

Speed : système de production d'éléments exotiques déficients en neutrons

Vincent Bosquet

► To cite this version:

Vincent Bosquet. Speed: système de production d'éléments exotiques déficients en neutrons. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Normandie Université, 2024. Français. NNT: 2024NORMC212. tel-04731922

HAL Id: tel-04731922 https://theses.hal.science/tel-04731922v1

Submitted on 11 Oct 2024 $\,$

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





THÈSE

Pour obtenir le diplôme de doctorat

Spécialité **PHYSIQUE**

Préparée au sein de l'Université de Caen Normandie

Speed : système de production d'éléments exotiques déficients en neutrons

Présentée et soutenue par VINCENT BOSQUET

Thèse soutenue le 13/06/2024

devant le jury composé de :

M. PASCAL JARDIN	Directeur de recherche au CNRS - 14 GANIL de CAEN	Directeur de thèse
M. XAVIER FLECHARD	Directeur de recherche au CNRS - Université de Caen Normandie	Président du jury
MME LUCIA POPESCU	Chercheur HDR - SCK/CEN	Membre du jury
MME MARIELLE CHARTIER	Professeur - University of LIVERPOOL	Rapporteur du jury
M. STEPHANE GREVY	Directeur de recherche au CNRS - Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux	Rapporteur du jury

Thèse dirigée par **PASCAL JARDIN** (CYCERON)





Table des matières

1	Intr	oductio	n	7			
2 Production de faisceaux d'ions radioactifs							
	2.1	Métho	odes de production de faisceaux d'ions radioactifs	15			
		2.1.1	Méthode en vol	15			
		2.1.2	Méthode ISOL	16			
		2.1.3	Cellule gazeuse	17			
	2.2	Produc	ction de faisceaux d'ions exotiques par la méthode ISOL	17			
		2.2.1	Taux de production dans une cible ISOL	17			
		2.2.2	Réactions nucléaires utilisées dans les systèmes ISOL	18			
			2.2.2.1 Fusion-évaporation	18			
			2.2.2.2 Fragmentation	19			
			2.2.2.3 Spallation	19			
			2.2.2.4 Fission induite	20			
		2.2.3	Pureté des faisceaux	20			
		2.2.4	Transformation des atomes en ions	21			
	2.3	Diffusi	sion des atomes dans la matière	22			
	2.4	Effusio	on	24			
		2.4.1	Temps de collage	25			
		2.4.2	Temps de vol	26			
		2.4.3	Perte par décroissance lors de l'effusion	26			
	2.5	Ionisat	tion	26			
		2.5.1	Ionisation laser par résonance	27			
		2.5.2	Ionisation par impact électronique	28			
		2.5.3	Ionisation de surface	28			
	2.6	6 Conséquence des paramètres du faisceau primaire sur la cible utilisée					
	2.7	Fiabilité des systèmes de production					
	2.8	8 Installations produisant des faisceaux d'ions radioactifs 20					
	2.9	GANI	L/SPIRAL1	30			

3	Con	ception	et test de TULIP pour la production de rubidium	34			
	3.1	Le pro	jet TULIP	34			
	3.2	ble cible-source TULIP à ionisation de surface	38				
		3.2.1	Principe de fonctionnement	38			
		3.2.2	Ionisation de surface	39			
		3.2.3	Description matérielle du dispositif TULIP alcalin initial	40			
		3.2.4	Évolution de TULIP, besoin d'études	41			
	3.3	Produc	ction et cinématique des noyaux produits dans la cible	43			
		3.3.1	Épaisseur de la cible	44			
		3.3.2	Taux de production approché dans la cible	44			
		3.3.3	Dispersion en énergie et en angle en sortie de la cible des noyaux de Rb				
			radioactif et du faisceau primaire	46			
			3.3.3.1 Perte d'énergie du faisceau primaire à travers les composants de				
			l'ECS	46			
			3.3.3.2 Dispersion en énergie des faisceaux de Rb radioactifs	47			
			3.3.3.3 Dispersion angulaire des faisceaux de Rb radioactifs	47			
	3.4	3.4 Profil du faisceau primaire sur cible					
		3.4.1	Ligne faisceau haute énergie SPIRAL1	48			
		3.4.2	Détermination des paramètres du wobulateur et distance cible source maxi-				
			male via une méthode Monte-Carlo	49			
3.5 Conception thermique							
		3.5.1	Configurations mécaniques étudiées	52			
		3.5.2	Simulations thermiques	54			
		3.5.3	Test thermique	57			
			3.5.3.1 Méthode de mesure	58			
			3.5.3.2 Résultats	58			
		3.5.4	Cible Mo-Ni-Mo	60			
	ction d'ions Rb^+	61					
		3.6.1	Description de l'expérience	61			
		3.6.2	Taux de production mesurés par la station d'identification gamma de SPI-				
			RAL1	62			
		3.6.3	Mesure de temps de réponse	63			
		3.6.4	Démontage de l'ECS en boîte à gant	69			
	3.7	Conclu	usions	70			
4	Syst	ème de	production FEBIAD/VADIS à SPIRAL1	72			
	4.1	Introdu	uction	72			
		4.1.1	Principe de fonctionnement de la source FEBIAD	73			

		4.1.2	Historique de l'ECS FEBIAD à SPIRAL1				
	4.2	État de	es lieux et des modifications de l'ECS				
		4.2.1	Instabilité en température de la cathode				
		4.2.2	Limite d'efficacité d'ionisation liée à la température				
		4.2.3	Comportement du matériau BeO en fonction de la température 83				
		4.2.4	Conclusions des tests				
		4.2.5	Version actuelle de l'ECS FEBIAD				
	4.3	Test er	ligne et production de faisceaux d'ions radioactifs accelerés 88				
		4.3.1	Faisceaux radioactifs basse énergie ($E < 30 \text{ keV/A}$)				
		4.3.2	Faisceaux radioactifs haute energie 88				
		4.3.3	Temps de transformation des atomes en ions				
	4.4	Conclu	sions				
5	Can	on à ior	ns métalliques 92				
	5.1	Introdu	action du chapitre				
	5.2	Physiq	ue des sources d'ions à impact électronique				
		5.2.1	Principe				
		5.2.2	Processus d'émission électronique				
			5.2.2.1 Émission par effet de champ				
			5.2.2.2 Effet photoélectrique				
			5.2.2.3 Émission secondaire électronique				
			5.2.2.4 Émission induite par des ions				
			5.2.2.5 Émission thermoïonique				
	5.3	Limita	tion de l'émission thermoïonique				
		5.3.1	Régime d'émission limité en charge d'espace 97				
			5.3.1.1 Loi de Child-Langmuir à une dimension				
			5.3.1.2 Loi de Child-Langmuir à deux et trois dimensions 99				
		5.3.2	Régime d'émission limité en température 99				
		5.3.3	Régime mixte				
	5.4	Développement d'un canon à ions métalliques pour la caractérisation d'une source					
		d'ions	radioactifs				
		5.4.1	Exemple du canon à ions alcalins				
	5.5	Canon	à ions métalliques				
		5.5.1	Principe de fonctionnement du canon à ions				
		5.5.2	Taux d'évaporation d'un matériau 103				
		5.5.3	Estimation de la probabilité d'ionisation				
		5.5.4	Courant d'ions dû à l'ionisation du gaz résiduel				
		5.5.5	Température à l'équilibre de l'échantillon				

5.5.6	Production d'ions nickel	110
	5.5.6.1 Dispositif expérimental, configuration mécanique et électriq	ue 111
	5.5.6.2 Cathode électro-émettrice	112
	5.5.6.3 Anode en nickel chauffée par rayonnement et par bombardem	ent
	électronique	113
	5.5.6.4 Résultats	114
	5.5.6.5 Intensité et pureté du faisceau d'ions Ni ⁺	117
	5.5.6.6 Conclusion de l'expérience de production de Nickel	120
6 Adaptation	n de TULIP à l'ionisation d'éléments métalliques : SPEED	122
6.0.1	Simulation de la source d'ions à impact électronique	124
	6.0.1.1 Logiciel SIMION	124
	6.0.1.2 Émission électronique	125
	6.0.1.2.1 Méthode numérique de calcul du champ électrique	e et
	de la densité de charges dans la cavité	125
	6.0.1.2.2 Injection des électrons et potentiel électrique	127
	6.0.1.3 Simulation Monte-Carlo de l'effusion et de l'ionisation	131
	6.0.1.3.1 Génération des directions et des vitesses d'émiss	ion
	des atomes	131
	6.0.1.3.2 Probabilité d'ionisation	135
	6.0.1.4 Résultats	137
	6.0.1.4.1 Conclusions de la simulation	139
6.0.2	Calcul analytique	140
	6.0.2.1 Effusion	140
	6.0.2.2 Ionisation	141
	6.0.2.3 Probabilité et efficacité d'ionisation	142
6.0.3	Prototype SPEED froid	143
	6.0.3.1 Principe et motivations	143
	6.0.3.2 Conception	144
	6.0.3.3 Transposition des résultats SPEED froid à SPEED chaud .	147
	6.0.3.4 Configurations mécaniques SPEED froid : avec et sans grill	le à
	l'orifice de la cavité	148
6.0.4	Mesure d'émission électronique	150
	6.0.4.1 Influence de la température de la cathode	150
	6.0.4.2 Courants injectés dans la cavité : influence de la tension catho	de-
	anode avec et sans grille	151
	6.0.4.3 Influence de la polarisation de la cavité	152
6.0.5	Mesure du temps de réponse	153

			6.0.5.1	Principe	de la mesure	153
			6.0.5.2	Résultat	S	154
			6	5.0.5.2.1	Exemple de temps de réponse mesuré et fonction d'ajus-	
					tement	154
			6	5.0.5.2.2	Influence de la polarisation de la cavité sur l'efficacité	
					d'ionisation et sur le temps de réponse	155
			6	5.0.5.2.3	Temps de réponse de SPEED froid à tous les gaz rares	
					stables	157
		6.0.6	Mesures	d'efficaci	té	158
			6.0.6.1	Banc de	test SPIRAL1 et adaptation de SPEED froid	159
			6.0.6.2	Efficaci	té d'ionisation de l'Argon avec et sans grille	160
			6.0.6.3	Détermi	nation des courants d'ions Kr^+ et Xe^+	161
			6.0.6.4	Efficaci	té pour tous les gaz rares stables	163
			6	5.0.6.4.1	Compatibilité de la modélisation de la source avec les	
					mesures d'efficacité	163
	6.1	Transp	osition de	es résultats	de SPEED froid à la production d'ions au voisinage de	
		l'étain	100			164
		6.1.1	Extrapol	lation de l'	efficacité de transformation en ions d'atomes stables de	
			Sn, Ag,	Cd et In		165
		6.1.2	Extrapol	lation de l'	efficacité de transformation en ions d'atomes radioactifs	
			de Sn et	Ag		165
		6.1.3	Conclus	ions		170
Co	onclus	sions				172
7	Ann	exes				177
A	Cod	e de gér	nération d	le nombre	e aléatoire et de direction de réémission	178
B	Cod	e Mont	e-Carlo d	e réolace	des naramètres wobulateur de SPIRAL1 et de densit	é
D	de p	uissanc	e sur cibl	e.		182
С	Fais	ceaux d	'ions rad	ioactifs p	roduits par l'ECS FEBIAD à SPIRAL1	186
D	Dén	onstrat	tion de la	loi de Chi	ild-Langmuir à une dimension	188
E	2 Mesures et calculs thermiques de la cathode du canon à ions et de SPEED métallique191					e191

Remerciements

J'aimerais tout d'abord remercier mon directeur de thèse, Pascal Jardin, pour m'avoir donné l'opportunité de travailler avec lui¹. J'ai beaucoup appris au contact de son savoir-faire instrumental et de sa capacité à remettre en question les préconçus. Il m'aura fait apprécier la valeur d'un cahier de manip bien tenu, qualité essentielle du chercheur.

