

Contribution au développement des sources d'ions de type Résonance Cyclotronique Electronique. Applications des ions multichargés à des expériences de Physique Atomique et des Surfaces

L. Maunoury

▶ **To cite this version:**

L. Maunoury. Contribution au développement des sources d'ions de type Résonance Cyclotronique Electronique. Applications des ions multichargés à des expériences de Physique Atomique et des Surfaces. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de Caen, 2011. tel-00936865

HAL Id: tel-00936865

https://theses.hal.science/tel-00936865

Submitted on 27 Jan 2014

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.

Grand Accélérateur National d'Ions Lourds

Caen Université Basse Normandie
U.F.R. Sciences

Contribution au développement des sources d'ions de type Résonance Cyclotronique Electronique

Applications des ions multichargés à des expériences de Physique Atomique et des Surfaces

Mémoire présenté et soutenu publiquement le 20 décembre 2011

pour l'obtention de l'

Habilitation à Diriger des Recherches de l'Université de Caen Basse Normandie
(Spécialité : Milieux dilués et Optique fondamentale)

Par

Laurent MAUNOURY

Composition du jury

Rapporteurs : **Jacques Pelletier**, Directeur de Recherche Émérite, Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, Grenoble, France
Philippe Roncin, Directeur de Recherche, Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay, Université Paris-Sud 11, Orsay, France
Lamri Adoui, Professeur de l'Université de Caen, Centre de recherche sur les Ions, Matériaux et la Photonique, Caen, France

Examinateurs : **Santo Gammino**, Directeur de Recherche, Istituto Nazionale di Fisica Nucleare Laboratori Nazionali del Sud, Catane, Italie
Gilles Ban, Professeur de l'École Nationale Supérieure d'Ingénieurs de Caen, Caen, France
Marie Geneviève Saint-Laurent, Chercheur CEA, Ganil, Caen, France

École Doctorale SIMEM : Sciences des Structures, de l'Information, de la Matière et des Matériaux

Pour tous, il faudra faire de la création une ambition, de l'invention une exigence, du nouveau une nécessité !

Lignes d'horizon (1992)

Citations de Jacques Attali

Remerciements

Je voudrai tout d'abords remercier M. Lamri Adoui qui m'a parrainé pour cette HDR et soutenu sans faille tout au long de la rédaction de ce mémoire. Merci à tous les membres du jury (rapporteurs et examinateurs) qui ont bien voulu consacré une partie de leur temps précieux à la lecture et correction de ce document ainsi qu'à leurs nombreuses questions pertinentes lors de la soutenance.

Tout le travail présenté dans ce mémoire est issu d'efforts communs avec des personnes sans qui rien n'aurait été possible :

- ***Jean-Yves Pacquet** : tu as été pour moi mon « Mentor » dans le domaine des sources d'ions de type ECR et tu m'as enseigné une voie de travail où l'ouverture d'esprit et l'innovation tiennent une part importante*
- ***Bruno Manil** : mon compagnon d'expérience qui m'a fait aimé la Physique et m'a permis de m'amuser tout en travaillant : beaucoup de plaisir nous avons eu mais également beaucoup de très beaux résultats*
- ***Bernd Huber** : merci pour la confiance que tu as mis en moi, tu m'as permis de m'épanouir au sein d'ARIBE / ITLEIF et j'ai abondamment appris à ton contact*
- ***Marie Geneviève Saint-Laurent** : sans toi ce document n'aurai jamais vu le jour ; ta pugnacité et tes conseils ont permis la réalisation de cette HDR*

Merci à l'ensemble des étudiants qui m'ont obligé à me remettre en cause continuellement pour le bien des recherches menées : C. Pierret, O. Tuske, A. Soisnard, B. Delafontaine, C. Dubois, C. Lemaignan, M. Hervieu, R. Baptiste, T. Lesourd, V. Salou

Merci à l'ensemble de mes collègues du CIMAP et du GANIL qui ont chacun à leur échelle contribué à ce travail aussi bien du point de vue professionnel que du point de vue personnel.

Je voudrai également remercier toutes mes collègues des laboratoires nationaux (LPC Caen, INSP Jussieu, LASIM Lyon, ISMO Orsay) et internationaux (ATOMKI, Debrecen ; TUV, Wien ; APL, Riken ; AU, Aarhus ; SU, Stockholms) pour les excellents moments passés ensemble à réaliser des expériences, à discuter les résultats et à se découvrir mutuellement au travers de cultures différentes.

Un très grand Merci à ma famille (Imke, Aurora et Skalfa) qui m'ont appuyé et soutenu le long de la rédaction de ce mémoire et qui ont subi de mes absences prolongées pour sa réalisation.

Table des Matières

Chapitre I. Introduction 6

Chapitre II. Les sources d'ions de type Résonance Cyclotronique Electronique (RCE) 7

Section 2.01 Structure magnétique d'une source d'ions RCE 8

Section 2.02 La population électronique et les ions produits 10

Section 2.03 Fonctionnement d'une source RCE en mode pulsé 15

Section 2.04 Extraire les ions de la source 19

Section 2.05 Productions spécifiques avec une source RCE : deux exemples 24

Chapitre III. Utilisation des ions multichargés créés par une source d'ions de type RCE : quelques applications 31

Section 3.01 Création de microfaisceaux d'ions multichargés 32

Section 3.02 Ions multichargés : interaction avec les surface ou comment utiliser un « bistouri » nanométrique pour nanostructurer une surface 36

Section 3.03 Ions multichargés : sonde pour l'étude des fullerènes et biomolécules 39

Chapitre IV. Conclusion 52

Chapitre V. Bibliographie 54

Chapitre I. Introduction

Les sources d'ions et leurs développements ont toujours été étroitement liés aux accélérateurs de particules chargées. Les premières sources d'ions ont plus de 70 ans d'existence puisqu'elles datent des années avant guerre (1) (2). Elles n'ont eu de cesse de se développer pour offrir un panel d'ions large aussi bien en terme d'états de charge (1-,1+ à n+) que de type d'éléments et d'intensités. Dans ce contexte, de nombreux types de sources d'ions ont été développés dès les années 1930 jusqu'à ce jour. Une famille est née des études sur la fusion nucléaire : les ECRIS ou Electron Cyclotron Resonance Ion Source soit, en français, source d'ions à Résonance Cyclotronique Electronique RCE. Ces sources ont été créées et développées par l'équipe de R. Geller au centre CEA de Grenoble dans les années 1965 (3).

Les sources RCE sont utilisées sur la plupart des accélérateurs de particules du monde : Riken Japon, INFN Italie, GANIL Caen France, CEA-Saclay France, Berkeley USA, Texas AM USA, OakRidge USA, MSU USA, Triumf Canada, Dubna Russie, KVI Pays bas, Louvain Belgique, GSI Allemagne, IMP Lanzhou Chine, Jyväskyla Finlande, KEK Tsukuba Japon etc…). Elles connaissent un intérêt toujours grandissant pour augmenter leurs performances ou à performances égales pour diminuer en taille surtout avec l'avènement des aimants FeNdB à fort champ rémanent (> 1.4 T).

De telles sources se sont également répandues à travers de nombreux laboratoires (ATOMKI, Debrecen, Hongrie ; LASIM, Lyon, France ; ISMO, Orsay, France ; INSP, Paris, France ; TUV, Vienne, Autriche ; QUB, Belfast, Irlande ; ANSTO, Sydney, Australie ; etc…) où elles permettent de faire des expériences de Physique en utilisant des ions multichargés en interaction avec différents systèmes : surfaces, agrégats, atomes, ions. Ces laboratoires jouent un rôle important dans le développement des sources d'ions RCE ainsi que dans leur dissémination.

Depuis quelques années, ces sources d'ions trouvent aussi des applications dans l'industrie. Même si ce n'est qu'un début, la miniaturisation de ces objets associée à la conservation de performances intéressantes permet l'émergence de ce type de sources d'ions dans l'industrie. Donnons deux exemples parmi d'autres:

- Utilisation de sources pour délivrer des ions mono ou multichargés proton, hélium, carbone pour l'hadronthérapie : HIT Heidelberg Allemagne, Compagnie SIEMENS ;
- Utilisation de sources ou association de telles sources avec d'autres technologies pour le traîtement des matériaux permettant la modification des propriétés de surface : société Oxford Instruments (UK) Quertech Ingénierie (France) Plasma consult (Allemagne) Nano-Master Inc. (USA).

La suite du document va présenter le travail réalisé tout d'abord sur les sources d'ions (Chapitre II) en abordant les différents aspects de celles-ci : champ magnétique ; population électronique ; fonctionnement en mode pulsé ; extraction des ions du plasma et production de quelques faisceaux d'ions atypiques. Le chapitre III expose le travail fait par l'utilisation des ions multichargés produits avec ces sources d'ions : création de microfaisceaux d'ions multichargés à l'aide de capillaires en verre ; utilisation de des ions multichargés pour modifier structurellement la surface d'un matériau et emploi ce ceux-ci comme sonde pour étudier des systèmes complexes comme les molécules et agrégats de fullerène et les biomolécules. Le document se termine par une conclusion générale sur les travaux exécutés (chapitre IV) et la bibliographie (chapitre V).

Chapitre II. Les sources d'ions de type Résonance Cyclotronique Electronique (RCE)

Dans ce chapitre, je vais résumer l'ensemble des travaux que j'ai réalisés concernant le développement de ce type de source d'ions ainsi que leurs perspectives.

Une source d'ions de type RCE est composé au minimum, comme le montre la figure 1, des composantes suivantes :

- un système magnétique permettant de réaliser la condition de résonance cyclotronique électronique ;
- un ou deux systèmes d'injection d'une onde hyperfréquence (le domaine est typiquement entre 1 et 60 GHz) ;
- une enceinte sous vide associée à des pompes primaires et secondaires où règne un vide de quelques 10^{-3} mb à 10^{-7} mb ;
- un ou deux systèmes d'injection de gaz ou de vapeurs métalliques neutres ;
- un système d'extraction des ions qui peut être à simple ou multi électrodes.

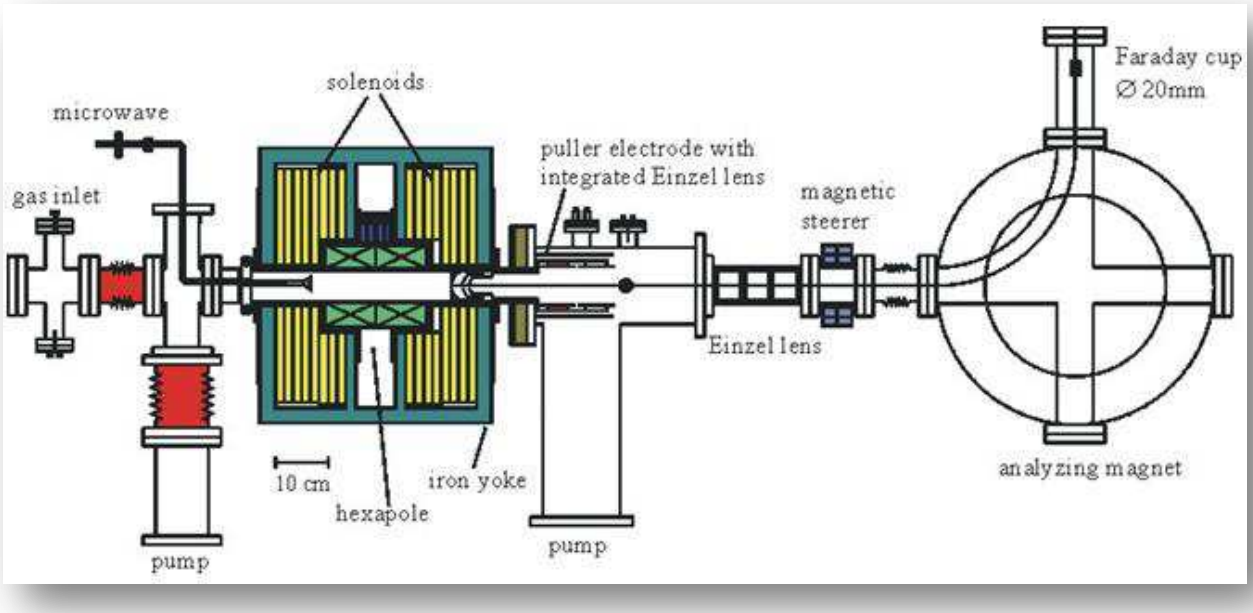


Figure 1 : Un exemple d'ECRIS qui illustre bien les composantes d'une telle source (Images prises de Institut für Atom- und Molekülphysik, Justus-Liebig University Giessen)

Le principe d'une telle source est relativement simple : une onde électromagnétique dont la fréquence est dans le domaine du GHz est envoyée dans une enceinte sous vide où existent des lignes de flux magnétique. Les électrons se mouvant autour des lignes de flux magnétique ont une fréquence de giration qui, dans les conditions adéquates, est égale à la fréquence de l'onde hyperfréquence permettant ainsi un transfert d'énergie accélérant ces électrons. Le système magnétique de la source est la superposition d'un champ magnétique axial de type miroir magnétique et d'un champ radial multipolaire confinant les électrons et les obligeant à passer plusieurs fois par une zone dite zone de résonance caractérisée par la valeur de l'induction magnétique B_r :

$$B_r = \frac{f * 2\pi m_e}{e} \quad (1)$$

f(Hz) fréquence de l'onde hyperfréquence injectée dans la source
m_e (kg) = masse de l'électron
e = charge de l'électron
B_r (T) = module de l'induction magnétique pour laquelle il y a le phénomène de Résonance Cyclotronique Électronique

Ainsi les électrons vont ioniser pas à pas les atomes et les ions pour créer un plasma confiné magnétiquement. Un système d'extraction des ions est placé à l'une des extrémités de la source. Un ion se présentant sur le ménisque faisant l'interface entre le plasma et le vide va être accéléré par le champ électrique accélérateur présent.

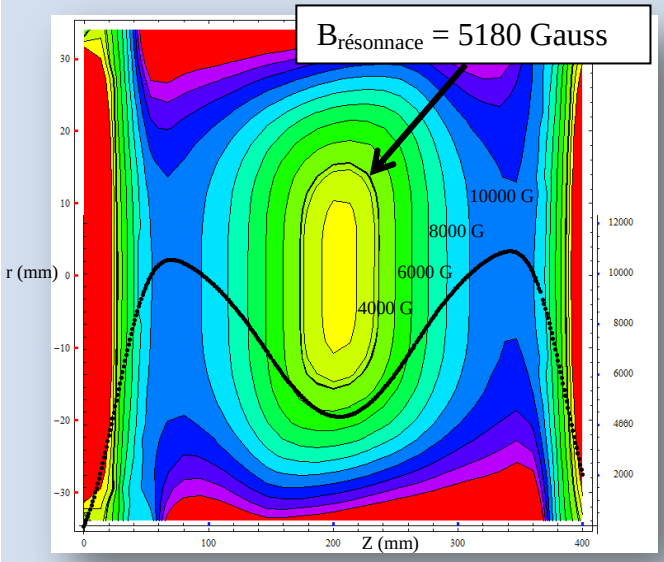
Dans cette première partie, nous allons passer en revue différents travaux portant sur le développement de différents aspects d'une source d'ions RCE :

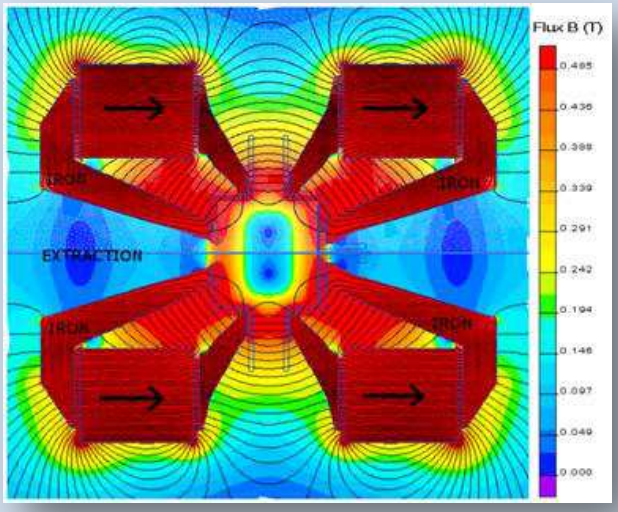
- structure magnétique ;
- population électronique ;
- fonctionnement de la source en mode pulsé ;
- extraction des ions ;
- deux exemples de production atypique de faisceaux d'ions.

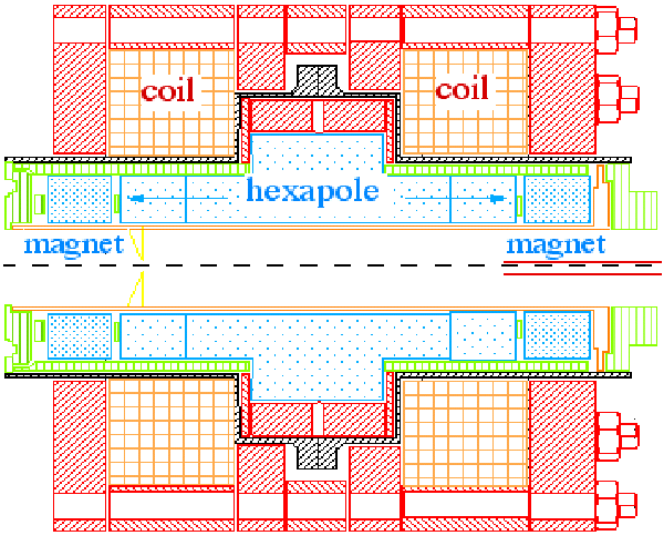
Section 2.01 Structure magnétique d'une source d'ions RCE

*(i) "Multigan@: A new multicharged ion source based on axisymetric magnetic structure" ; **L. Maunoury**, J.Y. Pacquet, M. Dubois, P. Delahaye, P. Jardin, P. Lehérissier, M. Michel, C. Pierret, X. Donzel, G. Gaubert, R. Leroy, A.C.C. Villari and S. Biri*

Les systèmes magnétiques sont très importants dans ce type de source car ils doivent permettre à la fois de répondre à la condition de résonance cyclotronique électronique et de confiner au mieux les électrons et les ions pour pouvoir produire des ions multichargés. La figure 2 est une représentation d'une structure magnétique classique d'une source d'ions RCE possédant des bobines pour créer le confinement magnétique axial et un multipôle (ici hexapôle) pour le confinement magnétique axial (4). Ce cas correspond à la structure magnétique de la source RCE SUPERSHyPIE qui fonctionne avec une onde à 14,5 GHz de fréquence (B_r = 5180 Gauss) et est utilisée pour produire des ions très chargés ($^{129}Xe^{30+}$).







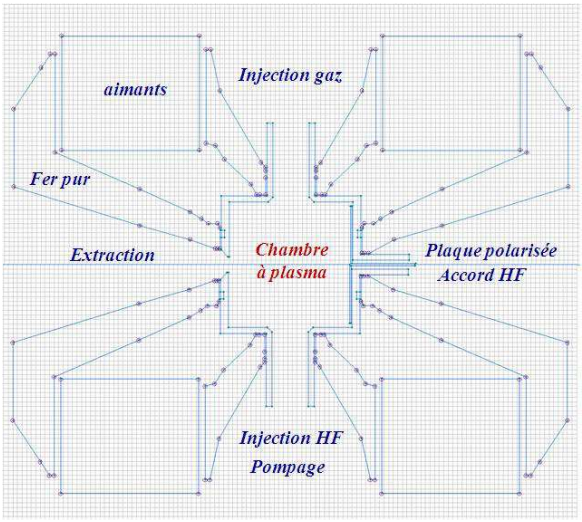


Figure 2 : Calcul de la structure magnétique de la source SUPERSHyPIE (GANIL) avec Radia – Mathematica (la courbe correspond au champ magnétique $B_z(0,0,z)$)

Figure 3: Calcul de la structure magnétique de la source Multigan (GANIL) avec QuickField

Récemment, nous avons développé (5) un nouveau système magnétique (figure 3) qui diffère significativement des systèmes magnétiques classiques et qui devrait permettre de faire fonctionner une source d'ions dans la gamme 5 – 13 GHz donc apte à produire des ions moyennement chargés. Alors que les systèmes magnétiques traditionnels utilisent à la fois des champs solénoïdaux pour le confinement axial et multipolaires pour le confinement radial, celui-ci utilise seulement des champs solénoïdaux pour créer un plasma confiné axialement et radialement. S'affranchir d'un champ radial multipolaire simplifie la construction d'une telle source et permet un accès direct au plasma RCE.

Perspectives

Il y a deux voies à suivre pour aller plus loin avec ces structures magnétiques à symétrie de révolution :

- Optimiser la structure magnétique par l'utilisation d'aimants permanents ayant la bonne orientation tout en minimisant le fer doux utilisé ; ceci pourra s'accompagner d'une augmentation du volume plasma pour obtenir des intensités d'ions plus élevées.

Dans ce cadre cette source pourrait être la base d'un nouvel ensemble cible-source pour l'installation SPIRAL1 pouvant produire des faisceaux d'ions radioactifs à très court temps de vie ($T_{1/2}$ < 100 ms).

- Etudier une solution à base d'électro-aimants supraconducteurs afin de créer une source fonctionnant à des fréquences supérieures 14 GHz, 18 GHz, 28 GHz dans le but de produire des faisceaux d'ions très chargés ($Ar^{17,\ 18+}$ I = quelques µA, $Kr^{35,\ 36+}$ I = quelques µA ; $Xe^{40,\ 41+}$ I = quelques µA). Cette solution pourrait également être avantageusement exploitée dans le cadre de la méthode 1+/n+ (6). En effet le vide à l'intérieur de la chambre plasma doit être le meilleur possible ce qui est possible dans le cas de cette source où des accès direct permettent de connecter des pompes turbomoléculaires sans perturber le plasma ECR ainsi les efficacités de captures des ions 1+ par le plasma sont significatives (~15 % pour la transformation du $^{143}Cs^{1+}$ en $^{143}Cs^{27+}$) (7).

Section 2.02 La population électronique et les ions produits

La connaissance de l'efficacité d'une structure magnétique dans une source d'ions de type RCE pour « chauffer » les électrons tout en les gardant le plus longtemps possible dans la trappe magnétique est un gage de performance. Le code trapCad va ainsi permettre d'atteindre cet objectif.

*(i) "Studies of the ECR plasma using the TrapCAD code", **L. Maunoury**, C. Pierret, S. Biri and J.Y. Pacquet*

Le code TrapCAD (8) a été développé dans les années 1990 afin de représenter les lignes de champs magnétiques d'une source RCE et de suivre l'évolution énergétique et spatial des électrons qui y sont injectés. C'est un code qui donne des résultats en 3D en tirant partie de symétries pour les champs magnétiques. Ceux-ci doivent être au préalable calculés par un autre code et devient une entrée pour TrapCAD. TrapCAD va générer des fichiers de sortie qui vont représenter entre autres les caractéristiques spatiales, énergétiques et temporelles des électrons perdus sur les parois et ceux confinés dans le plasma. Il utilise la méthode Runge-Kutta au 4^{ième} ordre pour l'intégration du mouvement d'une particule dans la trappe magnétique. D'autre part, pour simuler le chauffage stochastique des électrons par l'onde électromagnétique grâce à la résonance cyclotronique électronique, une formule simple (8) proche de la réalité est utilisée :

$$E = QC\sqrt{\frac{P}{A}} \quad (2)$$

où E représente la valeur du champ électrique, Q est le facteur de qualité de la cavité (pris égal à 2.5), C une constante, P la puissance injectée et A la section de la cavité plasma. On suppose que l'onde est circulaire et qu'elle se propage selon l'axe z. Ce code concerne seulement le comportement des électrons dans un espace libre c'est-à-dire sans véritable plasma.

Notre étude (9) est placée dans une échelle temporelle telle que les interactions particules – particules sont négligeables : le temps moyen typique pour une collision entre un électron et un ion varient de 200 µs à 250 µs et ceux des électrons entre eux varient de 270 µs à 2000 µs. Les calculs sont réalisés pour une gamme de temps allant de 1 µs à 50 µs.

Ce code permet surtout de comparer en relatif les performances des sources en termes de potentialité d'ionisation. En effet, TrapCad permet de suivre une population initiale d'électrons placés soit à la surface de résonance, soit dans tout le volume source ou du côté injection. Il est nécessaire de comparer les résultats aux spectres mesurés avec chacune des sources.

Pour cette étude trois sources typiques ont été choisie : MONO1000 ; NANOGANIII et SUPERSHyPIE qui représentent des sources de plus en plus performantes en terme d'états de charge produits. Le tableau 1 résume les caractéristiques de ces trois sources. Les trois paramètres qui ont un rôle important sur les performances de la source sont la fréquence de fonctionnement, le rapport miroir et la surface de résonance. La source SUPERSHyPIE présentant des valeurs élevées pour ces trois paramètres, elle sera donc la plus compétitive.

