ε_{eff} est l'efficacité d'effusion dans la cavité cible,

 ε_{1+} est l'efficacité d'ionisation de la source à ionisation de surface MonoNaKe,

 $\varepsilon_{transp1+}$ correspond à l'efficacité de transport entre la source à ionisation de surface et la source ECR,

 ε_{capt1+} est l'efficacité de capture des ions 1⁺ par le plasma ECR,

 ε_{N+} est la proportion des ions 1⁺ convertis dans un état de charge donné au sein de la source ECR,

 ε_{transp} est l'efficacité de transport des ions multichargés jusqu'au point de détection.

Dans cette équation, le produit ${}^{47}K_{Pr\,od} * \varepsilon_{diff} * \varepsilon_{eff} * \varepsilon_{1+} * \varepsilon_{transp}$ correspond au taux expérimental de production du ${}^{47}K^{1+}$. Ce taux a déjà été mesuré durant la phase de caractérisation de la source MonoNaKe (voir tableau IV.7).

Paramètres de la source 1 ⁺	Pioniseur : 0W	Pioniseur : 30W
Taux de production du ⁴⁷ K ¹⁺ (pps) normalisé à 400W de ⁴⁸ Ca	1,5.10 ⁸	1,8.10 ⁸

Tableau IV.7 : Taux de production du ${}^{47}K^{l+}$ à partir de la source MonoNaKe pour une puissance ioniseur de 0 W et de 30 W.

Les mesures du taux de production du ${}^{47}K^{5+}$ ne permettent pas de dissocier les poids respectifs des efficacités $\varepsilon_{transp1+} * \varepsilon_{capt1+} * \varepsilon_{N++}$.

Un taux maximum de production du ${}^{47}K^{5+}$ de 4.10⁴ pps a été mesuré en sortie de la source ECR pour une puissance déposée dans le ioniseur de 0W, une onde HF de 14,64 GHz et une puissance HF de 200W. On en déduit que le terme $\varepsilon_{transp1+} * \varepsilon_{capt1+} * \varepsilon_{N+}$ est égal à 2,7.10⁻⁴.

Durant l'expérience, l'efficacité d'ionisation de la source ECR (ε_{N+}) mesurée à l'aide d'une fuite calibrée est de 3% pour l'⁴⁰Ar⁵⁺ en mode 1⁺/N⁺. Il est à noter qu'une source N⁺, utilisée en mode 1⁺/N⁺ conduit à l'extraction des ions du côté N⁺ mais aussi du côté 1⁺ en raison de la différence de potentiel pour ralentir les ions 1⁺ avant de pénétrer dans le plasma.

Les modifications apportées à la source ECR dans l'espoir d'optimiser le processus de capture (modification de la configuration magnétique et de la fréquence de l'onde HF) peuvent expliquer cette faible valeur de l'efficacité d'ionisation. Pour comparaison, ordinairement, la proportion d'atomes ⁴⁰Ar ionisés dans l'état de charge 5⁺ par la source ECR Nanogan III est égale à 8% [Gan-01]. Les potentiels d'ionisation du ⁴⁷K et de l'⁴⁰Ar pour l'état de charge 5⁺ étant relativement proches (moins de 10% de différence), la proportion d'atomes de ⁴⁷K convertis dans l'état de charge 5⁺ est posée égale à 3 %.

Le tableau IV.8 résume les valeurs des efficacités obtenues pour la production de ${}^{47}K^{5+}$ à partir de l'ensemble cible-source NanoNaKe.

	ε transp1+	Abondance 5 ⁺	ε cap1+	εcap1+* ε5+	εcap1+* εN+ ³⁹ K ⁶⁺ [Lam-06-01]
⁴⁷ K ⁵⁺	75%	3%	1,2%	0,04%	6%

Tableau IV.8 : Efficacités de transport $1^+/N^+$ et de capture du ${}^{47}K^{1+}$, par le plasma de Nanogan III. Comparaison entre l'efficacité de transformation $1^+/5^+$ du ${}^{47}K$ et l'efficacité de transformation $1^+/6^+$ du ${}^{39}K$ obtenue au LPSC [Lam-06-01].

L'efficacité de transformation $1^+/5^+$ ($\varepsilon_{capt1+} * \varepsilon_{5+}$) du ⁴⁷K est estimée à 0,04 %. Ceci est très faible par rapport à la valeur attendue au regard des expériences menées au LPSC de Grenoble, qui montrent une efficacité de conversion ${}^{39}K^{1+->6+}$ de 6 % [Lam-06-01]. Cette différence importante sur l'efficacité du processus $1^+/N^+$ ne peut pas être expliquée par la différence d'état de charge (pas de saut de couche électronique) mais peut en partie trouver une explication au travers des hypothèses suivantes :

✓ le processus de capture des ions 1⁺par le plasma a été observé avec la source ECR Nanogan III dont le champ magnétique a été modifée de façon arbitraire (voir page 149), dans l'espoir d'une amélioration de l'efficacité de capture. Avec cette configuration magnétique, la source ne permettait pas de produire des hauts états de charge. En effet, en régime normal, la distribution des états de charge de l'⁴⁰Ar présente un maximum en μ Ae sur le 8⁺. Avec cette nouvelle configuration magnétique, le maximum de cette distribution est sur l'état de charge 4⁺.

Au LPSC de Grenoble, les réglages de champ magnétique de la source Phoenix utilisée durant les tests $1^+/N^+$ indirects sont peu différents de ceux utilisés en régime de fonctionnement optimal [Lam-07-01]. Ce qui n'était pas le cas de Minimafios [Cha-00-01]. La recherche d'optimum de conversion en fonction du champ est plus aisée qu'avec la source NANOGAN III puisque la source Phoenix dispose de bobines dont le champ est réglable par simple variation du courant qui les traverse. De plus, cette source présente des performances (en termes de courant d'ions extraits et d'états de charge) significativement supérieures à celles de la source NANOGAN III. Le volume, la densité et « la température de son plasma » lui confèrent sans doute une « capacité » d'ionisation des ions 1^+ injectés plus importante.

Pour optimiser le processus de capture par le plasma des ions 1^+ en fonction du champ magnétique, il faudrait pouvoir faire varier le champ magnétique en cours d'utilisation de la source sous faisceau. La source étant faite d'aimants permanents, le champ magnétique n'est pas réglable à distance.

- ✓ Les conditions à l'injection des ions 1⁺ dans le plasma ECR sont différentes. Les ions 1⁺ possèdent une énergie de 20 keV à l'entrée de la source Phoenix. La perturbation du faisceau 1⁺ due à l'interaction coulombienne avec le faisceau d'ions issu de la source N⁺ (côté source 1⁺) est donc plus faible.
- ✓ En plus d'une énergie de faisceau d'ions 1⁺ plus importante, l'injection se fait au travers d'un tube dont le rapport longueur sur diamètre est plus favorable (longueur 350 mm, diamètre 28 mm, rapport environ 12) que dans le cas de NANOGAN III (longueur 190 mm, diamètre 10 mm, rapport d'environ 19).
- ✓ Le couplage $1^+/N^+$ indirect dispose d'un espace important entre les deux sources, ce qui permet de pomper efficacement les flux de gaz en provenance de chaque source.
- \checkmark Les ions 1⁺ sont injectés dans un gradient positif du champ magnétique axial.

v) <u>Production d'un faisceau de ${}^{26}Na^{3+}$ ($T_{1/2}=1,07s$)</u>

En début d'expérience, le taux de production du ${}^{26}Na^{3+}$ a également été mesuré en fonction du ΔV entre les deux sources pour une puissance déposée de 180 W dans le tube ioniseur et une onde de 10,34 GHz (voir figure IV.30). Le taux de production du ${}^{26}Na^{3+}$ est relativement constant, l'effet de capture des ions ${}^{26}Na^{1+}$ n'est donc pas observé. Les résultats pour le ${}^{47}K$ ont montré que pour une puissance ioniseur de 180 W, le gaz résiduel avait une influence mesurable en ouvrant et en fermant une vanne qui commandait le vide entre la source 1⁺ et la source N⁺. Le tableau IV.9 montre les taux de ${}^{26}Na$ et ${}^{26}Ne$ dans ces deux conditions de pompage.

	$^{47}K^{5+}$		²⁶ Na ³⁺	$Na^{3+} + {}^{26}Ne^{3+}$ 26		Na ³⁺	²⁶ Ne ³⁺	
	Taux (nns)	Erreur	Taux (nns)	Erreur	Taux (nns)	Erreur	Taux (nns)	Erreur %
* 7	(hha)	/0	(hha)	/0	(hha)	/0	(hha)	/0
« Vanne								
ouverte »	5637	0,085	5098	0,11	3479	0,52	1619	0,51
« Vanne								
fermée »	3380	0.16	5272	0.15	374	0.47	4898	0.45

*Tableau IV.9 : Taux de*⁴⁷*K*, ²⁶*Na et*²⁶*Ne obtenus avec les deux conditions de pompage.*

De même que pour le ⁴⁷K, le taux de ²⁶Na³⁺ extrait de la source d'ions multichargés diminue de 3479 pps avec le pompage en service à 374 pps avec le pompage arrêté, indiquant que la qualité du vide entre la 1⁺ et la N⁺ est un paramètre important pour la transmission des ²⁶Na et ⁴⁷K vers la source ECR. Au contraire, le taux des atomes de ²⁶Ne augmente de 1619 pps avec le pompage en service à 4898 pps avec le pompage arrêté, Le ²⁶Ne est produit dans la cible et décroît vers le ²⁶Na. L'augmentation du taux de ²⁶Ne indique que le ²⁶Ne était en partie pompé quand le pompage était en service. Une fois la vanne de pompage fermée, le ²⁶Ne effuse vers la source ECR où il est ionisé et extrait.



Figure IV.30 : Taux de production du ²⁶Na³⁺ en fonction de ΔV . Le taux de production du ²⁶Na³⁺ n'est pas corrigé du taux de production du ²⁶Ne³⁺.

Une diminution de la puissance du ioniseur à 2 W pour limiter l'éventuel effet du gaz résiduel mentionné précédemment sur le taux de production du ${}^{26}Na^{3+}$ (figure IV.31) n'a pas non plus permis d'observer l'effet de capture du ${}^{26}Na^{1+}$, pas plus que le changement de fréquence HF.



Figure IV.31 : Taux de production du ²⁶Na³⁺ et du ²⁶Ne³⁺ en fonction de DeltaV pour une puissance ioniseur de 2 W. Le taux de production du ²⁶Na³⁺ n'est pas corrigé du taux de production du ²⁶Ne³⁺.

IV.4. Conclusion et perspectives

En utilisant un faisceau primaire de ⁴⁸Ca, la première expérience menée avec l'ensemble cible-source NanoNaKe a permis de mettre en évidence la possibilité de produire des atomes de ⁴⁷K et de convertir les ions ⁴⁷K¹⁺ (T_{1/2}=17,5 s) en ions ⁴⁷K⁵⁺ à l'aide d'un dispositif compact associant une cible de production et une source à ionisation de surface couplée à une source ECR d'ions multichargés par l'intermédiaire d'une ligne de transport du faisceau 1⁺ sans séparateur. Cependant, l'efficacité du processus 1⁺/N⁺ pour le ⁴⁷K⁵⁺ (0,04 %) reste faible comparée à l'efficacité du processus 1⁺/N⁺ pour le ³⁹K⁶⁺ (6 %) obtenue au LPSC de Grenoble. Pour un faisceau primaire de ⁴⁸Ca d'une puissance de 30 W, le taux mesuré de ⁴⁷K⁵⁺ est de 3.10³ pps.

A la suite de ces résultats, plusieurs facteurs de perte ont été énoncés :

- > Neutralisation du faisceau d'ions 1^+ par le gaz résiduel.
- > Dispersions en angle et en énergie du faisceau d'ions 1^+ induits par le gaz résiduel.
- > Interaction entre le faisceau d'ions 1^+ et le faisceau d'ions N^+ extrait de la source ECR.

Pour l'élaboration d'un système définitif de production d'ions alcalins radioactifs multichargés à partir de la méthode $1^+/N^+$ directe, il est nécessaire d'améliorer le vide entre la source à ionisation de surface MonoNaKe et la source ECR Nanogan III.

Il est également important de diminuer l'interaction des ions 1^+ avec le courant d'ions extrait de la source ECR côté source 1^+ . Des calculs sont en cours avec le code CPO [CPO-07] pour estimer ces pertes et essayer de déterminer une solution technique. On pourrait

augmenter l'énergie des ions 1^+ à l'entrée du plasma ECR, augmenter le diamètre du tube d'injection des ions 1^+ et également rajouter une électrode de manière à repousser les ions multichargés vers le plasma ECR. L'ensemble de ces modifications devrait permettre de réduire ces pertes.

Des tests complémentaires doivent être réalisés hors ligne en utilisant des noyaux stables (³⁹K ou ²³Na) de façon à explorer plus précisément l'influence des paramètres de la source ECR sur l'efficacité de transformation 1⁺/N⁺. Ces tests doivent également permettre de mesurer l'influence de la charge moyenne du plasma sur la capture des ions plus légers que le ⁴⁷K¹⁺.

Le processus de capture n'a pas été observé pour le 26 Na¹⁺. Cependant, un taux de 6.10^2 pps a été mesuré à la sortie de l'ensemble NanoNaKe pour un faisceau primaire de ⁴⁸Ca d'une puissance de 30 W. Ce taux semble dû au recyclage d'atomes de Na déposés sur les parois du dispositif et transportés jusque dans la source ECR par le faisceau d'ions 1⁺. Dans le cas du ²⁶Na, il est donc envisageable de transformer le dispositif actuel de la façon suivante : un tube chauffé pourrait être raccordé à la sortie de la cavité cible pour accélérer le transport effusif des atomes de Na de la cible à la cavité source N⁺. En concevant le tube de façon à accélérer le transfert des ions Na⁺ selon la même méthode que celle décrite dans le chapitre III pour accélérer l'extraction des ions du tube ioniseur, il devrait être possible d'amener une grande part des ions alcalins jusque dans la source N⁺. Enfin, une polarisation variable de l'extrémité du tube côté source N^+ devrait permettre d'ajuster l'énergie d'injection des ions alcalins dans la source N⁺, tentant ainsi d'optimiser la part des ions Na⁺ qui pourraient être capturés par le plasma. Cette solution suppose une modification importante du dispositif actuel mais semble tout à fait envisageable au regard des techniques auxquelles elle fait appel. Elle présente de plus l'avantage de rendre commune la cavité cible et la cavité source N^+ tout en les séparant du volume entourant les parties chauffées (chambre contenant l'ECS MonoNaKe). Ceci devrait permettre de limiter l'interaction des ions alcalins avec le gaz résiduel durant leur transport, et de limiter la perturbation induite par ce gaz résiduel sur le fonctionnement de la source ECR, perturbation telle que celle observée lors des premiers jours de fonctionnement de l'ensemble cible source actuel de SPIRAL 1. Cependant, elle présente l'inconvénient d'être beaucoup moins sélective. En effet, les isobares transportés dans le tube chaud jusqu'à la source ECR puis ionisés ne pourront pas être séparés.