Je remercie ensuite les membres du jury, Lucia Popescu, Xavier Fléchard, Marielle Chartier et Stéphane Grévy d'avoir bien voulu en faire partie et pris la peine de lire mon tapuscrit. Merci tout particulièrement à Marielle et Stéphane pour avoir été les rapporteurs de ce mémoire et pour toutes leurs suggestions.

Merci à Jean-Claude Angélique et Anne-Marie Frelin d'avoir fait partie de mon comité de suivi individuel, qui ont participé au bon déroulement de cette thèse.

Ce travail de thèse n'aurait pas pu avoir lieu sans l'aide des membres du GCS (Groupe Cible-Source) du GANIL, qui m'ont accueilli pendant ces trois ans. Merci à Pierre, Alexis, Benoit, Frédéric, Laurent et Laurent, Vincent, Mickael, Nicolas, Cyril, Romain, Samuel, Stéphane et Olivier.

Ce travail a été effectué au sein de la collaboration à taille humaine TULIP. Merci à Marion MacCormick pour la formation express à Lise++ et pour les discussions sur la fusion-évaporation. Merci à Clément Michel pour les simulations thermiques ANSYS ainsi que pour la conception mécanique de qualité.

Merci à mes parents pour m'avoir soutenu toutes ces années, merci maman pour le soutien en math au collège. Merci au membre de ma famille grâce à qui ce tapuscrit est (largement) exempt de fautes d'orthographe.

Merci à tous les copains doctorants et post-docs du labo pour les discussions de physique (et pas que) à la salle de pause ou la cantine : Abi, Alexis, Alexis, Tom (Monte-Carlo forever), Rikel, Julien², Tristan, Ignasio, Chloé, Lucas, Lucas (prononcez loucasse), Gautier, Antoine, Alexandre, David, Alex, Hope (Grand maitre de la fusion-évap), Arpan, Charly, Marius, Luis Miguel, Jose Pablo, Alan et Laurie.

Je remercie les membres de la fanfare des étudiants en santé de Caen. Les répétitions du lundi étaient un oasis pendant la rédaction de cette thèse : merci d'exister.

^{1.} Cela aura permis à un jardin et un bosquet de travailler sur une tulipe!

^{2.} C'est bien la dernière fois que je t'appelle comme ça !

Chapitre 1

Introduction

Le monde visible qui nous entoure est principalement constitué d'atomes dont les noyaux sont stables. Ces noyaux sont souvent représentés comme étant au creux d'une vallée dite de stabilité, là où le nombre de protons et de neutrons est grossièrement égal pour les noyaux légers, et plus riche en neutron pour les noyaux plus lourd. Les noyaux qui se trouvent sur les flancs de cette vallée présentent des déséquilibres entre le nombre de protons et le nombre de neutrons plus importants que les noyaux stables.

Les noyaux qui nous entourent étant stables, les évolutions de notre monde ne sont plus liées à la transformation des noyaux, ce qui impliquerait des échanges d'énergie de l'ordre du MeV par transformation. La plupart des transformations de notre environnement sont liées à la chimie. Elles impliquent des énergies échangées à l'échelle de l'atome qui sont de l'ordre de quelques électrons-volts.

L'énergie que recèlent les transformations de la matière nucléaire et les perspectives qu'elles offrent pour nos sociétés ont fait que depuis la découverte de la radioactivité au siècle dernier, l'étude de cette matière a été fortement soutenue.

Pour comprendre la matière nucléaire, il est nécessaire de tester son comportement en observant sa réponse à une perturbation. Les énergies requises pour perturber la matière nucléaire n'ont pas de commune mesure avec les énergies propres à la plupart des réactions qui nous entourent. Perturber la matière nucléaire pour la sonder, voire la séparer en fragments requiert généralement des énergies de l'ordre du million d'électrons-volts. Pour disposer d'une telle énergie et pour pouvoir l'injecter dans un noyau, une solution consiste à extraire un noyau stable de notre environnement, à l'ioniser et à l'accélérer jusqu'à ce qu'il atteigne une énergie élevée. Si cette énergie est suffisante, il peut franchir la barrière de répulsion coulombienne, entrer en collision avec un autre noyau stable et y induire une perturbation. En fonction des paramètres de la collision, les noyaux obtenus après collision peuvent différer des noyaux initiaux. Dans certains cas, ils peuvent être radioactifs, c'est-à-dire présenter une durée de vie limitée dans le temps, contrairement aux noyaux qui nous entourent. Ces noyaux sont alors qualifiés d'exotiques, car non présents sur notre planète.

Puisqu'ils se transforment spontanément pour au final devenir des noyaux stables qui constituent notre environnement, ils contiennent une information sur l'histoire des noyaux stables. Pour remonter plus en arrière dans cette histoire, il est intéressant de s'éloigner de la vallée de stabilité, donc de produire des noyaux plus exotiques et d'étudier leurs caractéristiques, masses, rayons, spins et modes de décroissance entre autres, à l'aide d'instruments d'observation adaptés.

L'étude de régions exotiques de la carte des noyaux requiert des moyens d'exploration qui vont croissant avec l'exoticité, et ce pour deux raisons incontournables. La première est que les procédés de production de noyaux exotiques impliquent souvent une diminution du taux de production des noyaux liée à leur « exoticité » : plus ils sont éloignés de la vallée de stabilité, et moins ils sont produits. La seconde raison est que ces procédés, de l'instant de production des noyaux jusqu'à leur mise à disposition des utilisateurs, ont un temps de réalisation propre qui entre en compétition avec la durée de vie des noyaux exotiques. Plus la durée de vie des noyaux est courte par rapport au temps propre du procédé de production, plus le nombre de noyaux disponibles en sortie du procédé sera faible. Enfín, les études qui portent sur/ou utilisent ces noyaux reposent sur l'observation statistique d'évènements. Plus le nombre d'évènements est important, plus la précision de la mesure sera élevée.

Trois caractéristiques importantes pour apprécier les performances des moyens d'exploration peuvent être extraites de ce constat. Les deux premières concernent la production des noyaux et la troisième leur observation :

- Les conditions de la réaction nucléaire choisie pour la production du noyau exotique d'intérêt doivent être optimisées pour maximiser le nombre de noyaux produits.
- Le procédé de production choisi doit présenter un temps propre entre l'instant de formation du noyau et l'instant d'observation ou d'utilisation aussi court que possible par rapport à la durée de vie du noyau d'intérêt.
- L'outil d'observation des caractéristiques des noyaux doit permettre l'observation du plus grand nombre possible d'évènements, ou en d'autres termes présenter la plus grande "efficacité de détection" possible tout en étant capable de ne pas saturer les détecteurs avec trop d'événement par unité de temps.

Ces caractéristiques sont à l'origine de la variété des installations qui existent (voir 2.8), qui visent une maximisation du nombre d'événements via la variété des collisions et des réactions possibles.

Dans le cas où le lieu de production (ou **cible de production**) des noyaux est différent du lieu d'étude, les noyaux doivent être transportés d'un point à l'autre. Les atomes qui contiennent ces noyaux, s'ils ne sont pas déjà ionisés, peuvent l'être à l'aide d'une "**source d'ionisation**". Ioniser les atomes présente l'avantage de pouvoir ensuite les transporter à grande vitesse sous la forme

d'un faisceau d'ions. On parle alors de **faisceaux d'ions radioactifs**. Il est alors possible de les manipuler, guider, accélérer, à l'aide d'instruments électro-magnétiques.

Deux méthodes de production sont aujourd'hui très employées dans les installations de production de faisceaux d'ions radioactifs. Une méthode dite en vol (voir 2.1.1) utilise l'énergie de recul des noyaux radioactifs produits lors de la collision pour les transporter jusqu'au point d'étude, et une méthode dite ISOL (Isotope Separator On Line, voir 2.1.2) dans laquelle les noyaux radioactifs sont arrêtés et neutralisés dans la cible de production, avant d'être ionisés puis accélérés pour former un faisceau d'ions. Ces deux méthodes sont complémentaires. Étant donné que les noyaux ne sont pas arrêtés dans la cible de la méthode en vol, le temps de vol des noyaux radioactifs entre l'instant de leur création dans la cible et l'instant de leur arrivée dans le dispositif d'étude est particulièrement court ($< \mu$ s). Cette méthode est donc particulièrement adaptée à la production de faisceaux d'ions radioactifs de courte durée de vie. Du fait de l'arrêt des noyaux dans la cible de la méthode ISOL, le temps de transformation des atomes radioactifs en ions est important, généralement supérieur à 100 ms. Cette méthode est donc limitée à la production de faisceaux d'ions radioactifs de durée de vie plus longue que celle obtenue par la méthode en vol. Cependant, nous verrons plus loin que chaque méthode présente d'autres avantages et inconvénients qui les rendent au final complémentaires.

Des méthodes intermédiaires ont également été développées pour pallier les manques de chacune d'entre elles, comme la méthode présentée au 2.1.3.

Au GANIL, l'installation SPIRAL1 permet depuis les années 2000 la production et l'accélération de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL (voir chapitre 2). La réaction de production utilisée, la fragmentation du faisceau primaire et/ou de la cible en carbone, permet la production d'isotopes centrés autour de la vallée de stabilité. De par leur conception, les dispositifs de production disponibles au début de ma thèse permettent de transformer ces isotopes en ions de façon efficace seulement si leur durée de vie est supérieure à la seconde.

Les autres installations ISOL dans le monde utilisent quant à elles principalement des cibles en carbure d'uranium sur lesquelles sont envoyés des faisceaux primaires de protons, comme illustré par la figure 1.1).



Figure 1.1 – Utilisation relative des différents matériaux cibles dans les installations ISOL dans le monde en 2011. Extrait de [1].

Des réactions de spallation dans la cible produisent majoritairement des noyaux riches en neutrons et en grandes quantités, car les faisceaux primaires ont des puissances de l'ordre de quelques dizaines de kW. Cette puissance implique des cibles de grandes dimensions, et donc des temps de transformation longs, pouvant aller jusqu'à quelques dizaines de secondes.

On comprend donc que certaines zones de la carte des noyaux ne peuvent pas être explorées de façon efficace par la méthode ISOL, pour des raisons de production insuffisante et/ou de pertes par décroissance trop élevées. On se pose donc la question suivante : Comment l'installation SPIRAL1, qui dispose de faisceaux primaires dont la puissance (6 kW max.) et l'énergie (95 MeV/A max.) sont plus faibles que dans ces installations peut-elle offrir des faisceaux d'ions radioactifs compétitifs en termes d'intensité ou d'énergie, ou complémentaires à ceux des autres installations ?