ECRIS	Magnetic structure	Plasma chamber diam. (mm)	Freq. (GHz)	$\frac{B_{max}}{B_{ECR}}$	$\frac{B_{min}}{B_{ECR}}$	$\frac{B_{last\ isomodule}}{B_{ECR}}$	Resonance surface (cm^2)	Resonance volume (cm^3)	$<Q_N>$
MONO-1000	Permanent magnets without Hexapole	85	2.45	2.51	0.69	2.3	81.4	83.8	1
NANOGAN-III	Permanent magnets with Hexapole	36	10	2.41	0.52	1.42	23.8	10.4	2.8
SUPERSHyPIE	Permanent magnets and coils with hexapole	65	14.5	2.17	0.85	2	46.3	35	4

Tableau 1 : Caractéristiques des trois sources RCE utilisées dans l'étude avec TrapCAD

La figure 4 présente un résultat typique de ce code : elle correspond à la distribution en énergie des électrons confinés pour les trois sources citées ci-dessus après une µseconde de calcul. Les distributions en énergie s'étendent vers des énergies maximum très différentes : 1 keV MONO1000 ; 11.6 keV NANOGANIII et 16 keV pour SUPERSHyPIE ce qui traduit en relatif leurs performances en terme d'états de charge produits. De plus dans ces distributions, le nombre d'électrons de très basse énergie est lui aussi caractéristique de la

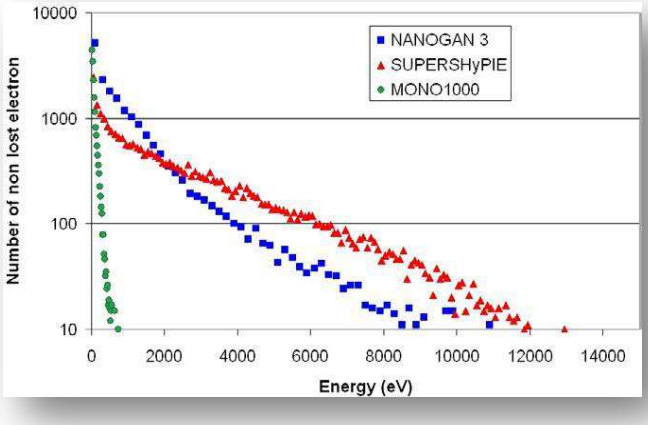


Figure 4 : Distribution en énergie des électrons confinés pour les sources Mono1000 ; NanoganIII et SUPERSHyPIE

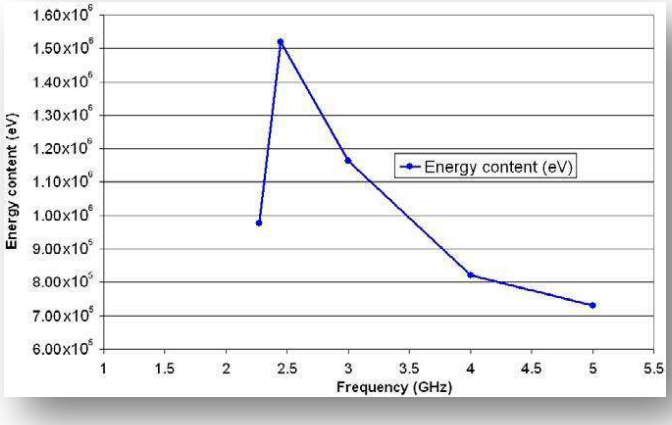


Figure 5: Contenu énergétique de la source MONO1000 en fonction de la fréquence

source : plus il est faible et plus la source est apte à accroitre l'énergie des électrons présents. En effet, meilleur est le confinement magnétique et meilleur est le gain en énergie des électrons.

Le terme « Energy Content » ou contenu énergétique permet de connaître la meilleure fréquence d'utilisation d'une source. En effet c'est l'intégration des distributions en énergie des électrons confinés. Pour le cas MONO1000, la figure 5 montre clairement que cette fréquence est égale à la valeur 2,45 GHz. Suivant la même démarche, pour la source NANOGANIII la fréquence d'utilisation la meilleure serait 8 GHz au lieu de 10 GHz utilisé.

Dans le cas de la source SUPERSHyPIE des simulations sur de longues périodes ont été effectuées mais toujours dans le cadre où les collisions e- / e- ; e- / ion ont des temps supérieurs à ceux du calcul et donc il n'en est pas tenu compte dans la modification des énergies des électrons. La figure 6 montre l'évolution du contenu énergétique de cette source en fonction du temps pour la période 50 – 4500 ns (courbe « Sum ») et une puissance HF injectée de 800W.

Cette courbe montre une montée rapide de cette variable puis une augmentation plus lente. Elle a un comportement logarithmique. Le point intéressant est qu'elle a été déconvoluée en quatre courbes selon le domaine énergétique des électrons. La courbe hachurée noire (trait – point) représente l'évolution des électrons de basse énergie 0 – 500 eV : cette courbe diminue car les électrons qui ont gagné de l'énergie disparaissent de ce domaine. La courbe violette (continu) correspond aux électrons de moyenne énergie 500 – 5000 eV (ceux-ci peuvent servir à fabriquer les ions d'état de charge moyen à élevé comme l'Ar^{8+} à l'Ar^{16+} en tenant compte que les sections efficaces sont maximales pour une énergie des électrons deux fois supérieures à l'énergie d'ionisation correspondante) : cette courbe représente une transition entre les électrons provenant de la région basse énergie et ceux qui vont gagner encore en énergie et aller dans la zone suivante, elle diminue régulièrement. Ensuite vient la courbe hachurée bleue correspond aux électrons de hautes énergies 5000 – 10000 eV (ceux-ci servent à fabriquer les ions d'état de charge très élevé comme l'$Ar^{17+,\ 18+}$). Le plateau pourrait être défini comme une caractéristique d'une source

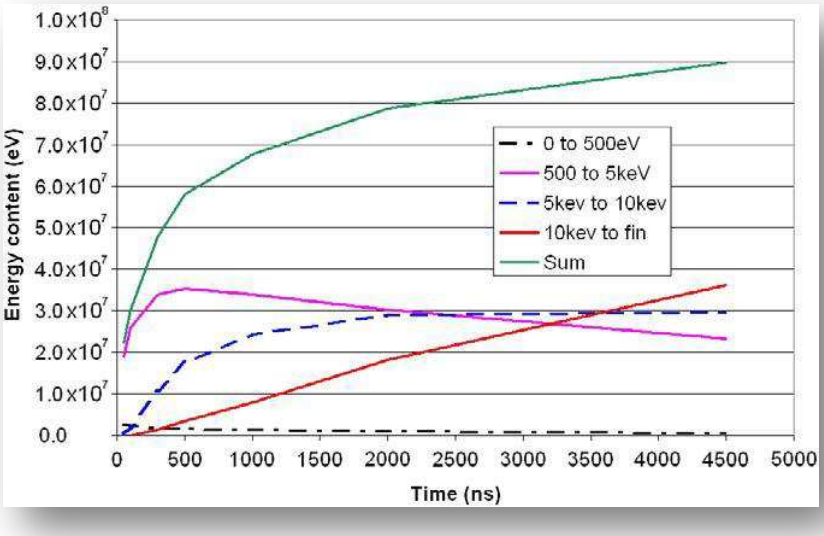


Figure 6: Evolution du contenu énergétique en fonction du temps pour la source SUPERSHyPIE à 800W. La courbe verte est la somme des quatre autres courbes.

RCE à une puissance HF injectée donnée. Plus la source est performante et plus ce plateau devrait avoir une valeur élevée en terme d'«Energy content ». Enfin la dernière courbe en rouge (continu) représente les électrons très énergétiques 10000 – maximum eV. Elle indique que seuls les électrons très bien confinés gagnent encore et encore de l'énergie pour enlever les électrons des couches profondes (ceux-ci servent à fabriquer les ions d'état de charge élevé).

Ce code est utile pour la conception d'une source de type RCE car il permet de tester l'efficacité d'un confinement magnétique et de déduire quelle serait la meilleure fréquence de fonctionnement possible. Il permet aussi d'étudier la répartition des électrons dits froids et chauds au sein du plasma RCE et de la comparer à des mesures expérimentales (10).

Perspectives

Ce code est en cours de modification pour qu'il puisse devenir un programme parallèle : gain de temps notable pour un calcul (de plusieurs heures à moins d'une heure). D'autre part ses concepteurs veulent y intégrer les collisions e- / e- ; e- / ion et ion – ion pour qu'il devienne complet. Une fois ces transformations accomplies, il sera intéressant de refaire notre étude, d'en déduire les distributions d'états de charge pour les confronter à celles mesurées expérimentalement.

*(ii) "Visible light spectrometry measurements for studying an ECRIS plasma and especially applied to the MONO1001 ion source", O. Tuske, **L. Maunoury**, J.Y. Pacquet, C. Barue, M. Dubois, G. Gaubert, P. Jardin, N. Lecesne, P. Leherissier, F. Lemagnen, R. Leroy, M.G. Saint-Laurent and A.C.C. VIllari*

Cette étude (11) a été entreprise dans le but d'étudier la localisation des ions produits et de corréler cet espace à la zone de résonance de la source RCE. La source utilisée fut la source MONO1001 car elle permet un accès aisé non-perturbatif au plasma. Pour ce faire, il a été installé un spectromètre de lumière dans le visible (TRIAX180, Jobin-Yvon) qui peut se mouvoir verticalement pour scanner le plasma. Il est placé perpendiculairement à la source en son milieu. Le plasma réalisé est un plasma d'He car il minimise le nombre de raies enregistrées par le spectromètre. Parmi elles (figure 7) la raie

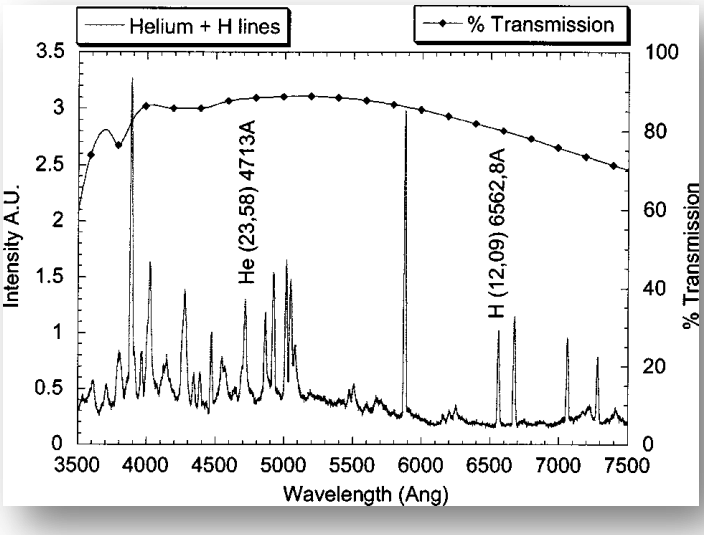


Figure 7: Spectre mesuré avec un plasma d'He et la source MONO1001. La courbe en pointillé représente la transmission du hublot

He à 471,3 nm due à la transition 1s4s(^{3}S) => 1s2p($^3P^0$) (soit une énergie nécessaire de 23,58 eV) et la raie H à 656,2 nm due à la transition 3s => 2p (soit une énergie nécessaire de 12,1 eV) ont été choisies car elles sont intenses, isolées et dans la partie à haute transmission du hublot permettant de visualiser le plasma. L'hypothèse est faite que la désexcitation des atomes excités a lieu là où ils ont été en collision avec les e- énergétiques du plasma car le temps caractéristique est de l'ordre de la dizaine de ns (à comparer aux temps caractéristiques de collisions qui sont supérieurs à la dizaine de µs). Les enregistrements effectués correspondent aux zones où les électrons sont énergétiques et donc à la zone RCE du plasma. Une densité radiale de ces atomes neutres excités peut en être déduite. La figure 8 montre un des enregistrements réalisés.

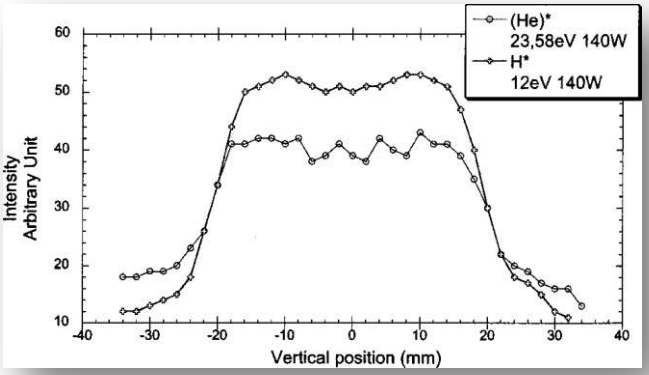


Figure 8: Profil mesuré des neutres excités avec le spectromètre sur deux raies différentes

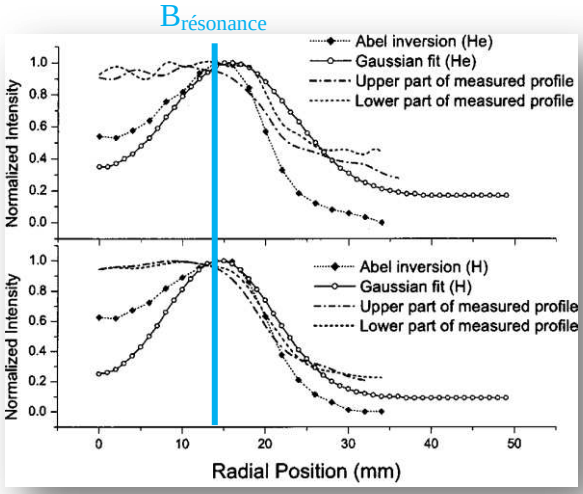


Figure 9: Densité radiale déduite du plasma avec les deux calculs en points noirs (Inversion d'Abel) et en points ouverts (fit gaussien) pour l'He (en haut) et pour l'H (en bas)

Ensuite deux méthodes ont été utilisées pour extraire cette densité radiale et la comparer à la zone de résonance. Ces deux méthodes sont complémentaires puisque la première : « fit gaussien » est un ajustement du profil mesuré par une densité radiale supposée être une double gaussienne avec des paramètres ajustables et la seconde : « inversion d'Abel » permet de calculer directement, à partir de la mesure, cette même densité radiale. Dans le cas du fit gaussien, la constante K0 (qui est le facteur multiplicatif devant le terme exponentiel) va représenter une composante uniforme de la lumière émise due principalement à la lumière réfléchie.

Les résultats sont résumés dans le tableau 2. La figure 9 montre le résultat de ces calculs : la densité radiale déduite de la lumière émise

Elément		H	He
Fit gaussien	Position moyenne (mm)	14.6 (±2)	15.8 (±4)
	Ecart type (mm)	6.6 (±1.5)	7.5 (±2)
	Constante K0	0.1	0.028
Inversion d'Abel	Position moyenne (mm)	11.6 (±1)	12.1 (±1)
	Maximum (mm)	14 (±1)	14 (±1)

Tableau 2 : Résultat des positions moyennes du maxima des densités radiales déduites des calculs

et par conséquent la densité radiale des électrons énergétiques du plasma. Il y a deux différences notables : l'inversion d'Abel semble donner une densité radiale plus élevée au centre que celle déduite par le fit gaussien. La queue de distribution est également plus faible en valeur que pour le fit gaussien. Les positions moyennes des maxima des distributions sont en bon accord avec le calcul de la position de la zone de résonance qui se trouve à 14 mm du centre. Les largeurs des distributions sont du même ordre de grandeur montrant une extension de la zone RCE de 12 à 14 mm autour du centre. Cette source présente un plasma non homogène avec un creux à l'intérieur. Il serait alors intéressant d'appliquer cette méthode aux ions monochargés He^{+} pour confirmer ces premiers résultats.

Perspectives

Cette méthode pourraît être appliquée à la source Multigan dont la structure magnétique est visible sur la figure 3. Dans ce cas, la fréquence de fonctionnement variant de 5 à 13 GHz, il serait possible de suivre la localisation des électrons énergétiques en fonction de la fréquence. Un des buts de cette source est d'ioniser le plus rapidement et le plus efficacement possible des atomes radioactifs de courts temps de vie (dans la gamme de quelques dizaines de ms voire moins). La connaissance de la localisation des électrons énergétiques est un paramètre important pour optimiser la géométrie de la source afin d'atteindre le but recherché.

Section 2.03 Fonctionnement d'une source RCE en mode pulsé

*(i) "Afterglow mode and the new micropulsed beam mode applied to an electron cyclotron resonance ion source", **L. Maunoury**, L. Adoui, J.P. Grandin, F. Noury, B.A. Huber, E. Lamour, C. Prigent, J.P. Rozet, D. Vernhet, P. Leherissier and J.Y. Pacquet*

Le mode « afterglow » a été développé pour les sources d'ions RCE il y a une vingtaine d'année (3) (12). Cette technique a été initialement mise au point pour produire des faisceaux d'ions intenses et pulsés pour l'accélérateur du CERN. Pour créer ce mode, soit l'onde hyperfréquence est injectée dans la source en mode pulsé soit le courant utilisé dans la bobine d'extraction est pulsé (champ magnétique pulsé) (13). A la fin d'un pulse, les électrons chauds du plasma RCE ne sont plus confinés, ils s'échappent du centre de la source en entraînant avec eux les ions multichargés créant ainsi un pic de courant intense d'ions très chargés. Typiquement le pulse HF a une largeur de quelques dizaines de ms donnant lieu a un pic de courant d'ions multichargés ayant un temps de montée de quelques centaines de µs et une longue traîne de plusieurs ms.

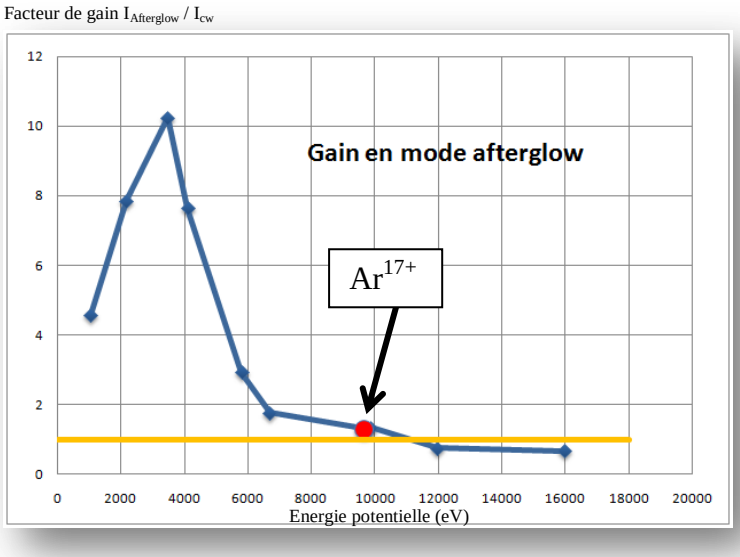


Figure 10: Evolution du gain en mode Afterglow en fonction de l'énergie potentielle

Le mode « Afterglow » a été étudié depuis les années 90 jusqu'à nos jours. Ce mode a été testé sur de nombreuse sources RCE (CAPRICE, ECR4, JYFL, RIKEN, PECRIS etc…) et des fréquences de fonctionnement allant de 6 GHz à plus de 28 GHz. Les ions étudiés ont été principalement l'hélium (Q = 1 et 2) ; l'argon ($2 \leq Q \leq 14$) ; le xénon ($11 \leq Q \leq 30$) ; le bismuth ($23 \leq Q \leq 32$) et le plomb ($23 \leq Q \leq 32$). Le principal intérêt de ce mode est la production de faisceaux d'ions lourds très chargés et intenses pour les accélérateurs pulsés (le LHC au CERN pour la production de faisceau de plomb à partir du Pb^{28+}) et l'autre application est l'utilisation de ces ions pour toute expérience nécessitant une analyse par temps de vol (voir chapitre suivant). De nombreuses études ont été menées sur les ions suivant Ar^{n+} (12) (13), Pb^{n+} (12) (14) (15), Bi^{n+} (12), O^{n+} (12) (14) et Xe^{n+} (16). Il n'existe cependant aucune étude conduisant à la production d'ions nus ou hydrogénoïdes.

		AFTERGLOW MODE							
Element	Q	I_{max} (10^{-6} A) cw mode	I_{max} (10^{-6} A) Afterglow mode	Pulse width (ms)	FWHM (ms)	Rise time (ms)	Fall time (ms)	Particles per bunch	Gain factor $I_{afterglow}/I_{cw}$
Ne	8	55	252	14	1.03	0.61	4.83	2.95E+11	4.58
	9	4.3	33.8	14	1.36	0.63	3.02	2.90E+10	7.86
	10	0.4	4.1	14	1.04	0.42	1.54	2.80E+09	10.25
Ar	14	3.3	25.2	30	1.4	0.52	2.84	1.50E+10	7.64
	16	0.1	1	30	1.24	0.7	1.65	4.30E+08	10.00
	17	0.03	0.04	30				9.60E+06	1.33
Kr	19	11.5	33.6	30	1.61	0.77	2.83	1.82E+10	2.92
	20	7.7	13.6	30	1.36	0.52	2.52	6.67E+09	1.77
	23	3.2	4.16	30	1.04	0.52	1.84	1.70E+09	1.30
	25[a]	1.6	1.18	30	1.12	0.44	2.04	4.02E+08	0.74
	27[a]	0.52	0.34	30	1.52	0.84	1.2	1.26E+08	0.66

Tableau 3 : Résumé des mesures faites sur les faisceaux d'ions produits en mode afterglow avec la source SUPERSHyPIE **(17)**

Cette étude (17) a été entreprise dans le but de produire avec la source SUPERSHyPIE des courant d'ions élevés pour des ions de type hydrogénoïde. Elle a porté sur les ions de gaz rares (Ne, Ar et Kr) et pour des états de charge moyens à très élevés. La puissance injectée était de 1,1 kW dans le pulse. Il s'avère que l'optimum en courant du pic afterglow se situe pour des largeur de pulse RF de 14 ms dans le cas du Ne et 30 ms dans les autres cas avec un taux de répétition de 10 Hz. Le pulse afterglow a sensiblement une largeur a mi hauteur de

1,3 ms avec un temps de montée de 0,55 ms et un temps de descente de 2,2 ms. Le gain en courant entre le pic afterglow et le mode continu cw est en moyenne de 4,5. On peut constater dans le tableau 3 qu'il n'y a pas toujours un intérêt à utiliser le mode « afterglow »: $Kr^{25 \text{ et } 27+}$ en sont deux exemples avec des gains <1 comparativement au mode continu. Pour la plupart des autres faisceaux le gain est notable surtout pour les ions légers. La figure 10 montre l'évolution de ce gain en fonction de l'énergie potentielle (pour une charge donnée d'un ion, l'énergie potentielle est la somme de toutes les énergies d'ionisation nécessaires pour atteindre cette charge). Ce graphe montre un pic qui est caractéristique de la puissance injectée dans la source et de ses caractéristiques propres (structure magnétique / couplage onde RF plasma). Selon modification de la puissance injectée et du confinement de la source, ce pic doit bouger.

*(ii) "X-Ray spectroscopy characterization of Ar^{17+} produced by an ECRIS in the afterglow mode", C. Prigent, E. Lamour, J. Mérot, B. Pascal, J.-P. Rozet, M. Trassinelli, D. Vernhet, J.-Y. Pacquet, **L. Maunoury**, F. Noury, J.-M. Ramillon.*

Le travail décrit dans l'article de C. Prigent et al. (18) montre une nouvelle méthode de caractérisation d'ions très chargés produits dans une source RCE en mode « afterglow ». En effet, la seule mesure de courant faite du faisceau d'ions après analyse par un dipôle magnétique ne permet pas de discriminer le faisceau d'intérêt des faisceaux ayant des Q/M très proches.

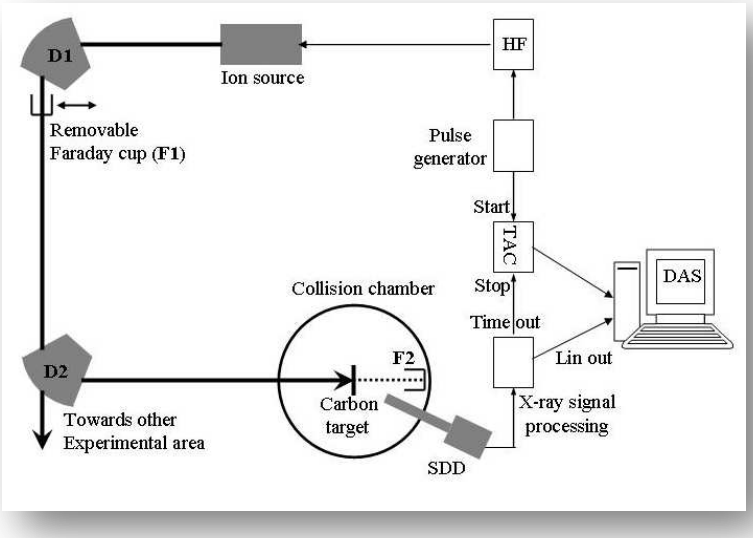


Figure 11: Schéma de l'expérience pour caractériser et quantifier le nombre d'ions Ar^{17+} produits

Cela est d'autant plus vrai lorsque les intensités sont de l'ordre du nA voire moins. Cette nouvelle méthode est basée sur la mesure du rayonnement X de la raie Kα émise lors de la capture d'électrons (simple ou multiple) par un ion hydrogénoïde en interaction avec une cible solide. Ainsi le numéro atomique et la charge de l'ion peuvent être sans ambiguïté identifiés par la connaissance des niveaux d'énergie de ces ions tout en ayant une mesure quantitative des ions dans le pulse faisceau (une raie K_α correspond à un ion). De plus, la désexcitation par l'émission du rayonnement X ayant lieu dans une échelle de temps de l'ordre de la ps, il est possible de caractériser le pulse faisceau qui s'étale sur une échelle de temps de la ms.