Il est important de noter que tant que l'on utilisera la source Nanogan III dans la casemate, les états de charge des ions N^+ seront faibles. Par conséquent l'énergie des ions après accélération dans CIME sera faible. La solution $1^+/N^+$ avec un séparateur de masse, et en plaçant une source N^+ plus performante hors de la casemate, pourrait permettre d'utiliser une source ECR, autre que la source Nanogan III, permettant ainsi de produire des ions d'états de charge plus élevés.

Cette solution présente évidemment l'inconvénient d'être beaucoup plus coûteuse et sera appliquée dans le cadre du projet SPIRAL 2.

Chapitre 5 :

Développement d'une source test à ionisation de surface

dans le cadre de SPIRAL 2

V.1. Source à Ionisation de Surface de Tests Hors Exploitation (SISTHE)

V.1.a. Démarche

L'utilisation de sources à ionisation de surface pour la production d'ions radioactifs par la méthode ISOL doit répondre à un ensemble important de contraintes dont les solutions techniques sont parfois contradictoires. Les sources sont généralement reliées à la cible de production par l'intermédiaire d'un tube de transfert au travers duquel les éléments radioactifs transitent. Ces éléments sont accompagnés des éléments stables issus de l'évaporation des matériaux constituant la cible et son container. Ces éléments, transportés sous forme d'atomes ou de molécules, peuvent altérer le fonctionnement de la source à ionisation de surface en réagissant avec le matériau ioniseur ou en formant un dépôt à sa surface. Il est donc important de choisir le matériau ioniseur en fonction des matériaux qui constituent son environnement. Si la réactivité chimique est faible même à haute température, il semble intéressant de porter le matériau ioniseur à haute température pour limiter la contamination chimique surfacique, pour augmenter l'efficacité d'ionisation par augmentation de la probabilité d'ionisation par contact (voir chapitre III) et pour réduire le temps de collage des éléments radioactifs. Le fonctionnement à haute température limite aussi l'espérance de vie de la source par évaporation accélérée de son matériau. Augmenter l'épaisseur de la paroi du ioniseur pour allonger son espérance de vie est possible, mais conduit simultanément à réduire la tension à ces bornes et conduit donc à une réduction de son efficacité d'ionisation. Un compromis doit donc être trouvé entre les différentes contraintes techniques qui permettront de répondre aux besoins d'efficacité d'ionisation et de pérennité du dispositif.

Des travaux menés par H. Kawano sur l'étude de l'ionisation de surface en utilisant de l'oxyde de rhénium ont été en partie à l'origine de la conception du dispositif de test présenté dans ce chapitre. Ses études montrent que l'oxyde de rhénium permet d'obtenir une probabilité d'ionisation par contact très supérieure à tous les autres matériaux si l'oxyde de rhénium est maintenu au même degré d'oxydation et à une température d'environ 1500 K (voir paragraphe V.1.b). Cette faible température limite l'évaporation du matériau et rend possible l'utilisation d'une plus faible épaisseur de paroi pour l'ioniseur. La tension aux bornes du ioniseur peut donc être plus importante, ce qui augmente l'efficacité d'ionisation de façon plus certaine qu'une augmentation de température. Mais en utilisant le matériau à cette température, il est possible que les polluants se déposent sur la couche du ioniseur de façon plus importante, et que le temps de collage des atomes radioactifs soit aussi plus important. Il est aussi possible que le carbone, qui ne réagit pas avec le rhénium, réagisse avec l'oxyde de rhénium.

Le système SISTHE doit permettre d'étudier s'il est possible de trouver un compromis entre ces conditions.

Une autre motivation pour le développement de cette source de test réside dans la volonté de mesurer l'efficacité d'ionisation de la source seule. Effectivement, dans le chapitre III, l'efficacité de la source à ionisation de surface incluse dans l'ensemble MonoNaKe est déduite de l'efficacité de l'ensemble du dispositif. L'optimisation de cette efficacité d'ionisation nécessite de pouvoir la mesurer le plus directement possible.

Enfin, le but à court terme des études qui seront menées avec le dispositif SISTHE est de réaliser une source à ionisation de surface qui réponde au cahier des charges de SPIRAL 2. Cette source devra produire des ions rubidium et césium radioactifs mono-chargés. Elle doit être associée soit à une cible de production d'UCx [SpII-02] maintenue à une température d'environ 2200°C. L'efficacité d'ionisation n'est pas spécifiée clairement dans le cahier des charges mais compte tenu du coût de production des ions radioactifs, il est important que cette efficacité d'ionisation soit la plus importante possible. La seconde contrainte est une durée de fonctionnement de 3 mois.

V.1.b. Intérêt du rhénium oxydé

La probabilité p_+ pour le sodium d'échanger un électron par contact avec une paroi de tungstène augmente lorsque la surface de tungstène est oxydée [Kaw-95-01]. L'évolution de cette probabilité avec le degré d'oxydation s'explique par l'évolution du travail de sortie, qui passe de 4,5 eV pour le W à 6,24 eV pour le W-Ox. Dans ce cas, la probabilité p_+ est égale à 100 % pour tous les alcalins. Malheureusement, au-delà d'une température de 1400 K, la surface tungstène se désoxyde. A haute température (de l'ordre de 2000 K), la surface du tungstène est considérée comme propre de toute impureté et son travail de sortie tend alors vers une valeur limite de 4,5 eV. Des observations similaires ont aussi été faites par H. Kawano [Kaw-98-01] [Kaw-99-01] [Kaw-00-01] dans le cas du rhénium, de l'iridium, du platine et du tantale en fonction de la température et de la pression résiduelle d'oxygène. La figure V.1 présente l'évolution du travail de sortie du rhénium en fonction de la température et pour une pression résiduelle d'oxygène située entre 10⁻⁸ Torr et 10⁻⁵ Torr.



Figure V.1 : Evolution du travail de sortie du rhénium pour une température comprise entre 1493 K et 1927 K et pour une pression comprise entre 10^{-8} Torr et 10^{-5} Torr. La probabilité P_+ (notée β + sur la figure) pour le sodium est égale à 100 % pour une température de 1493°K et pour une pression résiduelle d'oxygène de 10^{-6} Torr soit un travail de sortie égal à 6 eV.

Pour une pression résiduelle d'oxygène comprise entre 2.10^{-8} Torr et 5.10^{-5} Torr et pour une température de 1493 K, la probabilité p_+ pour le sodium sur une surface d'oxyde de rhénium est de l'ordre de 90 %. Le maximum est atteint pour une température de 1493 K et une pression résiduelle d'oxygène proche de 10^{-6} mbar.

V.2. Dispositif SISTHE

Parmi les matériaux étudiés par H. Kawano, le rhénium a été retenu comme matériau potentiel pour le ioniseur de SPIRAL 2 car il ne réagit pas avec le carbone [Hs-01]. Son travail de sortie ne sera donc pas influencé par la présence du carbone provenant de la cible de production mais il est possible que l'oxygène change ses propriétés chimiques.

Le second matériau retenu est le carbone graphite. Un argument important est que le carbone évaporé par la cible ne pourra pas altérer son fonctionnement. Ensuite, si l'on considère le potentiel de travail du carbone (5 eV) relativement faible par rapport à l'oxyde de rhénium (6,1 eV au max) mais important par rapport au rhénium pur, on en déduit qu'il est nécessaire de porter le ioniseur à haute température pour obtenir une probabilité d'ionisation par contact importante. Cela conduit à un taux d'évaporation important et à une durée de vie réduite. Les résultats obtenus avec la source à ionisation de surface de l'ECS MonoNaKe ont démontré qu'il était possible d'obtenir une efficacité d'ionisation importante tout en limitant la température et donc en allongeant sa durée de vie. Le système SISTHE devrait permettre de quantifier cette durée.

Description technique

L'ensemble du dispositif est contenu dans une chambre composée d'un empilement de brides refroidies isolées entre elles par des alumines (pour pouvoir polariser chaque bride). La bride de sortie (n°31 sur la figure V.2) supporte une électrode d'extraction et effectue l'interface mécanique entre la bride du ioniseur et la bride d'entrée de la ligne du banc de test. La bride n°4 est reliée à la sortie du tube ioniseur. La bride n°3 est reliée à l'entrée du tube ioniseur et à une extrémité du four. La bride n°2 est reliée à l'autre extrémité du four. Elle entoure le four dont ses parois sont séparées par trois couches de Papyex (tissus de carbone) qui servent de réflecteur. La bride n°1 est la bride d'interface avec différents équipements : four effusif, pyromètre, support d'échantillons. L'ensemble est maintenu sous vide par l'intermédiaire de la bride n°1 qui sera reliée à un système de pompage (non représenté sur la figure).

L'ioniseur est basé sur le même principe que celui de l'ensemble cible-source MonoNaKe. Il est prévu dans un premier temps de tester les matériaux carbone et rhénium (voire rhénium oxydé) sous forme de tube de 4 mm de diamètre et de 20 mm de long. Si ces premiers tests sont concluants et lorsque la procédure sera mise au point, il sera évidemment possible de tester d'autres matériaux.

Le tube ioniseur (voir figure V.3) est couplé à un four qui contiendra les échantillons d'éléments alcalins à évaporer pour quantifier l'efficacité d'ionisation. Le four en carbone devrait permettre d'atteindre une température de 2000°C. Un four effusif (container chauffé utilisé pour vaporiser des éléments dans les source d'ions stables du GANIL actuel) peut aussi

être adapté à SISTHE de manière à injecter un flux d'atomes alcalins (système qui n'a pas encore été précisément défini).

Les chauffages du tube et du four sont indépendants pour pouvoir ajuster indépendamment le flux d'alcalins injectés et l'efficacité d'ionisation de la source. Cependant, leur proximité conduira probablement à un couplage de leurs températures.



Figure V.2 : Coupe de la source à ionisation de surface SISTHE. Les numéros des pièces sont indiqués dans les cercles.



Figure V.3 : Tube ioniseur en carbone utilisé dans le cadre de SISTHE d'une longueur de 20 mm et d'un diamètre de 4 mm.

Le dépôt de puissance de chauffage de l'ioniseur permet de contrôler la température mais également la valeur du champ électrique dans le tube ioniseur. Puisqu'un des buts de ce dispositif est de mesurer l'influence de l'oxydation sur le travail de sortie et donc sur l'efficacité d'ionisation de l'ioniseur, une injection de gaz a été prévue à proximité directe de l'ioniseur.

Ce dispositif a été conçu et la mécanique a été réalisée au cours de mon travail de thèse. Le montage et les mesures de caractérisation ont été effectués par A. Pichard qui débute actuellement sa thèse [Pi-07-01].

La source à ionisation de surface SISTHE a été montée sur le banc de test de SPIRAL 1 afin de réaliser des mesures thermiques au niveau du tube ioniseur et au niveau de la cavité four en fonction de la puissance de chauffage ohmique déposée dans le tube ioniseur (en carbone) et dans le four. La figure V.4 montre la lumière émise par l'ioniseur (côté sortie du tube) lors d'une de ses premières montée en température. Le cercle noir central est l'orifice de support de l'électrode d'extraction. Le point lumineux au centre (dont le diamètre réel est de 1,3 mm) est l'extrémité de la gaine chauffée du thermocouple. La zone sombre autour de la gaine est la cavité destinée à accueillir les échantillons d'alcalins.



Figure V.4 : Vue du tube ioniseur de la source à ionisation de surface SISTHE prise côté extraction (puissance ioniseur de 700 W, température égale à 1700°C).

V.3. Conclusion et perspectives

Les différentes contraintes imposées par une installation comme SPIRAL 2 pour l'élaboration d'une source à ionisation de surface ont été présentées. Les matériaux retenus pour l'instant sont le rhénium (ou oxyde de rhénium) et le carbone graphite. Le dispositif a été conçu et est maintenant disponible pour effectuer les tests.

Des mesures de températures du tube ioniseur et de la cavité en fonction de la puissance du four et de la puissance du ioniseur ont été entamées. La prochaine étape consistera à effectuer des mesures d'efficacité d'ionisation.

Une part importante de la difficulté de ces mesures d'efficacité d'ionisation réside dans leur normalisation : elle dépend des mesures absolues du flux d'atomes alcalins injectés dans la source et du courant d'ions extraits de la source. Des solutions techniques sont d'ores et déjà en cours d'étude et de réalisation et feront l'objet d'une partie du travail de thèse d'A. Pichard.

CONCLUSION et PERSPECTIVES

Le but de ce travail de thèse a été d'étudier le processus de transformation atomes-ions dans un dispositif de production d'ions radioactifs de type ISOL au travers d'une approche statistique originale. Cette démarche a été motivée par la volonté d'étendre la palette des faisceaux d'ions radioactifs délivrés par SPIRAL 1.

Cette approche prend en compte la totalité des processus qui interviennent dans la transformation des atomes radioactifs en ions, à savoir leur diffusion dans la cible, leur effusion entre la cible et la source, et leur ionisation d'une façon différente de celles proposées dans des travaux antérieurs.

A l'aide de cette approche, nous avons pu réaliser deux études concrètes participant à l'amélioration des faisceaux d'ions radioactifs pour SPIRAL 1 :

- La première, basée sur une approche macroscopique du processus de diffusion, a été appliquée à des données expérimentales obtenues à l'aide de l'ensemble cible-source TARGISOL. La méthode expérimentale consistait à mesurer le temps de transformation des atomes en ions dans le dispositif. Le but était d'une part de déterminer les coefficients de diffusion de l'Ar dans des cibles en carbone de différentes tailles de grains (1 μm, 4 μm et 16 μm), et d'autre part de les confronter à des résultats antérieurs.
- La seconde étude a consisté à appliquer cette approche au fonctionnement d'une source à ionisation de surface. Le passage de considérations statistiques à des considérations physiques (processus d'ionisation de surface, processus de neutralisation, processus d'effusions atomique et ionique) a permis de mettre en évidence les modifications techniques à apporter pour améliorer l'efficacité de transformation atomes-ions (chauffage du four et chauffage de l'ioniseur indépendants : application d'un champ électrique au niveau du tube ioniseur) par rapport à la première version d'un ensemble cible-source (MonoLithe). Ces modifications de la configuration ont permis de définir et de construire une nouvelle version d'un ensemble de production (MonoNaKe), puis de tester ses performances en ligne pour la production d'isotopes de sodium, potassium et lithium à partir d'un faisceau primaire de ⁴⁸Ca.

Pour produire des faisceaux d'ions alcalins radioactifs multichargés, il a été nécessaire d'étudier la possibilité de coupler la source à ionisation de surface MonoNaKe à la source ECR actuellement utilisée sur SPIRAL 1, NANOGAN III, puis de réaliser ce couplage. Le système de production résultant NanoNaKe est une version simplifiée du principe $1^+/N^+$ déjà expérimenté à Grenoble. Il répond en outre aux contraintes imposées par le processus de production de SPIRAL 1.