Ce qui différencie l'installation SPIRAL1 des autres installations ISOL est son accès à une large palette de faisceaux primaires d'ions, allant du carbone à l'uranium, et à une large plage d'énergie, allant de quelques MeV/A à 95 MeV/A. La variété de combinaisons faisceaux d'ions primairescible permet d'optimiser la production d'un noyau particulier, tout en limitant la production de noyaux non souhaités.

C'est en cherchant à tirer avantage de la disponibilité de ces combinaisons que le projet TULIP est né (projet financé par l'Agence Nationale de la recherche, début octobre 2019, fin juillet 2025). Son objectif était de fournir à l'installation SPIRAL1 des dispositifs permettant de produire des faisceaux originaux en termes d'exoticité ou compétitifs en termes d'intensité malgré des énergies ou des puissances de faisceaux primaires limitées comparées à celles d'autres installations ISOL. La démarche repose sur le fait que dans un système ISOL, il existe nécessairement une configuration matérielle optimale qui maximise la production d'ions radioactifs. Effectivement, pour une énergie de réaction donnée, la production augmente avec le nombre de réactions nucléaires, donc avec la puissance du faisceau, donc avec la taille de la cible. Mais lorsque la taille de la cible croît, l'efficacité de transformation des noyaux en ions diminue. L'intensité d'ions radioactifs en sortie du dispositif, qui résulte du nombre de noyaux produits dans la cible et de l'efficacité, doit donc nécessairement présenter un maximum pour une configuration donnée de cible et de système d'ionisation.

Chaque isotope radioactif possédant ses propres caractéristiques physico-chimiques implique que sa production optimale devrait recourir à l'utilisation d'une configuration ISOL quasi unique, optimisée a priori à partir de nombreux paramètres et conditions qu'il est très difficile d'obtenir et de combiner pour chaque isotope. Les ressources nécessaires ne sont à la portée d'aucune installation ISOL. L'objectif du projet TULIP a donc été limité à deux types d'ions radioactifs (alcalins et métalliques) produits à l'aide de dispositifs dont deux aspects ont plus particulièrement été étudiés pour maximiser leurs performances :

- • Le choix du couple faisceau primaire-cible, en nature d'éléments et en énergie. Le processus réactionnel qui a été choisi est la fusion-évaporation.
- • Le temps de transformation des atomes en ions pour permettre une production efficace des noyaux de courtes durées de vie.

Puisque les dispositifs seront à terme utilisés par l'installation SPIRAL1, leur conception a aussi dû tenir compte des contraintes de servitude propres à cette installation (géométriques, dimensionnelles, fluides, vide).

Le projet TULIP a été divisé en deux étapes, qui visent deux zones de la charte des noyaux (voir figure 1.2) :



Figure 1.2 – Les noyaux visés par le projet TULIP sont indiqués en rouge. Les points bleu foncé correspondent aux noyaux produits de manière routinière par SPIRAL1, tandis que les points bleu clair représentent les noyaux que la source FEBIAD devrait produire ou a déjà produits. Les points noirs correspondent aux noyaux stables.

La première étape consiste à fournir un dispositif de production de faisceau d'ions radioactifs de Rb+ déficients en neutrons appelé « TULIP alcalins ». La production de 74Rb+ est un cas d'école : avec une demi-vie de 64 ms, un taux de production d'ions élevé de cet isotope démontrerait que le produit d'une production faible dans la cible peut être contrebalancé par une efficacité de transformation élevée.

La seconde étape est l'objectif final du projet : produire un faisceau d'ions radioactifs dans la région du 100Sn.

L'étain étant un atome métallique, il est plus difficile à ioniser que le Rb et nécessite de recourir à une technique plus difficile à mettre en œuvre que l'ionisation de surface utilisée pour les atomes alcalins. L'objectif principal de ma thèse a donc été d'étudier, de concevoir et de caractériser un dispositif capable d'ioniser des atomes métalliques dans la cavité du dispositif TULIP, initialement développée par V. Kuchi [2] pour la production d'ions Rb+.

Après l'introduction, le chapitre 2 est consacré à une présentation générale des méthodes et des dispositifs de production de faisceaux d'ions radioactifs, ainsi qu'à une présentation de certains des

principes physiques associés à la méthode ISOL.

Le chapitre 3 présente le projet TULIP Alcalins. Pour résoudre les problèmes thermiques identifiés pendant la thèse de V. Kuchi, j'ai apporté des modifications au dispositif. Ce chapitre se conclut par les résultats des tests de production d'isotopes de Rb⁺ auxquels j'ai participé en 2023.

Le chapitre 4 est consacré à une étude visant à fiabiliser le fonctionnement de l'ECS FEBIAD de SPIRAL1, tout en conservant des performances d'ionisation élevées (environ 20 % pour la transformation Ar en Ar⁺). Cette étude, dans laquelle j'ai été fortement impliqué, m'a permis de me livrer à l'exercice de mise en œuvre de l'électro-émission et de l'ionisation par impact électronique.

Le chapitre 5 porte sur la conception d'une source d'ions Ni⁺ que j'ai fabriquée dans le but de tester la possibilité d'ioniser les atomes d'une vapeur d'élément métallique à l'aide d'un faisceau d'électrons. L'élément Ni a été choisi car métallique et aussi parce que certains de ses isotopes radioactifs sont demandés par les utilisateurs de SPIRAL1. Une deuxième raison est que disposer d'un canon à ions Ni⁺ serait à terme un outil très utile pour caractériser l'efficacité et le temps de transformation des ensembles cible-source destinés à la production d'ions Ni radioactifs. La première partie présente donc les principes physiques associés à l'ionisation par impact électronique, et la deuxième présente les résultats de production d'ions Ni⁺. La réalisation d'un canon à ions Ni⁺ opérationnel reste à faire.

Le chapitre 6 porte sur l'adaptation de la cavité TULIP à l'ionisation d'éléments métalliques. En premier lieu, une simulation de l'injection d'électrons dans la cavité est présentée, couplée à une simulation Monté-Carlo de l'effusion-ionisation qui permettent de prédire les performances d'ionisation de l'ECS. Une modélisation de la source d'ions, également décrite, a permis de vérifier la cohérence entre ordres de grandeur des performances prédites par ces deux approches. Dans un second temps, un dispositif d'étude est présenté. Parce que fonctionnant à température ambiante et non pas à haute température comme le dispositif final de TULIP, il a constitué un instrument d'étude très flexible grâce aux diagnostics dont il a pu être équipé. Les résultats ainsi obtenus ont ensuite été extrapolés pour déterminer les performances qu'aurait un dispositif fonctionnant à haute température.

Chapitre 2

Production de faisceaux d'ions radioactifs

Trois qualités essentielles sont attendues d'un faisceau d'ions radioactifs :

Intensité L'intensité la plus élevée possible est presque toujours souhaitée. Cela permet de réaliser des expériences avec plus de précision statistique et d'explorer des phénomènes plus rares.

Pureté Le faisceau envoyé aux expériences de physique doit être le plus pur possible.

Fiabilité Le faisceau fourni doit avoir une intensité stable et reproductible.

Les choix techniques des systèmes de production, tels que le type de source, la puissance thermique absorbée par la cible, les matériaux utilisés, la géométrie et la taille du système, influencent directement ces qualités. La conception et l'optimisation de ces systèmes doivent donc être étudiées pour répondre aux demandes des utilisateurs de chaque faisceau à fournir.

Dans un premier temps, les trois grandes méthodes de production de faisceaux d'ions radioactifs sont présentées et comparées, avec leurs avantages et inconvénients en termes de taux de production ainsi que des propriétés chimiques et des demi-vies des noyaux à produire. Les concepts essentiels associés à la méthode ISOL sont ensuite détaillés : production dans la cible, pureté des faisceaux, efficacité de transformation.

Ensuite, la physique des ensembles cibles-sources ISOL est détaillée, avec une liste des réactions de production, une description des mécanismes de diffusion-effusion et les différents processus d'ionisation.

Enfin, les installations de production de faisceaux radioactifs sont listées, avec une présentation détaillée de l'installation SPIRAL1 au GANIL.

2.1 Méthodes de production de faisceaux d'ions radioactifs

2.1.1 Méthode en vol

La production d'un faisceau d'ions radioactifs à l'aide de la méthode en vol repose sur l'envoi d'un faisceau d'ions lourds sur une cible solide mince. Les produits de la réaction qui possèdent une énergie suffisante émergent de la cible. Leurs trajectoires sont séparées (voir figure 2.1) par des composants électrostatiques et magnétostatiques, et ils sont sélectionnés à l'aide de fentes, ce qui permet de purifier le faisceau d'ions radioactifs d'intérêt.



Figure 2.1 – Schéma de principe de la méthode de séparation en vol.

Outre la rapidité de ce procédé, cette méthode présente l'avantage de ne pas faire dépendre la production de la réactivité chimique entre le matériau de la cible et l'atome radioactif d'intérêt. Elle permet donc a priori de produire des noyaux radioactifs de tous les éléments, réfractaires compris alors qu'ils sont difficiles à produire à l'aide de la méthode ISOL.

Dans ce type d'installation, un des points qui nécessite une attention particulière est la conception de la cible. La cible est dite mince car les produits de réaction en sortent sous l'effet de l'énergie cinétique qu'ils ont à l'issue de la collision. L'épaisseur de la cible doit être faible pour limiter la dispersion angulaire du faisceau d'ions radioactifs due aux interactions avec les noyaux de la cible, et également pour limiter la dispersion en énergie selon la direction du faisceau d'ions incident (ou faisceau d'ions primaire, le faisceau d'ions secondaire étant le faisceau d'ions en sortie de la cible). En plus de la conséquence directe de l'épaisseur de la cible sur le taux de production et donc sur l'intensité du faisceau secondaire, l'épaisseur de la cible agit sur les caractéristiques optiques du faisceau, ce qui peut limiter sa transmission si l'acceptance du séparateur situé en aval de la cible est insuffisante.

La taille du faisceau primaire sur la cible peut aussi contribuer à cette limitation. Cette taille conditionne la densité maximum de courant du faisceau primaire qu'il est possible d'envoyer sur la cible, à cause de la tenue en température du matériau cible et à cause de la fluence maximum avant endommagement du matériau cible. Au final, la configuration du dispositif et donc le taux de production résultent d'un compromis entre un ensemble de paramètres.

2.1.2 Méthode ISOL

Depuis le dispositif d'O. Kofoed-Hansen and K.O. Nielsen [3] qui a permis en 1951 de produire les premiers faisceaux d'ions radioactifs (⁸⁹⁻⁹⁰⁻⁹¹Kr+) par la méthode ISOL, de nombreux dispositifs ont été développés, dont un bref historique est donné dans la référence [4], et dont une revue des installations existantes en 2013 est donnée dans la référence [5].

Dans la méthode ISOL (Isotope Separator On Line), les noyaux radioactifs sont produits par interaction des noyaux d'un faisceau primaire d'ions stables avec les noyaux d'une cible solide ou parfois liquide (voir figure 2.2).



Figure 2.2 – Schéma de principe de la méthode ISOL.