Expérimentalement, cette méthode a été appliquée à la caractérisation d'un faisceau d'ions Ar^{17+} produit par la source RCE SUPERSHyPIE de l'installation ARIBE. La figure 11 est un descriptif du dispositif expérimental. La connaissance de l'efficacité de transmission entre les différentes parties de la ligne de faisceau permet de connaître les intensités produites à la source. La figure 12 montre bien que seul l'Ar^{17+} est dans le pulse du faisceau incident car il n'y a pas d'autre rayonnement X significatif émis. La figure 13 montre quatre enregistrements temporels du pulse faisceau pour des conditions d' « afterglow » différentes :

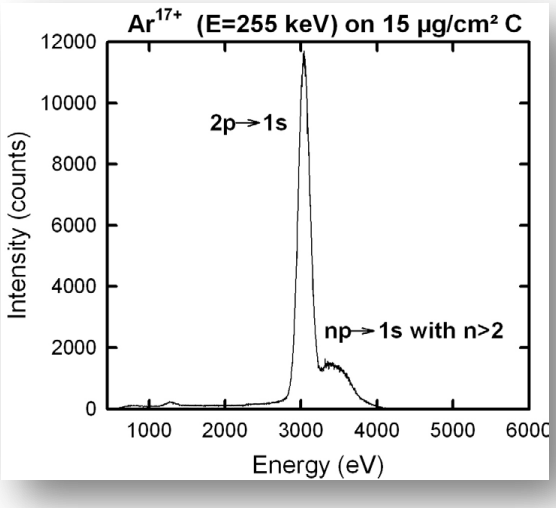


Figure 12: Spectre typique mesurée

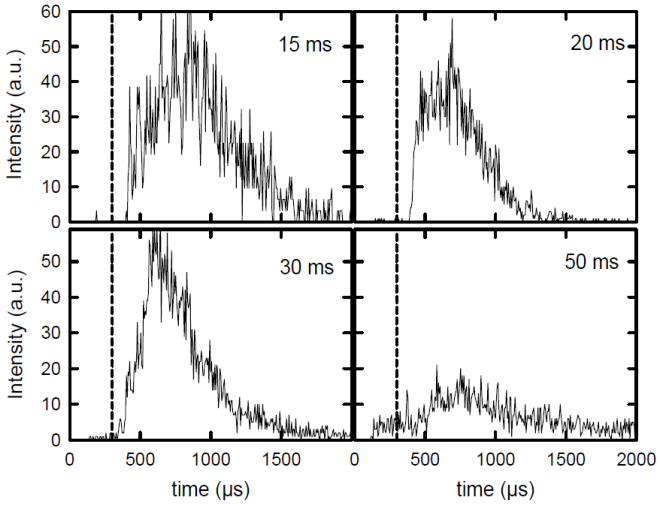


Figure 13: Mesure temporelle du pulse faisceau par la mesure du rayonnement X

largeur du pulse RF de 15 ms à 50 ms. Le taux de répétition est gardé lui constant à 10 Hz. Au-delà de 30 ms le signal s'écroule montrant que la source tend à se rapprocher d'un fonctionnement en mode continu. En deçà de 30 ms, le gain en nombre d'ions par rapport au mode continu est de l'ordre de 3 - 4.

Le temps de montée optimum est trouvé pour une largeur de pulse de 20 ms avec une valeur d'environ 100 µs, la largeur du pulse est d'environ 500 µs. Bien évidemment, ceci met en évidence qu'il existe un meilleur compromis à trouver de la largeur du pulse RF par rapport à la production de ces ions très chargés : en effet il y a compétition entre les temps de chauffage des électrons - productions des ions multichargés et le vidage du réservoir après l'arrêt de la RF et donc la disparition du confinement électrostatique. La tendance vue avec l'Ar^{17+} (augmentation de l'intensité d'un facteur 3 - 4 avec la diminution de la largeur du pulse RF de 50 à 20 ms) va plutôt à l'encontre de celle mesurée par d'autres auteurs (diminution d'un facteur 5 de l'intensité avec la diminution de la largeur du pulse RF de 50 à 20 ms) mais faite avec des ions non hydrogénoïdes Xe^{20-22+} ; Pb^{27+}). Existe-t-il alors d'autres phénomènes responsables de cette différence ? D'autres expériences vont être réalisées dans ce domaine par O. Tarvainen à Jyväskylä (Finlande). Ces résultats apporteront de nouvelles données pour le développement d'une source d'ions fonctionnant à 37 GHz à Nizhny Novgorod, Russie.

Perspectives

Cette méthode appliquée à l'Ar^{17+} (19) a permis de réaliser des expériences de spectroscopie atomique par l'interaction de l'Ar^{17+} avec des cibles gazeuses (N_2 ou Ar) et des

cibles solides (feuilles de carbone). La comparaison des spectres obtenus après capture d'un ou plusieurs électrons permet de mieux investiguer les processus fondamentaux qui régissent le transport d'un ion multichargé dans la matière. Cette méthode pourra être utilisée avec la source GTS installée sur l'installation ARIBE pour le même ion Ar^{17+} mais aussi pour des masses plus importantes telles que l'ion Kr^{35+} pour lequel peu d'expériences ont été réalisées dans ce domaine d'énergie et d'intensité.

Section 2.04 Extraire les ions de la source

(i) "Preliminary results of the ion extraction simulations applied to the MONO1000 and SUPERSHyPIE electron cyclotron resonance ion source", C. Pierret, ***L. Maunoury****, S. Biri, J.Y. Pacquet, O. Tuske, O. Delferriere*

(ii) "Extraction from ECR ion sources: a new way to increase beam brightness", ***L. Maunoury****, C. Pierret and J.Y. Pacquet*

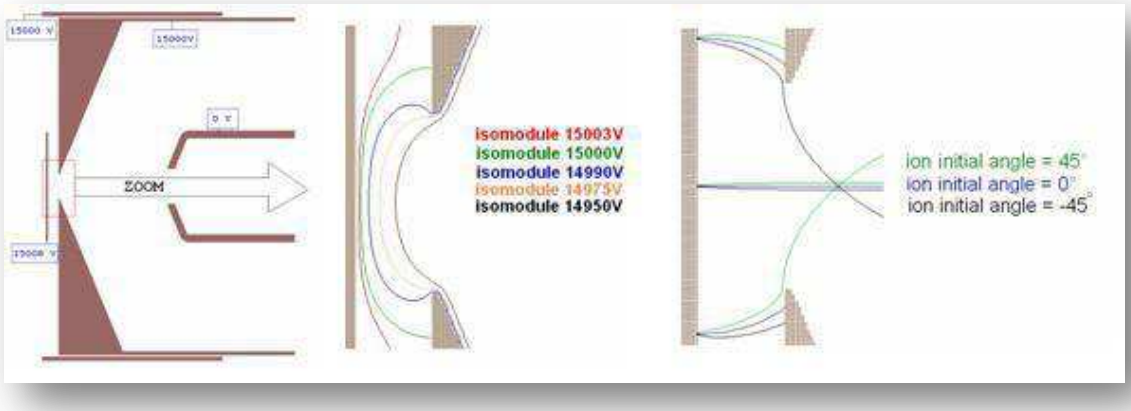
Cette étude (20) (21) a pour but de trouver une nouvelle solution pour augmenter la brillance des sources RCE ce qui signifie obtenir une intensité élevée d'ions dans la plus petite émittance possible selon la formule :

$$Bril = \frac{2*I_{faisceau}}{\pi^2*\varepsilon_x*\varepsilon_y} \quad (3)$$

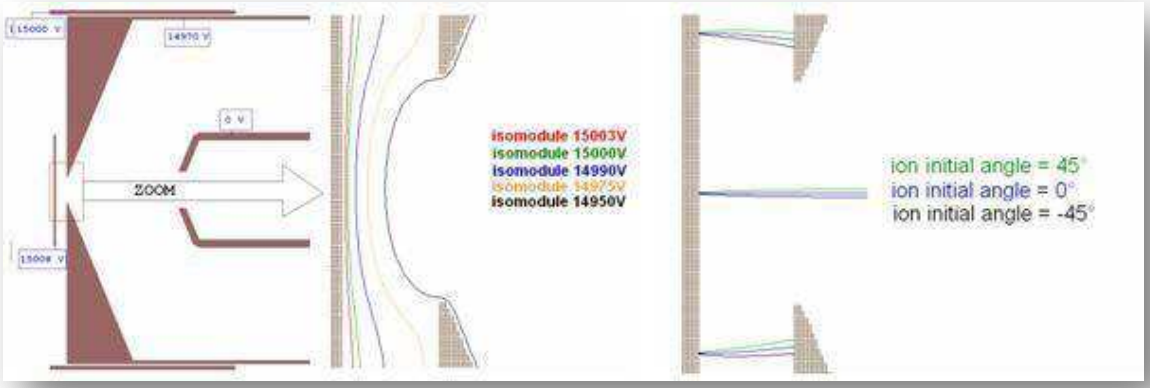
I (A) intensité du faisceau d'ions
ε_x (π.mm.mrad) = émittance horizontale
ε_y (π.mm.mrad)= émittance verticale

Un travail réalisé par R. Leroy et al. (22) a montré qu'un faisceau d'Ar^{4+} a une intensité qui augmente lorsque l'électrode plasma est polarisé négativement entre -30 V et -14 V. Cette variation a été réalisée en appliquant différentes tensions appliquées sur le tube coaxial de la source. A chaque fois une évolution similaire a été enregistrée : il existe un maximum d'intensité entre les valeurs négatives citées ci-dessus. Cette première étude a été réalisée à l'époque où le laboratoire n'était pas doté des moyens de calculs d'aujourd'hui. Dans notre travail, une étude par simulation a été réalisée et une confrontation à de nouvelles données expérimentales a été accomplie.

Le principe est expliqué dans la figure 14. Il consiste en la modification des lignes de champ électrostatique par l'application d'une tension négative et ceci juste dans la zone où les ions sont à l'interface plasma-gaine / vide – création du faisceau. L'effet de polarisation, est négligeable. Les tensions de polarisation appliquées sur les sources RCE sont en général de l'ordre de plusieurs centaines de volt en négatif pour avoir un effet significatif. Dans cette exemple, les ions partent avec une certaine énergie due au potentiel plasma fixé dans notre cas à +8 V par rapport au référentiel source. Pour une électrode plasma polarisée juste au potentiel source (cas a), les ions qui sortent donnent un faisceau avec une divergence donnée. Pour une électrode plasma polarisée au potentiel plasma additionné du potentiel V_{pe}, les ions qui donnent le plus de divergence au faisceau sont éliminés d'où une diminution significative de l'émittance du faisceau. En gardant une intensité aussi élevée que possible, il sera alors possible d'obtenir une augmentation de la brillance.



a) Electrode plasma polarisée au potentiel de la source



b) Electrode plasma polarisée au potentiel de la source additionné d'une tension négative V_{pe}

Figure 14: Principe de la méthode ; la figure a et b montrent les lignes de champ électrostatique à la surface de l'électrode plasma. La tension additionnelle V_{pe} permet de les modifier en agissant ainsi sur la trajectoire des ions extraits et par conséquence sur la brillance du faisceau.

Dans la suite, la brillance relative sera définie comme suit :

$$Bril_{rel} = \frac{Bril(V_{pe})}{Bril(V_{pe}=0V)} \quad (4)$$

Bril(V_{pe}) = brillance du faisceau d'ions lorsqu'un potentiel V_{pe} est appliqué à l'électrode plasma
Bril(V_{pe} = 0V) = brillance du faisceau d'ions lorsqu'aucun potentiel additionnel n'est appliqué à l'électrode plasma

Les simulations sont faites sur les sources MONO1000 et SUPERSHyPIE avec des valeurs de V_{pe} allant de -60 V à 0V. Ces deux sources ont été choisies car

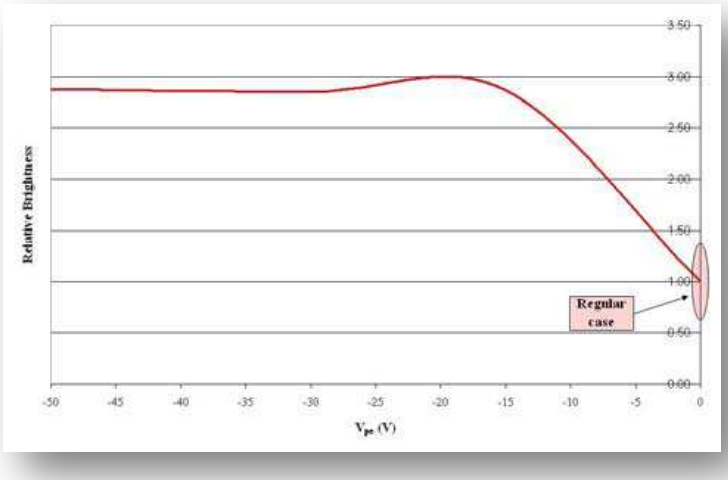
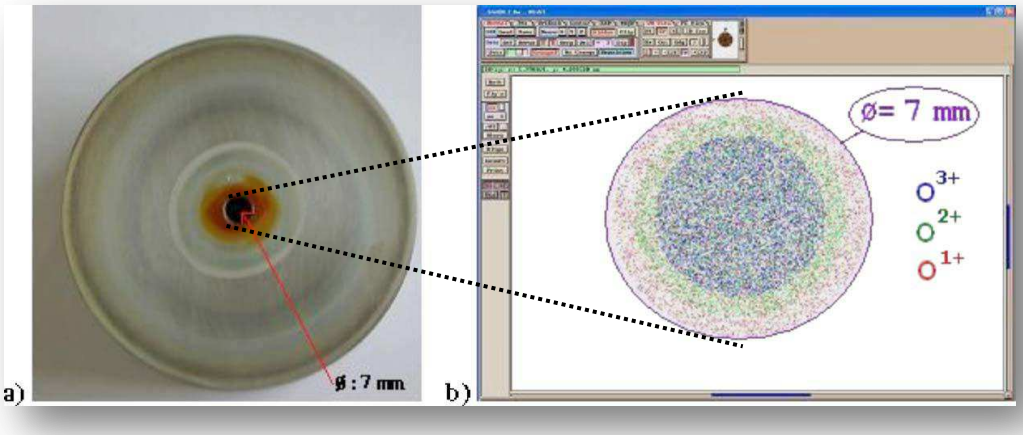


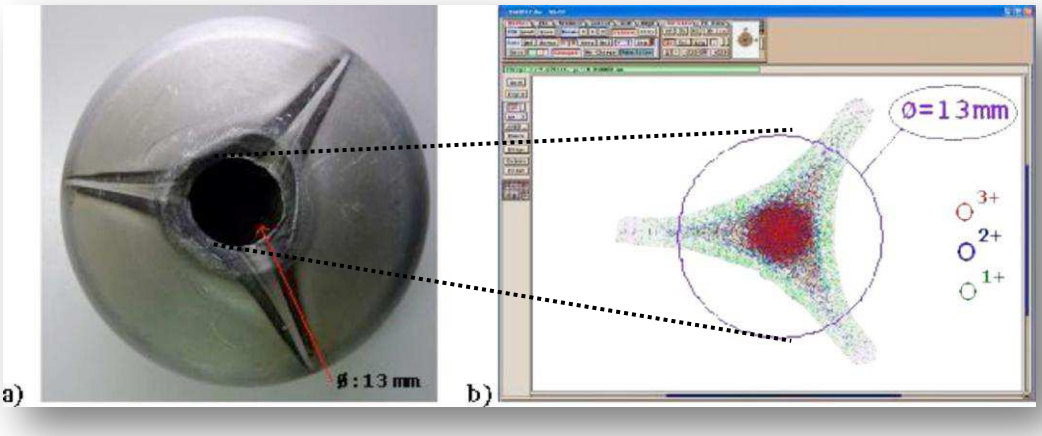
Figure 15: Evolution de la brillance relative d'un faisceau Ar^{1+} extrait à 15 kV de la source MONO1000 calculée avec CPO 3D

elles ont deux structures magnétiques différentes : une sans hexapôle et qui produit principalement des ions monochargés et l'autre avec hexapôle et bobines produisant des ions multichargés.

Mais avant d'aller plus loin, une explication est nécessaire sur les logiciels utilisés. Dans le cas des calculs magnétiques, le code RADIA (issu de l'ESRF) et fonctionnant sous Mathématica a été utilisé. O. Delférrière et O. Tuske (Internal CEA report, DAPNIA-05-317 (2005)) ont montré que ce code comparé au logiciel TOSCA (le logiciel référent dans ce domaine) donne des résultats avec une différence maximum autour de 3%. Comme RADIA est gratuit et Mathématica est d'un coût modeste, il a été choisi pour modéliser les structures magnétiques de ces deux sources. La différence entre le calcul et les mesures magnétiques est inférieur à 5%. Une attention toute particulière a été apportée à la distribution initiale des ions. Pour ce faire trois hypothèses fortes sont prises : selon la thèse de J. Mandin : plus les ions sont chargés et plus ils seront au centre (ce que montre la figure 16), la distribution des ions est aléatoire sur la surface d'émission (pas de distribution gaussienne ou lorentzienne) et la surface d'émission est plane (pas de surface convexe ou concave).



(a) Cas de la source MONO1000



(b) Cas de la source SUPERSHyPIE

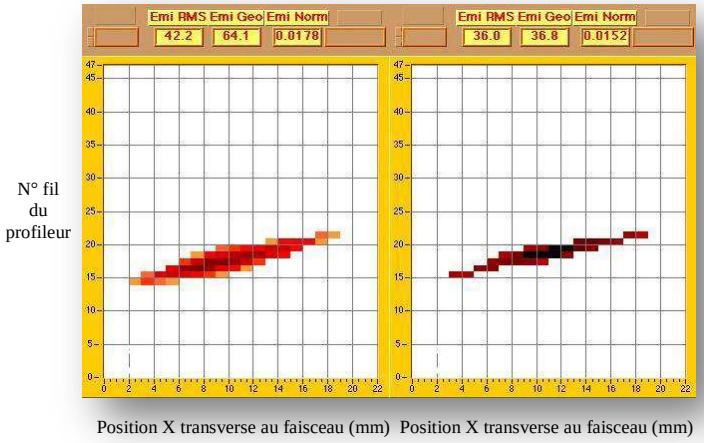
Figure 16: Comparaison entre la distribution des ions au niveau de l'électrode plasma pour les calculs de brillance dans le cas de MONO1000 (i) et de SUPERSHyPIE (ii). Les cas a) représentent une photo prise de l'électrode plasma et les cas b) représentent la distribution initiale des ions pour les futurs calculs de brillance

La figure 16 présente la distribution initiale des ions sur le trou de l'électrode plasma. Celle-ci a été calculée de telle façon à reproduire la trace des électrons et ions sur les photos des électrodes plasma correspondantes. Finalement il a fallu choisir le logiciel adéquat pour le calcul des trajectoires. Un choix arbitraire a été fait en prenant des codes qui calculent la trajectoire de chaque ion. Les quatre concurrents sont AXEL – KOBRA 3D de P. Spaedtke , SIMION3D et CPO3D. Les deux premiers n'ont pas été retenus car AXEL n'est qu'un code 2D difficilement applicable aux sources avec hexapôle et KOBRA 3D n'était pas abordable du point de vue économique. Les codes SIMION 3D et CPO 3D ont été utilisés. SIMION 3D reproduit mal la charge d'espace mais a un temps de calculs relativement court : il sera utilisé pour obtenir les tendances des simulations. CPO 3D lui calcule correctement la charge d'espace donc les résultats seront principalement basés sur ce code.

Dans une première partie, ce sont les résultats de la source MONO1000 qui seront exposés. La figure 15 montre l'évolution de la brillance relative avec la variation de V_{pe}. Le faisceau choisi est de l'Ar^{1+} extrait à 15 kV et émis avec un potentiel plasma de 8 V (valeur typique déduite d'après celles-mesurées expérimentalement sur d'autres sources). Deux zones sont à distinguer : de 0 à -20 V => il existe une nette augmentation de la brillance relative du faisceau (facteur 3) due principalement à une meilleure transmission des ions avec des émittances (xx' – yy') qui diminuent : de -20 V à -60 V => il y a un plateau qui correspond à un équilibre entre l'augmentation de la transmission des ions et l'accroissement des émittances (xx' – yy').

Le résultat est similaire avec un faisceau extrait à 8 kV au lieu de 15 kV ci-dessus. Dans le cas de cette source, des mesures ont été faites sur le banc2 du GANIL situé dans le HALL D. Le faisceau utilisé était du Kr^{1+} accéléré à une énergie de 7 kV. La source est réglée de façon telle que la transmission des ions entre la zone d'extraction et la mesure d'émittance soit de presque 100%. 91% des particules sont ionisées dans l'état 1+, le reste est ionisé dans l'état 2+. Une fois la source réglée, seul le paramètre V_{pe} a été modifié avec à chaque fois l'enregistrement de l'émittance verticale. L'émittance horizontale est similaire à l'émittance verticale car c'est une source axisymétrique avec des faisceaux ayant des dimensions spatiales faibles. La figure 17 montre clairement la diminution de l'émittance verticale enregistrée pour une valeur de tension V_{pe} de -30 V. Preuve est donc faite que le principe fonctionne (dans le traitement réalisé de l'émittance, le même seuil est utilisé pour le calcul de l'émittance). La figure 18 montre l'évolution de la brillance relative en fonction de la variation du paramètre V_{pe}. Deux courbes y sont exposées selon le pourcentage de faisceau qu'elles représentent. Elles correspondent, après traitement, à 63% et 37% respectivement du pourcentage de l'intensité du faisceau à l'intérieur des émittances. Elles présentent toutes les deux un maximum autour de V_{pe} = -30 V (à comparer à la valeur calculée de V_{pe} = -20 V) et correspondant à un gain de 4 et 2 respectivement (à comparer à la valeur calculée de 3).

La courbe rouge a une évolution similaire à la courbe bleue mais plus prononcée. Ceci s'explique car elle représente des faisceaux d'ions pour lesquels il y a plus de particules donc plus d'ions ayant une gamme de valeur pour la divergence plus grande et par conséquent l'effet est encore plus fort. La courbe bleue correspond aux ions qui font le « cœur » du faisceau et par conséquent ayant des valeurs de divergence plus faibles donc moins influencés par le potentiel V_{pe}.



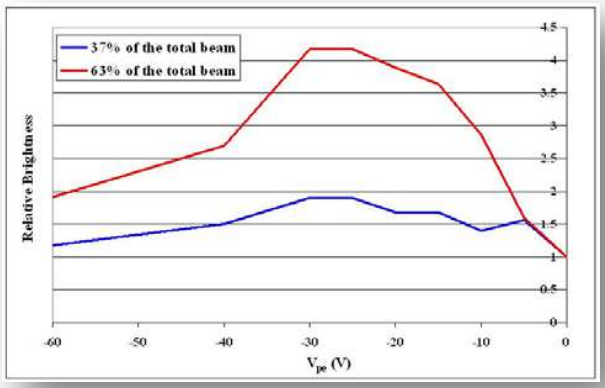
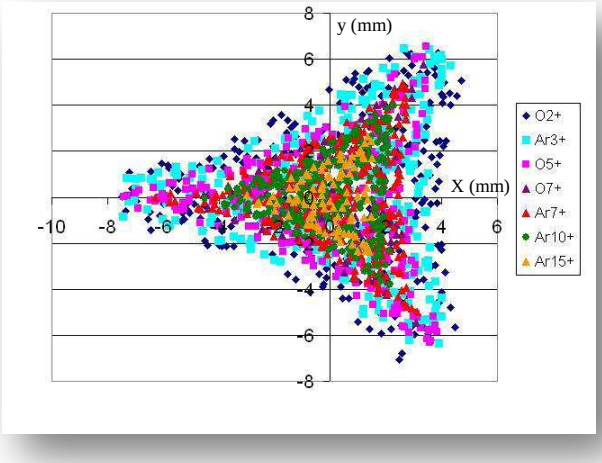


Figure 17: Emittances verticales d'un faisceau de Kr^{1+} extrait à 7 kV pour V_{pe} = 0V (gauche) et V_{pe} = -30V (droite)

Figure 18: Variation de la brillance relative d'un faisceau de Kr^{1+} extrait à 7 kV pour différente valeur d'intensité du faisceau

Pour la source SUPERSHyPIE, seules des simulations ont été réalisées. La composition initiale des ions est extraite d'un cas réel (pour alléger le calcul on a regroupé les états de charge ensemble). Les ions sont distribués sur une étoile comme le montre la figure 19 avec une concentration des ions multichargés vers le centre. La figure 20 présente le résultat de l'évolution de la brillance relative en fonction de V_{pe}. Encore une fois la méthode fonctionne bien (du point de vue calculatoire) pour les états de charge moyens et élevés même si ce gain calculé est plus faible que dans celui de la source MONO1000. Par contre, elle est défavorable pour les faibles états de charge. Ceci est facilement compréhensible pour cette source qui possède un gradient de champ élevé dans la zone d'extraction : 19 Tesla/m. L'effet de la polarisation de l'électrode plasma ne peut compenser la forte augmentation de l'émittance due à ce gradient de champ magnétique.