Nous avons développé une source de tests à ionisation de surface (SISTHE) basée sur les mêmes principes que ceux adoptés pour la définition de la source destinée à SPIRAL 1 (MonoNaKe). Son but est de permettre d'étudier le fonctionnement de sources à ionisation de surface en fonction des différents paramètres et dans un futur proche, d'élaborer un prototype de source répondant aux contraintes de SPIRAL 2 (efficacité d'ionisation et durée de vie).

Bilan

Le dispositif TARGISOL a permis d'étudier le relâchement d'atomes d'Ar de cibles en carbone graphite dans des conditions expérimentales très proches. Les temps de relâchement ont pu être déterminés à partir des réponses en temps de cet ensemble. Les efficacités de diffusion macroscopique déduites des temps relâchement ont été directement comparées à celles obtenues en régime continu. Une cohérence entre ces deux méthodes est observée pour la cible 1 μ m à haute température et la cible 4 μ m. Une statistique insuffisante des données expérimentales pourrait expliquer l'incohérence des résultats entre les deux méthodes pour la cible 1 μ m à basse température et la cible 16 μ m à haute température, ainsi que l'implantation des noyaux qui n'a pas lieu dans toute l'épaisseur de la cible comme cela a été supposé dans l'approche macroscopique de la diffusion.

L'approche macroscopique du processus de diffusion a permis de mieux rendre compte de la faiblesse du taux de production expérimental de 1^{31} Ar ($T_{1/2}$ égal à 15 ms) observé avec SPIRAL 1 par rapport aux modèles antérieurs. Les résultats de cette analyse montrent également que l'origine des pertes pour la production des isotopes d'argon de courte durée de vie réside autant dans le processus d'effusion que dans le processus de diffusion. Des modifications du système de production de SPIRAL 1 sont proposées.

Enfin, l'analyse des résultats a permis de mettre en évidence les conditions expérimentales qui doivent être remplies pour que l'analyse des données expérimentales soit la plus riche possible.

Pour MonoNaKe, les efficacités totales de production des isotopes de sodium $(^{25,26,27}Na)$ et des isotopes de lithium $(^{8,9}Li)$ sous forme d'ions 1⁺ ont augmenté d'un facteur 4 à 13, comparées à celles issues de l'ensemble cible-source MonoLithe.

Les taux de production des 25,26,27,28,29,30 Na⁺, 36,37,47 K⁺, 8,9 Li⁺ et également des 28,29,30,31 Al⁺ extrapolés aux meilleurs faisceaux disponibles à GANIL pour SPIRAL 1, sont comparés aux taux obtenus à ISOLDE et à TRIUMF. Les efficacités totales de production en fonction de la puissance déposée dans le tube ioniseur ont permis d'en déduire que la présence d'un champ électrique dans le tube ioniseur conduisait à un facteur d'amplification N compris entre 7 et 18 selon les cas.

Les rapports entre les efficacités totales de production et les efficacités totales d'ionisation pour chacun des noyaux produits correspondant à un facteur d'amplification N égal à 7 et N égal à 18 ont montré que les pertes par diffusion dans la cible de production et par effusion au sein de la cavité de la cible sont en accord avec celles estimées pour MonoLithe.

Les processus de diffusion et d'effusion associés à l'utilisation du carbone pour la production des noyaux de courte durée de vie de sodium, potassium et lithium restent encore très pénalisants à des températures de la cible et de la cavité proches de 2000 K. Les taux de
production devraient donc pouvoir être améliorés en augmentant la température de la cible et de la cavité cible.

Enfin, afin d'employer la puissance du faisceau primaire maximum disponible au GANIL (3 kW de 36 S), il est indispensable de redéfinir la cible de production et son environnement (réflecteur et container).

Pour la première fois, le test sous faisceau de l'ensemble cible-source NanoNaKe a mis en évidence la possibilité de capturer un faisceau de ${}^{47}K^{1+}$ (T_{1/2}: 17,5 s) de très faible énergie par un plasma ECR dans une configuration $1^+/N^+$ directe. Cependant, l'efficacité du processus $1^+/N^+$ pour le ${}^{47}K^{5+}$ est estimée à une valeur de 0,04 % (soit un taux de 4.10⁴ pps pour un faisceau primaire de 48 Ca à 60 MeV/A d'une puissance de 400 W) ce qui reste très faible comparée à l'efficacité du processus $1^+/N^+$ mesurée pour le ${}^{39}K^{6+}$ au LPSC de Grenoble.

La capture du 26 Na $^{1+}$ (T_{1/2} : 1,072 s) par le plasma de la source ECR n'a pas été mise en évidence.

L'analyse des résultats expérimentaux a permis d'émettre les hypothèses suivantes concernant l'origine des facteurs de pertes :

- ➢ Neutralisation du faisceau d'ions 1⁺ par le gaz résiduel.
- > Dispersions en angle et en énergie du faisceau d'ions 1^+ induites par le gaz résiduel.
- > Interaction entre le faisceau d'ions 1^+ et le faisceau d'ions N^+ extrait de la source ECR.

Pour l'ensemble cible-source NanoNaKe, il est donc nécessaire de remédier à ces problèmes pour espérer augmenter l'efficacité de conversion $1^+/N^+$.

La source de test hors ligne SISTHE est maintenant construite et les premiers tests sont en cours.

ANNEXES

Annexes du chapitre II : TARGISOL

I. Résultats pour une cible en carbone de $1\mu m$ à une température de $1500^{\circ}C$

On analyse séparément le temps de relâchement et le temps de collection afin de pouvoir comparer les valeurs de λ_D et de I_0 propres aux deux phases.

N°	Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
	C 1 µm	1500	0,65	-6,22	-57,6	105	31	2,80.10 ⁻⁴	2,20.10 ⁻⁴
								Cfit	
1	C 1 µm	1500	0,65	-6,22	-57,6	105	31	2,80.10 ⁻⁴	
2	C 1 µm	1500	0,65	-6,22	-57,6	105	31	2,50.10 ⁻⁴	
3	C 1 µm	1500	0,65	-6,22	-57,6	105	31	2,20.10 ⁻⁴	

Tableau I.1 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 65%

N°	Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
	C 1 µm	1500	0,3	-3,26	-28	105	31	2,80.10 ⁻⁴	2,20.10 ⁻⁴
								Cfit	
4	C 1 µm	1500	0,3	-3,26	-28	105	31	2,80.10 ⁻⁴	
5	C 1 µm	1500	0,3	-3,26	-28	105	31	2,50.10 ⁻⁴	
6	C 1 µm	1500	0,3	-3,26	-28	105	31	2,20.10 ⁻⁴	

Tableau I.2 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 30%

Les valeurs injectées dans le programme sont les valeurs de ϕ_+ , ϕ_- , et de l'efficacité d'ionisation de la source.

Le temps de collection et le temps de relâchement sont traités de manière indépendante.

Après traitement des données corrigées du temps mort, le programme de fit ressort les valeurs de λ_D et de I_0 correspondant à une valeur minimum du Khi² pour chaque jeu de paramètres correspondant à une ligne du tableau ci-dessus.

L'estimation des erreurs sur la valeur de λ_D est obtenue à partir de la variation de l'efficacité d'ionisation et des constantes du taux d'acceptation du générateur.

L'incertitude sur la valeur du coefficient de diffusion est aussi déterminée à partir des écarts mesurés entre la phase de collection et la phase de relâchement.

1. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 65%

A partir des valeurs de λ_D et de I_0 calculées pour chaque jeu de paramètres, on calcule la valeur moyenne de $\langle \lambda_D \rangle$ et de $\langle I_0 \rangle$.

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0/\langle I_0 \rangle$
2,28E-02	1,12	0,023	1%	47610	48160	1,5%
2,26E-02	1,12			48080		
2,23E-02	1,13			48780		

Tableau I.3 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 65%

A partir de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement et de l'efficacité de transport, on déduit la valeur de I_0 implantée dans la cible de diffusion.

I_{0}	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
47610	0,00617	1,98	0,253	15403770
48080	0,00617	1,98	0,253	15555840
48780	0,00617	1,98	0,253	15782320

Tableau I.4 : Valeurs de I_0 pour le temps de relâchement corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 65%.

2. Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65%

$\lambda_D(s^{-1})$	khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
2,22E-02	1,30	0,019	21%	49660	54400	10%
1,87E-02	1,28			53480		
1,46E-02	1,26			60050		

Tableau I.5 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65%

Ι ₀	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
49660	0,00617	1,98	0,253	16067030
53480	0,00617	1,98	0,253	17302960
60050	0,00617	1,98	0,253	19428620

Tableau I.6 : Valeurs de Io pour le temps de collection corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement, et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 65%.

Les résultats de l'analyse pour une efficacité d'ionisation de 65% montrent que les valeurs de λ_D et de *Io* correspondant aux deux phases sont relativement proches (on note un écart de 18%).

3. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30%

$\lambda_D(s^{-1})$	khi ²	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
2,77E-02	1,14	0,027	1%	92190	93250	1,2%
2,76E-02	1,13			93120		
2.71E-02	1.13			94450		

Tableau I.7 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30%

I	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
92190	0,00617	1,98	0,253	2982723
93120	0,00617	1,98	0,253	3012812
94450	0,00617	1,98	0,253	3055843

Tableau I.8 : Valeurs de Io corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement, et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 30% et pour le temps de relâchement.

4. Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30%

$\lambda_D(s^{-1})$	khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0/\langle I_0 \rangle$
4,24E-02	1,26	0,039	9%	81900	84370	3%
3,89E-02	1,28			84270		
3,54E-02	1,32			86950		

Tableau I.9 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30%

Io	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
81900	0,00617	1,98	0,253	26497990
84270	0,00617	1,98	0,253	27264780
86950	0,00617	1,98	0,253	28131870

Tableau I.10 : Valeurs de Io corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement, et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 30% et pour le temps de collection.

L'analyse des données pour une efficacité d'ionisation de 30%, nous montre de nouveau que les valeurs de λ_D et de I_0 correspondant aux deux phases sont relativement proches (un écart de 30% sépare les deux valeurs de λ_D).

5. Comparaison des valeurs de λ_D et de I_{θ} obtenues pour deux valeurs d'efficacités d'ionisation.

Efficacité d'ionisation	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0/\langle I_0 \rangle$
65%	0,021	20%	16590090	24%
30%	0,033	21%	28734730	14%

Tableau I.11 : Valeurs moyennes de λ_D et de I_0 correspondant à une efficacité d'ionisation de la source de 65% et 30%.

On remarque que les valeurs de λ_D sont proches (l'écart entre les valeurs est de 27%). On peut donc vérifier que le coefficient de diffusion de la cible ne dépend pas des conditions de la source, mais uniquement des caractéristiques du matériau de la cible de diffusion et également de la température.

run plastique	pp/s	nAe
17	3,66E+04	14,25
36	5,93E+04	45
48	2,36E+04	14,26

Tableau I.12 : Valeurs des runs plastiques durant l'expérience.

nombre de cycles	Valeur de Io(36)	Valeur de lo (17)	Valeur de lo (48)
29	3,82.10 ⁷	8,23.10 ⁷	5,02.10 ⁷

Tableau I.13 : Valeurs calculées de Io pour un nombre de cycles donné.

Efficacité d'ionisation	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D (s^{-1})$	$< I_{0>fit}$	ΔI_{0fit}
65%	0,021	0,004	16590090	4024850
30%	0,033	0,007	28734730	4060440

Tableau I.14 : Valeurs moyennes en fonction de l'efficacité d'ionisation

II. Fit de la réponse en temps de relâchement et de collection pour une cible en carbone de $1\mu m$ et à une température de $1800^{\circ}C$

Les paramètres de la source (ϕ_+ et ϕ_-) durant cette acquisition sont identiques aux paramètres correspondant au run 35.

Les paramètres (A, B et C) déduits du taux d'acceptation sont différents pour chacune des acquisitions.

La méthode d'analyse des données expérimentales pour une température de 1800°C est la même que la méthode décrite dans le chapitre précédent. On réalise donc le traitement des données en laissant deux paramètres libres (λ_D et *Io*).

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
C1µm	1800	0,65	-6,22	-57,6	72,2	40,4	3,34.10 ⁻⁴	2,20.10 ⁻⁴
							Cfit	
C1µm	1800	0,65	-6,22	-57,6	72,2	40,4	3,34.10 ⁻⁴	
C 1 µm	1800	0,65	-6,22	-57,6	72,2	40,4	2,70.10 ⁻⁴	
C 1 µm	1800	0,65	-6,22	-57,6	72,2	40,4	2,20.10 ⁻⁴	

Tableau II.1 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 65%

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
C 1 µm	1800	0,3	-3,26	-28	72,2	40,4	3,34.10 ⁻⁴	2,20.10 ⁻⁴
							Cfit	
C 1 µm	1800	0,3	-3,26	-28	72,2	40,4	3,34.10 ⁻⁴	
C 1 µm	1800	0,3	-3,26	-28	72,2	40,4	2,70.10 ⁻⁴	
C1µm	1800	0,3	-3,26	-28	72,2	40,4	2,20.10 ⁻⁴	

Tableau II.2 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 30%

1. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 65%

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
6,83E-02	1,35	0,0651	5,2%	44980	46560	3,4%
6,55E-02	1,26			46530		
6,15E-02	1,21			48170		

Tableau II.3 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 65%

$I_{ heta}$	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
44980	0,00617	1,98	0,253	14552860
46530	0,00617	1,98	0,253	15054350
48170	0,00617	1,98	0,253	15584960

Tableau II.4 : Valeurs de lo corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement, et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 65% et pour le temps de relâchement.

2. Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65%

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
8,96E-02	1,51	0,0732	20%	45610	47700	4,3%
7,13E-02	1,94			47770		
5,87E-02	2,58			49740		

Tableau II.5 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65%

I ₀	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
45610	0,00617	1,98	0,253	14756690
47770	0,00617	1,98	0,253	15455540
49740	0,00617	1,98	0,253	16092970

Tableau II.6 : Valeurs de Io corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement, et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 65% et pour le temps de collection.

3. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30%

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
0,1	1,51	0,087	14%	88140	92270	4,3%
8,31E-02	1,37			92710		
7,70E-02	1,3			95970		

Tableau II.7 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30%

I_{θ}	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
88140	0,00617	1,98	0,253	28516890
92710	0,00617	1,98	0,253	29995470
95970	0,00617	1,98	0,253	31050210

Tableau II.8 : Valeurs de Io corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement, et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 30% et pour le temps de relâchement.

4. Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30%

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
1,50E-01	1,67	0,127	9%	87900	89890	2%
1,25E-01	2,33			90140		
1,06E-01	3,2			91630		

Tableau II.9 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30%

$I_{ heta}$	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
87900	0,00617	1,98	0,253	2843924
90140	0,00617	1,98	0,253	2916397
91630	0,00617	1,98	0,253	2964604

Tableau II.10 : Valeurs de Io corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement, et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 30% et pour le temps de collection.

Nombre de cycles	Valeur de Io(36)	Valeur de lo(36) Valeur de lo (17)	
24	4,37.10 ⁷	9,42.10 ⁷	5,74.10 ⁷

Tableau II.11 : Valeurs calculées de lo correspondant pour un nombre de cycles donné.

Efficacité d'ionisation	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D (s^{-1})$	$< I_{0>fit}$	ΔI_{0fit}
65%	0,069	0,015	15248480	770000
30%	0,1	0,04	29432510	1310000

Tableau II.12 : Valeurs moyennes en fonction de l'efficacité d'ionisation.

III. Fit de la réponse en temps de relâchement et de collection pour une cible en carbone de $1\mu m$ et à une température de $1200^{\circ}C$

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
C 1 µm	1200	0,65	-6,22	-57,6	78,2	14,8	2,40.10 ⁻⁴	1,80.10 ⁻⁴
							Cfit	
C 1 µm	1200	0,65	-6,22	-57,6	78,2	14,8	2,40.10 ⁻⁴	
C 1 µm	1200	0,65	-6,22	-57,6	78,2	14,8	2,10.10 ⁻⁴	
C 1 µm	1200	0,65	-6,22	-57,6	78,2	14,8	1,80.10 ⁻⁴	

Tableau III.1 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 65%

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
C 1 µm	1200	0,3	-3,26	-28	78,2	14,8	2,40.10 ⁻⁴	1,80.10 ⁻⁴
					78,2	14,8	Cfit	
C 1 µm	1200	0,3	-3,26	-28	78,2	14,8	2,40.10 ⁻⁴	
C1µm	1200	0,3	-3,26	-28	78,2	14,8	2,10.10 ⁻⁴	
C 1 µm	1200	0,3	-3,26	-28	78,2	14,8	1,80.10 ⁻⁴	

Tableau III.2 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 30%

1. Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 65%

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
5,06.10 ⁻⁵	1,14	4,93.10 ⁻⁵	3%	717200	736790	3%
4,95.10 ⁻⁵	1,14			734230		
4,78.10 ⁻⁵	1,15			758940		

Tableau III.3 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 65%

$I_{ heta}$	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
717200	0,00617	1,98	0,253	232043490
734230	0,00617	1,98	0,253	237553400
758940	0,00617	1,98	0,253	245548090

Tableau III.4 : Valeurs de Io corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement, et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 65% et pour le temps de relâchement.

2. Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65%

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
5,59.10 ⁻⁵	1,09	5,55.10 ⁻⁵	2,5%	700000	666660	7,5%
5,56.10 ⁻⁵	1,07			600000		
5,52.10 ⁻⁵	1,06			700000		

Tableau III.5 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65%

I	Efficacité Ger	Taux embr	Efficacité Trans	$I_{ heta}$ réel
700000	0,00617	1,98	0,253	226478590
600000	0,00617	1,98	0,253	194124510
700000	0,00617	1,98	0,253	226478590

Tableau III.6 : Valeurs de Io corrigées de l'efficacité du détecteur, du taux d'embranchement, et de l'efficacité de transport pour une efficacité d'ionisation de 65% et pour le temps de collection.

nombre de cycles	Valeur de Io(36)	Valeur de lo (17)	Valeur de Io (48)
21	2,36.10 ⁷	5,08.10 ⁷	3,1.10 ⁷

Tableau III.7 : Valeurs calculées de Io pour un nombre de cycles donné.

Efficacité d'ionisation	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D (s^{-1})$	$< I_{0>fit}$	ΔI_{0fit}
65%	5,2.10 ⁻⁵	8.10 ⁻⁶	227037770	770000

Tableau III.8 : Valeurs moyennes en fonction de l'efficacité d'ionisation

IV. Fit de la réponse en temps de relâchement et de collection pour une cible en carbone de $4\mu m$ et à une température de $1200^{\circ}C$

1. Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 56% et à partir de deux paramètres libres (Io et λ_D)

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D(s^{-1})$ fit	I_0
4,40.10 ⁻³	1,10	4,4.10 ⁻³	6,2.10 ⁻³	1,05.10 ⁴
4,40.10 ⁻³	1,10			1,05.10 ⁴
4,42.10 ⁻³	1,10			1,05.10 ⁴

Tableau IV.1 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 65% et à partir de deux paramètres libres (Io et λ_D).

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D(s^{-1})$ fit	I_0
5,92.10 ⁻³	0,96	5,95.10 ⁻³	1,18.10 ⁻³	8,99.10 ³
5,94.10 ⁻³	0,96			8,98.10 ³
5,99.10 ⁻³	0,96			8,94.10 ³

Tableau IV.2 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 65% et à partir de deux paramètres libres (Io et λ_D).

L'erreur relative sur le paramètre de diffusion est supérieure à 100 %, le traitement des données en laissant deux paramètres libres (Io et λ_D) fait apparaître une incertitude trop importante. Dans ce cas, on choisit de fixer la valeur de Io à partir des valeurs correspondantes aux runs plastiques.

2. Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 56% et à partir d'un paramètre libre (λ_D) .

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
C 4 µm	1200	0,56						2,40.
-			4,8	44,4	197	3	2,20.10 ⁻⁴	10 ⁻⁴
							Cfit	
C 4 µm	1200	0,56	4,8	44,4	197	3	2,40.10 ⁻⁴	
C 4 µm	1200	0,56	4,8	44,4	197	3	2,30.10 ⁻⁴	
C 4 µm	1200	0,56	4,8	44,4	197	3	2,20.10 ⁻⁴	

Tableau IV.3 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 56%

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
C 4 µm	1200	0,3	-3,26	-28	197	3	2,20.10 ⁻⁴	2,40.10 ⁻⁴
							Cfit	
C 4 µm	1200	0,3	-3,26	-28	197	3	2,40.10 ⁻⁴	
C 4 µm	1200	0,3	-3,26	-28	197	3	2,30.10 ⁻⁴	
C 4 µm	1200	0,3	-3,26	-28	197	3	2,20.10 ⁻⁴	

Tableau IV.4 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 30%

lo	λ_D	$\Delta \lambda_D (s^{-1}) fit / \lambda_D$	Khi ²
434590	1,35.10 ⁻⁵	2%	1,33
375590	1,60.10 ⁻⁵	2%	1,32
493600	1,17.10 ⁻⁵	2%	1,35

Tableau IV.5 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 56% à partir d'un paramètre libre λ_D

lo	λ_D	$\Delta \lambda_D(s^{-1})$ fit/ λ_D	Khi ²
434590	1,62.10 ⁻⁵	1,5%	1,32
375590	1,91.10 ⁻⁵	1,5%	1,28
493600	1,41.10 ⁻⁵	1,5%	1,33

Tableau IV.6 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 56% à
partir d'un paramètre libre λ_D

3. Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30% et à partir d'un paramètre libre (λ_D).

lo	λ_D	$\Delta \lambda_D(s^{-1})$ fit/ λ_D	Khi ²
434590	2,77.10 ⁻⁵	2%	1,3
375590	3,33.10 ⁻⁵	2%	1,28
493600	2,37.10 ⁻⁵	2%	1,32

Tableau IV.7 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30% à partir d'un paramètre libre λ_D

lo	λ_D	$\Delta \lambda_D (s^{-1}) fit / \lambda_D$	Khi ²
434590	3,32.10 ⁻⁵	1,5%	1,31
375590	3,97.10 ⁻⁵	1,6%	1,28
493600	1,96.10 ⁻⁵	1,5%	1,33

Tableau IV.8 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30% à
partir d'un paramètre libre λ_D

Efficacité d'ionisation	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D(\mathbf{s}^{-1})/<\lambda_D>$	< <i>I</i> ₀ > reel	$\Delta I_0 / < I_0 >$
56%	1,5.10 ⁻⁵	25%	8,5.10 ⁷	14%
30%	2,9.10 ⁻⁵	35%	8,5.10 ⁷	14%

Tableau IV.9 : Valeurs moyennes en fonction de l'efficacité d'ionisation

V. Fit de la réponse en temps de relâchement et de collection pour une cible en carbone de $4\mu m$ et à une température de $1800^{\circ}C$

1. Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 56% et à partir d'un paramètre libre (λ_D)

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	φ_	A	В	С	D
C 4 µm	1800	0,56	4,8	44,4	106	32	2,40.10 ⁻⁴	1,90.10 ⁻⁴
							Cfit	
C4µm	1800	0,56	4,8	44,4	106	32	2,40.10 ⁻⁴	
C 4 µm	1800	0,56	4,8	44,4	106	32	2,20.10 ⁻⁴	
C 4 µm	1800	0,56	4,8	44,4	106	32	1,90.10 ⁻⁴	

Tableau V.1 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 56%

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
C 4 µm	1800	0,3	-3,26	-28	106	32	2,40.10 ⁻⁴	1,90.10 ⁻⁴
					106	32	Cfit	
C 4 µm	1800	0,3	-3,26	-28	106	32	2,40.10 ⁻⁴	
C 4 µm	1800	0,3	-3,26	-28	106	32	2,20.10 ⁻⁴	
C 4 µm	1800	0,3	-3,26	-28	106	32	1,90.10 ⁻⁴	

Tableau V.2 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 30%

lo	λ_D	$\Delta \lambda_D(s^{-1})$ fit	Khi ²
501800	3,59.10 ⁻⁴	1%	1,13
434080	4,60.10 ⁻⁴	1%	1,11
569530	2,90.10 ⁻⁴	1%	1,16

Tableau V.3 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisa	tion a	le 56%	à
partir d'un paramètre libre λ_D .			

lo	λ_D	$\Delta \lambda_D(s^{-1})$ fit	Khi ²
501800	3,84.10 ⁻⁴	0,5%	1,5
434080	4,90.10 ⁻⁴	0,5%	1,42
569530	3,14.10 ⁻⁴	0,5%	1,65

Tableau V.4 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 56% à
partir d'un paramètre libre λ_D

2. Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30% et à partir d'un paramètre libre (λ_D).

lo	λ_D	$\Delta \lambda_D(s^{-1})$ fit	Khi ²
501800	1,04.10 ⁻³	1%	1,13
434080	1,36.10 ⁻³	1%	1,12
569530	8,27.10 ⁻⁴	1%	1,14

Tableau V.5 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30% à
partir d'un paramètre libre λ_D

lo	λ_D	$\Delta \lambda_D(s^{-1})$ fit	Khi ²
501800	1,11.10 ⁻³	0,5%	1,55
434080	1,44.10 ⁻³	0,5%	1,48
569530	8,94.10 ⁻⁴	0,5%	1,63

Tableau V.6: Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30% à partir d'un paramètre libre λ_D

Efficacité d'ionisation	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D(s^{-1})$	< <i>I</i> ₀ > reel	$\Delta I_0/\langle I_0 \rangle$
56%	3,8.10 ⁻⁴	26%	9,8.10 ⁷	13%
30%	1,1.10 ⁻³	27%	9,8.10 ⁷	13%

Tableau V.7 : Valeurs moyennes en fonction de l'efficacité d'ionisation

VI. Fit de la réponse en temps de relâchement et de collection pour une cible en carbone de 16 μ m et à une température de 1800°C

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
C 16 µm	1800	0,88	18,9	184	198	25	2,30.10 ⁻⁴	2,40.10 ⁻⁴
							Cfit	
C 16 µm	1800	0,88	18,9	184	198	25	2,40.10 ⁻⁴	
C 16 µm	1800	0,88	18,9	184	198	25	2,35.10 ⁻⁴	
C 16 µm	1800	0,88	18,9	184	198	25	2,30.10 ⁻⁴	

Tableau VI.1 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 88%

Type de cible	Température °C	Efficacité d'ionisation	ϕ_+	ϕ_{-}	А	В	С	D
C 16 µm	1800	0,3	-3,26	-28	198	25	2,30.10 ⁻⁴	2,40.10 ⁻⁴
							Cfit	
C 16 µm	1800	0,3	-3,26	-28	198	25	2,40.10 ⁻⁴	
C 16 µm	1800	0,3	-3,26	-28	198	25	2,35.10 ⁻⁴	
C 16 µm	1800	0,3	-3,26	-28	198	25	2,30.10 ⁻⁴	

Tableau VI.2 : Valeurs des paramètres d'entrée pour une efficacité d'ionisation de 30%

1. Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 88% et à partir de deux paramètres libres (Io et λ_D)

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
2,05.10 ⁻²	1,22	2,05.10 ⁻²	10%	2,02.10 ⁴	2,02.10 ⁴	4%
2,05.10 ⁻²	1,23			2,02.10 ⁴		
2,04.10 ⁻²	1,23			2,02.10 ⁴		

Tableau VI.3 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 88%

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0/\langle I_0 \rangle$
1,60.10 ⁻²	1,01	1,6.10 ⁻²	27%	2,25.10 ⁴	2,27.10 ⁴	14%
1,60.10 ⁻²	1,01			2,27.10 ⁴		
1,55.10 ⁻²	1,01			2,30.10 ⁴		

Tableau VI.4 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 88%

2. Traitement du temps de relâchement et du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30% et à partir de deux paramètres libres (Io et λ_D)

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D > (s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0/\langle I_0 \rangle$
2,90.10 ⁻²	1,29	2,9.10 ⁻²	9%	4,83.10 ⁴	4,83.10 ⁴	3%
2,9010 ⁻²	1,29			4,83.10 ⁴		
2,9010 ⁻²	1,29			4,83.10 ⁴		

Tableau VI.5 : Traitement du temps de relâchement pour une efficacité d'ionisation de 30%

$\lambda_D(s^{-1})$	Khi ²	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D / < \lambda_D >$	I_0	< <i>I</i> 0>	$\Delta I_0 / < I_0 >$
4,90.10 ⁻²	1,23	4,9.10 ⁻²	10%	4,00.10 ⁴	4,00.10 ⁴	3%
4,91.10 ⁻²	1,23			4,00.10 ⁴		
4,90.10 ⁻²	1,23			4,00.10 ⁴		

Tableau VI.6 : Traitement du temps de collection pour une efficacité d'ionisation de 30%

Efficacité d'ionisation	$<\lambda_D>(s^{-1})$	$\Delta \lambda_D (s^{-1})$	<i<sub>0>fit</i<sub>	ΔI_{0}
88%	1,8.10 ⁻²	8.10 ⁻³	4,4.10 ⁶	6.10 ⁵
30%	3,9.10 ⁻²	1.10 ⁻²	9.10 ⁶	8.10 ⁵

Tableau VI.7 :	Valeurs moyennes	en fonction de l	l'efficacité d'ionisation
		0	

VII. Détermination des paramètres λ_D et Io pour une efficacité d'ionisation de 100% pour une cible en carbone de 1µm et pour une température de 1500°C

Les temps de réponse de la source sont très courts lorsque l'efficacité d'ionisation tend vers 100% ($|\phi_+|$ égal à 164,4s⁻¹ et $|\phi_-|$ égal à 1659,6s⁻¹), ce qui permet de diminuer l'influence de la source sur le processus de diffusion et sur le processus d'effusion.