La cible est dite épaisse car les produits de réaction sont généralement stoppés dans le matériau cible, et parfois dans un matériau situé en aval de la cible et appelé « catcheur ». Les noyaux produits sont neutralisés dans la matière et se trouvent donc sous la forme d'atomes radioactifs. La cible est portée à haute température, soit par la puissance déposée par le faisceau primaire, soit par un chauffage additionnel ou par les deux, pour stimuler la diffusion des atomes radioactifs en dehors du matériau cible. Les atomes effusent alors dans la cavité de la cible jusqu'à atteindre la source d'ionisation. S'ils y sont ionisés, les atomes radioactifs deviennent des ions radioactifs. Ils sont alors accélérés pour former un faisceau d'ions radioactifs.

L'Ensemble Cible-Source d'ionisation sera fréquemment désigné sous l'abréviation ECS.

Le fait que les atomes soient ionisés dans une source induit une dispersion de leur énergie qui reste de l'ordre de quelques électrons-volts et une émittance de l'ordre de 50 à 100 π .mm.mrad dans le cas d'une source ECR. Ces caractéristiques ont nécessairement une incidence sur le transport du faisceau d'ions et peuvent donc induire des pertes entre l'ECS et le point d'utilisation.

En revanche, la méthode ISOL dépend fortement des propriétés chimiques de l'élément à ioniser ainsi que celle des matériaux des surfaces internes de l'ECS. Le temps nécessaire aux processus consécutifs de diffusion et d'effusion dépendent donc de l'élément à produire, de la température des composants de l'ECS et de leurs propriétés chimiques. Ce temps de transformation des atomes en ions de l'ECS est de l'ordre de la seconde ou plus (parfois plusieurs heures

ou plus) rentre en compétition avec la décroissance radioactive. La méthode ISOL n'est donc pas adaptée à la production efficace de noyaux de durée de vie courte (de l'ordre de 100 ms, dépend fortement de l'ECS et de l'élément à produire).

La pureté du faisceau produit par la méthode ISOL dépend des choix de conception de l'ECS. Le couple faisceau-cible conditionne les noyaux produits, ce qui permet d'opérer une première sélection. Les propriétés chimiques des matériaux en dehors desquels les atomes diffusent et effusent engendrent une deuxième sélection : certains éléments (notamment ceux avec un point de fusion élevé) ne peuvent pas sortir assez vite et sont donc sélectionnés par décroissance. Par conséquent, la méthode ISOL se révèle peu adaptée à la production efficiente de noyaux présentant une durée de vie courte devant le temps moyen de transformation des atomes en ions de l'ECS. Ce temps, qui dépend fortement des caractéristiques de l'ECS, peut varier considérablement de quelques centaines de ms à plusieurs heures. Le type de source utilisé opère une dernière sélection, selon ses propriétés chimiques.

2.1.3 Cellule gazeuse

L'utilisation d'une cellule gazeuse place cette méthode dans une position intermédiaire entre les méthodes ISOL et la séparation en vol. Dans cette configuration, un faisceau émergeant d'une cible mince ou d'un séparateur en vol est stoppé dans une cellule contenant du gaz. Les ions issus de ce faisceau subissent alors soit une neutralisation puis un transport par le gaz en direction d'une source d'ions, soit ils demeurent sous forme d'ions faiblement chargés. Dans ce dernier cas, ils peuvent être soumis à un champ électrique qui les entraîne, permettant ainsi la formation d'un faisceau d'ions.

2.2 Production de faisceaux d'ions exotiques par la méthode ISOL

2.2.1 Taux de production dans une cible ISOL

Le taux de production de noyaux radioactifs peut généralement s'exprimer par la formule :

$$I = n\sigma\Phi e \tag{2.1}$$

Le taux de production, noté I (exprimé en pps particules par seconde), est directement proportionnel à la section efficace σ de la réaction de production, qui peut varier considérablement selon le noyau à produire. Ces sections efficaces ont tendance à diminuer avec l'éloignement de la vallée de stabilité. Un choix judicieux du couple faisceau-cible permet de maximiser la section efficace de création du noyau à produire.

Le produit de la densité n et de l'épaisseur e de la cible rend compte de la quantité de matière avec laquelle la cible va pouvoir interagir. Dans certains dispositifs, comme par exemple la cible

en graphite de SPIRAL1, le faisceau primaire est intégralement arrêté dans la cible, et l'épaisseur avec laquelle le faisceau interagit correspond à la distance que le faisceau met pour s'arrêter. Si le faisceau traverse la cible, l'épaisseur d'interaction est celle de la cible.

Le taux de production au sein de la cible est proportionnel à l'intensité du faisceau primaire Φ , conduisant logiquement à penser qu'augmenter cette intensité entraîne une augmentation de l'intensité du faisceau d'ions radioactifs. Cependant, cela ne s'applique pas systématiquement, notamment pour les noyaux ayant une courte demi-vie. En effet, une cible qui reçoit une puissance de faisceau accrue est généralement de dimensions plus importantes, ce qui rend le temps de transformation des atomes en ions plus long.

2.2.2 Réactions nucléaires utilisées dans les systèmes ISOL

2.2.2.1 Fusion-évaporation

Les réactions de fusion-évaporation sont obtenues à l'aide de faisceaux d'ions ayant une énergie au-dessus mais proche de la barrière coulombienne, généralement de l'ordre de 5 MeV/A.

La première étape est la fusion. Les deux noyaux rentrent en contact et peuvent former un noyau composé avec un nombre de protons $Z_{NC} = Z_{Cible} + Z_{Projectile}$ et un nombre de neutrons $N_{NC} = N_{Cible} + N_{Projectile}$. Le noyau ainsi créé a une énergie d'excitation et un moment angulaire importants. Une voie concurrente à la formation du noyau composé est la quasi-fission.

La seconde étape concerne l'évaporation de nucléons et de photons. Des protons et des neutrons sont évaporés du noyau composé excité, dissipant ainsi de l'énergie d'excitation sous forme d'énergie cinétique et d'énergie de liaison. L'évaporation de neutrons est favorisée car elle n'est pas influencée par la barrière coulombienne. Ensuite, des photons sont émis, emportant avec eux de l'énergie d'excitation et du moment angulaire.

C'est un mécanisme de production assez sélectif, car le nombre de nucléons évaporés par le noyau composé est typiquement de deux neutrons et de deux protons.

La fusion-évaporation est adaptée à la production de noyaux déficients en neutrons. En partant de noyaux projectiles et cibles avec N = Z, le noyau composé a également un N = Z. Comme il a un nombre de masse plus élevé, il peut être du côté déficient en neutrons de la vallée de stabilité. Si le noyau évapore des neutrons, il va vers encore plus d'exoticité.

Après leur création, les ions radioactifs ont une énergie cinétique résultant de la cinématique à deux corps de la formation du noyau composé, suivie de l'évaporation des nucléons. Il en résulte des ions ayant une énergie cinétique de l'ordre de la moitié de celle du faisceau primaire pour des collisions symétriques.

C'est le processus qui est utilisé dans TULIP.

2.2.2.2 Fragmentation

La fragmentation est un mécanisme de production mettant en œuvre des noyaux de masses moyennes à lourdes, à des énergies inférieures au GeV/A. La réaction se déroule en 3 étapes consécutives, comme illustré dans la figure 2.3. La première étape est la collision, suivie de l'abrasion, un processus au cours duquel les parties des noyaux se chevauchant sont arrachées aux noyaux cible et projectile. La dernière étape est l'ablation. Les fragments issus de la collision, fortement excités et déformés, retrouvent leur équilibre par fission et émission de nucléons et de photons pour finalement atteindre leurs états fondamentaux.



Figure 2.3 – Principe du mécanisme de fragmentation. Image tirée de la thèse de Christoph Schuy [6].

Ce processus peut générer des noyaux avec des N et Z égaux ou inférieurs à celui du noyau le plus lourd impliqué dans la réaction. Il s'agit d'un processus peu sélectif, générant une vaste gamme de noyaux, majoritairement situés près de la vallée de stabilité. Ce processus est utilisé dans SPIRAL1 pour la production de noyaux radioactifs, à partir des faisceaux stables du GANIL et de cibles de graphite épaisse.

2.2.2.3 Spallation

La spallation est une réaction qui utilise des faisceaux de protons à des énergies supérieures au MeV, généralement envoyés sur des cibles d'éléments lourds.

À ces énergies, les protons n'interagissent pas avec l'ensemble du noyau cible. Ils interagissent de façon individuelle avec les nucléons de celui-ci. Des protons et des neutrons sont éjectés des noyaux de la cible, qui sont laissés dans un état fortement excité. D'une façon assez similaire à la fragmentation, ces noyaux vont se désexciter par fission et émission de nucléon.

2.2.2.4 Fission induite

La création de noyaux radioactifs peut être réalisée par la fission induite par neutron ou par photon. Pour l'absorption de neutrons, le noyau de la cible gagne un neutron, et le produit de l'absorption subit une fission.

Un exemple de photofission est l'absorption d'un photon de 16 MeV par de l'²³⁸U, entraînant son excitation puis sa fission. Les photons de 16 MeV peuvent être générés par le rayonnement de freinage d'électrons dans un convertisseur. Par exemple, à ALTO/IJCLab (France), un faisceau d'électrons de 10 μ A 50 MeV est envoyé sur une cible en carbure d'uranium qui sert simultanément de convertisseur.

Le rendement de la fission est généralement centré autour de $Z_{cible}/2$ et $N_{cible}/2$. Étant donné que les cibles sont composées d'éléments lourds, avec un excédent de neutrons par rapport aux protons, ce mode de production crée des noyaux du côté riche en neutrons de la carte nucléaire.

2.2.3 Pureté des faisceaux

La pureté du faisceau est une qualité désirable, dont l'importance dépend de l'expérience utilisant le faisceau. Les contaminants peuvent créer des réactions indésirables dans l'expérience de physique, ou bien gêner la manipulation du faisceau à basse énergie. La pureté du faisceau s'opère à tous les stades de la production du faisceau par la méthode ISOL.

Elle débute avec le choix du mécanisme de production. Seuls les noyaux produits dans la cible ont le potentiel de générer un faisceau d'ions radioactifs. Par exemple, un faisceau produit par fragmentation ou spallation ne pourra générer que des noyaux ayant moins ou autant de neutrons et de protons que le noyau le plus lourd de la réaction.

Aux étapes suivantes de la diffusion et de l'effusion, une autre sélection s'opère, cette fois de nature chimique. Cette sélection dépend des propriétés des atomes créés dans la cible ainsi que des matériaux constitutifs de la cible et des parois internes de l'ECS. Certains éléments, notamment ceux présentant un point de fusion très élevé, souvent désignés comme réfractaires, ne seront jamais extraits de la cible et demeureront piégés dans la matière. En revanche, les éléments tels que les gaz rares ont une faible affinité avec les autres matériaux de l'ECS, ce qui leur permet de se propager sans être freiné par des interactions chimiques.

Ces propriétés chimiques peuvent être exploitées pour sélectionner certains éléments. Certains ECS utilisent un tube de transfert refroidi, qui permet de ralentir la propagation des atomes condensables et donc de favoriser celles des éléments gazeux.