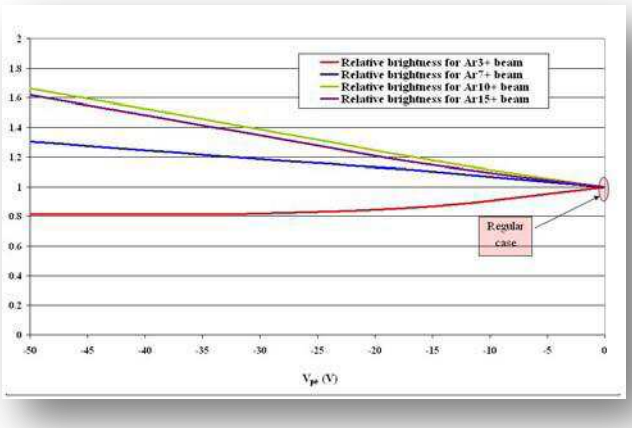


Figure 19: Distribution initiale des ions de la source SUPERSHyPIE représentant un cas réel

Figure 20: Evolution de la brillance relative d'un faisceau Ar^{q+} extrait à 15 kV de la source SUPERSHyPIE calculée avec CPO 3D

Perspectives

Cette méthode n'a été appliquée que pour une source d'ions RCE produisant des ions monochargés. Mais ce sont les déclinaisons multichargés qui sont très utilisées au GANIL (sources des injecteurs de la machine, source délivrant les ions sur l'installation ARIBE, sources délivrant les ions radioactifs pour l'installation SPIRAL1 et bientôt le Booster de charge dans le cadre de la mise à niveau de l'installation SPIRAL1). La plupart de ces sources d'ions produisent des faisceaux d'ions multichargés avec des émittances supérieures aux acceptances des accélérateurs en aval ou des lignes de faisceaux d'où la nécessité de faire des coupures en émittance de ces faisceaux. Appliquer cette méthode aux faisceaux d'ions multichargés permettrait, en cas de réussite, la réalisation d'intensité plus élevée des faisceaux d'ions produits par les sources actuellement sans en modifier structurellement (champ magnétique, fréquence de fonctionnement) leurs caractéristiques.

Section 2.05 Productions spécifiques avec une source RCE : deux exemples

Les nombreuses sources d'ions de type RCE délivrent généralement des faisceaux d'ions avec des éléments gazeux (H, N_2, O_2, Ar et quelques métalliques Fe, S, Ni, Ge) ; dans les deux sections suivantes vont être présentées la production de deux faisceaux d'ions « atypiques » : faisceaux d'ions moléculaires composés de fullerènes et faisceaux d'ions multichargés avec du phosphore.

(i) "Production of charged (singly and multiply) phosphorous beams with electron cyclotron resonance ion source", L. Maunoury, S. Kantas, R. Leroy and J.Y. Pacquet

Cette étude (23) avait pour but ultime une application médicale : l'irradiation d'endoprothèse vasculaire (stent en anglais) avec du $^{32}P^{+}$ radioactifs qui permet de diminuer la prolifération des cellules autour de l'endoprothèse et une meilleure cicatrisation. Pour ce faire, la source d'ionisation doit être efficace et pouvoir fournir une dose de 10^{16} ions/cm². Il a été aussi étudié la production de P^{q+} dont l'intérêt peut s'avérer grand pour le domaine de l'implantation ionique. L'avantage par rapport au 1+ est de diminuer la tension d'accélération pour garder la même énergie totale. Les deux sources RCE testées sont, MONO1000 pour les ions monochargés et SUPERSHyPIE pour les ions multichargés.

Une astuce, qui a permis d'obtenir des faisceaux intenses, a été l'utilisation comme gaz support de l'hydrogène. En effet, le phosphore qui est un élément de la famille des pnictogènes**,** réagi avec l'hydrogène pour former des hydrures qui eux sont gazeux. Il est connu qu'une RCE est beaucoup plus efficace par l'utilisation d'un gaz en comparaison avec l'utilisation d'un élément dit élément condensable (c'est-à-dire qui se « colle » à la paroi de la source). Le phosphore utilisé est appelé « Phosphore rouge » CAS 7723-14-0. C'est une poudre introduite dans un container en aluminium qui sera par la suite chauffée par conduction ohmique. La pression de vapeur de cet élément est de 10^{-4} mb à 402°C. Comme il a été démontré dans des expériences de formation d'ions radioactifs, la masse n'influence pas significativement les potentiels d'ionisation donc, en travaillant avec le ^{31}P stable il sera possible d'appliquer les résultats au ^{32}P radioactif ($T_{1/2}$ = 14,26 jours)

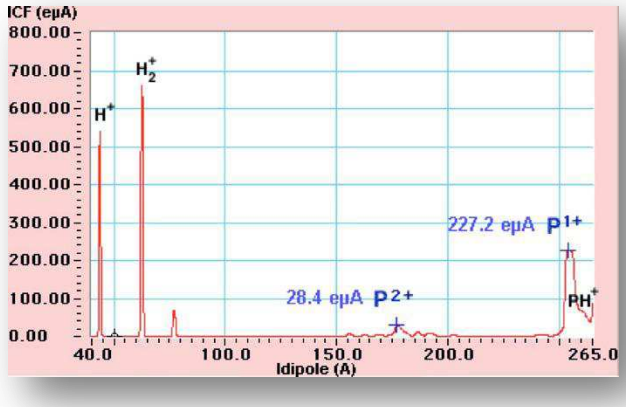


Figure 21: Production d'ions phosphore avec la source MONO1000

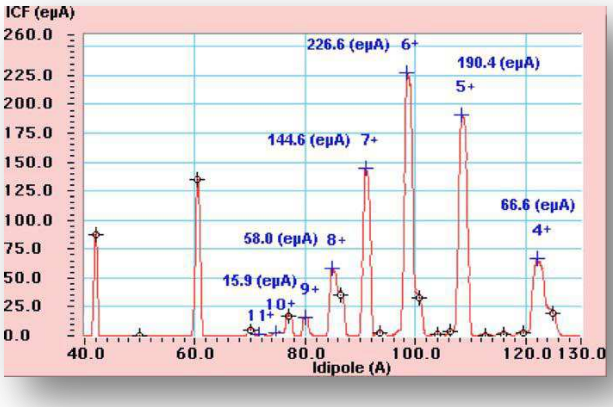


Figure 22: Production d'ions phosphore avec la source SUPERSHyPIE

La source MONO1000 a tout d'abord été testée pour connaître son efficacité d'ionisation en utilisant une fuite calibrée d'Ar. Une valeur de 97% a été obtenue. Avec une puissance RF relativement faible 90W, un débit d'hydrogène de 0,03 SCCM (Standart Cubic Centimeter per Minute) et une température de 370°C, un faisceau de P^+ d'une intensité de 227 µA a été obtenu. La figure 21 présente le spectre de masse : le pic le plus intense à part ceux des hydrogène est le P^+ (227 µA) avec une production non négligeable du P^{2+} (28 µA) et toute la série des PH_n^+. Jusqu'à une certaine limite, l'intensité du faisceau de P^+ dépend directement du flux d'hydrogène introduit. La température du four semble jouer plus un rôle de stabilisation (une fois l'intensité obtenue) que celui d'un paramètre ajustable pour la production de tels ions. Ces derniers faits tendent à confirmer notre explication « chimique » pour la production de faisceau aussi intense (en général un élément condensable est plutôt produit avec des courants de l'ordre du µA voire dizaine de µA au maximum en utilisant la méthode four seul). Un test sur une période de 32 heures a été effectué afin d'extraire les efficacités d'ionisation de la source pour les différentes espèces. En tenant compte du transport et des autres ions et composés phosphorés produits, l'efficacité d'ionisation du P^+ est de 20%, l'efficacité d'ionisation pour l'ensemble des ions et composés phosphorés de 31% ce qui représentent un gain d'un ordre de grandeur par rapport à la production obtenue avec un four (J.Y. Pacquet et al., GANIL R 02 07). Une émittance horizontale de 55 π.mm.mrad a été mesurée pour un faisceau de P+ d'une intensité de 183 µA extrait à 18.5 kV. Pour augmenter l'intensité de P^+ produit, le diamètre du trou de l'électrode plasma a été agrandi de 6,5 à 13 mm ce qui a permis d'extraire un faisceau d'une intensité de 357 µA malgré une diminution de l'efficacité de transport.

La source SUPERSHyPIE a ensuite été utilisée pour produire les ions phosphores multichargés. La figure 22 est un spectre de masse fait à une tension d'extraction de 15 kV permettant ainsi des efficacités de transport variant entre 25% et 34% selon le courant total débité par la source. La source, avec une puissance de 210 W a tout de suite donné un faisceau de P^{7+} d'une intensité de 10 µA. Comme on peut le constater, l'intensité maximale est atteinte pour l'état de charge 6+ avec de fortes intensités pour les états de charge adjacents 5+ et 7+. Il y a aussi la complète disparition des composés phosphorés qui, pour une telle source (haute densité électronique et distribution en énergie des électrons décalée vers de plus hautes énergies) ne peuvent survivre (cassure de molécules). La température réelle utilisée ne

peut pas vraiment être connue car il est difficile de connaître la contribution du chauffage par la RF mais il s'avère que la production des ions P^{q+} est sensible au chauffage du four.

Pour mesurer les différentes efficacités d'ionisation, la source a été réglée sur le P^{7+} extrait à 15 kV et sur une durée de 15 heures. L'efficacité mesurée est de 4,2% sur l'état de charge 7+ et 43% pour l'ensemble des états de charge, ce qui est largement supérieur à la valeur obtenue de 31% pour la source MONO1000. La consommation de phosphore a été dans les deux cas relativement similaire : 1,64 mg / heure pour MONO1000 et 1,53 mg / heure pour SUPERSHyPIE.

Perspectives

Dans le cadre de la mise à niveau de l'installation SPIRAL1, des faisceaux d'ions radioactifs utilisant l'élément phosphore sont demandés. L'application de cette méthode (passage par la forme hydrure) à la source RCE Multigan (dont le but est de fournir des faisceaux d'ions monochargés haute efficacité ou des faisceaux d'ions moyennement chargés) permettrait d'obtenir des faisceaux d'ions radioactifs monochargés ou multichargés avec de bonnes efficacités.

(ii) ***"MONO1001: A source for singly charged ions applied to the production of multicharged fullerene beams", L. Maunoury, J.U. Andersen, H. Cederquist, B.A. Huber, P. Hvelplund, R. Leroy, B. Manil, J.Y. Pacquet, U.V. Pedersen, J. Rangamma and S. Tomita***

(iii) ***"Ion beams of carbon clusters and multiply charged fullerenes produced with electron cyclotron resonance ion sources", L. Maunoury, B. Manil, J. Rangama, H. Lebius, B.A. Huber, J.Y. Pacquet, R. Leroy, U.V. Pedersen, P. Hvelplund, J. Jensen, S. Tomita, H.. Zettergren, H.T. Schmidt, H. Cederquist, and F. Gustavo***

Cette étude (24) (25) avait pour but la production d'agrégats de carbone jusqu'à la molécule de type fullerène mais multichargés pour la réalisation d'expériences de Physique fondamentale. La production de fullerène par une source d'ions de type RCE a été initiée par S. Biri et son groupe à l'institut ATOMKI de Debrecen (26), elle s'est aussi développée au Japon et sur l'installation AIM au CEA de Grenoble avec une source CAPRICE (installation fermée à ce jour). La difficulté est qu'il faut à la fois des électrons énergétiques pour multi ioniser ces espèces tout en évitant de les exciter trop fortement sous peine de les voir se fragmenter avant d'être multi ionisés. La source MONO1001 a le potentiel de produire ces agrégats de carbone multichargés.

Des premières mesures faites à GANIL ont montré que l'efficacité totale d'ionisation (sur toutes les charges) est relativement faible, de l'ordre de 0,2%, avec une large prédominance à la production de fullerènes monochargés. Afin de pouvoir analyser des ions ayant une masse aussi élevée (840 u.m.a.), les expériences ont été faites à l'université d'Aarhus au Danemark. En effet l'université possède un spectromètre de masse capable d'analyser des ions monochargés ayant un rapport masse sur charge de l'ordre de 1500 extraits à 22 kV.

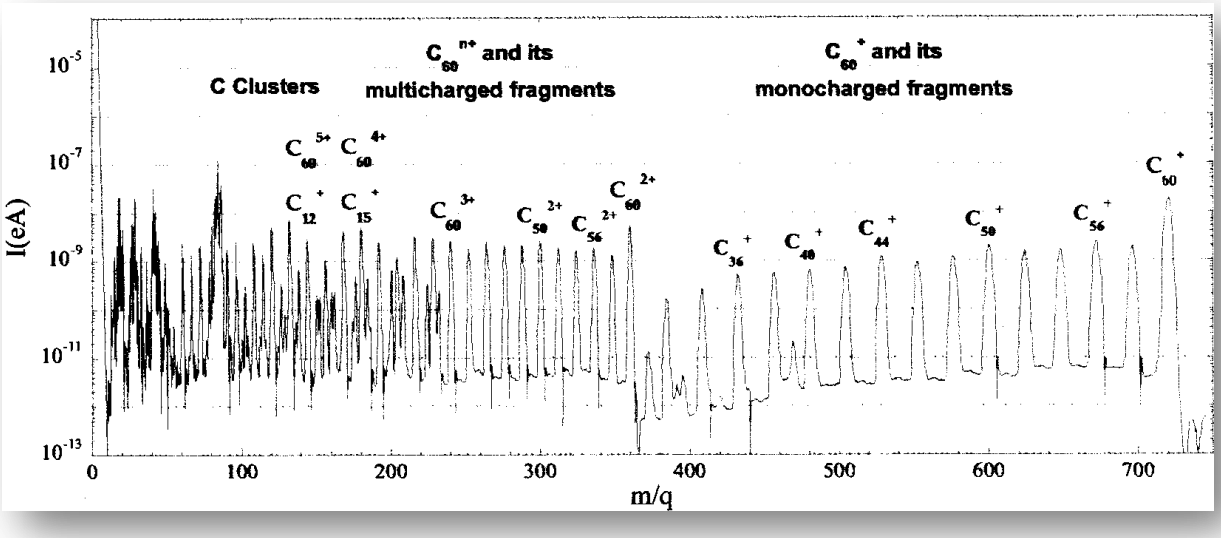


Figure 23: Spectre de masse des ions extraits à 22 kV de MONO1001 où sont injectés des fullerènes avec comme gaz support H_2

La figure 23 présente un spectre de masse des ions extraits à 22 kV de la source d'ions MONO1001 où sont injectés des molécules de fullerène C_{60} en phase vapeur (évaporés grâce à un four utilisant une résistance ohmique) et de l'hydrogène comme gaz support. Le premier résultat est la production de fullerènes multichargés jusqu'à q=3. Il existe trois zones dans ce spectre :

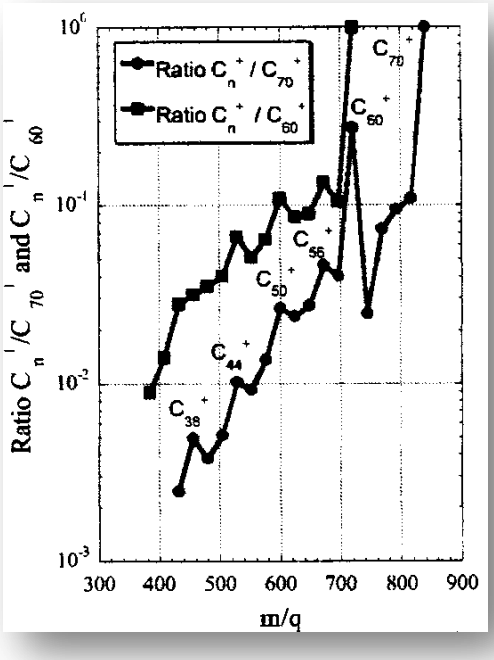


Figure 24: Distribution normalisée des fullerènes chargés et leurs fragments pour C_{60} et C_{70}

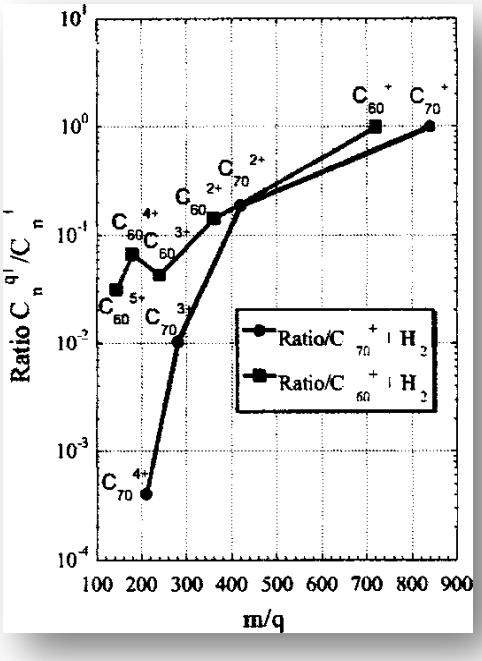


Figure 25: Comparaison des distributions C_{60}^{q+} et C_{70}^{q+}

- m/q > 360 : ions fullerènes C_{60} et fragments $C_{(60 - 2m)}$ monochargés
- 80 < m/q < 360 : ions fullerènes C_{60} et ses fragments $C_{(60 - 2m)}$ multichargés avec agrégats de carbone mono et multichargés issus de fragmentation
- m/q < 80 : petits agrégats de carbone monochargés

La frontière entre les ions agrégats de carbone et les ions fullerènes multichargés n'est pas nette car de nombreux cas existent où les m/q sont identiques. Des mesures similaires ont été effectuées avec des fullerènes C_{70}. Les conclusions sont sensiblement identiques à celles ci-dessus. L'autre résultat intéressant est la reproductibilité de la plus grande stabilité de certains fragments comparés aux autres (figure 24) : C_{60}^{+}, C_{56}^{+}, C_{50}^{+}, C_{44}^{+} et C_{38}^{+}. Par contre, il existe des différences dans les spectres de masse entre les fullerènes C_{60} et C_{70} (figure 25). L'intensité des ions C_{70}^{n+} diminue plus vite que celle des ions C_{60}^{n+} comme le montre la figure 25. Cette diminution est d'autant plus importante que les ions fullerènes sont chargés. Grâce à une méthode de déconvolution basée sur l'interpolation de l'intensité de pics connus associée à une méthode de séparation (voir plus loin dans le texte) (27), il a été extrait, du spectre de masse de la figure 23, les intensités pour les agrégats de carbone mono et multi chargés. Sur la figure 26, des agrégats de carbone monochargés mais avec des nombres impairs de carbone sont présents avec des intensités qui sont deux ordres de grandeurs inférieurs à ceux ayant un nombre pair : ceci résulte du fait que les agrégats impairs sont très instables. De même, sur cette figure, on peut voir la prédominance des agrégats légers de carbone ayant 11 et 15 atomes de carbone. On peut reconnaitre la structure 4n+3 correspondant à des agrégats de carbone ayant une stabilité accrue (7, 11, 15, 19, 23 et 27), ces agrégats provenant de la fragmentation de fullerène ou de ses fragments ($C_{(60 - 2m)}$). Cette stabilité s'explique dans le cadre du modèle de Hückel pour des structures cycliques chargées une fois.

La figure 27 quant à elle montre une comparaison de la production d'agrégats de carbone pour des états de charge allant de 1 à 3. Pour les charges 2 et 3 on retrouve quasiment la même structure qu'avec la charge 1 (positions des maxima d'intensité) démontrant que la charge n'influe que peu sur la stabilité des fragments produits. Par contre, plus la charge augmente et plus les fragments issus de l'évaporation des C_2 / C_2+ (pour des charges

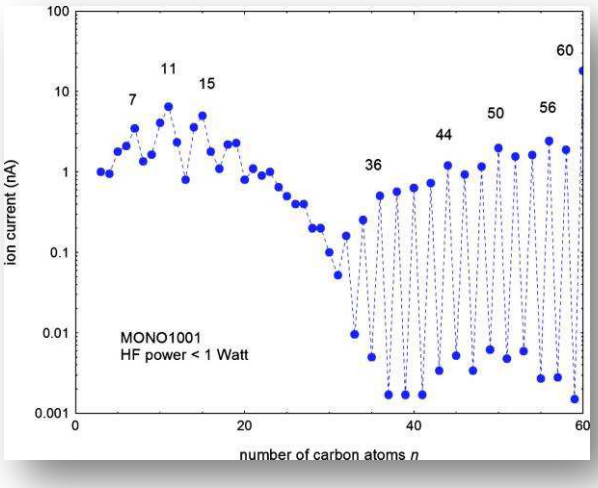


Figure 26: Intensité des agrégats monochargés en fonction de la taille des agrégats

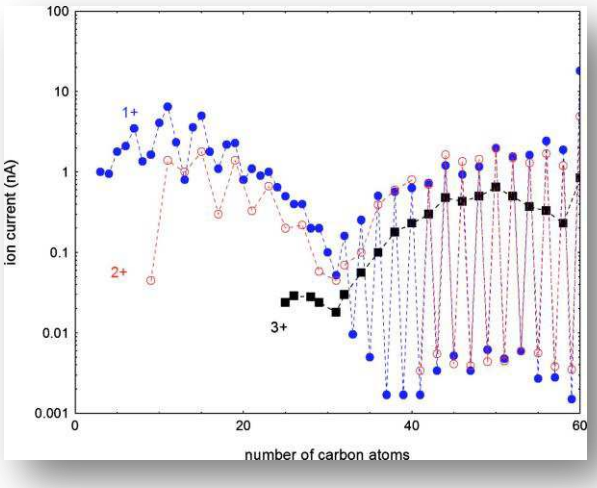


Figure 27: Intensité des agrégats mono (bleu) doublement (rouge) et triplement (noir) chargés en fonction de la taille des agrégats

supérieures à 3) deviennent importants par rapport au C_{60}^{q+} avec un décalage vers les petites tailles. Ceci nous amène à penser que plus la charge augmente et plus l'énergie interne de l'agrégat augmente et par conséquent il devient mois stable. Les fragments et agrégats de carbone avec des nombres impairs sont encore présents pour q=2 mais ne sont plus visibles pour q=3 : trop faibles intensités et recouvrement par d'autres pics. Les agrégats de carbone multichargés montrent une taille d'apparition plus grande qui est due à la répulsion coulombienne et à l'énergie interne : n_{app}=9 et 25 pour q=2 et 3 respectivement. Rappelons ici que la taille d'apparition est le nombre de fullerène nécessaire dans l'agrégat pour stabiliser une charge électrique q.

Nous avons utilisé différents gaz support : H_2, He et O_2. La figure 28 montre que l'utilisation de l'oxygène comme gaz support est défavorable à la production des ions multichargés et que pour l'H_2 et l'He les courbes sont comparables. Contrairement à l'oxygène qui nécessite des puissances RF de 20-30 W, l'utilisation de H_2 ou He nécessite des puissances autour de 1 W et une quantité moindre de fullerène neutre à injecter pour l'obtention des mêmes courants extraits. Le faisceau de $C_{60/70}^{+}$ apparaît pour une température du four de 350°C (dans ce cas la partie de puissance RF non absorbée par le plasma et captée potentiellement par le four est négligeable pour chauffer le four). L'intensité du faisceau C_{60}^{+} croît linéairement avec l'augmentation de la température du four de 2 nA à 20 nA pour une température du four allant de 410°C à 450°C. Malheureusement, l'efficacité d'extraction - transport de l'installation étant très faible ~2% l'intensité maximale du faisceau de C_{60}^{+} a été vite atteinte. Admettant une efficacité d'extraction – transport de 100%, cette source serait capable de fournir un faisceau de 1 µA de C_{60}^{+} pour une dizaine d'heures environ.