En effet, on peut estimer l'importance du temps de réponse de la source sur les résultats de l'analyse des temps de collection et des temps de relâchement.

	Phase de de		
С	λ_D	Khi ²	Іо
2,80.10-4	1,89.10-2	1,15	34940
2,50.10-4	1,88.10-2	1,17	35280
2,20.10-4	1,85.10-2	1,19	35810

Tableau VII.1 : analyse de la phase de relâchement pour une cible en carbone de 1µm à une température de 1500°C et pour 100% d'efficacité d'ionisation.

	Phase de mo		
С	λ_D	Khi ²	Io
2,80.10-4	6,65.10-4	1,60	212150
2,50.10-4	5,95.10-4	1,50	225380
2,20.10-4	5,41.10-4	1,41	236920

Tableau VII.2 : analyse de la phase de collection pour une cible en carbone de 1µm à une température de 1500°C et pour 100% d'efficacité d'ionisation.

On remarque que le fait de ne pas prendre en compte les temps de réponse de la source entraîne une augmentation de la valeur du Khi² et entraîne également une différence importante entre les valeurs de λ_D et de lo obtenues pour la phase de collection et les valeurs de λ_D et de lo obtenues pour la phase de relâchement.

VIII. Détermination des paramètres λ_D et lo pour une cible en carbone de 1µm à une température de 1500°C en prenant en compte un décalage de 50ms

Cette analyse nous permet de savoir si la phase de collection est affectée par un décalage en temps durant l'acquisition. Dans ce cas la valeur du Khi² doit être plus faible que la valeur du Khi² issue de la première analyse.

	Phase de mo		
С	λ_D	Khi ²	Io
2,80.10 ⁻⁴	1,66.10 ⁻²	1,44	57020
2,50.10 ⁻⁴	3,44.10 ⁻³	1,38	128320
2,20.10 ⁻⁴	2,67.10 ⁻³	1,32	146260

Tableau VIII.1 : analyse de la phase de collection pour une cible en carbone de $1\mu m$ à une température de $1500^{\circ}C$ en prenant en compte un décalage de 50ms et pour une efficacité d'ionisation de 65%.

	Phase de des		
С	λ_D	Khi ²	Io
2,80.10 ⁻⁴	2,18.10 ⁻²	1,12	49080
2,50.10 ⁻⁴	2,16.10 ⁻²	1,13	49570
2,20.10 ⁻⁴	2,13.10 ⁻²	1,14	50290

Tableau VIII.2 : analyse de la phase de relâchement pour une cible en carbone de 1µm à une température de 1500°C en prenant en compte un décalage de 50ms et pour une efficacité d'ionisation de 65%.

On remarque que le décalage de 50 ms affecte principalement le temps de montée. La valeur du Khi² est plus importante que pour l'analyse réalisée sans décalage en temps (voir §I). Cette analyse permet de conclure que l'on ne doit pas prendre en compte pendant le traitement des données de la phase de collection un décalage supérieur ou égale à 50ms.

Annexe du chapitre III : MonoNaKe

I. Efficacité totale de production en fonction de la puissance déposée dans le four

Elément	Puissance du four (W)	Température cible de production (°C)	Puissance du ioniseur (W)	Efficacité totale de production	I faisceau primaire (nAe)
²⁵ Na (59,1 s)	1631	1425	160	13% (2)	113
²⁵ Na (59,1 s)	1998	1514	160	24% (3)	153
²⁵ Na (59,1 s)	2349	1593	160	43% (6)	215
26 Na (1 s)	1135	1297	138	0,4% (0,05)	180
26 Na (1 s)	1145	1332	138	0,6% (0,05)	472
26 Na (1 s)	1630	1425	138	3% (0,4)	187
26 Na (1 s)	1985	1511	138	11% (1,2)	168
26 Na (1 s)	2359	1595	138	19% (2)	219
26 Na (1 s)	2706	1669	138	20% (2)	183
²⁷ Na (301 ms)	2349	1593	161	12% (2)	99
²⁷ Na (301 ms)	1998	1514	161	6% (0,6)	159
²⁷ Na (301 ms)	1630	1425	161	1,5% (0,1)	211
²⁸ Na (30ms)	2820	1692	161	1,6% (0,2)	323
²⁸ Na (30ms)	2349	1593	161	0,8% (0,3)	191
²⁸ Na (30ms)	1988	1512	161	0,3% (0,1)	318
²⁸ Na (30ms)	1631	1425	161	0,1% (0,01)	388

Tableau I.1 : Efficacité totale de production pour les 25,26,27,28Na en fonction de la puissancedu four

Elément	Puissance du four (W)	Température cible de production (°C)	Puissance du ioniseur (W)	Efficacité totale de production	I faisceau primaire (nAe)
⁸ Li (838 ms)	555	1133	168	$7.10^{-4}\% (1.10^{-4})$	174
⁸ Li (838 ms)	910	1235	168	$2.10^{-3}\% (1.10^{-4})$	157
⁸ Li (838 ms)	1284	1336	168	0,01% (1.10 ⁻³)	183
⁸ Li (838 ms)	1616	1422	168	0,1% (0,01)	172
⁸ Li (838 ms)	1963	1507	168	0,7% (0,04)	168
⁸ Li (838 ms)	2334	1590	168	2,6% (0,16)	171
⁸ Li (838 ms)	2719	1671	168	4,9% (0,3)	168
⁹ Li (178 ms)	1619	1423	168	0,014% (7.10 ⁻⁴)	195
⁹ Li (178 ms)	1967	1507	168	0,11% (6.10 ⁻³)	199
⁹ Li (178 ms)	2329	1589	168	0,45% (0,023)	200
⁹ Li (178 ms)	2692	1666	168	1% (0,05)	199

Tableau I.2 : Efficacité totale de production pour les ^{8,9}Li en fonction de la puissance du four

Elément	Puissance du four (W)	Température cible de production (°C)	Puissance du ioniseur (W)	Efficacité totale de production	I faisceau primaire (nAe)
47 K (17,5s)	1268	1332	30	17% (7)	135
47 K (17,5s)	1608	1420	30	34% (12)	159
47 K (17,5s)	1986	1512	30	53% (22)	133
47 K (17,5s)	2033	1523	30	64% (34)	115
47 K (17,5s)	2357	1595	30	61% (17)	240
47 K (17,5s)	2741	1676	30	72% (17)	305
37 K (1,23s)	1632	1426	30	6% (4)	348
37 K (1,23s)	2147	1550	30	12% (4)	329

Tableau I.3 : Efficacité totale de production pour les 37,47K en fonction de la puissance dufour

II. Efficacité totale de production en fonction de la puissance déposée dans le tube ioniseur

Element	Puissance four (W)	Pioniseur	Vextraction (Volts)	Efficacité totale de production	I faisceau primaire (nAe)
26 Na (1s)	2700	44	1,03	7% (1)	215
²⁶ Na (1s)	2700	60	1,23	10% (1)	198
²⁶ Na (1s)	2700	97	1,46	15% (2)	235
²⁶ Na (1s)	2700	111	1,51	16% (2)	212
²⁶ Na (1s)	2700	123	1,54	17% (2)	230
²⁶ Na (1s)	2700	137	1,58	18% (2)	245
26 Na (1s)	2700	152	1,66	18% (2)	226

Tableau II.1 : Efficacité totale de production pour les ²⁶Na en fonction de la puissance du ioniseur

Element	Puissance four (W)	Pioniseur	Vextraction (Volts)	Efficacité totale de production	I faisceau primaire (nAe)
⁸ Li (838 ms)	2720	57	1,2	1,7% (0,1)	162
⁸ Li (838 ms)	2720	83	1,4	2,8% (0,2)	116
⁸ Li (838 ms)	2720	111	1,51	3,8% (0,3)	117
⁸ Li (838 ms)	2720	138	1,59	4,5% (0,4)	118
⁸ Li (838 ms)	2720	166	1,75	4,8% (0,4)	121
⁹ Li (178 ms)	2700	0	0	0,03% (0,002)	180
⁹ Li (178 ms)	2700	14	0,45	0,07% (0,004)	181
⁹ Li (178 ms)	2700	29	0,77	0,1% (0,01)	182
⁹ Li (178 ms)	2700	57	1,2	0,3% (0,02)	186
⁹ Li (178 ms)	2700	84	1,41	0,6% (0,03)	192
⁹ Li (178 ms)	2700	111	1,5	0,8% (0,04)	196
⁹ Li (178 ms)	2700	139	1,6	1% (0,1)	197
$^{9}Li(178 \text{ ms})$	2700	166	1 75	1%(01)	199

Tableau II.2 : Efficacité totale de production pour les 8,9Li en fonction de la puissance duioniseur

Element	Puissance four (W)	Pioniseur	Vextraction (Volts)	Efficacité totale de production	I faisceau primaire (nAe)
47 K (17,5 s)	2700	0	0	55% (24)	113
47 K (17,5 s)	2700	14	0,44	68% (29)	116
47 K (17,5 s)	2700	31	0,84	72% (17)	113
47 K (17,5 s)	2700	137	1,59	70% (5)	166

Tableau II.3 : Efficacité totale de production pour les 47K en fonction de la puissance duioniseur

III. Calcul de l'efficacité totale d'ionisation d'une source d'ions

Ce modèle peut être appliqué à une source à plasma ECR mais également à une source à ionisation de surface et permet de calculer une efficacité totale d'ionisation. Cette approche analytique dépend des processus d'ionisation, d'effusion atomique, d'effusion ionique et de neutralisation. Chacun de ces processus est caractérisé par « $\lambda_{processus}$ » qui représente une probabilité par unité de temps exprimée en seconde⁻¹ au même sens que la période radioactive. La source d'ions est considérée comme une «boite noire» dans laquelle nao atomes sont injectés à t=0.



Avec

✓ nao : le nombre d'atomes injectés dans la source à t = 0.

- \checkmark ni sortie : le nombre d'ions sortant de la source.
- ✓ na sortie : le nombre d'atomes sortant de la source.

Soit ni : le nombre d'ions présents dans la source au cours du temps t et na : le nombre d'atomes présents dans la source au cours du temps t.

On peut calculer la variation des atomes et la variation des ions présents dans la source d'ions en fonction du temps.

On obtient le système d'équation différentielle suivant :

$$\frac{dn_a}{dt} = \lambda_0 n_i - \left(\lambda_i + \lambda_{eff}\right) n_a \tag{1}$$

$$\frac{dn_i}{dt} = \lambda_i n_a - \left(\lambda_0 + \lambda_{ieff}\right) n_i \tag{2}$$

Avec :

- \checkmark λi : Probabilité d'ionisation d'un atome par unité de temps.
- \checkmark λ0 : Probabilité de neutralisation d'un ion par unité de temps.
- \checkmark λ eff : Probabilité de sortie des atomes par unité de temps.
- \checkmark λ ieff : Probabilité de sortie des ions par unité de temps.

Pour des éléments radioactifs, le système d'équation devient :

$$\left. \frac{dn_a}{dt} \right|_{source} = \lambda_0 n_i + \chi_a n_a \tag{3}$$

$$\frac{dn_i}{dt}\Big|_{source} = \lambda_i n_a + \chi_i n_i \tag{4}$$

Avec :

$$\chi_a = -(\lambda_i + \lambda_{eff} + \lambda)$$
(5)

et

$$\chi_i = -(\lambda_0 + \lambda_{ieff} + \lambda) \tag{6}$$

、

λ : Décroissance radioactive.

Les solutions s'écrivent :

$$n_{a}(t) = \frac{1}{(\varepsilon_{1} - \varepsilon_{2})} \Big[\big((\varepsilon_{1} - \chi_{i}) n_{a0} + \lambda_{0} n_{i0} \big) \exp(\varepsilon_{1} t) - \big((\varepsilon_{2} - \chi_{i}) n_{a0} + \lambda_{0} n_{i0} \big) \exp(\varepsilon_{2} t) \Big]$$
(7)

et

$$n_{i}(t) = \frac{1}{(\varepsilon_{1} - \varepsilon_{2})} \Big[\big((\varepsilon_{1} - \chi_{a}) n_{i0} + \lambda_{i} n_{a0} \big) \exp(\varepsilon_{1} t) - \big((\varepsilon_{2} - \chi_{a}) n_{i0} + \lambda_{i} n_{a0} \big) \exp(\varepsilon_{2} t) \Big]$$
(8)

Avec :

Les deux valeurs propres $\varepsilon 1$ et $\varepsilon 2$ de la matrice :

$$egin{array}{ccc} \chi_a & \lambda_0 \ \lambda_i & \chi_i \end{array}$$

On obtient :

$$\varepsilon_{1} = \frac{\left(\chi_{a} + \chi_{i}\right)}{2} + \frac{1}{2}\sqrt{\left(\left(\chi_{a} - \chi_{i}\right)^{2} + 4\lambda_{i}\lambda_{0}\right)}$$
(9)

et

$$\varepsilon_{2} = \frac{\left(\chi_{a} + \chi_{i}\right)}{2} - \frac{1}{2}\sqrt{\left(\left(\chi_{a} - \chi_{i}\right)^{2} + 4\lambda_{i}\lambda_{0}\right)}$$
(10)

nio : la valeur de nombre d'ions ni à t = 0 et nao : la valeur du nombre d'atomes na à t = 0. À partir des résultats précédents, on peut exprimer en fonction des différentes constantes l'efficacité d'ionisation de la source d'ions :

On définit l'efficacité d'ionisation telle que :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{n_{isortie}}{n_{a0}} = \frac{\lambda_{ieff} \int_{0}^{\infty} n_i(t) dt}{n_{a0}}$$
(11)

Pour des noyaux stables, on obtient une efficacité d'ionisation :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\lambda_{ieff} \lambda_i}{\lambda_i \lambda_{ieff} + \lambda_{eff} \lambda_0 + \lambda_{eff} \lambda_{ieff}}$$
(12)

et pour des éléments radioactifs :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\lambda_i \lambda_{ieff}}{\lambda_i \lambda_{ieff} + \lambda_i \lambda + \lambda_{eff} \lambda_0 + \lambda_{eff} \lambda_{ieff} + \lambda_{eff} \lambda + \lambda \lambda_0 + \lambda \lambda_{ieff} + \lambda^2}$$
(13)

IV. Application à une source à ionisation de surface

1. Passage de considérations statistiques à des considérations physiques

A partir des expressions des densités atomiques et ioniques en fonction du temps, on peut obtenir l'expression suivante pour l'efficacité d'ionisation :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\lambda_i \lambda_{ieff}}{\lambda_i \lambda_{ieff} + \lambda_i \lambda + \lambda_{eff} \lambda_0 + \lambda_{eff} \lambda_{ieff} + \lambda_{eff} \lambda + \lambda \lambda_0 + \lambda \lambda_{ieff} + \lambda^2}$$
(14)

Les « λ processus » sont basés sur un phénomène physique aléatoire qui ne peut être exprimé qu'à partir d'une probabilité.