La dernière sélection que peut effectuer l'ECS dépend de la méthode d'ionisation utilisée. Les différentes technologies de sources sont présentées plus loin dans ce chapitre. On peut retenir que l'ionisation par impact électronique est universelle, tandis que l'ionisation de surface et par laser sont très sélectives sur le plan chimique. Quelle que soit la méthode utilisée, un atome doit d'abord se trouver sous forme gazeuse dans la source pour pouvoir être ionisé.

Après l'ECS, une autre sélection s'opère dans la ligne de transport du faisceau. Par exemple, si la ligne transporte le faisceau en utilisant des champs magnétiques, le faisceau est séparé en fonction de sa rigidité magnétique $B\rho = p/q^{1}$. Dans le cas d'une source d'ions où tous les ions du faisceau sont accélérés par la même différence de potentiel, cela revient à les séparer selon leurs rapports m/q lorsqu'ils sont transmis à travers un dipôle magnétique.

2.2.4 Transformation des atomes en ions

La transformation des atomes en ions correspond à l'ensemble des processus "élémentaires" impliqués dans le processus global qui amène les atomes stoppés dans le matériau d'arrêt d'un système ISOL (matériau solide, liquide ou gaz, matériau cible ou catcheur) à être transformés en ions. L'expression "transformation atomes-ions" peut sembler plus difficile d'emploi que les expressions souvent utilisées telles que "relâchement" ou "ionisation" mais elle est aussi plus rigoureuse. Le relâchement ne fait pas référence à une ionisation, et l'ionisation est un processus très rapide qui ne peut pas rendre compte à lui seul du temps observé pour la transformation des atomes en ions. Les termes "efficacité de relâchement" et "efficacité d'ionisation" sont donc souvent impropres à l'utilisation que l'on en fait, d'où le choix d'utiliser le terme "efficacité de transformation atomes-ions" est préférable au "temps de relâchement ou d'ionisation".

L'efficacité globale est souvent exprimée sous la forme du produit des efficacités de chaque processus impliqué :

$$\varepsilon_{ai} = \varepsilon_{diffusion} \cdot \varepsilon_{effusion} \cdot \varepsilon_{ionisation} \tag{2.2}$$

- -

L'utilisation d'un produit implique que les trois processus sont consécutifs. Or un atome, une fois relâché en dehors du matériau d'arrêt, peut effuser puis re-pénétrer dans le matériau. De même, un atome ionisé peut être re-neutralisé plutôt qu'extrait de l'ECS. De façon générale, à chaque instant, il existe une probabilité pour que chaque atome ou ion emprunte une des voies d'effusion atomique, d'effusion ionique, d'ionisation, de diffusion ou de décroissance radioactive. Ces voies sont donc nécessairement en compétition permanente, ce qui rend impropre l'utilisation d'un produit pour une description rigoureuse de l'efficacité.

Le produit peut cependant être utilisé sous la forme

$$\varepsilon_{ai} = \varepsilon_{diffusion} \varepsilon_{effusion-ionisation}$$
(2.3)

dans le cas où la probabilité qu'un atome, une fois relâché en dehors du matériau, a une probabilité de re-pénétration dans le matériau faible comparée à la probabilité qu'il a d'emprunter les autres

^{1.} La rigidité magnétique quantifie l'impact d'un champ magnétique sur la trajectoire d'une particule chargée. Avec *B* le champ magnétique, ρ le rayon de courbure qu'emprunte la particule chargée, *p* sa quantité de mouvement et *q* sa charge

voies pour disparaitre de l'ECS, par effusion atomique, par effusion ionique ou par décroissance radioactive.

Dans ce mémoire, le terme "efficacité de transformation" est utilisé. Elle est calculée en divisant le nombre d'ions en sortie de l'ECS par le nombre d'atomes produits ou injectés dans l'ECS. Les termes "temps de transformation" et "temps de réponse" seront indifféremment utilisés.

Techniquement, la mesure d'efficacité est généralement faite en comparant un flux continu d'atomes injecté dans l'ECS au courant d'ions correspondant en sortie de l'ECS. Cette méthode est relativement simple à mettre en œuvre dans le cas de gaz, dont le flux peut être fixé (et connu) en utilisant une fuite de gaz calibrée. La précision est alors au mieux de l'ordre de 10 %. Dans le cas d'atomes non gazeux, la mesure du flux injecté est plus difficile. Pour contourner cette difficulté et obtenir une meilleure précision que 10 %, il est possible de recourir à une ionisation des atomes avant injection (injection d'un faisceau d'ions). Le calcul de l'efficacité reposera alors sur la mesure de deux courants électriques, pour lesquels il est aisé d'obtenir une meilleure précision que 5 %.

Les pertes par décroissance radioactive dépendent du temps de transformation des atomes en ions du système de production ISOL. La diffusion et l'effusion-ionisation étant des processus aléatoires, le temps de transformation n'est pas le même pour tous les atomes, et suit une distribution. La forme de cette distribution varie en fonction du processus physique prenant le plus de temps lors de la transformation des atomes en ions (diffusion ou effusion-ionisation, voir 2.4 et 2.3).

La mesure de temps de transformation des atomes en ions ne peut être faite qu'à partir d'une mesure dynamique, en injectant par exemple un pulse d'atomes de courte durée (par rapport au temps de transformation) et en mesurant l'évolution temporelle du courant d'ions induit en sortie d'ECS. Dans le cas d'atomes de gaz, il est possible de recourir à une vanne pulsée. Des vannes commerciales permettent d'obtenir des pulses dont la durée est de l'ordre de la milliseconde. Dans le cas d'atomes condensables, cette méthode n'est pas utilisable. Il faut avoir recours à des pulses d'ions. Une fois injectés, les ions retournent à l'état d'atomes par neutralisation sur le matériau d'arrêt, puis suivent le même processus de transformation en ions que s'ils avaient été injectés sous forme d'atomes. Le temps d'injection des ions étant généralement négligeable par rapport au temps de transformation atomes-ions, le temps entre l'instant d'injection des ions et l'instant de sortie des ions en dehors de l'ECS est égal au temps de transformation atomes-ions. Cette méthode présente de plus l'avantage de pouvoir aisément et avec précision déterminer la quantité d'atomes injectés, donc l'efficacité, quelle que soit la durée d'injection des ions.

2.3 Diffusion des atomes dans la matière

La diffusion est un phénomène physique décrivant le déplacement de la matière d'une région à une autre au sein d'un système. Ce processus est accéléré par l'agitation thermique des atomes et des molécules.

Dans le contexte d'un système ISOL, le terme "diffusion" est employé pour décrire le déplace-

ment des atomes radioactifs à l'intérieur du matériau où ils sont arrêtés, jusqu'à leur relâchement. Les atomes radioactifs représentent une proportion extrêmement minoritaire dans le cas d'une cible ISOL. On s'intéresse seulement à la vitesse de diffusion de ces atomes radioactifs dans une matrice solide, dont la nature ne semble a priori pas sujette à des modifications.

Le flux $J(m^{-2}s^{-1})$ de diffusion de ces atomes radioactifs est décrit par la première loi de Fick :

$$J = -D\frac{d\phi}{dx} \tag{2.4}$$

Avec $\frac{d\phi}{dx}$ le gradient de la concentration d'atomes ϕ (m⁻³). Le coefficient de diffusion D (m² s⁻¹) rend donc compte du flux d'atomes en fonction du gradient de densité d'atomes. À travers la deuxième loi de Fick : $\partial \phi / \partial t = \Delta \phi$, on constate que le coefficient de diffusion a une influence sur la vitesse à laquelle les atomes vont migrer en dehors de la cible. Pour minimiser le temps de diffusion et ainsi réduire la décroissance radioactive, il est donc préférable d'utiliser une cible présentant un coefficient de diffusion élevé.

Ce coefficient dépend des propriétés chimiques du matériau et de l'élément diffusant. Il est aussi dépendant des caractéristiques physiques de la cible : sa structure cristallographique, sa porosité (taille, forme et disposition des grains de matière) et de sa température. Le coefficient de diffusion peut être décrit par l'équation d'Arrhenius :

$$D = D_0 e^{-\frac{E_a}{k_B T}}$$
(2.5)

Avec D_0 le terme pré-exponentiel et E_a l'énergie d'activation. Ces deux termes sont généralement considérés comme constants, mais ils peuvent varier avec la température T. D_0 et E_a sont différents pour chaque couple cible/atomes à diffuser.

La résolution analytique des équations de Flick est présenté dans [7] pour des géométries simples. Dans le cas d'une cible plane, le temps moyen τ mis par un atome pour quitter la cible implanté à une profondeur *d* est :

$$\tau_{diff} = \frac{d^2}{D} = \frac{1}{\lambda_{diff}}$$
(2.6)

Cette équation montre que pour minimiser le temps de transformation et les pertes dues à la décroissance, il est bénéfique d'avoir une faible profondeur d'implantation et un taux de diffusion élevé. À titre d'exemple, le temps d'effusion à 5 μ m est 10 000 fois plus rapide qu'à 0,5 mm (toutes choses égales par ailleurs). Cet exemple correspond aux profondeurs d'implantation typique dans le catcher de TULIP et les cibles épaisses des autres ECS de SPIRAL1. En réalité, les atomes ne sont pas implantés à une seule profondeur, mais sont répartis à différentes profondeurs dans la cible.

Dans le cas où les atomes sont implantés de façon homogène dans la cible, des solutions analytiques permettant de décrire le temps de transformations et l'efficacité de diffusion sont disponibles, telles que décrites dans [8] et [9].

Ce relâchement en dehors d'un matériau solide sous forme de feuille est analytiquement décrit par une somme infinie d'exponentielles pondérées du type $8\lambda_D N_0 \sum_{k=0}^{\infty} e^{-(\lambda_k + \lambda_r)t}$. Avec λ_D le coefficient de diffusion des atomes considérés dans le matériau, λ_R la constante radioactive, et N_0 le nombre d'atomes contenus dans le matériau à t=0. Les λ_k sont obtenus par la relation $\lambda_k = (2k+1)^2 \pi^2 \lambda_D$. Tous les λ_k sont donc liés.

L'image du relâchement en dehors du matériau d'arrêt qui correspond à cette expression est un volume divisé en sous-volumes d'épaisseurs variables. La densité d'atomes est supposée uniforme dans le volume. Le volume central, qui correspond à l'indice k=0, est le plus important. C'est donc celui qui contient le plus d'atomes. Parce que ce volume est au centre du matériau, c'est aussi celui pour lequel le relâchement des atomes est le plus lent, donc qui est associé au λ_k le plus faible (λ_0) . Pour les couches plus externes du matériau, l'épaisseur à traverser est plus faible, donc le relâchement est plus rapide. Lorsque k tend vers l'infini, le temps de sortie des atomes tend vers zéro, mais leur nombre tend aussi vers zéro. La contribution au flux d'atomes relâchés en dehors du matériau par ses couches externes est donc très faible dans le cas d'atomes stables.