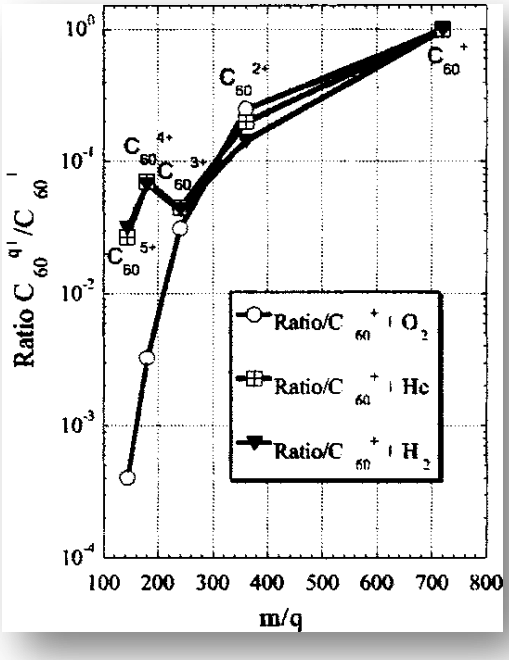


Figure 28: Evolution des C_{60}^{q+} normalisé au C_{60}^{+} pour trois gaz supports

Perspectives

La source MONO1000 utilisée a pour la production de faisceaux d'ions fullerène montré de bonnes aptitudes. Pour obtenir à la fois une intensité plus forte tout en préservant la nature de la molécule « fullerène », trois voies seraient à explorer :

- Création d'une source avec une fréquence plus faible, autour du GHz, afin d'obtenir une population électronique plus « froide » permettant à la fois de multi-ioniser les molécules de fullerène tout en gardant le maximum de molécules intactes.

- Thermaliser les molécules à l'aide d'un gaz refroidi à des températures en-deçà de l'azote liquide. Les atomes du gaz utilisé devront alors posséder une énergie de première ionisation suffisamment élevée pour que les électrons du plasma RCE ne les ionisent pas et que le processus d'échange de charge avec les ions du plasma soit très peu probable : le gaz He est un bon candidat.

- Utiliser un dipôle d'analyse ayant un entrefer suffisant pour obtenir une efficacité de transport de 80% et un Bρ adapté au transport d'un faisceau ayant une masse de 720 u.m.a. à une énergie de E = 1 (charge) * 20 (tension d'extraction en kV) keV soit un Bρ de 0.548 T.m.

Bien évidemment, cette nouvelle source pourra aussi créer des faisceaux d'ions moléculaires intenses de différents types tant que ces molécules pourront être injectées dans la source sous forme de gaz neutre.

Chapitre III. Utilisation des ions multichargés créés par une source d'ions de type RCE : quelques applications

Les sources d'ions de type RCE ont été développées pour être exploitées auprès des accélérateurs de particules pour fournir des ions pour la Physique Nucléaire et la Physique des particules. Au fur et à mesure de l'augmentation de leurs performances et de leurs diversifications, elles ont été employées dans d'autres domaines de Physique telle que la Physique Atomique et la Physique des Surfaces (Installation ARIBE – Caen – France ; ZERNIKE – KVI – Pays Bas ; Giessen – Allemagne ; TUV – Vienne – Autriche ; LASIM – Lyon – France ; INSP – Jussieu – Paris – France ; ATOMKI – Debrecen – Hongrie ; ISMO – Orsay – France ; etc…

Une autre application est l'utilisation des sources d'ions RCE pour produire des flux intenses d'ions légers :

- Des intensités de D+ supérieures à 100 mA à 40 MeV ceci afin de créer des flux intenses de neutrons dans le cadre de l'étude des matériaux pour les machines de fusion type ITER (projet IFMIF) ;
- Des intensités de p+ supérieures à 20 mA à 1 GeV dans le cadre de machines dénommées « Accelerator Driver System » qui sont des réacteurs nucléaires pour détruire les déchets des centrales nucléaires à durée de vie très longue.

Une autre application des sources d'ions RCE est leur emploi dans les centres d'hadronthérapie en particulier ceux qui utilisent des faisceaux intenses d'ions carbone. Cette industrie est en pleine expansion avec l'ouverture de nombreux centres à travers le monde : HIMAC – Chiba – Japon ; HIT – Heidelberg – Allemagne ; CNAO – Pavia – Italie ; MedAustron – Wiener NeuStadt– Autriche ; PTC - Marburg – Allemagne ; HIBMC – Hyogo – Japon ; IMP – Lanzhou – Chine ; projet Archade – Caen – France ; projet Etoile – Lyon – France etc…

Dans la suite de ce rapport, je vais me concentrer à la fois sur l'utilisation de sources d'ions RCE pour la fourniture d'ions multichargés dans le cadre d'éventuelles futures applications industrielles (section 3.01 et 3.02) ou pour l'utilisation de ces ions comme sonde dans le cadre d'études plus fondamentales (section 3.03).

Section 3.01 Création de microfaisceaux d'ions multichargés

(i) ***"Multiply-charged ion nanobeams", A. Cassimi, T. Muranaka, L. Maunoury, H. Lebius, B. Manil, B.A. Huberl, T. Ikeda, Y. Kanai, T.M. Kojima, Y. Iwai, T. Kambara, Y. Yamazaki, T. Nebiki and T. Narusawa***

(ii) ***"Imaging dynamics of charge-auto-organisation in glass capillaries", A. Cassimi, L. Maunoury, T. Muranaka, B.A. Huber, K.D. Dey, H. Lebius, D. Lelievre, J.M. Ramillon, T. Been, T. Ikeda, Y. Kanai, T.M. Kojima, Y. Ywai, Y. Yamazaki, H. Khemliche, N. Bundaleski and P. Roncin***

(iii) ***"transmission of ions through a tapered-glass capillary : imaging the dynamics of the charging-up process", P. Rousseau, A. Cassimi, L. Maunoury, T. Muranaka, B.A. Huber, K.D. Dey, H. Lebius, D. Lelievre, J.M. Ramillon, T. Been, T. Ikeda, Y. Kanai, T.M. Kojima, Y. Ywai, Y. Yamazaki, H. Khemliche, N. Bundaleski and P. Roncin***

(iv) ***"Collisions of ions with insulator surfaces: charging and discharging dynamics", N. Bundaleski, H. Khemliche, P. Rousseau, A. Cassimi, L. Maunoury and P. Roncin***

(v) ***"Discharging dynamics of insulator surfaces irradiated by highly charged ions", N. Bundaleski, H. Khemliche, P. Rousseau, A. Cassimi, L. Maunoury and P. Roncin***

Cet ensemble d'études fait suite aux travaux pionniers de N. Stolterfoht et Y. Yamazaki. N. Stolterfoht, a étudié avec son groupe la transmission d'ions multichargés (Ne^{7+}) de basse énergie (3 keV) à travers un ensemble de nanocapillaires créés dans une feuille de polymère (28) d'épaisseur d'une dizaine de µm. Deux résultats importants sont ressortis de cette étude : lorsque l'angle d'incidence du faisceau change, les ions transmis sortent de la feuille avec le même angle et les ions transmis ressortent principalement avec la même charge. T. Yamazaki et son groupe ont appliqué ces études au cas de capillaires en verre de taille microscopique (29). Dans ce cas la taille d'entrée du capillaire est de l'ordre du mm et la taille de sortie et de l'ordre du µm. Il réussi a montré que :

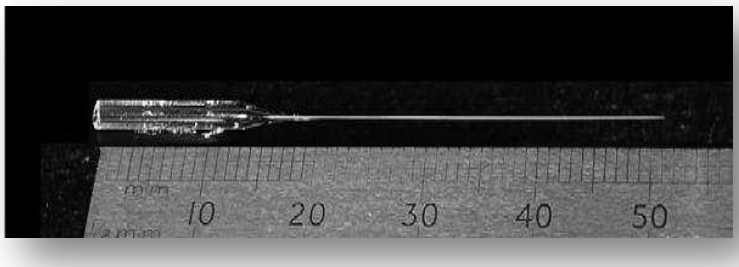
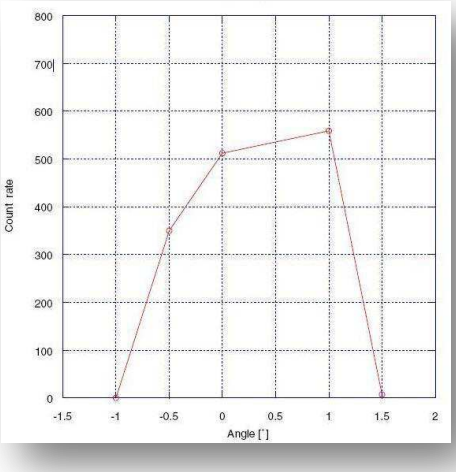


Figure 29: Photo d'un capillaire typique utilisé dans nos études

- des ions multichargés sont transmis à travers le capillaire ;
- lorsque le capillaire fait un angle ϕ avec le faisceau, les ions transmis sortent sous le même angle ;
- la majorité des ions transmis ont gardé la même charge qu'à l'entrée du capillaire et la divergence du faisceau transmis est très faible.

Ce nouveau procédé a un potentiel important. En effet si on combine ces travaux avec ceux de F. Aumayr (30) et son groupe qui étudient intensivement la nanostructuration de surface avec des ions multichargés, il est envisageable d'imaginer à moyen terme de nouveaux outils capables de structurer la matière de façon parfaitement contrôlée à l'échelle de la centaine de nm voire moins.

Nous avons donc repris l'étude d'Y. Yamazaki et l'avons étendu à des ions beaucoup plus chargés (31) (32) (33). Les capillaires sont faits en borosilicate (80.9% de SiO_2, 12.7% de B_2O_3 et 2.3% de Al_2O_3). Ils font quelques centimètres de long, ont un diamètre d'entrée autour du mm et un diamètre de sortie autour du µm (figure 29). Ils sont protégés en entrée par un diaphragme métallique pour éviter l'apparition d'une barrière électrostatique. Le capillaire est placé sur un goniomètre afin d'avoir des déplacements précis dans les trois directions de l'espace (résolution de 1 µm) et dans deux directions angulaires (résolution de 1 milli degré). Deux diaphragmes de 2 mm sont placés avant le système afin de définir une émittance du faisceau multichargé extrait de la source RCE à une valeur de 6 π.mm.mrad. Un système électrostatique est placé en sortie du capillaire pour analyser en charge les ions transmis. Notre « œil » dans cette étude est un détecteur sensible en position constitué de galette microcanaux et d'une anode sensible en position. La résolution spatiale de notre détecteur est de 70 µm. Les deux faisceaux étudiés sont l'Ar^{8+} à une énergie de 80 keV – diamètre de sortie du capillaire de 3 µm (recouvrement par rapport aux études du groupe de Y. Yamazaki) et le Xe^{23+} à une énergie de 230 keV – diamètre de sortie du capillaire de 20 µm.



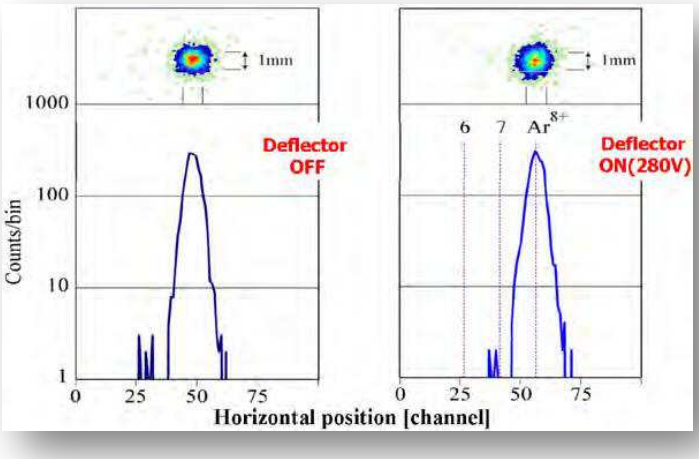


Figure 30: Variation d'intensité d'un microfaisceau de Xe^{23+} 230 keV avec l'angle φ

Figure 31: Mise en évidence que seul l'Ar^{8+} est transmis par le capillaire. Lorsque le déflecteur est polarisé, seul l'Ar^{7+} apparaît très minoritairement

Les premiers résultats (figure 30) ont montré que nous étions capables de reproduire ceux du groupe de Y. Yamazaki c'est-à-dire faire un microfaisceau d'ions multichargés. Nous avons démontré que l'échange de charge (figure 31) est un processus très minoritaire (environ moins de 1%). Les émittances des faisceaux transmis sont, dans les deux cas, très faibles 6 10^{-4} (Ar^{8+}) et 1.10^{-2} (Xe^{23+}) π.mm.mrad correspondant à des facteurs de diminution d'émittance de 10000 et 25 respectivement. Un autre résultat intéressant est le gain de

« compression » correspondant au rapport de la densité de courant à la sortie du capillaire sur celle à l'entrée du capillaire. Le groupe d'Y. Yamazaki a reporté des valeurs élevées 1000 et 200 tandis que nous avons trouvé des valeurs plus faibles 10 - 30 et 3 pour l'Ar et le Xe respectivement. Ces dernières mesures ont nécessité la mise en œuvre d'une coupelle de faraday et la maîtrise de mesures de courant très faibles. Des courants injectés allant de quelques pA jusqu'à 50 pA ont montré une dynamique relativement grande du procédé sans détruire ses qualités. Cette étude a montré qu'il est aussi possible de faire des microfaisceaux avec des ions très chargés mais avec des performances moindres comme attendues (diminution du facteur de compression et du domaine angulaire de guidage avec l'augmentation de l'énergie des ions (34)).

Notre dernière étude a été tournée vers la compréhension du chargement interne du capillaire. Mais regardons tout d'abord les résultats portant sur l'étude de la charge et décharge d'échantillon de borosilicates (contenant du SiO_2 en majorité et les composés suivants : B_2O_3, Na_2O, K_2O, CaO) réalisée par N. Bundaleski et collaborateurs (35) (36).

Ils ont montré qu'avec ce matériau il faut environ 10 à 100 fois plus d'ions pour le charger à l'équivalent d'autres échantillons (fused silica ou quartz) et qu'il se décharge très rapidement. Des expériences mettant en œuvre une nouvelle méthode de mesure de ce temps de décharge montre que celui-ci a un comportement temporel de type Arrhenius avec $\tau \sim \exp(Ea/kT)$. Dans notre cas, E_a est l'énergie d'activation de la mobilité des charges qui est proche de celle des ions Na^+. Ce serait dont ces ions qui gouverneraient la décharge dans notre capillaire.

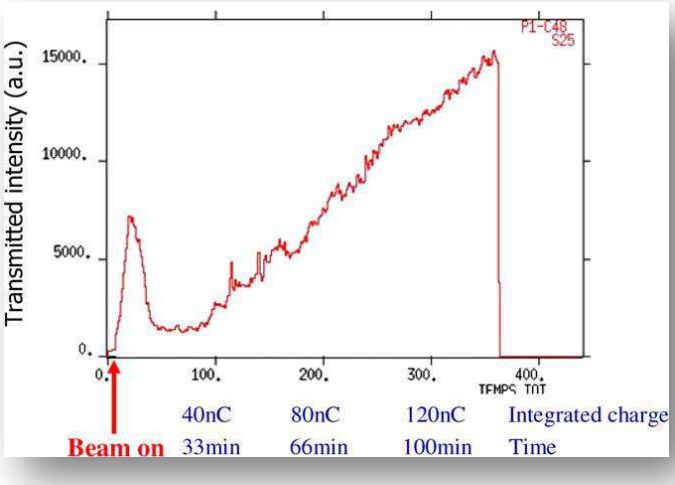


Figure 32: Evolution de l'intensité d'un microfaisceau de Xe^{23+} 230 keV transmis en fonction du temps

Le régime transitoire permet de mieux comprendre le chargement d'un capillaire. La figure 32 et la figure 33 montrent, dans le cas de la production d'un microfaisceau d'ions Xe^{23+} de 230 keV, l'évolution de l'intensité et de la position de ce microfaisceau suivant la même échelle de temps. Lorsque le faisceau est envoyé dans le capillaire, il y a une augmentation brutale de l'intensité avec un déplacement vers le « bas » du microfaisceau suivi d'une brusque baisse d'intensité accompagné d'oscillations du microfaisceau. Ensuite l'intensité augmente régulièrement avec un déplacement vers le « haut » du microfaisceau. Une explication qui tend à se confirmer dans la communauté est le chargement du capillaire par « patch ». Le faisceau charge un endroit du capillaire, une zone « patch » avec un fort champ électrique défléchit le faisceau initial vers la sortie (1ère augmentation d'intensité) puis la déflexion continuant l'intensité diminue. Une autre zone du capillaire se charge alors créant à nouveau une nouvelle zone « patch » avec un fort champ électrique qui va permettre aux ions d'être défléchis, d'où l'observation de l'augmentation d'intensité et d'un autre déplacement du

microfaisceau. Une vision directe de ces zones grâce à une spectroscopie X des ions qui se neutralisent permettraient de confirmer ce scénario et de mieux maîtriser le chargement de ce type de capillaire.

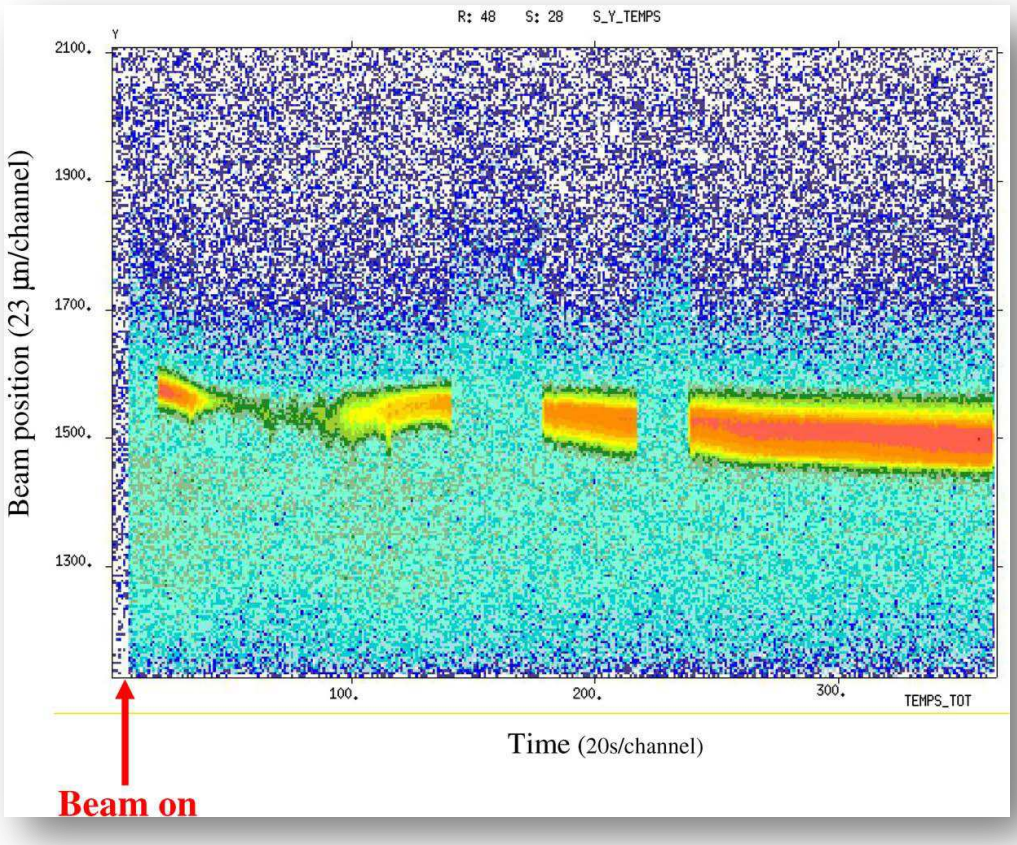


Figure 33: Evolution de la position d'un microfaisceau de Xe^{23+} 230 keV transmis en fonction du temps

Perspectives

Ces capillaires ont pour le moment des tailles de sortie encore trop importantes pour qu'ils puissent intéresser l'industrie de la microélectronique ou pour des applications dans le domaine nanométrique : plusieurs centaines de nanomètres. Une piste serait donc de pouvoir développer un élément optique à l'échelle du µm capable de focaliser le faisceau d'ions multichargés du capillaire. Une optique du type lentille de Einzel serait adaptée mais celle-ci devra être réalisée à l'aide des techniques de la microélectronique. Associé à des tables XY mues par des actionneurs piézoélectriques et en minimisant les éléments d'optique entre la source d'ions et le capillaire, une nouvelle machine compacte pourrait voir le jour permettant la nano structuration de surface avec motif et celle-ci pourrait intéresser des industriels.

Section 3.02 Ions multichargés : interaction avec les surfaces ou comment utiliser un « bistouri » nanométrique pour nanostructurer une surface

Les ions multichargés présentent un avantage quant à leurs énergies: plus ils sont chargés et plus leur énergie est grande pour une même tension d'accélération :

$$E = Q*U \qquad (5)$$

E (keV) = énergie acquise par l'ion de charge Q
Q = charge de l'ion
U (kV) = tension d'extraction de la source

Si on irradie une surface avec un faisceau contenant des ions composés de plusieurs charges, le profil d'implantation est alors plus élargi que celui avec un faisceau composé uniquement d'ions monochargés. C'est le principe utilisé par la société Quertech Ingénierie. Des premiers travaux portant sur la nitruration de l'aluminium (37), avec le nouveau procédé de cette startup, a permis d'avancer dans la compréhension des mécanismes de durcissement. Dans ce cas, celui-ci n'est pas seulement dû à la présence de nitrure d'aluminium mais aussi par le phénomène d'écrouissage et par solution solide d'insertion.

Dans ce cadre, nous avons entrepris l'étude du traitement du matériau Ti-6Al-4V par des ions multichargés de carbone et d'oxygène (38) (39). Le titane est un matériau très utilisé notamment dans l'industrie aéronautique, médical, militaire etc... Nous voulions comprendre quelles sont les relations entre les améliorations des propriétés mécaniques des surfaces traitées et la structure du carbone implanté dans le Ti-6Al-4V. Dans ce couple, c'est l'amélioration des propriétés tribologiques qui étaient principalement visée.

Dans la suite, des résultats expérimentaux vont être présentés suite à l'utilisation des techniques suivantes :

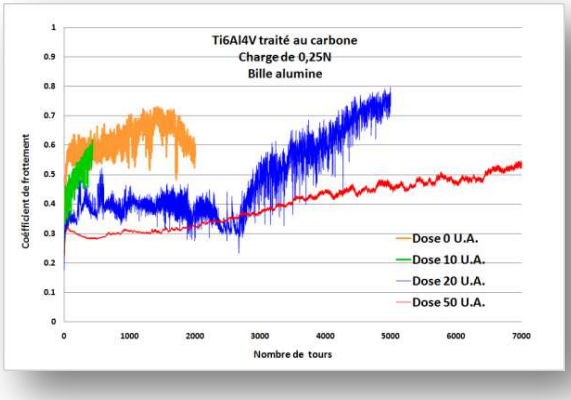


Figure 34 : Evolution du coefficient de frottement du Ti-6Al-4V irradié en fonction de la dose

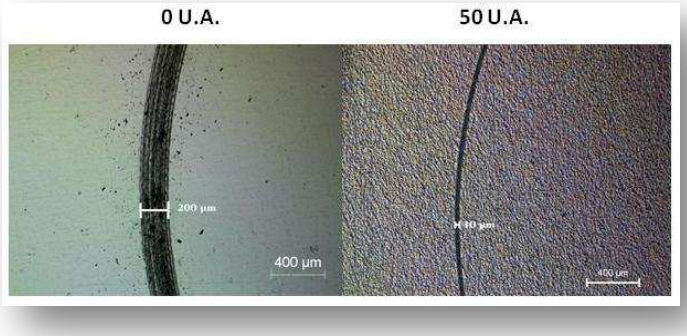


Figure 35 : Evolution de la trace d'usure pour un échantillon de Ti-6Al-4V vierge (gauche) et un échantillon irradié (droite) après 200 tours à une charge de 0.5 N utilisant une bille en acier

- Un tribomètre qui permet de mesurer le coefficient de friction et l'usure d'un matériau. Il consiste en un porte échantillon qui tourne à la vitesse V. Une bille excentrée d'un rayon R appui avec une force constante sur l'échantillon. Un logiciel calcul alors le coefficient de frottement.
- La dureté est mesurée par nanoindentation dont le principe consiste à appliquer une charge sur une surface par l'intermédiaire d'un indenteur. Dans cette étude, une indentation unique est réalisée avec la mesure de la raideur en continu ; de la courbe dureté = f (profondeur), le maximum de la courbe donne la valeur de dureté retenue.
- La spectroscopie RAMAN est une technique basée sur la vibration des liaisons entre les atomes crée par la diffusion inélastique d'un photon après excitation de l'échantillon par une lumière monochromatique (ici λ = 532 nm). Dans notre étude, elle permet de discriminer le carbone amorphe ou désordonné (D Peak) des liaisons graphitiques (G Peak).
- La spectroscopie de photoélectrons XPS détecte les électrons de cœur des atomes présents après absorption d'un photon X. La variation en énergie des X permet, par l'analyse en énergie des photoélectrons émis, de caractériser sans ambigüité les atomes présents dans l'échantillon.