La fréquence de ces processus dépend aussi du temps de collage et du temps de vol entre deux collisions. Il existe différentes probabilités par unité de temps.

2. Probabilité d'ionisation de surface par unité de temps

$$\lambda_i = \frac{p_+}{\left(\tau_c + \tau_v\right)} \tag{15}$$

Avec $p_{+} = \left(1 + \frac{g_o}{g_+} e^{\binom{I-w_s}{kT}}\right)^{-1}$ la probabilité d'ionisation de surface définit par Langmuir pour une collision et τ_v et τ_c , respectivement les temps de vol et de collage sur les parois du ioniseur.

3. Probabilité de neutralisation par unité de temps

$$\lambda_0 = \frac{1 - p_+}{\left(\tau_c + \tau_v\right)} + \int_0^\infty \sigma(v_e) v_e \cdot n_e \cdot f(v_e) dv_e + \int_0^\infty \sigma(v_a) n_a v_a f(v_a) d(v_a - v_i)$$
(16)

Où le premier terme est la probabilité pour qu'un ion se neutralise au contact de la surface de la source et le deuxième, la probabilité pour qu'il se neutralise par capture électronique à partir des électrons présents dans le volume de la source et par échange de charge avec le gaz résiduel.

Les paramètres physiques pour la capture électroniques sont :

- o σ_e : Section efficace de capture électronique.
- \circ v_e : Vitesse des électrons.
- \circ n_e : Densité électronique.
- $f(v_e)$: Fonction de distribution de vitesse des électrons.

Les paramètres physiques pour l'échange électronique entre deux atomes sont :

- \circ σ_a : Section efficace d'échange électronique.
- $\circ v_a$: Vitesse des atomes.
- \circ n_a : Densité d'atomes.
- $f(v_a)$: Fonction de distribution de vitesse des atomes.

Le processus de recombinaison électronique sera négligé dans la suite du calcul car les sections efficaces sont de l'ordre de $10^{-21}/10^{-20}$ cm² pour des électrons thermiques.

4. Probabilité d'effusion des atomes par unité de temps

$$\lambda_{eff} = \frac{1}{\chi_{ioniseur} \left(\tau_c + \tau_v \right)}$$
(17)

Où $\chi_{ioniseur}$ est le nombre moyen de collisions des atomes sur les parois du ioniseur. Sa valeur peut être estimée à partir du rapport de la surface du ioniseur sur la surface des orifices de sortie.

En écrivant, l'expression de l'efficacité d'ionisation (14) peut s'écrire :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\lambda_i}{\left(\lambda_i + \lambda_{eff} + \lambda\right) + \frac{\lambda_{eff}}{\lambda_{ieff}} (\lambda_0 + \lambda) + \frac{\lambda}{\lambda_{ieff}} (\lambda_i + \lambda_0 + \lambda)}$$
(18)

On obtient comme expression de l'efficacité totale d'ionisation :

$$\varepsilon = \frac{\chi_{ioniseur}}{\frac{1}{P_{+}} + \chi_{ioniseur} + \frac{\chi_{ioniseur}(\tau_{c} + \tau_{v})\ln 2}{\frac{1}{2}}\left(\frac{1}{p_{+}}\right) + \frac{T_{ieff}}{\tau_{c} + \tau_{v}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{(\tau_{c} + \tau_{v})\ln 2}{\frac{1}{P_{+}}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{\tau_{ieff}}{\frac{1}{P_{+}}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{\tau_{ieff}}{\frac{1}{P_{+}}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{\tau_{ioniseur}(\tau_{c} + \tau_{v})\ln 2}{\frac{1}{P_{+}}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{\tau_{ieff}}{\frac{1}{P_{+}}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{\tau_{ioniseur}(\tau_{c} + \tau_{v})\ln 2}{\frac{1}{P_{+}}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{\tau_{ioniseur}(\tau_{c} + \tau_{v})\ln 2}{\frac{1}{P_{+}}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{\tau_{ieff}}{\frac{1}{P_{+}}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{\tau_{ioniseur}(\tau_{c} + \tau_{v})\ln 2}{\frac{1}{P_{+}}}\left(\frac{1}{P_{+}}\right) + \frac{\tau_{io$$

avec $T_{ieff} = \frac{\ln 2}{\lambda_{ieff}}$ représente le temps d'effusion ionique.

5. Influence des paramètres physiques

La formule 19 nous permet d'appréhender l'influence des différents paramètres physiques propres à l'ionisation de surface dans un tube chaud sur l'efficacité totale. Dans la suite de ce chapitre, nous allons étudier l'influence de la probabilité d'extraction dans 2 cas particuliers extrêmes :

- ✓ L'extraction est instantanée : Une fois ionisés, les ions sont extraits sans interagir une nouvelle fois avec la paroi.
- ✓ Les ions ont une probabilité non négligeable d'interagir avec la paroi de la source avant de quitter la source.

Les ions sont extraits sous l'influence d'une force électrique

L'influence d'une force électrique permet d'aller chercher des ions, ionisés une première fois dans la source, loin du trou d'extraction de la source sans qu'ils se reneutralisent sur les parois. Puisque les ions sont extraits, la probabilité de sortie des ions par unités de temps λ_{ieff} est augmentée.

Soit un potentiel d'extraction très important : $\lambda_{ieff} \rightarrow \infty$

L'expression de l'efficacité d'ionisation devient :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\lambda_i}{\lambda_i + \lambda_{eff} + \lambda}$$
(20)

ou encore

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{p_+}{p_+ + \lambda_{eff} (\tau_c + \tau_v) + \lambda(\tau_c + \tau_v)}$$
(21)

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{p_+}{p_+ + \frac{1}{\chi_{ioniseur}} + \frac{(\tau_c + \tau_v)\ln 2}{T_{1/2}}}$$
(22)

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\chi_{ioniseur \, P_{+}}}{\chi_{ioniseur \, P_{+}} + 1 + \frac{\chi_{ioniseur \, (\tau_{c} + \tau_{v}) \ln 2}}{\frac{T_{1/2}}{2}}}$$
(23)

En conclusion, on obtient :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\chi_{ioniseur}}{\chi_{ioniseur} + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - \omega_s}{kT}\right) + \frac{\chi_{ioniseur}(\tau_c + \tau_v)\ln 2}{\frac{T_1}{2}} \left(1 + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(\frac{I - \omega_s}{kT}\right)\right)}$$
(24)

6. Cas où le potentiel d'extraction est nul : les ions sortent par effusion

L'efficacité d'ionisation est plus faible si le potentiel d'extraction est plus faible car les ions ionisés une première fois dans la source, loin du trou d'extraction de la source peuvent se re-neutraliser sur les parois au lieu de sortir directement. L'ion se comporte comme un atome neutre quant à sa propagation dans la source vers l'orifice de sortie de la source. On peut donc poser :

$$\lambda_{eff} = \lambda_{ieff}$$

La probabilité, par unité de temps, de sortir sous forme d'atome ou d'ion est la même. On suppose dans ce cas que le phénomène d'effusion atomique est identique au phénomène d'effusion ionique. L'expression (14) peut alors se mettre sous la forme :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{\lambda_i}{\lambda_i + \lambda_0 + \lambda_{eff} + \lambda} \frac{\lambda_{eff}}{\lambda_{eff} + \lambda}$$
(25)

Cette expression nous permet de découpler la partie « ionisation de surface », de la partie « effusion » des ions et des atomes. En effet, l'efficacité totale d'ionisation se résume à un produit de deux efficacités.

La partie « ionisation de surface » est le rapport d'un terme constant λi correspondant à la transformation d'un atome en ion sur la somme totale des termes correspondant à l'ensemble des processus physiques qui influencent l'efficacité d'ionisation de surface à savoir λi , $\lambda 0$ et λ eff.

La partie « effusion » des ions ou des atomes est le rapport d'un terme constant concernant l'effusion des ions sur la somme totale des termes correspondant à l'ensemble des processus physiques qui influencent l'efficacité d'effusion à savoir la probabilité d'effusion des ions ou des atomes et la probabilité de ne pas décroître par décroissance radioactive lambda.

En utilisant les équivalents physiques des « λ processus », l'équation (12) devient :

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{p_{+}}{1 + \lambda_{eff}(\tau_{c} + \tau_{v}) + \lambda(\tau_{c} + \tau_{v})} \frac{\lambda_{eff}}{\lambda_{eff} + \lambda}$$
(26)

$$\varepsilon_{ionisation} = \frac{p_{+}}{1 + \frac{S_{orifices}}{S_{totale}} + \frac{\ln 2(\tau_{c} + \tau_{v})}{T_{1/2}}} \frac{\lambda_{eff}(\tau_{c} + \tau_{v})}{\lambda_{eff}(\tau_{c} + \tau_{v}) + \frac{\ln 2(\tau_{c} + \tau_{v})}{T_{1/2}}}$$
(27)

$$\varepsilon_{ionisation} = \left(\frac{S_{totale}}{S_{totale} + S_{orifices} + S_{totale} \frac{(\tau_c + \tau_v)}{T_{1/2}} \ln 2}\right) \cdot p_+ \cdot \left(\frac{\lambda_{eff}(\tau_c + \tau_v)}{\lambda_{eff}(\tau_v + \tau_c) + \frac{(\tau_c + \tau_v)}{T_{1/2}} \ln 2}\right)$$
(28)

 ε ionisation = ε contact. ε ionisationdesurface. ε effusion (29)

Dans cette formule, τc et τv sont les temps moyens de collision et de vol entre deux collisions successives. Le nombre moyen de collisions atomiques $\chi_{ioniseur}$ est pris en compte dans les

rapports de surface : $\chi_{ioniseur} \approx \frac{S_{totale}}{S_{orifices}}$. Le troisième terme de l'équation correspond à

l'expression de la probabilité d'effusion pour un atome radioactif déjà déterminée pour des cavités cibles. On décompose donc l'efficacité totale d'ionisation par le produit de la probabilité de toucher l'ioniseur, de la probabilité d'ionisation de surface à chaque contact et de la probabilité d'effusion.

Pour obtenir l'efficacité totale d'ionisation la plus grande possible, il faut faire tendre chacune des efficacités ci-dessus vers 1.

Intéressons nous à l'efficacité de contact :

$$\varepsilon_{contact} = \frac{S_{totale}}{S_{totale} + S_{orifices} + S_{totale}} \frac{(\tau_c + \tau_v) \ln 2}{T_{1/2}}$$
(30)

Si le tube est suffisamment chaud et le matériau du tube adéquate, le terme $(\tau c + \tau v)/T1/2$ est généralement faible. A titre indicatif, le temps de collage donné par la référence [Tar-02] est de 6,75.10⁻⁹s par collision pour un atome de Na sur une surface de rhénium et pour une température de 2000 K. Pour les sources à ionisation de surface, on choisit généralement un tube plus long que son diamètre. L'efficacité de contact peut tendre vers 1.

$$\varepsilon_{ionisation} = \varepsilon_{ionisationdesurface} \varepsilon_{effusion} = P_{+} \cdot \frac{\lambda_{eff}}{\lambda_{eff} + \lambda}$$
(31)

Dans le cas où le potentiel d'extraction est nul :

$$\varepsilon_{ionisation} = P_{+} \cdot \left(\frac{1}{1 + \lambda \chi_{ioniseur}(\tau_{v} + \tau_{c})} \right)$$
(32)

V. Comparaison des températures mesurées de l'ioniseur et des températures simulées de l'ioniseur en fonction de la puissance du four



Tioniseur Pioniseur = 170 W

Annexe du chapitre $IV : 1^+/N^+$ pour SPIRAL 1

I. Dispersion en énergie des ions monochargés liée à l'interaction coulombienne avec un milieu gazeux ou un milieu solide

La dispersion en énergie ΔE après la traversée d'un milieu solide ou gazeux peut s'exprimer de la manière suivante [Ya-91-01] :

$$\Delta E = \Delta E_B \sqrt{\gamma^2 \frac{\Delta E_{CHU}^2}{\Delta E_B^2} + \frac{\Delta (\Delta E)^2}{\Delta E_B^2}}$$
(1)

 ΔE_B représente la dispersion en énergie issue de la théorie de Bohr [Bohr-48-01]. ΔE_{CHU} , la dispersion en énergie obtenue par Chu [Chu-77-01]. $\Delta(\Delta E)$, une dispersion en énergie liée aux effets de corrélations. γ , la charge effective fractionnée [Zie-85-01].

L'expression de γ peut s'écrire de la façon suivante :

$$\gamma = \frac{\overline{q}}{Z_{ion}} + \left(1 - \frac{\overline{q}}{Z_{ion}}\right) \frac{1}{2} \left(\frac{V_0}{V_F}\right)^2 \ln\left(1 + \left(\frac{2\Lambda V_F}{a_0 V_0}\right)^2\right)$$
(2)

 V_F représente la vitesse de Fermi.

Z_{ion}, le nombre de proton de l'ion.

 V_0 , la vitesse de Bohr (2,19.10⁶ m.s-1). a₀, le rayon de Bohr (5,29.10⁻¹¹ m).

q, la charge moyenne de l'ion.

 Λ , l'étendue spatiale de la densité de charge électronique de l'ion.

L'étendue spatiale de la densité de charge électronique de l'ion est :

$$\Lambda = \frac{2a_0 \left(1 - \frac{\bar{q}}{Z_{ion}}\right)^{2/3}}{Z_{ion}^{1/3} \left(\frac{1 - \frac{\bar{q}}{Z_{ion}}}{7}\right)}$$
(3)

La dispersion en énergie issue de la théorie de Bohr est :

$$\Delta E_B^2 = 4\pi (Z_{ion})^2 Z_{milieu} \left(\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0}\right)^2 N_{milieu} X_0$$
(4)

Où :

X₀ est l'épaisseur du milieu traversé.

e est la charge de l'électron.

Zmilieu, le nombre de protons d'un atome du milieu traversé.

N_{milieu}, le nombre d'atomes, par unité de volume, du milieu traversé.

 ε_0 , la permittivité du vide.

La dispersion en énergie Δ^2_{CHU} est obtenue par la relation empirique :

$$\frac{\Delta E_{CHU}^2}{\Delta E_B^2} = \frac{1}{1 + A_1 E^{A_2} + A_3 E^{A_4}}$$
(5)

E représente l'énergie des ions en MeV/A, A_1 , A_2 , A_3 , A_4 sont des coefficients d'ajustement (voir tableau AIV.1).