Dans le cas d'atomes radioactifs, l'efficacité de relâchement (ou de diffusion) en dehors de chaque couche est donnée par

$$\varepsilon_{diffusion\ couche\ k} = \frac{\lambda_k}{\lambda_k + \lambda_R} \tag{2.7}$$

Elle dépend donc du rapport entre le taux de relâchement λ_k et le taux λ_D de décroissance radioactive des atomes. Dans le cas d'atomes de courtes durées de vie, la contribution au relâchement d'atomes peut donc être plus importante pour les couches périphériques que pour les couches profondes dans lesquelles les atomes radioactifs auront décru avant d'être sortis.

L'expérience montre que la forme du relâchement des ions en fonction du temps donne une indication sur le processus qui le gouverne majoritairement. Si cette forme peut être décrite par une exponentielle unique, le relâchement des ions en dehors de l'ECS est principalement gouverné par les processus d'effusion ionisation. Si sa forme est reproduite par une série d'exponentielles du type $8\lambda_D N_0 \sum_{k=0}^{\infty} e^{-(\lambda_k + \lambda_r)t}$, elle est considérée comme étant principalement due au relâchement en dehors du matériau d'arrêt.

2.4 Effusion

Une fois sortis de la cible, les atomes radioactifs évoluent dans le vide entre les différentes parois internes de l'ECS. En technique du vide, ce mode de transport est appelé effusion.

Dans les ECS, une faible pression est souhaitable. Cela limite les interactions entre l'ECS et le gaz résiduel, qui pourraient sinon détériorer les matériaux qui constituent l'ECS. Cela permet aussi de réduire les interactions entre le gaz résiduel et les atomes radioactifs à produire.

La pression dans les ECS est suffisamment basse pour que les collisions interatomiques soient négligeables. On parle alors de régime d'écoulement moléculaire. Autrement dit, le libre parcours moyen des atomes est largement supérieur aux dimensions internes de l'ECS. Dans ce régime d'écoulement, les atomes se déplacent aléatoirement et en ligne droite d'une surface à une autre. Ils peuvent rester collés pendant un certain temps à ces surfaces avant de repartir dans une autre direction.

Comme pendant la diffusion, les atomes peuvent se désintégrer pendant leurs temps d'effusion.

Le temps d'effusion moyen est généralement exprimé comme la somme du temps de vol τ_{vol} et du temps de collage $\tau_{collage}$:

$$\tau_{effusion} = \tau_{collage} + \tau_{vol} = N_{contact} * \tau_{desorption} + \tau_{vol}$$
(2.8)

Avec $\tau_{collage}$ s'exprimant comme le produit du nombre de collages par le temps passé par un atome collé sur une paroi, qu'on appelle temps de désorption. Le temps de vol correspond au temps total que l'atome passe à se déplacer de parois en parois.

2.4.1 Temps de collage

Le temps de collage moyen correspond à la durée pendant laquelle les atomes demeurent en contact avec les parois. Il dépend des propriétés chimiques de l'atome effusant et des propriétés des parois sur lesquelles il adhère, notamment de la rugosité, de la porosité, de la structure cristalline et de la composition chimique de la surface. La désorption d'un atome arrivé sur une surface se produit en un temps t_d , qui peut être exprimé par une équation d'Arrhenius [10] :

$$t_d = \mathbf{v}^{-1} e^{\frac{-E_d}{k_B T}} \tag{2.9}$$

Avec v la fréquence vibratoire de liaison de surface² et E_d l'énergie de liaison. Des valeurs expérimentales de ces deux termes peuvent être trouvées dans la littérature pour certains couples atomes/surfaces.

D'un point de vue macroscopique, un atome arrive sur la surface et est désorbé au bout d'un certain temps après avoir adhéré une fois. D'un point de vue microscopique, ce qui semble être un simple rebond pourrait être en réalité un processus plus complexe. Un atome peut entrer en contact avec plusieures surfaces dans la rugosité ou la porosité du matériau, prolongeant ainsi le temps de résidence des atomes à la surface.

Comme pour la diffusion, l'élévation de la température des parois de l'ECS entraîne une diminution du temps de collage total. Il est à noter que les matériaux constituant les parois internes de l'ECS ne sont pas tous identiques ni à la même température, ce qui peut créer des "points de piégeage" ou "points froids" où le temps de résidence est nettement plus long.

^{2.} Appelée "surface bond vibration frequency" dans [10], difficile à traduire.

2.4.2 Temps de vol

Le temps que les atomes passent en vol dans la cavité dépend de la cinématique de ces atomes dans la cavité. Il dépend donc de leurs masses et de la température des parois de l'ECS. La vitesse suit une distribution de Maxwell-Boltzmann et la vitesse moyenne des atomes suit la relation $v_{moyenne} = \sqrt{8k_BT/\pi m}$.

La prédiction du temps de vol présente des difficultés en raison de la détermination des trajectoires empruntées par les atomes. Sauf pour des géométries très simples, le temps de vol peut être déterminé par des codes dédiés tels que COMSOL ou MOLFLOW++ [11]. Ces outils permettent de calculer, par une méthode Monte-Carlo, le temps de vol ainsi que le nombre de rebonds. En général, plus la taille de l'ECS est grande et sa géométrie est complexe, plus le temps d'effusion augmente.

Il est à noter que certains éléments peuvent effuser sous forme ionique, les rendant ainsi sensibles au champ électrique dans l'ECS. Cela peut contribuer à accélérer leur extraction, comme c'est le cas dans TULIP, ou parfois entraver leur sortie de l'enceinte de la cible (voir chapitre 2 de la thèse d'A. Pichard [12]).

En conclusion, les lois physiques régissant la diffusion et l'effusion montrent clairement les avantages d'un ECS fonctionnant à une température élevée. Cela réduit le temps de transformation des atomes en ions, augmentant ainsi son efficacité globale.

2.4.3 Perte par décroissance lors de l'effusion

Dans le cas d'atomes radioactifs, l'efficacité de l'effusion, c'est-à-dire la proportion des atomes non perdue par décroissance pendant l'effusion s'exprime :

$$\varepsilon_{effusion} = \frac{\lambda_{eff}}{\lambda_{eff} + \lambda_R} \tag{2.10}$$

où λ_{eff} est le taux d'effusion. Ce taux découle de l'hypothèse que le flux d'atomes qui effusent en dehors de la cavité est proportionnel, via le facteur λ_{eff} , au nombre d'atomes présents dans la cavité.

$$\left(\frac{dN}{dt}\right)_{sortant} = N_0 \lambda_{eff} e^{-\lambda_{eff}t}$$
(2.11)

Expérimentalement, cette description est régulièrement confirmée, comme montrée dans la section 6.0.5.2.3 du chapitre 6.

2.5 Ionisation

La source d'ions est la partie de l'ECS responsable de l'ionisation des atomes. Il existe plusieurs types de sources, mais nous nous concentrons ici sur celles que l'on rencontre le plus fréquemment

dans les dispositifs ISOL.

Le principe de base est d'ajouter ou de retirer des électrons pour transformer les atomes en ions, qui sont ensuite hors de la source et mis en forme par des champs électriques.

La caractérisation d'une source d'ions s'effectue à travers plusieurs critères, notamment les états de charge des ions du faisceau, la sélectivité de l'ionisation, l'efficacité d'ionisation, l'intensité du faisceau et son émittance.

2.5.1 Ionisation laser par résonance

L'ionisation laser [13], telle qu'utilisée dans les systèmes ISOL, recourt à des lasers pour arracher un électron aux atomes. Le principe repose sur l'absorption successive d'au moins deux photons à des longueurs d'ondes bien définies par un électron des couches périphériques (voir figure 2.4). La dernière absorption conduit l'atome à une énergie d'excitation supérieure à son énergie de liaison, ce qui provoque son ionisation.



Figure 2.4 – Principe du mécanisme d'ionisation laser par résonance.

L'avantage principal des sources utilisant ce principe réside dans leur grande sélectivité chimique, car l'énergie nécessaire pour exciter un électron est propre à chaque élément. Cela permet d'exciter puis ioniser uniquement l'élément présent dans le flux de photons des lasers de la source.

Cependant, changer d'élément à ioniser nécessite d'adapter le schéma d'ionisation et, par conséquent, les longueurs d'ondes à utiliser.

2.5.2 Ionisation par impact électronique

L'ionisation par impact électronique consiste à faire entrer en collision un atome avec un électron. Si l'énergie disponible dans la collision est supérieure à l'énergie de liaison de l'électron le moins lié du cortège électronique de l'atome à ioniser, il est possible d'arracher un électron, voire plusieurs d'un seul coup si l'énergie est suffisante.

Les différents types de sources à impact électronique sont présentées dans le chapitre 5.

Une caractéristique importante de ces sources est leur universalité. À condition qu'un atome soit sous forme gazeuse dans un flux d'électrons, il pourra être ionisé. Les sections efficaces d'ionisation ont des formes et des seuils en énergies similaires, en plus d'avoir des valeurs relativement similaires quel que soit l'élément à ioniser.

Certaines sources à impact électronique permettent également la génération de faisceaux multichargés.

2.5.3 Ionisation de surface

Enfin, la méthode d'ionisation la plus simple est l'ionisation de surface. Le principe est le suivant : un atome qui quitte une surface chaude a une probabilité de laisser un électron à la surface et de partir sous forme d'ion. En règle générale, cette méthode est très efficace pour les éléments alcalins qui ont des électrons faiblement liés. Cela crée une source chimiquement très sélective, mais capable de produire seulement quelques éléments.

L'ionisation de surface est présentée plus en détails dans le chapitre 3.

2.6 Conséquence des paramètres du faisceau primaire sur la cible utilisée

Les cibles utilisées dans les systèmes de production ISOL présentent des configurations mécaniques différentes en fonction de la réaction de production à l'origine de la création des atomes radioactifs. La principale distinction résulte de la distance de pénétration du faisceau primaire, qui détermine l'épaisseur dans laquelle la puissance du faisceau est absorbée par la cible.

La puissance déposée par le faisceau primaire dans la cible de l'ECS est généralement de l'ordre de quelques kW. La puissance déposée dans la cible participe à son élévation de température, qui ne doit pas dépasser un seuil imposé par la résistance des matériaux constituant la cible. La surface extérieure de la cible doit donc être suffisante pour permettre une dissipation (le plus souvent par rayonnement) de la puissance du faisceau.

Dans le cas d'une réaction de fusion-évaporation, le faisceau primaire d'une énergie de 5 MeV/A dépose toute son énergie dans une profondeur de moins d'un millimètre. L'obtention d'une surface de dissipation plus élevée de la cible se fait en augmentant son diamètre.

Pour des réactions de fragmentation ou de spallation, la profondeur d'implantation peut varier de quelques millimètres à plusieurs dizaines de centimètres en fonction du nombre atomique Z du faisceau primaire et de son énergie. Dans ce cas, les cibles sont nettement plus épaisses et il devient nécessaire de les diviser en plusieurs épaisseurs, ce qui permet de réduire la distance à travers laquelle les atomes doivent diffuser.

Les variations dans la conception des cibles ont une incidence sur le temps nécessaire à la transformation des atomes en ions. La géométrie complexe et la grande taille des cibles utilisées dans les processus de spallation et de fragmentation impliquent inévitablement des temps d'effusion plus longs que pour un système basé sur la fusion-évaporation, avec une géométrie plus simple. De plus, la profondeur d'implantation des ions radioactifs a également un impact sur le temps de transformation, la fusion-évaporation offrant généralement une profondeur potentielle d'implantation plus faible, elle offre un temps de diffusion plus court.