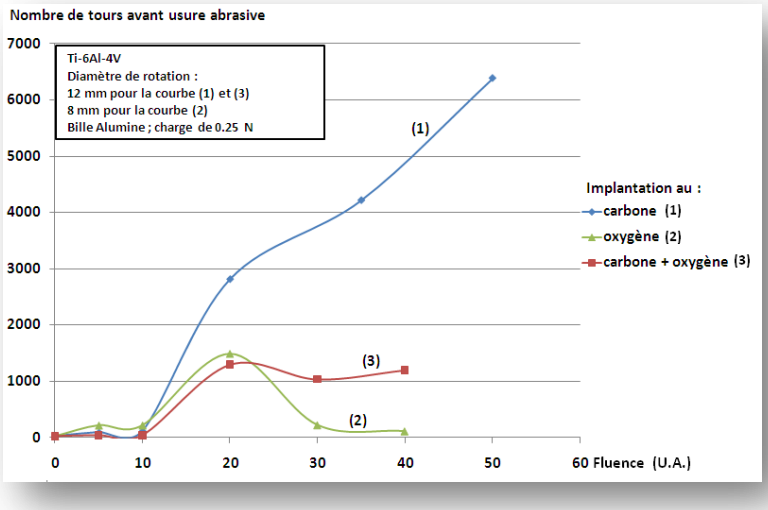


Figure 36: Nombre de tours avant usure abrasive en fonction de la fluence et de l'ion implanté

Des premiers résultats montrent le gain important obtenu sur le coefficient de frottement (figure 34) et sur la résistance à l'usure (figure 35). La figure 34 montre que, jusqu'à environ 1500 tours, le gain avec l'échantillon irradié 50 u.a. (unité arbitraire) est en moyenne d'un facteur 2 comparativement à l'échantillon non irradié. Ensuite la courbe monte de façon monotone pour se rapprocher de la valeur de l'échantillon vierge sans jamais l'atteindre malgré les 7000 tours effectués.

La figure 35 présente la diminution de la trace laissée par ce même échantillon mais pour un nombre de 200 tours à 0.5 N seulement. La trace apparente est diminuée d'un facteur 20 environ pour une dose de 50 u.a. La figure 36 résume le nombre de tours avant l'usure abrasive en fonction de la fluence et de l'ion implanté. Alors que pour le cas du carbone, le nombre de tour augmente avec la dose, pour le cas de l'oxygène seul celui-ci passe par un maximum et pour le cas d'une irradiation simultanée, le nombre de tour présente un plateau à partir de la dose 20 u.a.

On déduit des courbes de la figure 36 qu'il doit exister une fluence seuil à déterminer à partir de laquelle il y a une amélioration des propriétés tribologiques.

La figure 37 montre également que la dureté mesurée par nanoindentation augmente avec l'augmentation de la dose sans présenter de plateau aussi bien en implantation avec du carbone seul qu'avec une implantation simultanée carbone et oxygène.

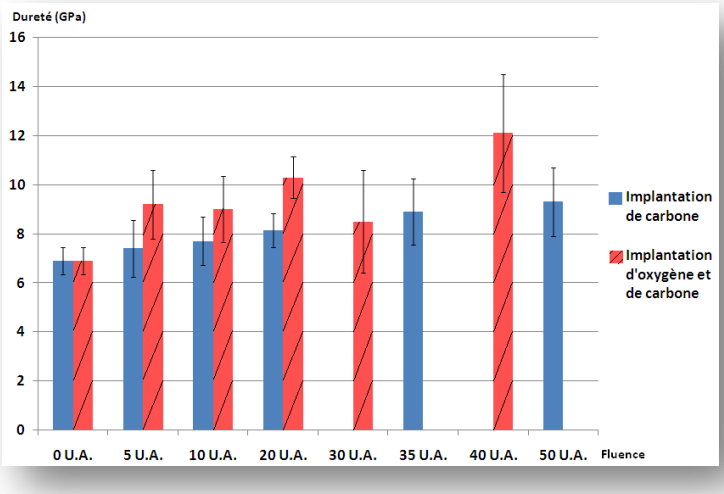


Figure 37: Dureté maximale mesurée par nanoindentation en fonction de la fluence et des ions implantés

Des mesures faites par spectroscopie RAMAN mettent en évidence la présence de carbone sous forme graphite et amorphe en surface et ceci seulement à partir d'une fluence de 20 u.a. dans le cadre de l'irradiation avec du carbone seul. Ces mesures nous amènent aussi à conclure qu'il existe du carbone en solution solide dans les échantillons.

Des mesures utilisant la diffraction des rayons X n'a pas vraiment mis en évidence la formation de TiC dans le cas d'irradiation simultanée de carbone et d'oxygène au contraire de l'irradiation avec du carbone seul où dans ce cas le pic du TiC est clairement visible. Finalement des spectres XPS (Spectroscopie de photoélectrons X) ont mis en évidence la présence d'une couche de carbone avec des liaisons C-C sur une couche de TiC (figure 38) dans le cas de l'irradiation avec du carbone seul.

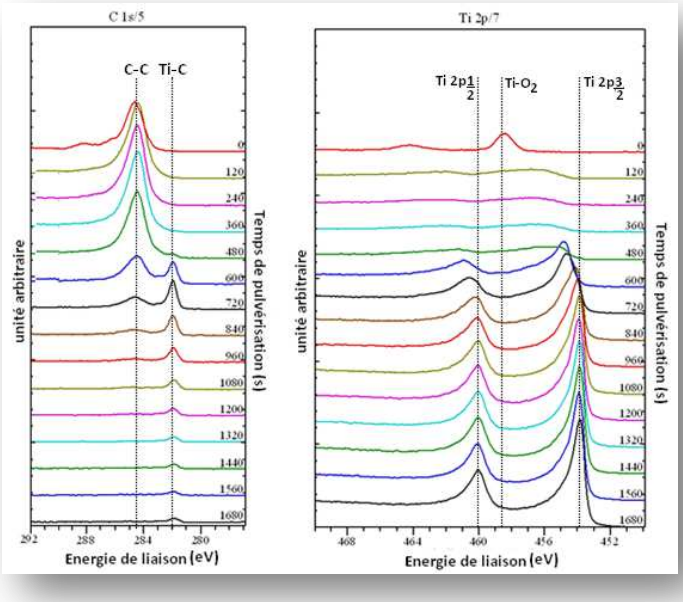


Figure 38: Spectres XPS C 1s et Ti 2p du Ti-6Al-4V implantés avec des ions carbones et à une fluence de 50 u.a.

Combinant ces résultats de mesures avec ceux de la littérature (40) (41) (42), l'amélioration du coefficient de frottement et de la résistance à l'usure serait due aux liaisons

C-C du carbone présent en extrême surface des échantillons (des mesures RBS confirment une irradiation d'une profondeur de 200 nm) environ. Une autre conclusion est que la présence d'oxygène dégrade les performances tribologiques de l'alliage Ti-6Al-4V ; c'est donc un élément à supprimer lors de l'utilisation du procédé.

Perspectives

Ce travail a permis dans le cadre du traitement de l'alliage Ti-6Al-4V de faire apparaître quels sont les processus responsables de l'augmentation des propriétés tribologiques. Pour conclure cette étude voici les actions à mener dans le cas de l'irradiation avec du carbone seul:

- Explorer quelle est la valeur seuil dans la courbe du nombre de tours avant usure abrasive.
- Explorer les paramètres Energie – Fluence afin de minimiser le temps de traitement tout en obtenant une augmentation significative des propriétés tribologiques.
- Comparer ce procédé d'implantation avec ceux existant CVD – PVD et déterminer si celui-ci est plus résistant.

Section 3.03 Ions multichargés : sonde pour l'étude des fullerènes et biomolécules

(a) Les fullerènes et les agrégats de fullerènes

(i) ***"Highly Charged Clusters of Fullerenes : Charge Mobility and Appearances Sizes", B. Manil, L. Maunoury, B.A. Huber, J. Jensen, H.T. Schmidt, H. Zettergren, H. Cederquist, S. Tomita and P. Hvelplund***

(ii) ***"Stability and fragmentation of highly charged fullerene clusters", B. Manil, L. Maunoury, B.A. Huber, J. Jensen, H.T. Schmidt, H. Zettergren, H. Cederquist, S. Tomita and P. Hvelplund***

(iii) ***"Fragmentation of charged fullerene dimer: Kinetic energy release", B. Manil, L. Maunoury, J. Jensen, H. Cederquist, H.T. Schmidt, H. Zettergren, P. Hvelplund, S. Tomita and B.A. Huber***

(iv) ***"Clusters and Clusters of Clusters in collisions", B. Manil, V. Bernigaud, P. Boduch, A. Cassimi, O. Kamalou, J. Lenoir, L. Maunoury, J. Rangama, B.A. Huber, J. Jensen, H.T. Schmidt, H. Zettergren, H. Cederquist, S. Tomita, P. Hvelplund, F. Alvarado, S. Bari, A. Lecointre and T. Schlathölter***

Voilà 25 ans que les fullerènes ont été découverts et plus particulièrement le C_{60}. Les propriétés physiques remarquables de cette petite « boule » de carbone a entraîné beaucoup d'études sur celle-ci. Il existe de nombreuses variantes de fullerènes avec un nombre de carbone allant bien au-delà de 60 : C_{70}, C_{72}, C_{84} etc…Nous nous intéressons particulièrement

aux propriétés physiques et à la stabilité des molécules C_{60} et C_{70} (figure 39 a et b). Ces petites molécules sont composées d'atomes de carbones liés par des liaisons covalentes fortes et ont des formes les rendant très stables : le C_{60} est sous la forme d'un icosaèdre tronqué ou plus communément « ballon de football » tandis que le C_{70} a une forme ellipsoïdale ou « ballon de rugby ». Depuis une quinzaine d'années, l'étude des agrégats de fullerènes est le sujet de nombreuses études. Un exemple est donné sur la figure 40 qui représente un dimère $(C_{60})_2$. Les agrégats de fullerènes sont des agrégats faiblement liés par des forces de type Van der Waals dont l'énergie de liaison est d'environ 230 mV.

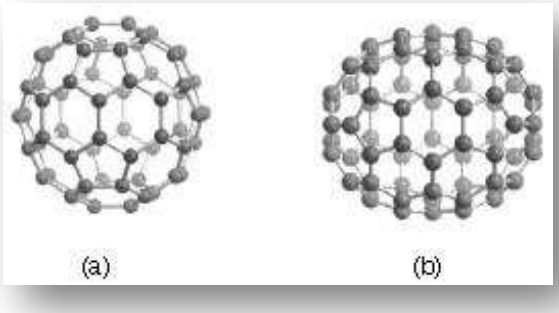


Figure 39: Images d'un fullerène C_{60} (a) et C_{70} (b)

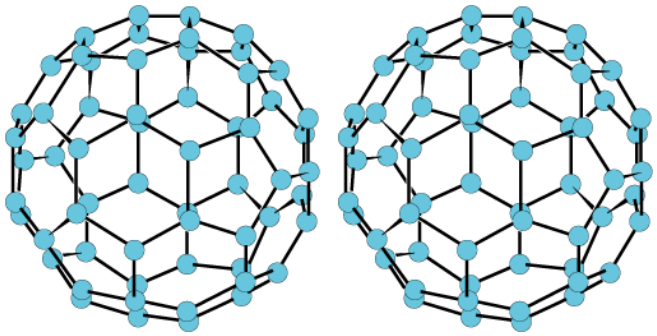


Figure 40: Image d'un agrégat de fullerène possible : dimère de C_{60}

Les travaux pionniers du groupe de T.P. Martin et collaborateurs (43) sur la structure des agrégats mono et doublement chargés $(C_{60}) - (C_{70})$ ont montré que pour un nombre n=13 et n=55 de fullerène C_{60} / C_{70}, les agrégats ont une structure fermée de type icosahedrale. Mais pour les agrégats ayant des structures non fermées, ils vont subir des transitions structurales du même type que les agrégats de type $(Ar)_n$. Selon la température des agrégats, des structures du type icosaèdre, « closed-packed » et décaèdre peuvent être observées indépendamment de la charge de l'agrégat (q=1 et q=2). Ces structures observées expérimentalement ont été confirmées par des calculs du type « global-minima » (44) pour les agrégats de fullerènes $(C_{60})_n$.

Il est important de signaler que l'on utilise du C_{60} / C_{70} pur ou mélangé, ces deux types de fullerènes forment le même type d'agrégats et que ceux-ci sont caractérisés par des énergies de liaison et des réactivités similaires (45).

Dans cette étude, nous nous focaliserons plus particulièrement à la mobilité de la charge entre les différents constituants moléculaires de l'agrégat. Il a été montré, dans le cas d'agrégats de gaz rares type Ar_n que la mobilité des charges est faible et que la charge est localisée sur un petit nombre d'atomes seulement. Dans le cas de l'agrégat Ar_{13}^+ ayant une structure icosaèdre, la charge est localisée autour d'un cœur linéaire d'Ar_3^+. D'autres expériences en collision (46) produisant des agrégats d'argons très chargés ont montré qu'il y a, lors de la fragmentation, production de fragments chargés jusqu'à 7 fois Ar^{7+} émis en corrélation avec un fragment monochargé Ar^+ .

Nous avons donc entrepris l'étude sur des agrégats de fullerène $(C_{60} + C_{70})$ très chargés qui sont produits par collision avec des ions multichargés (charge jusqu'à 30). Nous nous sommes concentrés sur différentes propriétés physiques de ces agrégats : la taille

d'apparition, la mobilité des charges, la structure et les distributions d'énergie cinétique (KER) dans le cas de la fragmentation du dimère.

Les expériences ont été réalisées sur l'installation d'ARIBE (Accélérateur de Recherche avec les Ions de Basse Energie), Caen, France (47). Elles consistent en des collisions entre des agrégats neutres de fullerènes produits par une source d'agrégats (48) et un faisceau d'ions multichargés issu d'une source RCE (49) (50) (51).

La source d'agrégats fonctionne comme suit : le mélange de $C_{60}/C_{70\ (5\%)}$ est chauffé dans un four à une température allant de 500 à 570°C pour l'évaporer; cette vapeur entre dans une région où par supersaturation dans une atmosphère d'hélium (p~10 mb) refroidie à T~77 K, il y a condensation et donc formation des agrégats de fullerène. Ensuite les agrégats de fullerène composés de monomères, dimères et agrégats de tailles supérieures (jusqu'à $(C_{60})_{40}$), quittent la source par un orifice de 2 mm de diamètre puis traversent plusieurs étages avec vide différentiel pour interagir avec le faisceau d'ions.

Celui-ci est généré par une source RCE et permet de délivrer des ions avec des charges q allant entre 20 et 30. Ce faisceau a typiquement une énergie de 20*q keV et est pulsé : le taux de répétition est le kHz et la largeur des pulses varie de 1 à 10 µm. Les agrégats et fragments mono – multichargés lors de la collision sont extraits perpendiculairement aux deux faisceaux avec une tension de ~7 kV sur une distance de 14 cm.

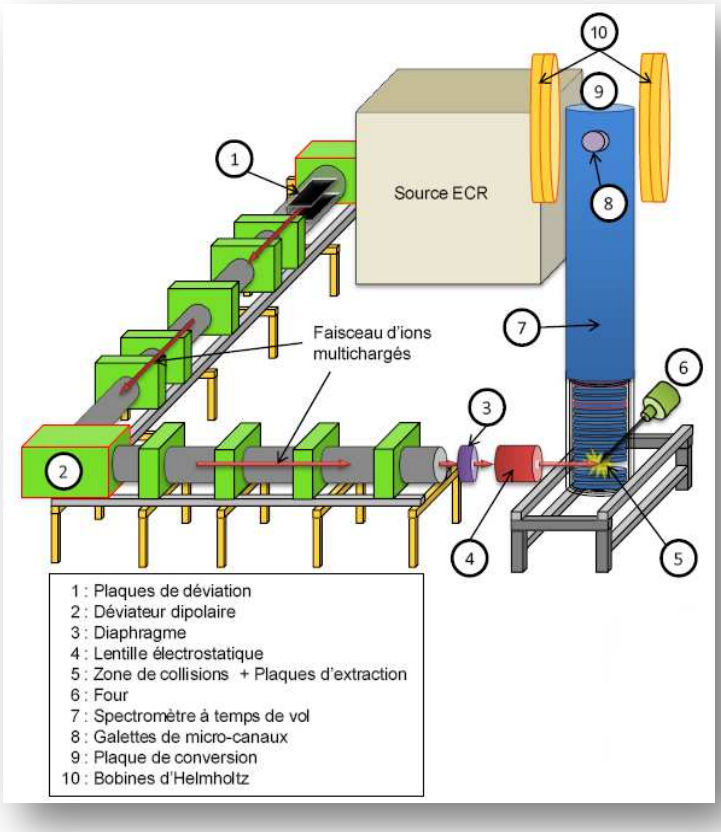


Figure 41: Dispositif expérimental installé sur ARIBE **(52)**

Leurs rapport masse/charge m/q est mesuré par un spectromètre de type Wiley Mc Laren de 1 m de long ayant une résolution de m/δm ~ 2500. La tension d'extraction est aussi pulsée (largeur de ~60 µs) et est synchronisée avec celle du faisceau. Les ions volent ensuite librement puis arrivent dans une région où ils sont post accélérés (~25 kV) vers une plaque de conversion augmentant ainsi significativement l'efficacité de détection (proche de 100%). Les électrons émis sont dirigés vers une galette de microcanaux où le signal est traité par un « multi hit » TDC (codeur numérique temps).

Les enregistrements sont effectués événement par événement. Ainsi il est possible d'avoir des spectres inclusifs (tous les évènements) et des spectres corrélés où est choisi le nombre de fragments (stops ou multiplicité) qui nous intéresse. Ceci permet de classer les types de collisions selon la distance d'interaction. La figure 41 représente l'ensemble du dispositif expérimental installé sur ARIBE.

La figure 42 présente un spectre de masse typique obtenu lors de la collision des agrégats de fullerène avec un faisceau d'ion Xe^{20+} ayant une énergie totale de 400 keV correspondant à une vitesse relative de ~0.3 a.u.. Le spectre est divisé en deux grandes régions séparées par le pic C_{60}^{+} qui est le pic dominant:

- à droite : les agrégats de fullerènes mono et multichargés ;
- à gauche : les fullerènes C_{60}^{q+} mono et multichargés avec leurs fragments dûs à l'évaporation de m*C_2 où m représente un nombre entier.

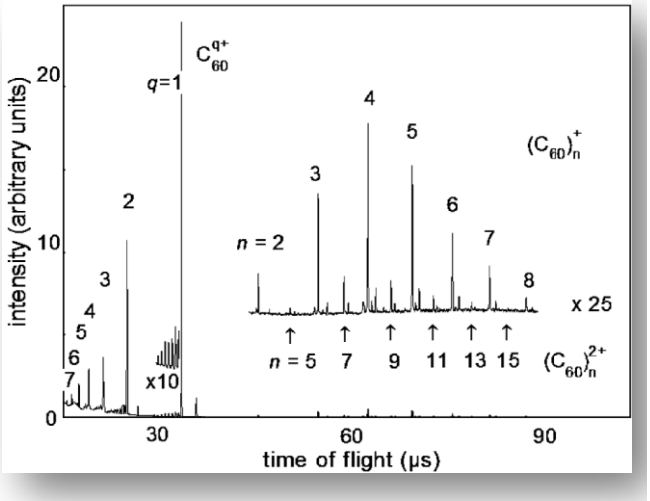


Figure 42: Spectre de temps de vol des fullerènes et agrégats de fullerènes ionisés par un faisceau Xe^{20+} de 400 keV. Les flèches indiquent l'emplacement des $(C_{60})_n^{2+}$ avec n impair
(T_{four} =525°C)

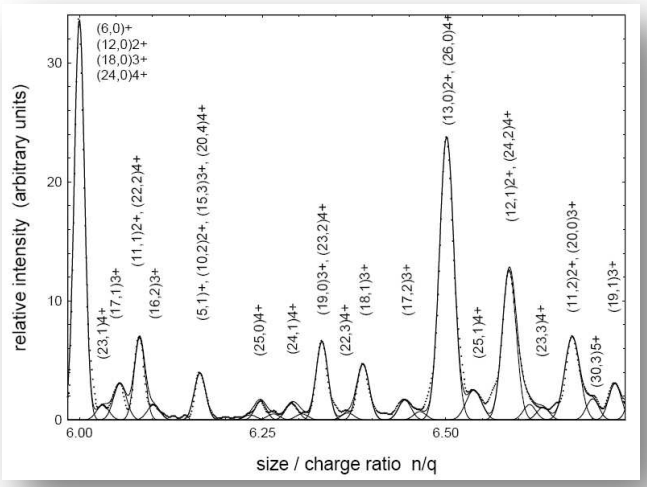


Figure 43: Détail du spectre montrant la contribution des agrégats de fullerène multichargés. La notation (k,l)q+ désigne un agrégat de $((C_{60})_k(C_{70})_l)^{q+}$
(T_{four}=560°C)

La prépondérance du monomère dans le spectre est due à son abondance dans le faisceau neutre d'agrégats (car ici la température est relativement basse, le signal du monomère diminue avec l'augmentation de la température) et à la production de cette espèce dans les processus de fragmentation. Le spectre est similaire à celui mesuré avec des agrégats d'Argon. Sur le spectre, on remarque que pour les agrégats de fullerènes doublement chargé

$(C_{60})_n^{2+}$ la distribution va de n=5 à n<16. Mais l'augmentation de la température du four (560°C) et l'optimisation de la source d'agrégat (pression He) a permis de détecter des agrégats monochargés avec n=40. L'augmentation de la température a permis aussi d'enrichir le spectre comme on peut le voir sur la figure 43. Le spectre est relativement complexe dû à la contribution des 2 espèces de fullerène C_{60} et C_{70}. Dans ce spectre, il y a clairement la formation d'agrégats de fullerènes chargés 4 fois et grâce à l'utilisation de technique de déconvolution de pics, des agrégats chargés 5 fois apparaissent. En utilisant cette technique, il est possible d'isoler les agrégats chargés q fois, la figure 44 en est un exemple avec q=3.

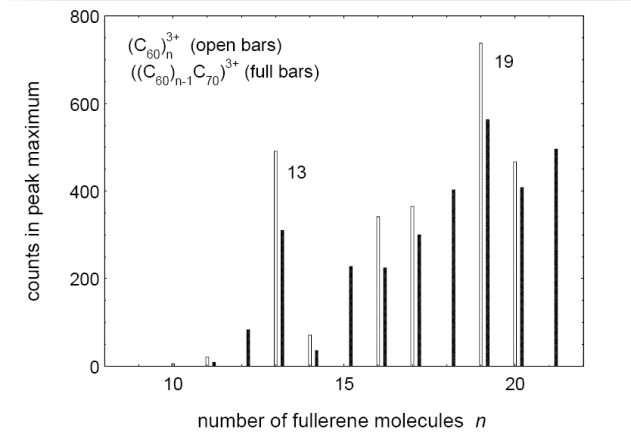


Figure 44: Spectre d'agrégats de fullerènes purs et mélangés pour q=3 : $(C_{60})_n^{3+}$ (barres ouvertes) et $((C_{60})_{n-1}(C_{70}))^{3+}$.(barres pleines)

De ces spectres il sera alors possible de déterminer la taille d'apparition qui correspond aux nombre de fullerènes nécessaires pour stabiliser une charge q sur un agrégat donné : dans le cas q=3 la valeur de n est 10 - 11. Cette valeur dépend fortement de la température de l'agrégat (53). Comme on peut le voir sur la figure 44, cette valeur est sensiblement la même que l'on ait des agrégats de $(C_{60})_n^{3+}$ ou un mélange $((C_{60})_{n-1}(C_{70}))^{3+}$. Là encore on retrouve une similitude entre les deux espèces car les intensités sont maximales pour les agrégats de n=13 et 19. Ceci montre que la structure des agrégats ayant ces nombres magiques est indépendante de l'utilisation de fullerènes purs ou mélangés mais elle est aussi indépendante de la charge. Par contre ils apparaissent de plus en plus avec l'état d'ionisation. Pour q=1, il n'y a pas de

q	$(C_{60})_n^{q+}$ a)	$(C_{60})_n^{q+}$ b)	$(C60)_{n-1}C_{70}^{q+}$ a)	Ar_n^{q+} c)	Na_n^{q+} d)
2	5	~25	5	91	25
3	10	-	11	226	49
4	21	-	22	-	72
5	(33)	-	(33)	-	92

Tableau 4 : Tailles apparentes pour les agrégats de fullerène a) résultats de notre étude b) [T.P. Martin, U. Näher, H. Schaber and U. Zimmermann *Phys. Rev. Lett. 70 3079* (1993)] c) [O. Echt, D. Kreisle, E. Recknagel, J.J. Saenz, R. Casero and J.M. Soler, *Phys. Rev. A 38 3236* (1988)] d) [F. Chandezon, S. Tomita, D. Cornier, P. Grübling, C. Guet, H. Lebius, A. Pesnelle and B.A. Huber, *Phys. Rev. Lett. 87 153402* (2001)]

variation d'intensité. Pour q=2, il y a une légère augmentation pour n=13. Pour q=3, n=13,19 et 23 ressortent plus et pour q=4 il faut y ajouter n=25 et 29. Cette apparition de structure de plus en plus importante avec l'augmentation de la charge provient de l'augmentation de l'énergie transférée donc d'une élévation de température des agrégats qui favorisent l'évaporation de C_2. Le tableau 4 résume les tailles apparentes obtenues pour q allant de 2 à 5 et compare les valeurs soit à d'autres systèmes soit avec l'utilisation des lasers. Notre étude montre qu'il faut au moins 5 fullerènes pour stabiliser une charge 2+ et plus de 33 fullerènes pour une charge 5+.