Zmilieu	\mathbf{A}_1	\mathbf{A}_2	\mathbf{A}_3	\mathbf{A}_4
11	-0,5776	-0,6665	0,6598	-0,8484
19	-0,5355	-0,7722	0,7962	-0,7839

La dispersion en énergie supplémentaire $\Delta(\Delta E)$, liée aux effets de corrélation est représentée par la formule empirique suivante :

$$\frac{\Delta(\Delta E)^2}{\Delta E_B^2} = \frac{Z_{ion}^{4/3}}{Z_{milieu}^{1/3}} \cdot \frac{C_1 C_3 \left(-e^{-C_4 \xi}\right)}{\left(\xi - C_2\right)^2 + C_3^2 \left(-e^{-C_4 \xi}\right)}$$
(6)

Où C₁, C₂, C₃ et C₄ sont des constantes qui ont permis d'ajuster la dispersion en énergie totale des ions sur des données expérimentales existantes

Ces coefficients dépendent du type de milieu traversé : solide, gaz monoatomique et gaz moléculaire (voir tableau AIV.2).

Cible	Gaz monoatomique	Gaz moléculaire	Solide
C_1	5,058.10 ⁻²	5,009.10 ⁻²	1,273.10 ⁻²
C_2	8,975.10 ⁻²	8,660.10 ⁻²	3,458.10 ⁻²
C ₃	0,1419	0,2751	0,3931
C_4	10,80	3,787	3,812

Pour un milieu traversé solide :

$$\xi = \frac{E}{Z_{ion}^{3/2} \sqrt{Z_{milieu}}}$$
(7)

Où *E* est l'énergie incidente.

Pour un milieu traversé gazeux :

$$\xi = \frac{E}{Z_{ion}^{3/2}} \tag{8}$$

II. Calcul du coefficient de ralentissement :

La relation du coefficient de ralentissement est décrite à partir de la relation suivante :

$$\frac{\left\langle \Delta W_{a \, / /} \right\rangle_{b}}{\Delta t} = -\frac{n_{b}}{2\pi\varepsilon_{0}^{2}} \left[\frac{Z_{a} Z_{b} e^{2}}{m_{a} \overline{W_{b}}} \right]^{2} \left[1 + \frac{m_{a}}{m_{b}} \right] R(u_{ab}) \ln \Lambda \tag{9}$$

Cette expression a été obtenue en supposant que la distribution $f(W_b)$ est maxwellienne. n_b est la densité des électrons, $\ln \Lambda$ est le logarithme coulombien qui dépend de la longueur de Debye et du paramètre d'impact critique ($\ln \Lambda = \ln \lambda_{De}/b$), sa valeur est environ égale à 15 pour une source ECR [Tam-96-01]. m_a et m_b sont respectivement la masse de l'espèce a et de l'espèce b, et le terme R(u_{ab}) correspond à l'intégrale suivante :

$$R(u_{ab}) = \frac{2}{\pi^{1/2}} \frac{1}{u_{ab}^2} \int_{0}^{U_{ab}} x^2 e^{-x^2} dx$$
(10)

où $u_{ab} = \frac{w_a}{w_b}$

Le coefficient de ralentissement d'un ion incident dû à l'interaction avec les ions et les électrons du plasma s'écrit de la manière suivante :

$$\left\langle \Delta W_{ic} \right\rangle_{ip,e^{-}} = \left\langle \Delta W_{ic} \right\rangle_{e^{-}} + \left\langle \Delta W_{ic} \right\rangle_{ip} \tag{11}$$

Le coefficient de ralentissement d'un ion incident par un plasma s'exprime donc de la manière suivante

$$\frac{\langle \Delta W_{ic} \rangle_{ip,e^-}}{\Delta t} = -\frac{n_e}{2\pi\varepsilon_0^2} \left(\frac{e^2}{m_e \overline{W_e}}\right)^2 B(w_{ic}) \ln \Lambda \tag{12}$$

Avec :

$$B(W_{ic}) = Z_{ic}^{2} \frac{m_{e}}{m_{ic}} \left[R(u_{ic,e}) + \langle Z_{ip} \rangle \left(1 + \frac{m_{ip}}{m_{ic}} \right) R(u_{ic,ip}) \right]$$
(13)

Où n_e est la densité électronique du plasma, $\overline{W_e}$ la vitesse moyenne des électrons du plasma, m_e la masse des électrons, m_{ip} et m_{ic} sont respectivement la masse des ions du plasma et la masse des ions incidents, et Z_{ic} et $\langle Z_{ip} \rangle$ sont la charge des ions incidents et la charge moyenne des ions du plasma.

La charge moyenne peut être calculée à partir de la distribution des états de charge pour un élément donné à partir de la relation suivante :

$$\left\langle Z\right\rangle = \sum_{i=1}^{N} Z_{i} I / \sum_{i=1}^{N} I_{i}$$
(14)

Où Z_i est l'état de charge d'une espèce ionique, I_i l'intensité associée et N l'état de charge. La fonction $R(u_{ic,e})$ est définie par la relation suivante :

$$R(u_{ic,e}) = \frac{2}{\pi^{1/2}} \frac{1}{u_{ie}^2} \int_{0}^{U_{ue}} x^2 e^{-x^2} dx$$
(15)

Avec $u_{ic,e} = \frac{W_{ic}}{\overline{W}_e}$

La fonction $R(u_{ic,ip})$ est également définie par la relation suivante :

$$R(u_{ic,ip}) = \frac{2}{\pi^{1/2}} \frac{1}{u_{iip}^2} \int_0^{U_{iip}} x^2 e^{-x^2} dx$$
(16)

Avec $u_{ic,ip} = \frac{W_{ic}}{\overline{W}_{ip}}$
BIBLIOGRAPHIE

[Ac-07-01] T. Achtzen, Hyperfine Interactions, Vol. 174 p.27-32 (2007).

[Af-77-01] VP. Afanas'ev & al., Nucl. Inst. and Meth; Vol. 145 p.533-536 (1977).

[Am-90-01] F. Ames & al., Applied Physics Vol. B 51 p.200-206 (1990).

[Am-03-01] F.Ames & al., Proceedings of the Tenth International Conference on Ion Sources, Dubna, Russia (2003), Review Scientific Instrument Vol 75 1662.

[Ann-87-01] R. Anne & al., Nucl. Inst. And Method, Vol. A257 p.215 (1987).

[Ann-93-01] R. Anne, On Line Isotopic Separator Test Benches at GANIL, IEEE Particle Accelerator Conference, New York, USA, Vol. 3 p.1792-1794 (1993).

[Ar-00-01] J. Arianer, L'injection d'agrégats dans une source ECR et le transport aval (2000).

[Ar-04-01] J. Arianer, Les sources de particules chargées, DEA-PTGI (2004).

[Ays-87-01] J. Aystö & al., Nucl. Inst. and Method. Phys. Res., Vol. B26 p.394 (1987).

[Ban-00-01] V. Banerjee & al., Nucl. Inst. and Method. Phys. Res., Vol. A 447 p.345-349 (2000).

[Bar-93-01] E. Baron & al., NIM, Vol. A 328 p.177 (1993).

[Bee-07-01] J. Beene, Falicities Americas, EMIS 07, Deauville (2007), soumis à publication

[Ben-03-01] JRJ. Bennett & al., Nucl. Inst. and Meth in Phys. Res. Vol. B 204 p.211-214 (2003).

[Ben-03-02] JRJ. Bennett & al., Nucl. Inst. and Meth in Phys. Res. Vol. B 204 p.215-219 (2003).

[Bey-71-01] G J. Beyer & al. Nucl. Inst. and Meth in Phys. Res. Vol 96 p 437-439

[Boe-69-01] J.H. de Boer, The dynamical character of adsorption, Clarendon Press Oxford (1969).

[Bohr-48-01] N. Bohr, K.Dan. Vidensk. Selk. Mat.-Fys. Medd. 18 n°8 (1948).

[Bou-98-01] M.P. Bourgarel and the SPIRAL/GANIL groups, SPIRAL facility : first result on the CIME Cyclotron obtained with stable ion beams, Proceedings of the 15th Int. Conf. On Cyclotrons and their Applications, Caen, France, p.311, Ed. E. Baron and M. Lieuven. Publisher : IOP (1998).

[Boy-97-01] 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 (1997).

[Bla-07-01] B. Blank & al., soumis à Rep. Prog. phys. http://fr.arxiv.org/abs/0709.3797 (2007)

[Blo-62-01] BH. Blott & al., Letters to the Editor Vol. 80 p.989-991 (1962).

[Blu-07-01] Y. Blumenfeld, Radiactve beam facilities in Europe : status and plans, EMIS 07, Deauville (2007), soumis à publication.

[Br-92-01] P. Bricault, An on Line Isotopic Separator test bench at GANIL, Proceedings of the 13th International Conference on Cyclotrons and Applications, Vancouver (1992).

[Br-03-01] P. Bricault & al., "High power target developments at ISAC", Nucl. Inst. and Meth in Phys. Res. Vol. B 204 p.319-324 (2003).

[Br-06-01] P. Bricault & al., Nucl. Rev. Sci. Instrum 77, 03 A 710 (2006).

[Chak-04-01] A. Chakrabati, "Radioactive ion beam facility development at VECC KOLKATA", Proceedings of APAC 2004, Gyeongju, Corée.

[Ca-01] http://www.cathode.com/pdf/tb-118.pdf

[Cha-98-01] N. Chauvin & al., Nucl. Inst. and Meth in Phys. Res. Vol. A 419 p.185-188 (1998).

[Cha-99-01] N. Chauvin & al., International workshop on ECR sources (1999).

[Cha-00-01] N. Chauvin, PhD thesis, University of Joseph Fourrier, Grenoble (France) (2000).

[Chen-84-01] F. Chen, Introduction Plasma Physucs ans Controlled Fuson Plenum Press (1984).

[Chei-06-01] M. Cheik Mhamed & al., "Development of a plasma ion source for next-generation facilities" Review of Scientific Instruments 77, 03A702(2006).

[Chu-77-01] W. K. Chu, Ion beam handbook for material analysis, ed. J. W. Mayer and E. Rimini, Academic Press, New York (1977).

[CP0-07] Charge Particle Optics programs, CPO, LTD, Manchester, UK, http://www.electronoptics.com/

[Del-94-01] J.L. Delacroix & A. Bers, physique des plasmas 1 et 2, savoirs actuels, InterEditions/CNRS Editions (1994).

[Des-01] DESIR Collaboration LOI-SPI2-01, http://www.ganil.fr/research/developments/spiral2/loi_texts.html [Do-07-01] M. Dombsky & al., "High intensity targets for ISOL, historical and practial perspectives", EMIS 07, Deauville (2007), soumis à publication.

[Dr-07-01] A. DROUART & al., "Design Study of a Pre-Separator for the LINAG Super Separator Spectrometer", EMIS07, Deauville (2007), soumis à publication.

[Du-04-01] F. Durantel CNAM, GANIL R04 02 (2004).

[Ef-03-01] A. Efremov & al., "The 2.45 GHz ECR ion source for the first stage of the DRIBs project", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 204 p.368-371 (2003).

[El-06-01] C. Eléon & al., Rev. Sci. Instrum 77, 03A704 (2006).

[El-07-01] C. Eléon & al., « Development of a surface ionization source for the production of radioactive alkali ions in SPIRAL », EMIS 07, Deauville (2007), soumis à publication.

[El-07-02] C. Eléon & al., « Measurement of the Ar diffusion coefficient in carbon at high temperature by the ISOL method », EMIS 07, Deauville (2007), soumis à publication.

[El-07-03] C. Eléon & al., « Development of a $1^+/N^+$ set-up for the production of multicharged radioactive alkali ions in SPIRAL », ICIS 07, Corée du Sud – Jéju, (2007), accepté dans Review Scientif Instruments

[Em-01] http://www.pyrometry.com/emissivity_materials.php

[Es-03-01] S. Essabaa & al., "Photo-fission for the production of radioactive beams ALTO project", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 204 p.780-784 (2003).

[Fad-07-01] M. FADIL & al., "About the production rates and the activation of the uranium carbide target in SPIRAL2", XVth International Conference on Electromagnetic Isotopes Separators and Techniques related to their applications EMIS 07, soumis à publication (2007).

[Fra-06-01] H. Franberg, Wokshop SPIRAL 2 Poster, Giens (83) et thèse en cours (2007).

[Fri-06-01] T. Fritioff & al., Nucl. Inst. and Meth. Vol. A 556 p.31-37 (2006).

[Fu-81-01] M. Fujioka, Nucl. Inst. and Meth., Vol. 186 p.409-412 (1981).

[Gad-07-01] A. Gade et T. Glasmacher, soumis à Progress in Particle and Nuclear Physics doi: 10.1016/j.ppnp.2007.08.001 (2007)

[Gan-01] GANIL, site web du GANIL, http://www.ganil.fr

[Gau-03-01] G. Gaubert & al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 74, p.956 (2003).

[Gau-06-01] G.Gaubert & al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 77, 03A326 (2006).

[Gea-03-01] Géant 4, Nucl. Inst. abd Meth., Vol. A 506 p.250-303 (2003).

[Gel-82-01] R. Geller & al, le chauffage stochastique des électrons par la résonance cyclotronique électronique. Etude expérimentale d'un plasma dans une structure à puits magnétique, EUR-CEA-FC-1138 (1982).

[Gel-96-01] R. Geller et al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 67-2 (1996).

[Gia-07-01] Giacomo Cuttone, "EXCYT : the RIB facility at INFN-LNS", EMIS 07, Deauville, (2007), soumis à publication.

[Gib-03-01] S. Gibouin & al., Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., Vol. B 204 p.240-245 (2003).

[Gib-03-02] S. Gibouin, PhD thesis, University of CAEN, France, GANIL T03 02 (2003).

[Gio-02-01] J. Giovinazzo & al,, Phys. Rev. Lett. 89 102501 (2002)

[Gol-60-01] V. I. Goldansky, Nucl. Phys. 19 482 (1960)

[Hs-01] HSC Chemistry, Chemical Reaction and Equilibrium Software with extensive Thermochemical Database Outokumpu Research. http://www.outokumpu.com/hsc

[Huy-83-01] M. Huyse, Nucl. Inst. and Meth. Vol. 215 p.1-5 (1983).

[Hue-05-01] C. HUET-EQUIBEC & al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, Vol. 240, Issue 3, p.752 (2005).

[Ip-01] IPN Orsay : http://ipnweb.in2p3.fr/communication/communication/rapport/rapact_200102/pdf/actech/DA/ Parrne.pdf

[Is-01] http//isolde.web.ch/ISOLDE

[Ja-02-01] P. Jardin & al., Rev. Sci. Instrum. 73 789 (2002)

[Ja-03-01] P. Jardin & al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Vol. B 204 p377 (2003).

[Ja-04-01] P. Jardin & al., Nuclear Instruments and Methods in Physics. Vol. B 225 p.374-382 (2004).

[Ja-04-02] P. Jardin & al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 75 p.1617-1620 (2004).