2.7 Fiabilité des systèmes de production

Un critère de performance plus rarement évoqué dans les activités de R&D sur les ECS est leur fiabilité et leur tenue dans le temps, critères essentiels pour l'opération d'un ECS. Lorsque les utilisateurs du GANIL conçoivent leurs expériences, ils se basent sur les données de faisceaux disponibles [14]. Pour le bon déroulement des expériences, il est important que le faisceau demandé soit fourni avec l'intensité annoncée, et il est tout aussi important que cette intensité soit stable dans le temps et délivrée durant le temps demandé.

De plus, un ECS représente un investissement financier et humain élevé pour le laboratoire. Son coût est de 40 à 100 k€, et doit-être géré comme un déchet nucléaire après usage.

Ces deux contraintes ont conduit à la décision arbitraire, prise dès la construction de SPIRAL1, que les ECS doivent être en mesure de fonctionner avec des performances stables pendant une période de deux semaines. À l'heure actuelle, les ECS Nanogan et FEBIAD présentent des durées de vie d'au moins deux semaines, fournissant un faisceau stable et de qualité aux utilisateurs du GANIL. Obtenir une durée de vie similaire est également un des objectifs de TULIP.

2.8 Installations produisant des faisceaux d'ions radioactifs

De nombreux laboratoires de physique nucléaire disposent d'installations capables de produire des faisceaux d'ions radioactifs : les principales installations sont répertoriées dans le tableau 2.1.

Installation	Lion	Faisagan primaira	Duisconas	Méthode de	Énergie maximum
Instantion	Licu	Faisceau prinane	ruissance	production	(Si post accélérée)
LISE	CANIL (Franca)	$D_{\rm W} \subset (05 {\rm MeV}/{\rm A})$ à l'11 (24 ${\rm MeV}/{\rm A})$	2 kW	En vol	
SPIRAL1	GANIL (Flance)	Du C (95 MeV/A) a 1 O (24 MeV/A)		ISOL	10-25 MeV/A
RIBF	RIKEN (Japon)	De l'H(400 MeV/A) à l'U (100 MeV/A)	6 kW	En vol	
FRIB	FRIB (Etats-Unis)	De l'O (150 MeV/A) au Bi (190 MeV/A)	10 kW	En vol	
FRS	GSI (Allemagne)	Protons (4.5 GeV) à l'U (1 GeV/A)		En vol	
IGISOL	JYFL (finlande)	Protons 30 MeV - 100 µA	3 kW	Cellule gazeuse	30 keV
ISAC	TRIUMF (Canada)	Protons 500 MeV - 100 µA	50 kW	ISOL	5-11 MeV/A
ISOLDE	CERN (Suisse-France)	Protons 1,4 GeV - 2 µA	2,8 kW	ISOL	10 MeV/A

Table 2.1 – Liste non exhaustive des principales installations de production de faisceaux d'ions radioactifs. Les valeurs d'intensités, d'énergies et de puissance du faisceau primaire sont fournies à titre indicatif et peuvent présenter des variations significatives en fonction du faisceau et de l'énergie. Ces données sont extraites des sites internet des laboratoires.

Ces installations disposent de faisceaux primaires de natures variées, conditionnant ainsi les réactions de production disponibles. Les séparateurs en vol ont tendance à recourir à des faisceaux de masses intermédiaires à lourdes, permettant la génération de noyaux par le biais de réactions de fragmentation ou de fusion-évaporation.

Quant à la méthode ISOL, elle fait généralement usage de faisceaux de protons à haute énergie pour induire la spallation sur une cible constituée d'éléments de masses moyennes à lourdes. Cependant, d'autres types de faisceaux primaires sont également employés, tels que des électrons ou des neutrons, pour la fission induite de cibles d'uranium.

Les différences d'intensité ont un impact sur les taux de production dans les cibles, une intensité plus grande générant plus de noyaux radioactifs, mais cela a une forte incidence sur les choix techniques. Une intensité plus importante implique que la cible devra dissiper plus de puissance thermique pour fonctionner, raison pour laquelle les séparateurs en vol utilisent des cibles tournantes pour augmenter la surface de dissipation. Une intensité de faisceau plus élevée va aussi créer plus de contraintes en termes de radioprotection.

Le GANIL/SPIRAL1 se démarque par le fait qu'il a accès à une grande variété de faisceaux primaires.

2.9 GANIL/SPIRAL1

Le laboratoire du GANIL, où cette thèse a été effectuée, a accéléré son premier faisceau en 1983. Aujourd'hui, il est capable d'accélérer des faisceaux stables allant du carbone à l'uranium, à des énergies pouvant atteindre jusqu'à 95 MeV/A pour certains éléments. Comme illustré sur la figure 2.5, le GANIL dispose de deux sources ECR (Electron Cyclotron Resonance) produisant des faisceaux d'ions stables multichargés. Ces faisceaux sont ensuite accélérés par un, deux, ou trois cyclotrons en cascade, selon l'énergie désirée. Les intensités dépendent du faisceau produit et de son énergie. Le GANIL peut par exemple produire un faisceau de ${}^{12}C^{6+}$ à 95 MeV/A, avec



une intensité de 8,0E12 pps et une puissance de 1,6 kW[14].

Figure 2.5 – Laboratoire du GANIL. L'installation historique est à droite, SPIRAL2 à gauche.

En 2001, le laboratoire s'est enrichi avec l'ajout de l'installation SPIRAL1 (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne). Cette installation est composée d'un système de production ISOL, couplé au cyclotron CIME, capable d'accélérer des faisceaux radioactifs jusqu'à 25 MeV/A.

SPIRAL1 utilise différents systèmes de production en fonction du faisceau à produire. Le premier ECS disponible dès la création de l'installation est la Nanogan, composée d'une cible épaisse en graphite couplée à une source ECR (voir figure 2.6). Le faisceau primaire du GANIL est ralenti et arrêté dans la cible en graphite, où il produit des atomes radioactifs par fragmentation des noyaux du faisceau et de la cible. La cible, chauffée à environ 2000 °C par le faisceau primaire et par un courant électrique, permet aux atomes de diffuser en dehors de la cible. Cette dernière est reliée à la source ECR par un tube de transfert, où les atomes radioactifs effusent pour être ionisés, formant ainsi un faisceau d'ions multichargés.

Étant donné que le tube de transfert est maintenu à température ambiante, seuls les éléments et molécules non condensables peuvent être produits par cette ECS, la rendant particulièrement adaptée à la production de gaz rares. La Nanogan est, par exemple, capable de générer les faisceaux les plus intenses au monde d'⁶He⁺ et d'⁸He⁺, avec respectivement 2,0E8 et 1,8E6 pps non accélérés. Elle produit également des faisceaux d'azote, d'oxygène et de fluor.



Figure 2.6 – Vu en coupe de l'ensemble cible source Nanogan.

Afin de diversifier la gamme de faisceaux disponibles, SPIRAL1 a intégré une nouvelle source : la FEBIAD/VADIS. Il s'agit d'une source à impact électronique capable de produire des ions monochargés d'éléments gazeux et de certains éléments condensables. Elle est couplée à la même cible en graphite que la Nanogan et utilise le même mécanisme de production (figure 2.7). Une caractéristique notable de cette ECS réside dans sa faible sélectivité chimique. Au cours d'essais en ligne, elle a pu produire des faisceaux radioactifs des éléments suivants : Li, Na, Mg, Ne, Mg, Al, O, Ar, Cl, Cr, Mn, K, Ga, Cu, Zn Ge, As, Ga, Br, Kr, Rb et Se. Bien que cela offre l'avantage de fournir une variété considérable de faisceaux, l'inconvénient réside dans une contamination isobarique potentielle du faisceau.



Figure 2.7 – Vu en coupe de l'ensemble cible FEBIAD.

Pour permettre leur accélération dans le cyclotron CIME, les ions monochargés sont élevés à des états de charge supérieurs par un booster de charge de type source ECR.

Plus récemment, le GANIL a construit un nouveau bâtiment, inauguré en 2016 : SPIRAL2. Il contient un accélérateur linéaire capable d'accélérer un faisceau de 5 mA de deutons jusqu'à 40 MeV (200 kW), ainsi que des faisceaux d'ions lourds de 1 mA à 14,5 MeV (45 kW, la valeur variant en fonction du faisceau) [15]. Le faisceau de deutons est envoyé sur un convertisseur en béryllium pour créer un faisceau de neutrons parmi les plus intenses au monde dans sa gamme d'énergie (neutrons jusqu'à 20 MeV) : Neutron For Science (NFS). Les faisceaux d'ions lourds seront dirigés vers un séparateur en vol, le Super Separator Spectrometer (S3), actuellement en construction [16].
Chapitre 3

Conception et test de TULIP pour la production de rubidium

3.1 Le projet TULIP

Pour maximiser l'intensité du faisceau d'ions, il est envisageable d'augmenter la production dans la cible, et/ou d'augmenter l'efficacité de transformation. Cependant, ces deux solutions peuvent être antinomiques, particulièrement dans le cas de la production d'ions de courtes durées de vie. Le taux de production dans la cible est lié à l'intensité du faisceau primaire et à son énergie. Augmenter l'intensité ou l'énergie nécessite d'augmenter la taille de la cible, soit pour pouvoir supporter la puissance déposée, soit pour profiter du parcours du faisceau primaire dans le matériau cible. Dans ces cas, le volume de la cible augmentera et entraînera une augmentation du temps de transformation des atomes en ions. Si ce temps est de l'ordre de grandeur de la durée de vie des ions à produire, augmenter la production dans la cible par augmentation de l'intensité ou de l'énergie du faisceau primaire conduira à une diminution de l'efficacité de transformation. Il existe donc nécessairement un couple cible-efficacité qui maximise le taux de production d'un type d'ions radioactifs, qui ne correspond pas au maximum de production dans la cible, et qui dans le cas de radio-isotopes de courtes durées de vie milite pour une diminution de la taille de la cible en faveur de l'efficacité.

Le projet TULIP (Target Ion Source for Short-Lived Ion Production) est né de cette approche. Il vise à démontrer que pour des éléments de courte durée de vie, il est possible d'obtenir des taux de production d'ions compétitifs au regard de ce qui est produit dans d'autres installations (ISOLDE/CERN ou ISAC/TRIUMF) en concevant un dispositif dans lequel la réduction des dimensions de la cible conduit à un taux de production dans la cible relativement faible, mais permet d'obtenir une efficacité de transformation importante, qui au final donne lieu à un taux de production d'ions radioactifs compétitif.

La technique mise en œuvre repose sur une suite de résultats obtenus dans le cadre du déve-

loppement des ECS pour l'installation SPIRAL1. En 2001, cette installation produit des faisceaux d'ions radioactifs à partir de gaz rares ou de molécules gazeuses. L'ECS présente un temps de transformation atomes-ions qui est typiquement de l'ordre de quelques centaines de millisecondes. Il est donc préférable de l'utiliser pour la production d'ions ayant une durée de vie supérieure à \sim 100 ms.