L'utilisation d'ions ou de laser ns montrent une grande différence pour la taille d'apparition dans le cas des agrégats doublement chargés : 5 pour les ions et 25 pour le laser. Ceci met en avant la grande dépendance de cette observable avec la sonde utilisée et de l'influence de l'énergie transférée lors de collisions qui vont plus ou moins « chauffer » l'agrégat. On peut donc dire que les ions multichargés lents sont des sondes « douces » qui permettent de ne pas trop chauffer le système étudié.

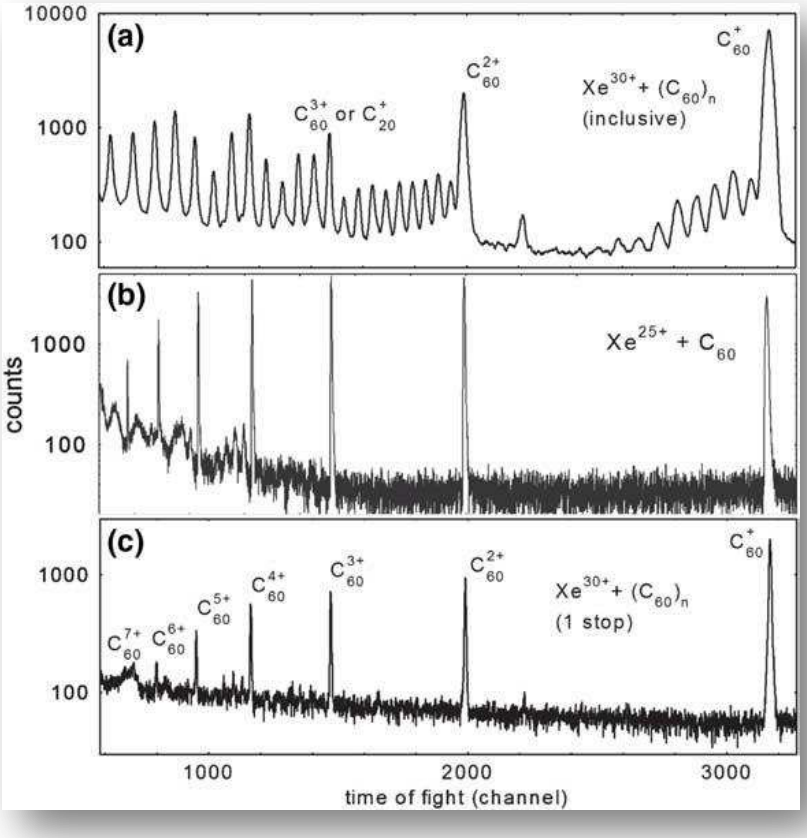


Figure 45: Spectre de temps de vol a) inclusif des collisions $(C_{60})_n$ avec Xe^{30+} 600 keV (T_{four} = 565°C) b) inclusif des collisions C_{60} avec Xe^{25+} c) des événements à une multiplicité extrait du spectre a)

Nous allons à présent regarder la mobilité des charges dans les agrégats de fullerènes ionisés : sont elles localisées sur un petit nombre de molécules où sont elles distribuées sur l'ensemble de l'agrégat ? La figure 45a) est la partie gauche du spectre de la figure 42. Cette figure, représentant le spectre de masse obtenu après collision d'un faisceau d'ions multichargés avec des agrégats de fullerène $(C_{60})_n$ (toutes multiplicités prises en compte) est différente de celle de la figure 35b) (cas du monomère C_{60}).

- cas de la figure 45a) :
  - la charge maximale des fullerènes semble s'arrêter à q=3 ;
  - le pic du C_{60}^{+} est large (ce qui est lié au KER (Kinetic Energy Release) donc C_{60}^{+} est un fragment) et pour chaque C_{60}^{q+} le pic est accompagné de ses fragments C_{60-2m}^{q+} ;
  - les petits fragments de carbones C_k ont une distribution de tailles importantes ; ;avec un k allant jusqu'à une valeur de 30 et des largeurs relativement fines.

- cas de la figure 45b) :
  - charge maximale des fullerènes vont jusqu'à q=10 ;
  - le pic du C_{60}^{+} est fin ainsi que ceux des C_{60}^{q+} et il n'y a quasiment pas de fragments dûs à l'évaporation des C_2 ;
  - les petits fragments sont moins nombreux (plus grande intensité sur le C^{+}) et de la largeur du pic plus importante.

Si on construit, d'après les données donnant le spectre de la figure 45a), le spectre ayant une multiplicité de 1 (1 élément détecté par évènement) on retrouve alors un spectre similaire à celui reporté sur la figure 45b. Donc ces évènements sont dûs aux collisions entre les ions et les monomères constituant le faisceau d'agrégats neutres. Par modification de la température du four et de la pression d'He, on peut modifier la proportion des agrégats et fragments de carbone issus des collisions avec les monomères dans le spectre de la figure 45a).

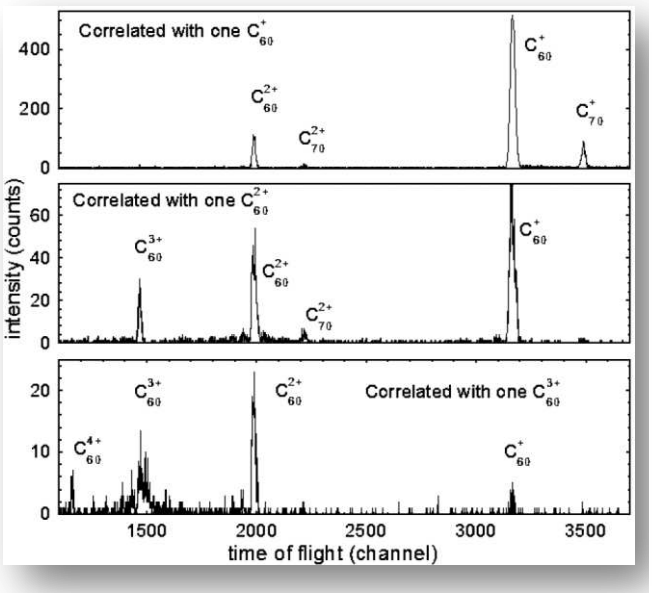


Figure 46: Spectre corrélé des évènements de multiplicité 2 dans les collisions $(C_{60})_n$ avec Xe^{30+} 600 keV (T_{four} = 565°C)
Spectre supérieur : corrélation avec C_{60}+
Spectre médian : corrélation avec C_{60}^{2+}
Spectre inférieur : corrélation avec C_{60}^{3+}

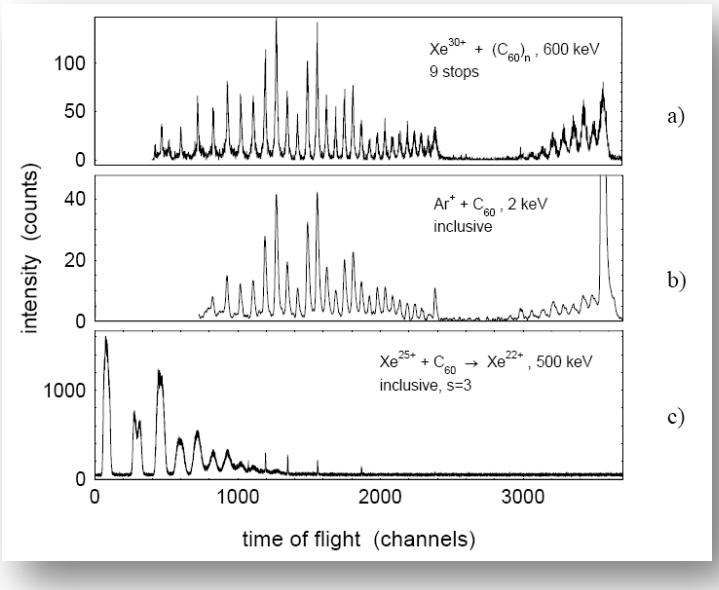


Figure 47: a) Spectre corrélé des évènements de multiplicité 9 dans les collisions $(C_{60})_n$ avec Xe^{30+} 600 keV (T_{four} = 565°C) b) Spectre de masse dans les collisions Ar^{+} + C_{60} (2 keV) c) Spectre de masse obtenu lors des collisions Xe^{25+} + C_{60} (500 keV) où 3 électrons sont stabilisés sur le projectile correspondant à 9 fois l'ionisation du fullerène

Pour apprendre plus sur la mobilité des charges, il faut étudier les spectres corrélés des fragments émis avec des multiplicités supérieures. La figure 46 montre, lors des évènements à multiplicité deux, quels sont les fragments qui sont émis avec un C_{60}^{+} (spectre supérieur) C_{60}^{2+} (spectre médian) et C_{60}^{3+} (spectre inférieur). Le C_{60}^{+} va être émis avec un C_{60}^{+} ou C_{60}^{2+}; le C_{60}^{2+} va être émis avec un $C_{60}^{1+,2+,3+}$ et le C_{60}^{3+} va être émis principalement avec un $C_{60}^{2+,3+,4+}$. Ces résultats tendent à montrer que les charges sont également réparties sur l'agrégat de fullerène. Avec les variations de température du four décrites précédemment, ces réactions sont attribuées aux collisions entre les ions et des dimères.

Si on étudie les évènements ayant des multiplicités très supérieures (9 fragments signifiant que l'agrégat a été ionisé au moins 9 fois) le spectre devient très différent (figure 47a). On trouve soit le C_{60}^{+} avec ses fragments C_{60-2m} ayant des pics larges soit de nombreux petits fragments de carbone C_k (avec k allant jusqu'à 30) ayant des largeurs de pics fins avec des intensités maximales à k=11 et 15. L'analyse de ces évènements montre une forte corrélation soit entre les agrégats plus ou moins intacts (C_{60}^{+} - C_{60-2m}^{+}) soit entre les petits fragments. Donc un agrégat qui est ionisé q fois va se fragmenter en q fullerènes qui eux-mêmes vont donner leurs série de fragments par évaporation de C_2 ou en q petits fragments de carbone chargés une fois.

Le point intéressant est le spectre des petits fragments ressemble à celui obtenu lors des collisions Ar^{+} avec les fullerènes C_{60} à 2 keV (figure 47b). La figure 47c montre une fragmentation d'un agrégat de fullerène ionisé 9 fois mais dont la fragmentation est due à l'excès de charge : il est très différent des deux précédents. On en déduit que le spectre sur la figure 47a n'est pas du à la voie de fragmentation par excès de charge mais par une augmentation d'énergie.

Comment expliquer que des charges puissent être mobiles dans un agrégat de fullerène dont les liaisons sont de type van der Waals alors qu'il devrait se comporter comme un isolant. Dans un système neutre, deux fullerènes sont distants de 10Å. On s'attend à ce que cette distance diminue lorsqu'un des fullerènes est chargé une fois en raison de l'interaction dipolaire induit par la charge. Si on traite les deux fullerènes comme deux sphères conductrice dans le modèle « classical over the barrier model » qui décrit le transfert de charge, on trouve une distance critique pour le transfert du premier électron de 9,4 ; 9,8; 10,3 ; 11,0 et 11,7 Å pour les états de charges allant de q=1 à 5. Une expérience mettant en œuvre les collisions entre des C_{60}^{4+} et C_{60} a démontré (54) la validité de ce modèle et a prouvé qu'il y a bien un contact électrique entre les deux fullerènes qui partagent à part égal les charges entre eux à une distance de 9,7 Å. Ainsi les agrégats de fullerène chargés q>2 peuvent

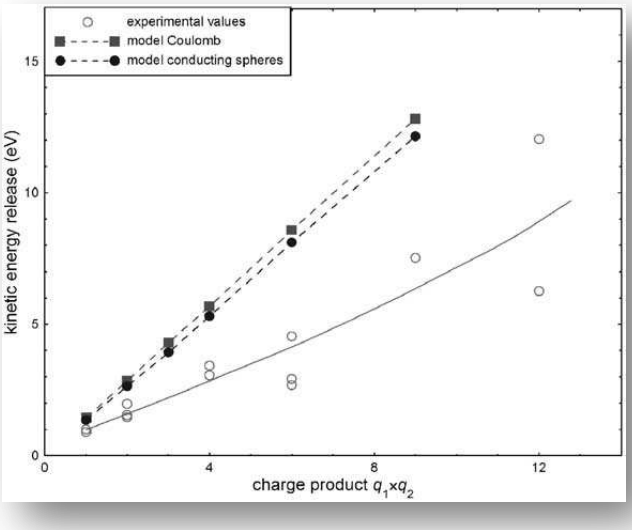


Figure 48: Comparaison modèles théoriques – expérience du KER en fonction du produit de la charge de chacun des fragments

partager leurs charges entre eux aussi à des distances d'équilibre d'un agrégat neutre de fullerène. Même pour q=1, on peut espérer une mobilité de la charge due à la légère diminution de distance induite par cette charge.

Une autre information peut être extraite de la largeur des pics dans les spectres corrélés : c'est le KER ou Kinetic Energy Release. Ceci a été fait pour les évènements comportant 2 fragments (multiplicité 2) et pour chaque voie de fragmentation; dans ce cas le KER correspond à la somme des énergies cinétiques des deux fragments. La figure 48 représente le KER en fonction du produit de la charge portée par chaque fragment. Il y a comparaison entre deux modèles théoriques (Modèle de Coulomb et celui « Classical over the barrier Model ») et les mesures expérimentales : il s'avère que les KER mesurées sont deux fois plus petites que les valeurs calculées. Cette différence pourrait être expliquée si on prend comme hypothèse que les fragments ne sont pas produits dans leur état fondamental mais dans un état vibrationnel excité dû à de possibles déformations lors de la fragmentation.

Pour résumer les collisions ions agrégats de fullerène, voici les scénarios possibles :

- à large paramètre d'impact où le nombre d'électrons capturés par le projectile est faible, les électrons seront pris au fullerène le plus proche du projectile mais dû à la bonne mobilité des charges, les autres fullerènes de l'agrégat seront vus comme des donneurs d'électrons. La charge va donc être répartie sur tous les fullerènes de l'agrégat qui restera stable (selon sa taille) car l'énergie transférée dans ce cas est faible ;
- pour des paramètres d'impact plus faibles, il va y avoir une charge plus importante à répartir sur l'ensemble de l'agrégat qui va l'amener vers la voie de fragmentation produisant ainsi des agrégats de fullerène mono et doublement chargés ;
- à paramètre d'impact comparable avec le diamètre de la cible, le nombre de charges comme l'énergie transférée lors de la collision augmente significativement. La charge comme l'énergie se distribue rapidement au sein des fullerènes de l'agrégat menant le système dans une première phase à une explosion coulombienne produisant des monomères très chauds et déformés. Dans une deuxième phase, les monomères vont perdre de l'énergie par évaporation de petites molécules de carbone et par fragmentation.

Perspectives

Ce travail pourra être poursuivi dans les deux voies suivantes :

- comparaison quantitative entre théorie et expérience. En effet l'équipe de F. Martin (Madrid) a calculé du point de vue théorique toutes les voies de fragmentation du système $C_6^+ + C_{60}$. De prochaines expériences sur l'installation ARIBE vont avoir lieu pour confronter les spectres expérimentaux à ceux théoriques.

- lorsqu'un agrégat de fullerène est en interaction avec un ion multichargé, il existe une voie de sortie où il y a création de molécules de masses très élevées > 700 u.m.a. dues à la fusion de fullerènes avec création de liaisons covalentes ou par coalescence de petites molécules de carbone au sein de l'agrégat chaud. Des expériences doivent être réalisées pour explorer ces phénomènes.

(b) Les molécules d'intérêt biologique

(i) ***"Ionisation and fragmentation of tetraphenyl iron (III) porphyrin chloride induced by slow multiply charged ion impact", V. Bernigaud, B. Manil, L. Maunoury J. Rangama and B.A. Huber***

(ii) ***"Fragmentation of isolated and nanosolvated biomolecular systems", B.A. Huber, L. Adoui, V. Bernigaud, B. Manil, L. Maunoury, J. Rangama, P. Rousseau, N. Haag, H. Johansson, H.T. Schmidt, H. Cederquist, S. Brondsted Nielsen, B. Liu, H. Zettergren, P. Hvelplund, F. Alvarado, S. Bari, R. Hoekstra, J. Postma and T. Schlathölter***

Un autre domaine qui s'est développé ces dernières années est celui de l'étude des molécules dites d'intérêt biologique ou plus communément appelés biomolécules. Les travaux pionniers de L. Sanche et son groupe (55) ont montré l'importance du processus d'attachement d'électrons dissociatif avec des électrons de très basse énergie amenant la cassure simple et double brin de la molécule d'ADN. Il a été montré que les ions secondaires de basse énergie créés lors du passage de radiations très énergétiques sont très dommageables pour les tissus. Ainsi, l'hadronthérapie utilisant des faisceaux d'ions de très haute énergie, va créer ce type d'ions le long de la trace dans les tissus du corps humain et à la fin du pic de Bragg. Ces études en phase gazeuse sont un excellent moyen d'investigation des tous premiers instants de l'irradiation de la matière organique (phase physique), i.e. de comprendre les mécanismes à l'échelle moléculaire, en dehors de tout effet physique.

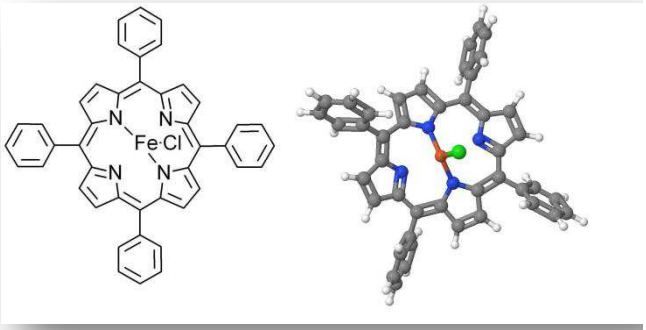
Une autre motivation provient du domaine de l'astrobiologie. En effet, de nombreuses espèces chimiques (atomes et molécules) existent sous forme d'ions dans les nuages interstellaires. Des réactions chimiques impliquant des ions multichargés (56) ont été découvertes (SIFT Experiment). L'étude des interactions d'ions multichargés avec des molécules est une voie à explorer pour la compréhension de la production d'acides aminés ou molécules de taille plus grande.

Dans cette étude (57) (58), la molécule ciblée est la Porphyrine qui a des propriétés biologiques très intéressantes. C'est une molécule pigmentaire qui est constituée d'un noyau tétrapyrrolique dont le cœur peut recevoir différent type d'atome donnant sa fonctionnalité à cette molécule. Ainsi un noyau de Fer, Magnésium ou Cobalt va induire que la molécule de Porphyrine va devenir le cœur des hèmes, de la chlorophylle et de la vitamine B12. La molécule choisie pour notre étude est la chloro (meso-tétraphenylporphyrine) fer(III) (figure 49) que nous dénommerons FeTPPCl.

Le dispositif expérimental est similaire à celui de la figure 41 à ceci près que la molécule est évaporée dans un four portée à une température de ~250°C et que le faisceau neutre créé va directement vers la zone d'interaction. Les faisceaux d'ions multichargés sont pulsés à une fréquence de 2 kHz avec une largeur de pulse de 0,5 µs.

Sur la figure 50, le spectre de masse mesurée dans le cas de projectiles O^{3+} de 30 kev présente deux régions :

- une région à droite avec les molécules $FeTPPCl^{q+}$ (q = 1…3) et les fragments issus de l'évaporation d'atome Cl et de groupes phenyl
- une région à gauche représentant de petits fragments



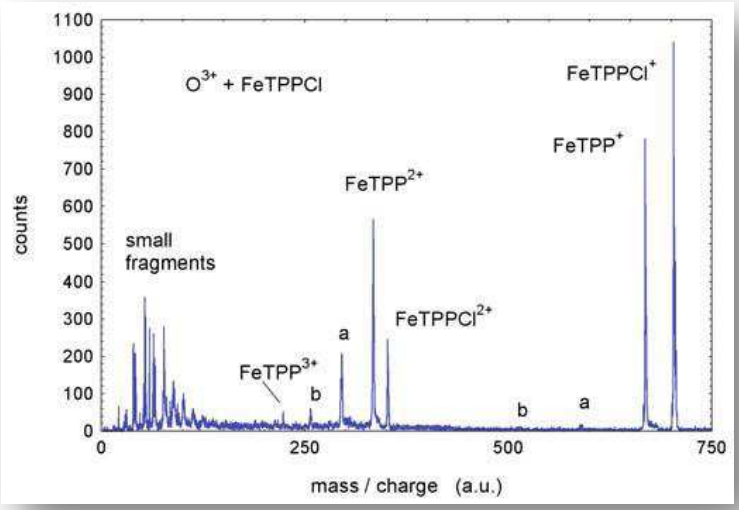


Figure 49: Dessin de la molécule FeTPPCl ($C_{44}H_{28}ClFeN_4$)

Figure 50: Spectre de masse typique obtenu lors des collisions entre O^{3+} 30 keV et FeTPPCl. Les pics marqués par a) et b) correspondent à la perte de 1 et 2 groupes phenyl en plus de celle de Cl

Sur le spectre, le pic le plus important correspond à la molécule intacte chargée une fois, résultat différent de celui obtenu avec des électrons (59). Cette molécule a été détectée intacte avec une charge allant jusqu'à q=3. Plus l'état de charge augmente et plus la molécule a une probabilité importante de perdre son atome de Cl. Ceci s'explique par le fait que l'atome de chlore est faiblement lié à l'atome de Fe et qu'il se trouve hors du plan de la molécule. De même, il y a une perte significative de groupes phényles (a = perte de 1 groupe – b = perte de 2 groupes). Quand aux petits fragments, ils comportent des molécules monochargés et atomes mono et multichargés provenant de la fragmentation des molécules FeTPPCl multi-ionisés. La figure 51 est un zoom d'un spectre de masse mesuré lors de la collision de la molécule FeTTPCl avec des ions Ar^{8+} à 80 keV. Le résultat intéressant est l'apparition de pics aux m/q=702, 701, 700, 699, 698, 697 correspondant en fait à la perte de 1 à 6 atomes d'hydrogène. Sur le spectre, les pics correspondant aux pertes de H_2 sont plus intenses que ceux avec des atomes individuels H. Ce phénomène est similaire aux résultats obtenus avec des électrons pour ioniser la molécule (voir (59)). Sur cette même figure, on remarque trois pics à la droite du pic principal $FeTPPCl^+$ avec des intensités décroissantes. En fait, les quatre pics correspondent à la même molécule ionisée une fois mais constituée des isotopes du Fe et Cl : ^{56}Fe, ^{54}Fe, ^{35}Cl et ^{37}Cl selon leur rapport d'abondance.

Le tableau 5 résume les différentes voies de fragmentation de la molécule FeTTPCl en regard des sondes utilisées : O^{3+} 30 keV – Ar^{8+} 80 keV et électrons 70 eV. L'utilisation de la sonde ion multichargé permet, au contraire de la sonde électron, de garder préférentiellement intacte la molécule de FeTTPCl ce qui montre que peu d'énergie est transférée lors des collisions entre une cible et des ions multichargés. On peut qualifier ce processus de processus doux.