[Ja-06-01] P. Jardin & al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 77, 03A707 (2006).

[Je-04-01] S.C. Jeong et al. Rev. Sci. Instrum. Vol. 75, 1631 (2004)

[Joh-73-01] P G. Johnson & al., Nuclear Instruments and Methods in Physics. Vol 106 p 83-87 (1973)

[Jou-93-01] A. Joubert & al., Proceedings of the Particle Accelerator Conference, Vol. 3, p.1789-1791 (1993).

[Kaw-95-01] H. Kawano & al., Vacuum, 46, n°8-10, 1139-1143 (1995)

[Kaw-98-01] H. Kawano & al., Rev. Sci. Instrum. Vol 69 (1998).

[Kaw-99-01] H. Kawano & al., Applied Surface Science 146 105 (1999).

[Kaw-00-01] H. Kawano &al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 71 (2000).

[Kan-99-01] S. Kandri & al., Identification system for SPIRAL, Porceedings of International Conference on Cyclotrons and their Applications 15, Caen (1998).

[Ke-04-01] O. Kester & al., European Commission project (2004) HPRI-CT-1999-50003.

[Kir-78-01] R. Kirchner & al., Nucl. Inst. and Meth Vol. 153 p.291-292 (1978).

[Kir-81-01] R. Kirchner, Nucl. Inst. and Meth Vol. 186 p.275-293 (1981).

[Kir-86-01] R. Kirchner, Nucl. Inst. and Meth in Phys. Res. Vol. A 247 p.265-280 (1986).

[Kir-87-01] R. Kirchner, Nucl. Inst. Meth. Vol. B26 p.204 (1987).

[Kir-90-01] R. Kirchner, Nucl. Inst. and Meth in Phys. Res. Vol. A 292 p.203-208 (1990).

[Kir-92-01] R. Kirchner, Nucl. Inst. and Meth in Phys. Res. Vol. B 70 p.186-199 (1992).

[Kir-97-01] R. Kirchner, Nucl. Inst. and Meth in Phys. Res. Vol. B 126 p.135-140 (1997).

[Kir-97-02] R. Kirchner, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 204 p.179-190 (2003).

[Ko-00-01] U. Köster & al., PhD Thesis, Physik-Department der Technischen Universität München (2000).

[Ko-05-01] U. Köster & al., Eur. Phys. J. Vol. A 25 01 p.729-731 (2005).

[Lam-98-01] T. Lamy & al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 69 n°3 (1998).

[Lam-02-01] T. Lamy & al., EPAC 02 p1724-1726 (2002).

[Lam-06-01] T. Lamy & al., "Status of charge breeding with electron cyclotron resonance in sources", Rev. Sci. Instrm. Vol. 77 03B101 (2006).

[Lam-07-01] Communication privée avec T. Lamy.

[Lan-70-01] Landolt-Börnstein, Diffusion in solid metals and alloy, Crystal and Solid State Physics, Vol. 26 (1970).

[Lau-03-01] C. Lau & al., "Recent studies to improve release properties from thick isotope separator on-line fission targets", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 204 p.246-250, (2003).

[Lau-03-02] C. Lau & al., "Production of neutron-rich surface-ionized nuclides at PARRNe", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 204 p.257-260, (2003).

[Lec-97-01] N. Lecesne, PhD thesis, University of Caen, France, GANIL T 97 08 (1997).

[Lei-05-01] M. Santana-Leitner, PhD thesis, CERN, Suisse, (2005)

[Ler-04-01] R. Leroy & al., AIP Conf. Proc. Vol. 749 p.137 (2004).

[Ler-07-01] R. Leroy & al., EMIS 07 en préparation (2007).

[Let-03-01] J. Lettry & al., "Effects of thermal shocks on the release of radioisotopes and on molten metal target vessels", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 204 p.251-256 (2003).

[Lhe-06-01] G. Lhersonneau & al., Nucl. Inst. And Meth. Vol.A 566 p.465-471 (2006).

[Lhe-07-01] G. Lhersonneau & al., Report on the R&D of Uranium Carbide targets by the PLOG collaboration at PNPI-Gatchina (2007).

[Lia-82-01] C.F. Liang & al., Z. Phys. Vol. A 309 p.185 (1982).

[Lich-98-01] R. Lichtenthäler & al, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B 140 415 (1998)

[Liu-03-01] Weiping Liu, "Current progress of nuclear astrophysics study and BRNBF at CIAE", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 204 p.62-70 (2003).

[Lo-07-01] M. Loiselet, communication privée.

[Lou-01] CRC de Louvain la Neuve : http://www.cyc.ucl.ac.be/

[Ma-98-01] L. Maunoury, PhD thesis, University of CAEN, France, GANIL T 98 01 (1998).

[Ma-01-01] L. Maunoury & al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B 184 441-449 (2001)

[Mat-01] http://www.wolfram.com/products/mathematica/index.html

[Me-77-01] F.W. Meyer, Phys Rev A, vol 15 nb2 456 (1977).

[Mo-04-01] G. Moya, Cours de caractérisation des matériaux, DESS Sciences des matériaux, Université Aix Marseille III (2004).

[Mu-77-01] A. Muller & E. Salzborn, phys. Lett. Vol. 62A p.391 (1977).

[Mus-03-01] B.Mustapha &al., Nucl. Inst. and Meth. Vol. 204 p.286-292 (2003).

[Na-01] A. Nagler & al., "Status of the SARAF Project", Poceedings of LINAC 2006 Knoxville Tennessse USA MOP054

[No-70-01] L. C. Northcliffe, NDT, Vol. A7 p.233-463 (1970).

[Or-01] http://www.phy.ornl.gov/hribf/accelerator/oricweb/

[Or-02] http://www.orau.org/stewardship/

[Pa-06-01] V. Panteleev & al., Rev. Sci. Instrm. Vol. 77 03A705 (2006).

[Pel-01-01] F. Landré-Pellemoine, PhD thesis, University of Caen, France, GANIL T 01 03 (2001).

[Pfu-02-01] M. Pfüner & al., Eur. Phys J A14 279 (2002)

[Ph-01] H. Stöcker, Toute la Physique 1^{er} et 2^e cycles/Ecoles d'ingénieurs (1998).

[Pi-07-01] A. Pichard, Projet fin d'étude effectué au GANIL, Problématique d'une source à ionisation de surface dédiée à la production de faisceaux d'ions radioactifs (2007)

[Poc-99] EDM POCO graphite, Technical Manual, édition 99.

[Pr-06-01] E.J. Prime & al., Hyperfine Interactions, Vol. 171 p.127-134 (2006).

[Py-01] http://www.techniques-ingénieur.fr/affichage/DispIntro.asp?nGcmID=R2803

[Rad-01] http://www.esrf.eu/Accelerators/Groups/InsertionDevices/Software/Radia

[Ra-85-01] A.A. Radzig & al. Reference Data on Atoms, Molecules and Ions, Springer, Berlin (1985).

[Rav-92-01] H. Ravn and B. Allardyce, Treatise on Heavy –Ion Sciences, ed. D. Bromley (Plenum, New York) vol. 8, p 363. Et Références incluses (1989).

[Rav-94-01] HL. Ravn & al., Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. Vol. B 88 p.441-461 (1994).

[Ria-01] http://www.orau.org/ria/beams.htm

[Rob-74-01] B. Robrieux & al., Académie des Sciences de Paris Vol. 278 p.659-662 (1974).

[Rod-03-01] A. M. Rodin & al., "Status of ACCULINNA beam line", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 204 p.114-118 (2003).

[Roo-01] <u>http://root.cern.ch/</u>

[Rou-02-01] B. Roussière & al., Nucl. Inst. And Meth. Vol. B 194, p.151 (2002).

[Rou-06-01] B. Roussière & al., Nucl. Inst. And. Meth. Vol. B 246, p.288-296 (2006)

[Sai-07-01] M.-G. Saint-Laurent, The Eighth International Topical Meeting on Nuclear Applications and Utilization of Accelerators, ACCAPP'07, July 30 to August 2, 2007, Pocatello, Idaho, US et reférences incluses.

[Sak-07-01] H. Sakurai, "Present and future radioactive ion beam facilities in the middle east and east", EMIS 07, Deauville, (2007), en cours de préparation.

[Sa-07-01] H. Savajols & al., MAYA : "An active target detector for the study of extremely exotic nuclei", EMIS 07, Deauville, (2007), en cours de préparation.

[Sav-07-01] G. Savard & al., Proceedings of EMIS 07, Deauville (2007), en cours de préparation.

[Si-01] http://www.sisweb.com/simion.htm

[Sor-07-01] O. Sorlin, The International Symposium on Physics of Unstable Nuclei (ISPUN07), Hoi An : Viet Nam (2007) <u>http://hal.in2p3.fr/in2p3-00163281/fr/et</u> references incluses

[SpI-01] SPIRAL I, site web du GANIL, http://www.ganil.fr

[SpI-94-01] The SPIRAL radioactive ion beam facility, GANIL Report R 94 02 (1994).

[SpII-01] SPIRAL II, http://www.ganil.fr/research/developments/spiral2/index.html

[SpII-02] SPIRAL II, Report of the SPIRAL II Detailed Design Study (APD).

[St-06-01] D. W. Stracener, HRIBF Workshop - Nuclear Measurements for Astrophysics, (2006).

[Su-00-01] K. Sümmerer & al., Phys. Rev. Vol. C61, 034607 (2000).

[Sy-01] www.esi-group.com/SimulationSoftware/Multi_physics/

[Sym-79-01] T.J.M. Symons & al., Phys. Rev. Lett.42 40 (1979).

[Tam-96-01] C. Tamburella, PhD thesis, University of Denis Diderot Paris VII (1996).

[Tam-97-01] C. Tamburella & al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 68 (6) p2319-2321 (1997).

[Tan-85-01] I. Tanihata & al., Phys. Rev. Lett., Vol. 55 2676 (1985).

[Tan-85-02] I. Tanihata & al., Phys. Rev. Lett., Vol. 160 B p.380 (1985).

[Tar-01] Targisol report N° HPRI-2001-50063 (2006)

[Tar-02] Targisol, site web, http://www.targisol.csic.es/

[Tec-07-01] L. B. TECHIO, "Design of High Power Neutron Converter for SPIRAL-2", XVth International Conference on Electromagnetic Isotopes Separators and Techniques related to their applications. EMIS 07, To be published (2007).

[Tr-05-01] M. Tinczek. Nucl. Phys. A 758, 729-732 (2005)

[Vi-97-01] ACC. Villari and the SPIRAL group, Nuclear Physics, Vol. A 616 p.21c-28c (1997).

[Vi-02-01] ACC Villari and the SPIRAL group, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res Vol. B (2002).

[Vi-07-01] ACC. Villari & al., Nucl. Phys. Vol. A 787 p.126c-133c (2007).

[Vi-07-02] ACC. Villari & al., "S3: the Super Separator Spectrometer for LINAG" International Symposium on Exotic Nuclei Khanty-Mansiysk (RU) July 17-22 j 2006, AIP Conference Proceedings 912, p. 436 (2007).

[Wa-06-01] Watanabe, The Seventh International Conference on Radioactive Nuclear Beams (RNB7) Cortina d'Ampezzo, Italy, (2006).

[Ya-91-01] Q.Yang & al., Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. p.149-155 (1991).

[Zha-99-01] H. Zhang, Ion Sources, Science Press Beijing and Springer (1999).

[Zha-05-01] H. Zhang, Journal of Vacuum Science Technology, Vol.23, Issue 6, p.1558-1567 (2005).

[Zie-85-01] J. F. Ziegler, & al., Volume 5 of the stopping and range of ions in matter, Pergamon, New York (1985).

RESUME

Ce travail de thèse concerne l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL. Il s'inscrit dans le cadre de la R&D pour SPIRAL à GANIL. Deux études destinées à améliorer les performances de SPIRAL ont été réalisées à partir d'une approche statistique originale du processus de transformation atomes-ions.

La première étude porte sur les temps de transformation entre les instants de production des atomes radioactifs d'³⁵Ar dans une cible et d'extraction des ions radioactifs correspondant hors de la source à l'aide du dispositif TARGISOL (cible + source ECR). Le but était de déterminer les coefficients de diffusion de l'Ar dans des cibles en carbone graphite. Les résultats sont présentés et démontrent la rigueur qu'exige cette étude.

La seconde étude est une application de l'approche statistique au fonctionnement d'une source à ionisation de surface. Elle a permis de redéfinir et de construire un ensemble de production de faisceaux d'ions 1⁺ alcalins radioactifs MonoNaKe. Des ions radioactifs de ^{37,47}K, ^{25,26,27,28,30}Na, ^{8,9}Li et ^{28,29,30,31}Al ont été produits.

Pour produire un faisceau d'ions alcalins radioactifs multichargés, l'ensemble cible-source MonoNaKe a été couplé avec une source ECR de même type que celle utilisée actuellement sur SPIRAL 1, sans utiliser de séparateur de masse (méthode $1^+/N^+$ directe). Un premier faisceau d'ions radioactifs $^{47}K^{5+}$ a été extrait sur le banc de test SIRa.

Une source de test hors ligne basée sur les mêmes principes que ceux adoptés pour la définition de MonoNaKe a été construite. Son but est d'élaborer un prototype de source répondant aux contraintes de SPIRAL 2 (efficacité d'ionisation et durée de vie).

Research and development for the production of radioactive ions for SPIRAL.

ABSTRACT

This thesis is related to the R&D for the production of radioactive ion beams by the ISOL method for SPIRAL at GANIL. Two studies concerning improvements to the performance of SPIRAL target-source system have been made, using a statistical approach to the atoms-to-ions transformation.

The first study concerns the transformation time between the production of the radioactive atoms of 35 Ar inside a target and the extraction of the radioactive ions from the source with the TARGISOL set-up (target + ECR source). The goal was to determine the diffusion coefficients of the Ar for the carbon target. The results were presented and illustrate the difficulty of this work.

The second study is the application of the statistical approach to the surface ionization source. It allowed one to define and to build a new MonoNaKe set-up for the production of 1^+ radioactive alkaline ions. Radioactive ions of 37,47 K, 25,26,27,28,30 Na, 8,9 Li and 28,29,30,31 Al were produced.

For the production of the multicharged radioactive alkali ions, the MonoNaKe target/ionsource system was coupled to the ECR source of SPIRAL 1 without a mass separator $(1^+/N^+)$ direct method). A first radioactive ion beam of ${}^{47}K^{5+}$ was extracted at the SIRa test bench.

A surface ionization test source based on the same technical characteristics of MonoNaKe has been built. The goal of this system will be to define a prototype of source adapted to the constraints of SPIRAL 2 (ionization efficiency and lifetime).

Mots clés : Physique nucléaire, diffusion, faisceau d'ions radioactifs, sources d'ions

Discipline : Sciences de la matière et génie des procédés

Grand Accélérateur National d'Ions Lourds BP 55027 14076 CAEN Cedex 05