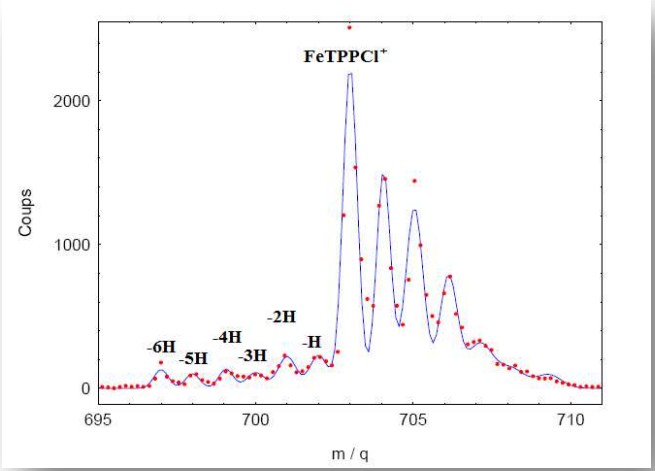


Figure 51: Zoom sur un spectre de masse de la molécule FeTTPCl ionisée une fois par Ar^{8+} à 80 keV

Dans le cas de la sonde ion multichargé, plus la charge de la molécule est importante et plus le processus de perte de Cl devient majoritaire (figure 50). La même tendance est observée lors de la perte de 1 et 2 groupes phényle. La dernière remarque sur ces voies de fragmentation est l'absence de molécules ou fragments chargés 4 fois et ceci quelque soit la charge utilisée. Cette carence tend à montrer que la charge q=4 est la charge critique et pour des charges supérieures l'instabilité de charge est atteinte provocant la destruction de la molécule.

Fragments	O^{3+} (30 keV)	Ar^{8+} (80 keV)	Électrons (70 eV)
$FeTTPCl^{+}$	10 000	10 000	500
$FeTPP^{+}$	6 891	6 575	10 000
$(FeTPP-Phe)^{+}$	272	183	650
$(FeTPP-2Phe)^{+}$	174	197	250
$FeTTPCl^{2+}$	2 971	3 551	-
$FeTPP^{2+}$	10 133	7 794	1 400
$(FeTPP-Phe)^{2+}$	3 688	6 442	700
$(FeTPP-2Phe)^{2+}$	837	1 576	650
$FeTTPCl^{3+}$	99	61	-
$FeTPP^{3+}$	607	655	-
$(FeTPP-Phe)^{3+}$	370	-	-
$(FeTPP-2Phe)^{3+}$	-	-	-
Petits fragments	88 787	129 425	-

Tableau 5: Intensités relatives des ions créés normalisées à l'intensité de l'ion monochargé

Terminons cette étude en nous intéressant à la partie à gauche du spectre comportant les petits atomes et molécules chargés. La figure 52 correspond aux m/q inférieurs à 20 dans les collisions d'Ar^{8+} 80 keV avec les molécules de FeTTPCl et la figure 53 aux m/q compris entre 20 et 80. La figure 53 montre toute une série de fragments de type $C_nH_m^{+}$ ainsi que des ions atomiques de Fe^{+}, Cl^{+} et C_2^{+}. Ces contributions sont plus importantes lorsque la charge du projectile augmente. Sur la figure 52, les pics d'H_2O^{+}, OH^{+} et O^{+} sont dûs principalement aux collisions avec le gaz résiduel. Le spectre est dominé par le pic au m/q=12 correspondant aux ions C^{+} ou Cl^{3+}. Il est intéressant de remarquer que les Cl sont multichargés avec un maximum pour q=6 et des intensités qui diminuent (facteur 3 entre le 1+ et le 5+) alors que le carbone est principalement monochargé avec une légère contribution du doublement chargé (plus d'un ordre de grandeur de différence). Le fait que l'on trouve principalement des C^{+} montre une bonne mobilité des charges au niveau des cycles carbonés grâce aux électrons π délocalisés. Le fait que l'on

trouve des atomes de Cl multichargés peut indiquer que la conduction électronique entre l'atome de Cl et le reste de la molécule est faible.

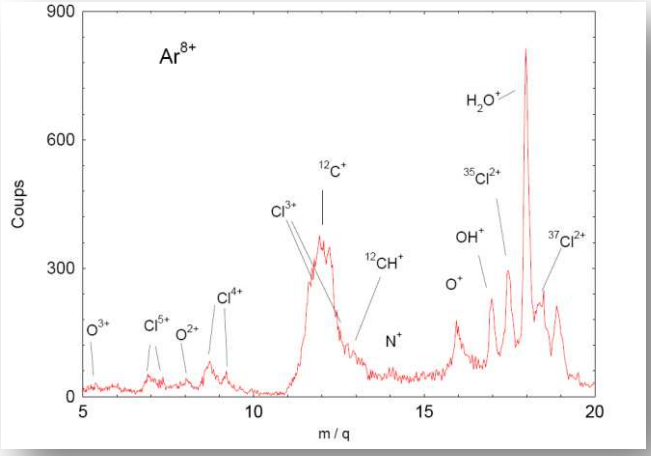


Figure 52: Spectre montrant les petits fragments positifs formés lors de la collision de la molécule de porphyrine avec Ar^{8+} à 80 keV pour les m/q inférieurs à 20

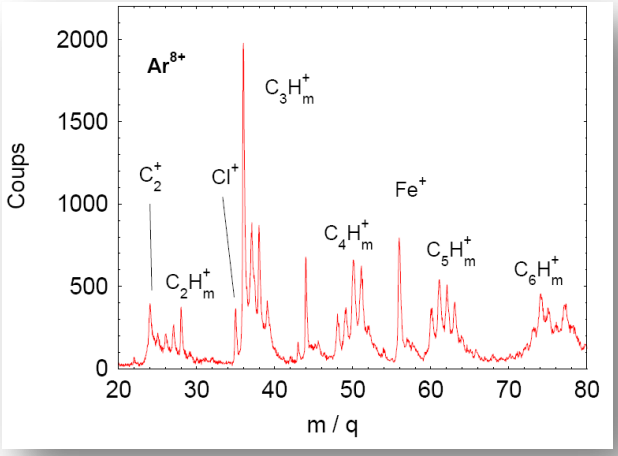


Figure 53: Spectre montrant les petits fragments positifs formés lors de la collision de la molécule de porphyrine avec Ar^{8+} à 80 keV pour les m/q compris entre 20 et 80

Perspectives

L'un des enjeux actuels de l'étude de la stabilité de molécules d'intérêt biologique irradiées en phase gaz est de comprendre les mécanismes de fragmentation à l'échelle moléculaire de façon intrinsèque, indépendamment de l'environnement caractéristique de la phase condensée. Le développement de nouvelles sources de production de ces biomolécules rendra possible dans un futur proche l'étude d'espèces fragiles solvatées. L'environnement que constituera ces couches d'hydratation ainsi que d'autres constituants de l'ADN tels que des sucres ou des groupements phosphate ou bien encore l'étude d'agrégats de telles espèces permettra d'étudier des systèmes modèles dans lesquels une réactivité chimique pourrait être observée : séparation des effets directs et indirects, création de nouvelles liaisons conduisant à des espèces de type prébiotique ... Les ions multichargés seront pour de telles cibles des sondes de cette réactivité induite par les transferts d'énergie et de charge engendrés par la collision.

Chapitre IV. Conclusion

Les sources d'ions de type RCE sont issues de la recherche sur la fusion et ont, en quelques sorte, révolutionnées le domaine des sources d'ions multichargés. Jusque dans les années 1980, de nombreuses sources d'ions utilisées sur les accélérateurs de particules étaient faites avec des filaments et cathodes émettrices d'électrons (source PIG, DUOPLASMATRON) qui limitaient leur durée de vie et requiérraient une maintenance importante. Dans les années 1970, R. Geller a ouvert la voie aux sources d'ions de type RCE avec la source MAFIOS capable de produire des ions multichargés (distribution d'état de charge pointée sur le 2+ en azote et argon). Une étape importante a été franchie lorsque la source ECR3/CAPRICE de B. Jacquot est apparue en 1984 et a été optimisée par la suite : c'était la première source d'ions multichargés de type RCE compacte et consommant peu de puissance électrique (50 kW) capable de délivrer des faisceaux d'ions d'Ar^{11+}, Xe^{22+} de plusieurs dizaines de µA. Par la suite, de nouvelles techniques ont permis l'augmentation des performances de telles sources d'ions : « gas mixing » ; polarisation du plasma par un tube porté à un potentiel négatif, augmentation progressive de la fréquence de fonctionnement (jusqu'à 28 GHz à ce jour), bobines de courant supraconductrices etc…

Dans ce mémoire j'ai exposé les travaux réalisés sur les sources d'ions de type RCE qui ont été développées au laboratoire GANIL ainsi que quelques applications de celles-ci. Dans un premier temps une nouvelle structure magnétique a été développée permettant un accès sans perturbation au plasma RCE. Cette source d'ions a des applications pour la production d'ions radioactifs. Ensuite, grâce à des études de spectroscopie de la lumière émise par le plasma, il a été démontré que la zone où les électrons sont « chauds » correspond bien à la zone RCE. Les études réalisées avec le code TrapCad ont permis de mettre en avant son rôle comme test de structures magnétiques par leur capacité à « chauffer » plus ou moins fort les électrons de la source et à les confiner. Le système d'extraction étant un des points clé pour la production d'ions, une nouvelle méthode de polarisation de l'électrode plasma a établi une nette augmentation de la brillance du faisceau d'ions : un gain semblable sur une source d'ions multichargés serait gage d'une augmentation importante des performances de telles sources utilisées sur des accélérateurs d'ions. L'exploitation de ces sources se fait essentiellement en mode continu mais les études faites en mode pulsé ont illustré la potentialité de ce mode d'exploitation pour la production d'ions très chargés (hygrogénoïdes ou nus). Bien évidemment cette méthode est particulièrement adaptée à des accélérateurs fonctionnant en mode pulsé ou a des expériences utilisant la technique de « temps de vol ». Deux types de production de faisceaux d'ions « exotiques » (C_{60}^{n+} et P^{n+}) ont dévoilé que ce type de source peut produire des faisceaux d'ions multichargés moléculaires ainsi que des faisceaux d'ions intenses à partir d'atomes neutres sous forme initialement autres que gaz.

Par la suite j'ai exposé trois applications des faisceaux d'ions multichargés : la production de faisceaux d'ions multichargés mais de taille micrométrique ; utilisation de faisceaux d'ions multichargés pour le traitement de surface ; emploi de faisceaux d'ions multichargés comme sonde « douce » pour étudier les objets moléculaires fullerène, agrégats de fullerène et biomolécules.

Dans la première application, il a été montré que des capillaires en verre peuvent être utilisés pour « compresser » le faisceau d'ions multichargés sans en altérer la nature (peu ou pas d'échange de charge, faible émittance) tout en le guidant. De même il y a un facteur d'amplification positif car la densité de courant à la sortie du capillaire est supérieure à celle à l'entrée de ce même capillaire.

Dans la seconde application, une surface de Ti-6Al-4V a été irradiée avec un faisceau d'ions multichargés non analysé par un dipôle c'est-à-dire en utilisant tous les ions extraits de la source. Cette méthode permet d'obtenir une profondeur d'implantation équivalente aux implanteurs actuels en une seule fois (pas besoin de multi irradiations à plusieurs énergies) mais avec des fluences plus importantes et par l'emploi d'un appareil très compact. Utilisant des ions carbone, il a été démontré que la nette augmentation des propriétés tribologiques et la bonne résistance à l'usure (c'est celle-ci qui est particulièrement recherchée pour cet alliage) est due en grande partie à la couche de carbone présente en extrême surface et spécialement aux liaisons C-C.

Pour les deux dernières applications, le grand intérêt des ions multichargés est de pouvoir charger le système cible sans y déposer trop d'énergie. Avec des ions très chargés, il a été possible d'observer des agrégats de fullerènes chargés 5 fois. Cette étude a abouti au résultat suivant : il faut 5 fullerènes pour stabiliser une charge 2+ et plus de 33 pour une charge 5+. D'autre part et contrairement à ce qui était attendu, dans un dimère les charges sont très mobiles. Dans le cas des biomolécules, l'interaction d'un ion multichargé avec la cible va mettre en évidence les liaisons qui sont sensibles à l'ionisation de la molécule et ainsi les voies de fragmentations préférentielles de ces biomolécules.

Nous voyons que ces sources d'ions peuvent être utilisées pour de nombreuses autres applications et que celles-ci ne cessent de s'accroître : production d'ions proton et carbone pour le traitement des cancers ; production d'endofullerène pour de potentielles applications médicales ; production d'ions monochargés intenses pour des futures machines de recyclage des déchets nucléaires etc… Gageons que toutes les études et développements autour de ces sources verront voir l'apparition de nouvelles applications prometteuses aussi bien dans le domaine de la Physique fondamentale que dans celui d'applications sociétales.

Chapitre V. Bibliographie

1. *Experiments on the Transmutation of Elements by Protons.* **Oliphant, M.L.E. et Lord Rutherford, E.** 1933, Vol. 141, p. 259.
2. *A Neutron generator.* **Bouwers, A., Heyn, F.A. et Kuntke, A.** 1937, Physica IV, Vol. 2, p. 153.
3. **Geller, R.** *Electron Cyclotron Resonance Ion Sources and ECR Plasmas.* [éd.] Institute of Physics Publishing. s.l. : Bristol/Philadelphia, 1996.
4. *LIMBE : a new facility for low energy beams.* **Maunoury, L. et al.** 2002, Rev. Sci. Instrum., Vol. 73, p. 561.
5. *Multigan®: a new multicharged ions source based on axisymetric magnetic structure.* **Maunoury, L. et al.** [éd.] LPSC. Grenoble : s.n., 2010. Proceedings of the XIXth International Workshop on ECR Ion Sources. p. 37.
6. **Tamburella, C.** Projet P.I.A.F.E: Production d'états de charges élevées pour des ions radioactifs. *Thèse de l'Université Paris 07.* Paris : s.n., 1996.
7. *Commissioning of the Argonne National Laboratory ECR Charge Breeder with Radioactive Beams.* **Vondrasek, R.** 2012, Rev. Sci. Instrum. to be published.
8. *TrapCAD — a program to model magnetic traps of charged particles.* **Vamosi, J. et Biri, S.** 1996, Comput. Phys. Commun., Vol. 98, p. 215.
9. *Studies of the ECR plasma using the TrapCAD code.* **Maunoury, L. et al.** 2010, Plasma Sources Sci. Technol., Vol. 18, p. 015019.
10. *Electron cyclotron resonance plasma photos.* **Racz, R., Biri, S. et Palinkas, J.** 2, 2010, Rev. Sci. Instr., Vol. 81, p. 02B708.
11. *Visible light spectrometry measurements for studying an ECRIS plasma and especially applied to the MONO1001 ion source.* **Tuske, O. et Maunoury, L. et al.** 2004, Rev. Sci. Instrum., Vol. 75, p. 1529.
12. *Pulsed ECR ion source using the afterglow mode.* **Sortais, P. et al.** 1992, Rev. Sci. Instrum., Vol. 63, p. 2801.
13. *Magnetic pulsed extraction of highly charged ions from a plateau ECRIS.* **Müller, L. et al.** 2002, Rev. Sci. Instrum., Vol. 73, p. 1140.
14. *Studies on ECR4 for the CERN ion program.* **Hill, C.E. et al.** 2002, Rev. Sci. Instrum., Vol. 73, p. 564.
15. *ECRIS development for stable and radioactive pulsed beams.* **Sortais, P. et al.** 2004, Rev. Sci. Instrum., Vol. 75, p. 1610.
16. *Experimental studies of the afterglow mode with xenon in a CAPRICE ECRIS.* **Tinschert, K. et al.** 2004, Rev. Sci. Instrum., Vol. 75, p. 1407.
17. *Afterglow mode and the new Micro Pulsed Beam mode applied to an ECR Ion Source.* **Maunoury, L. et al.** 2008, Rev. Sci. Instrum., Vol. 79, p. 02A313.
18. *X-ray spectroscopy characterization of Ar17+ produced by an ECRIS in the afterglow mode.* **Prigent, C. et al.** 2009, Journal of Physics : Conferences Series, Vol. 163, p. 012111.
19. *Collisions of Ar17+ ions with gaseous and solid targets at a few tens of keV/q probed by X-ray spectroscopy.* **Trassinelli, M. et al.** 2009, Journal of Physics: Conference Series, Vol. 194, p. 132005.

20. *Extraction from ECR ion source: A new way to increase beam brightness.* **Maunoury, L. et al.** Chicago : s.n., 2008. Proceedings of the XVIIth International Workshop on ECR Ion Sources. p. 224.
21. *Preliminary results of the ion extraction simulations applied to the MONO1000 and SUPERSHyPIE electron cyclotron resonance ion sources.* **Pierret, C. et Maunoury, L. et al.** 2008, Rev. Sci. Instrum., Vol. 79, p. 02B703.
22. *ECRIS optimisation for on line production.* **Leroy, R. et al.** [éd.] T Nakagawa et Masayuki Sekiguchi. Saitama : Institute for Nuclear Study. Tokyo, 1995. 24th INS International Symposium on ECR Ion Sources and their Applications. p. 57.
23. *Production of charged (singly and multiply) phosphorous beams with electron cyclotron resonance ion source.* **Maunoury, L. et al.** 2006, Rev. Sci. Instrum., Vol. 77, p. 03A324.
24. *MONO1001: A source for singly charged ions applied to the production of multicharged fullerene beams.* **Maunoury, L. et al.** 2004, Rev. Sci. Instrum., Vol. 75, p. 1884.
25. *Ion beams of carbon clusters and multiply charged fullerenes produced with electron cyclotron resonance ion sources.* **Maunoury, L. et al.** 2005, Rev. Sci. Instrum., Vol. 76, p. 053304.
26. *Fullerenes in ion sources.* **Biri, S.** 2008, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 36, p. 1489.
27. *Fission channels of multiply charged sodium clusters near the Rayleigh limit.* **Chandezon, F. et al.** 1983, Phys. Rev. A, Vol. 63, p. 4655.
28. *Transmission of 3 keV Ne7+ ions through nanocapillaries etched in polymer foil : evidence for capillary guiding.* **Stolterfoht, N. et al.** 2002, Phys. Rev. Lett., Vol. 88, p. 133201.
29. *Production of a microbeam of slow highly charged ions with tapered glass capillary.* **Ikeda, T. et al.** 2006, Appl. Phys. Lett., Vol. 89, p. 163502.
30. *Single ion induced surface nanostructures: a comparison between slow highly charged and swift heavy ions.* **Aumayr, F et al.** 2011, J. Phys.: Condesn. Matter, Vol. 23, p. 393001.
31. *Multiply-charged ion nanobeams.* **Cassimi, A., Muranaka, T. et Maunoury, L. et al.** 6-8, 2008, International Journal of Nanotechnology, Vol. 5, p. 809.
32. *Imaging dynamics of charge-auto-organisation in glass capillaries.* **Cassimi, A. et Maunoury, L. et al.** 4, 2009, NIMB, Vol. 267, p. 674.
33. *Transmission of ions through a tapered-glass capillary: Imaging the dynamics of the charging-up process.* **Rousseau, P., Cassimi, A. et Maunoury, L. et al.** 2009, Journal of Physics : Conferences Series, Vol. 194, p. 132029.
34. *Scaling laws for guiding of highly charged ions through nanocapillaries in a insulating polymer.* **Stolterfoht, N. et al.** 2008, Phys. Rev. A, Vol. 77, p. 032905.
35. *Collisions of ions with insulator surfaces: charging and discharging dynamics.* **Bundaleski, N. et al.** 2008, Journal of Physics : Conferences Series, Vol. 133, p. 012016.
36. *Discharging dynamics of insulator surfaces irradiated by highly charged ions.* **Bundaleski, N. et al.** 2009, Journal of Physics : Conferences Series, Vol. 163, p. 012091.
37. **Thibault, S.** Modifications des propriétés physico-chimiques et de la microstructure de l'aluminium après nitruration par implantation d'ions multichargés. *Thèse de l'Université de Caen Basse Normandie.* Caen : s.n., 2009.
38. **Pierret, C.** Comportement mécanique et tribologique du Ti-6Al-4V traité par implantation d'ions carbone et oxyène multichargés. Développement des moyens associés. *Thèse de l'Université de Caen Basse Normandie.* Caen : s.n., 2011.
39. *Amélioration des propriétés tribologiques du Ti-6Al-4V par implantation d'ions multichargés multi-énergies* . **V. Chane-Pane, C. Pierret, D. Busardo, D.M. Gordin, T. Gloriant and L. Maunoury.** Nantes : s.n., 18 - 22 Octobre 2010, Proceedings of the MATERIAUX 2010 Conference.

40. *X-ray photoelectron spectroscopy characterization of high dose carbon-implanted refractory metals.* **Fujihana, et al.** 1994, Surface and Coatings Technology, Vol. 66, p. 419.
41. *Growth of carbon layers on Ti-6Al-4V alloy by very high dose carbon implantation.* **Garcia, A. et al.** 1997, Surface and Coatings Technology, Vol. 97, p. 499.
42. *X-ray photoelectron spectroscopy characterization of high dose carbon-implanted steel and titanium alloys* . **Viviente, J.L. et al.** 1999, Applied Surface Science, Vol. 144-145, p. 249.
43. *Clusters of fullerene molecules.* **Martin, T.P., Näher, U. et Schaber, H. and Zimmermann, U.** 1993, Phys. Rev. Lett., Vol. 70, p. 3079.
44. *Modeling the structure of clusters of C60 molecules.* **Doye, P.J.K., Wales, D.J. et Branz, W. and Calco, F.** 2001, Phys. Rev. B, Vol. 64, p. 235409.
45. *Stability of clusters of fullerenes.* **Hansen, K., Müller, R. et Hohmann, H. and Campbell, E.E.B.** 1-4, 1997, Vol. 40, p. 361.
46. *Charge Localization in Collision-Induced Multiple Ionization of van der Waals Clusters with Highly Charged Ions.* **Tappe, W. et al.** 143401, 2002, Phys. Rev. Lett., Vol. 88.
47. *ARIBE : a low energy ion beam facility in Caen.* **Bernigaud, V., et al.** 2006, Publ. Astron. Obs. Belgrade, Vol. 84, p. 83.
48. *Rayleigh Instabilities in Multiply Charged Sodium Clusters.* **Chandezon, et al.** 2001, Phys. Rev. Lett., Vol. 87, p. 153402.
49. *Highly charged clusters of fullerenes: Charge mobility and appearance size.* **Manil, B. et Maunoury, L. et al.** 21, 2003, Phys. Rev. Lett., Vol. 91, p. 215504.1.
50. *STABILITY AND FRAGMENTATION OF HIGHLY CHARGED FULLERENE CLUSTERS.* **Manil, B. et Maunoury, L. et al.** s.l. : Imperial College, 2004, LATEST ADVANCES IN ATOMIC CLUSTER COLLISIONS Fission, Fusion, Electron, Ion and Photon Impact.
51. *Fragmentation of charged fullerene dimers : Kinetic energy release.* **Manil, B. et Maunoury, L. et al.** 2005, NIMB, Vol. 235, p. 419.
52. **Bernigaud, V.** Étude de la fragmentation de molécules d'intérêt biologique isolées et nano-solvatées induite par collision avec des ions multichargés et des particules neutres. *Thèse de l'Université de Caen Basse Normandie.* 2009.
53. *Critical Sizes against Coulomb Dissociation of Highly Charged Sodium Clusters Obtained by Ion Impact.* **Chandezon, F. et al.** 1995, Phys. Rev. Lett., Vol. 74, p. 3784.
54. *Nonfragmenting charge transfer in slow peripheral C60q+-C60 collisions.* **Cederquist, H. et al.** 2001, Phys. Rev. A, Vol. 63, p. 025201.
55. *Resonant Formation of DNA Strand Breaks by Low-Energy (3 to 20 eV) Electrons.* **Boudaïffa, D. et al.** 5458, 2000, Science, Vol. 287, p. 1658.
56. *Ions in Space.* **Petrie, S. et Bohme, D.K.** 2007, Mass Spectrometry Reviews, Vol. 26, p. 258.
57. *Ionisation and fragmentation of tetraphenyl iron (III) porphyrin chloride induced by slow multiply charged ion impact.* **Bernigaud, V., Manil, B. et Maunoury, L. et al.** 2009, The Eur. Phys. J. D, Vol. 51, p. 125.
58. *Fragmentation of isolated and nanosolvated biomolecular systems.* **Huber, B.A., et al.** 2008. Proceedings of the 5th International Conference RADAM. Vol. 1080, p. 21.
59. *Single, double and triple ionization of tetraphenyl iron(III) porphyrin chloride.* **Feil, S. et al.** 2006, Int. J. Mass Spectrom., Vol. 255 - 256, p. 232.
60. *Structure, stability, and vibrational properties of polymerized C60.* **Porezag, D., Pederson, M.R. et Frauenheim, T. and Köhler, T.** 1995, Phys. Rev. B, Vol. 52, p. 14963.

Résumé