La volonté d'étendre la production à des atomes non gazeux apparaît rapidement mais l'ensemble cible-source alors utilisé (ECS NanoGan), basé sur l'association d'une cible en graphite épaisse (plusieurs mm) et d'une source d'ionisation à résonnance cyclotronique électronique (RCE), ne permet pas d'ioniser les atomes condensables avec une efficacité satisfaisante.

Pour étendre la production aux ions alcalins, le développement d'une source à ionisation de surface couplée à une cible en graphite similaire à celle de l'ECS Nanogan est entamé. En 2007, C. Eléon réalise une cavité chaude en graphite en forme de tube [17]. Pour accélérer la sortie des ions et ainsi réduire le temps de transformation atomes-ions dans le dispositif de production, les parois du tube sont affinées de sorte que le courant, qui passe dans ses parois pour le chauffer, crée simultanément une différence de potentiel entre ses extrémités. L'efficacité de transformation des atomes alcalins en ions est ainsi significativement augmentée [18]. Un champ électrique est de nouveau utilisé par A. Pichard dans le cadre de la R&D du projet SPIRAL2 Phase 2 pour maximiser l'efficacité de transformation atomes-ions dans l'ECS destiné à l'ionisation des éléments alcalins issus de la fission induite de la cible d'UCx. La cible et la source d'ionisation étant séparés d'environ 15 cm, il était nécessaire de réduire le temps de transport des atomes dans ce tube pour minimiser les pertes d'atomes par décroissance radioactive. Le tube de transfert et la source d'ionisation étaient donc constitués d'un fin tube de Re traversé par un courant suffisamment important pour que le champ électrique présent dans le tube soit de l'ordre de 1 V/cm, valeur dont A. Pichard a démontré qu'elle pourrait conduire à une augmentation importante de l'efficacité de transformation atomesions [19]. Cette efficacité s'accompagnait d'une réduction du temps de transformation, qui pouvait être inférieur à 10 ms. L'incidence de ce temps sur l'efficacité de transformation des atomes ayant une durée de vie de quelques dizaines de millisecondes en ions pourrait donc être faible.

Cependant, dans un dispositif ISOL, les processus de relâchement des atomes en dehors du matériau cible et d'effusion dans la chambre de l'ECS jusqu'à la source d'ionisation doivent aussi être pris en compte dans l'efficacité de transformation. Dans le cas du dispositif utilisé dans SPIRAL1 pour la production d'ions à partir d'isotopes de gaz rares, les temps de transformation atomes-ions sont typiquement de l'ordre de la seconde. La réduction du temps de transformation dans la source est donc peu utile si le temps de relâchement des atomes en dehors de la cible et de la chambre de l'ECS reste supérieur à la seconde.

Le temps de relâchement en dehors de la cible dépend de la profondeur d'implantation des atomes radioactifs dans le matériau cible et de l'épaisseur de la cible, du volume total de la cible, de la nature et de la microstructure du matériau cible, du coefficient de diffusion des atomes en dehors du matériau cible, de la température et évidemment des caractéristiques physico-chimiques de l'atome diffusant. Le temps d'effusion des atomes dans la chambre de la cible dépend du volume de cette chambre, de la complexité géométrique, des matériaux qui la constituent, de la température et de la nature des atomes qui effusent. Parmi ces paramètres, ceux qui permettent une optimisation indépendante de la nature physico-chimique du couple matériau-atome et de la température sont le volume, l'épaisseur et la géométrie de l'ECS. Il faut donc impérativement minimiser le volume de la cible, son épaisseur et simplifier sa géométrie pour minimiser le temps de relâchement.

En 2015, V. Kuchi entreprend une thèse [2] dont l'objectif est d'estimer s'il est possible de produire des ions radioactifs déficients en neutrons et de courte durée de vie avec une intensité compétitive, en favorisant l'efficacité de transformation plutôt que le taux de production dans la cible. V. Kuchi prend l'exemple de la production de ⁷⁴Rb (T1/2 = 65 ms) dans une cible de Nb (11g/cm2, [20]) à l'aide d'un faisceau primaire de protons de 500 MeV/50kW (TRIUMF/ISAC) qui est estimée à 10^8 pps. Seuls ~ 4.4×10^3 ions par seconde de ⁷⁴Rb⁺ sortent de l'ECS, donc l'efficacité de transformation des atomes est de ~ 410^{-5} . L'efficacité d'ionisation du Rb par ionisation de surface étant proche de 100 %, cette faible efficacité globale est majoritairement imputée au temps de relâchement des atomes en dehors de la cible.

Dans le travail de V. Kuchi, le ⁷⁴Rb est pris en exemple, car il est demandé par certains utilisateurs du GANIL et il fait partie des noyaux qui peuvent être aussi produits par une réaction de fusion-évaporation. En utilisant la réaction ²⁰Ne @ 5.1 MeV/A, 300 W sur une cible de ⁵⁸Ni de 4 μ m d'épaisseur, il devrait être possible de produire quelque 10⁴ ⁷⁴Rb par seconde dans la cible. L'ECS imaginé était uniquement constitué d'une cavité circulaire de 40 mm de diamètre, longue de 12 mm, fermée à une extrémité par une cible de ⁵⁸Ni et à l'autre extrémité par une feuille de graphite destinée à arrêter les noyaux de recul.

Compte tenu du faible volume de la cavité, de sa simplicité géométrique, de la faible profondeur d'implantation des noyaux de recul (quelques μ m dans du graphite), de la température (~1300 °C) et des matériaux constituant la cavité (graphite et Ni), l'efficacité de transformation des atomes en ions devait pouvoir atteindre plusieurs dizaines de pourcents, et donc conduire à une intensité de ⁷⁴Rb⁺ proche de celle obtenue à ISAC/TRIUMF, malgré une puissance de faisceau primaire environ 100 fois plus faible.



Figure 3.1 – Régions de production d'isotopes privilégiées par les réactions de spallation à TRIUMF/ISAC et CERN/ISOLDE



Figure 3.2 – Régions de production d'isotopes privilégiées par les réactions de fission induites à INFN/SPES et TRIUMF/ARIEL.

Développer un nouvel ECS pour SPIRAL1, pour produire des ions radioactifs dans une région à laquelle les caractéristiques de faisceaux primaires du GANIL et les cibles autorisées permettaient d'accéder, était une direction évidente à explorer.

Pour diminuer le temps de transformation des atomes en ions dans l'ECS, V. Kuchi s'est inspiré du champ électrique utilisé dans les tubes ioniseurs. Il a fait circuler le courant de chauffage dans les parois de la cavité pour créer un champ électrique dans la cavité de l'ordre de 1 V/cm. Dans le cas d'alcalins, dès leur sortie de la cible ou du matériau stopper, les atomes effusent sous formes d'ions dans la cavité et à chaque fois qu'ils sont en contact avec les parois, ils sont ionisés et entrainés par le champ électrique vers la sortie de la cavité.

Le volume de la cavité qui contient le stopper, c'est-à-dire le matériau qui relâche les atomes, est confondu avec le volume de la source d'ionisation. La fusion de ces deux volumes donne un avantage évident à ce dispositif en termes de temps de transformation.

La première étape du projet TULIP était un test de principe. Il visait la production d'isotopes déficients en neutrons de l'alcalin Rb. Son principe détaillé, mon apport au dispositif et les tests sur banc et sous faisceau primaire auxquels j'ai participé sont décrits dans le chapitre 3.

La deuxième étape visait la production d'isotopes métalliques déficients en neutrons dans la région de l'étain 100. Pour cet élément, l'ionisation de surface étant très peu efficace, un autre processus d'ionisation devait être utilisé, et ce processus devait toujours permettre une ionisation des atomes de Sn dans la cavité, dès leur sortie en dehors du stopper, pour minimiser le temps de transformation. L'étude, la réalisation et la mise en œuvre du dispositif nécessaire à la réalisation de cette étape (SPEED, Système de Production d'Eléments Exotiques de courtes Durée de vie) a été l'objectif principal de mon travail de thèse, présenté au chapitre 6

3.2 Ensemble cible-source TULIP à ionisation de surface

3.2.1 Principe de fonctionnement

Le principe de l'ECS TULIP est présenté sur la figure 3.3.

Un faisceau d'ions est envoyé sur une cible à une énergie suffisante pour vaincre la barrière coulombienne (quelques MeV/A). L'interaction des noyaux du faisceau primaire avec les noyaux de la cible produit des éléments radioactifs par réaction de fusion-évaporation. Les produits de la réaction qui ont une énergie cinétique suffisante quittent la cible, et sont arrêtés dans le catcher.



Figure 3.3 – Schéma de principe de l'ECS TULIP alcalin.

Le corps de la source est chauffé par un courant électrique. La chute de potentiel électrique

dans les parois de la source génère un champ électrique à l'intérieur de la source. Il est orienté de sorte que les ions positifs sont attirés vers l'orifice de sortie.

La température du catcher permet aux atomes de rubidium radioactifs de diffuser en dehors de celui-ci. Une fois arrivés en surface du catcher, les atomes de rubidium quittent la surface sous forme d'ions, et sont attirés vers la sortie. Lorsqu'ils quittent la source, un champ électrique les accélère pour qu'ils forment un faisceau d'ions.

Du fait de leur radioactivité, les noyaux de rubidium peuvent se désintégrer avant de pouvoir former un faisceau d'ions. Pour maximiser l'efficacité globale de l'ECS, il est important que le temps de transformation des atomes en ions Rb⁺ dans l'ECS soit plus faible que leurs demi-vies.

L'ECS TULIP a pour objectif de réduire ces pertes par décroissance, en réduisant le temps des processus de diffusion et d'effusion. La faible profondeur d'implantation des ions dans le catcher (inférieur au μ m) devrait permettre un temps de diffusion court (inférieur à 100 ms) comparé à celui des autres ECS de SPIRAL1 ou la profondeur d'implantation est de l'ordre du mm.

Le temps d'effusion est réduit par la présence du champ électrique dans la cavité. Ce champ accélère la sortie du Rb⁺, permet de minimiser le nombre de rebonds sur les parois, et donc le temps de vol et le temps passé par les atomes de Rb sur les parois.

3.2.2 Ionisation de surface

L'ECS TULIP alcalin utilise l'ionisation de surface comme méthode d'ionisation. Il s'agit de la méthode d'ionisation la plus simple dans sa mise en œuvre matérielle, car elle nécessite seulement une surface chauffée, constituée d'un matériau aux propriétés adaptées à l'ionisation de l'élément que l'on souhaite produire. Dans ce processus, des atomes en contact avec une surface chaude ont une probabilité de quitter cette surface sous la forme d'ions 1+.

La probabilité qu'un atome quitte une surface sous la forme d'un ion 1+ est décrite par l'équation de Saha-Langmuir [21] [22] :

$$P_{ioni} = \frac{1}{1 + \frac{g_0}{g_+} e^{\frac{E_1 - W}{k_B T}}}$$
(3.1)

Avec g_0/g_+ le rapport de la dégénérescence de l'état neutre et ionisé, égale à 1/2 pour les éléments alcalins. *W* est le travail de sortie, grandeur propre à la surface utilisée pour l'ionisation [22], qui caractérise l'énergie nécessaire pour qu'un électron quitte cette surface. L'équation de Saha-Langmuir est une transposition de l'équation de Saha, qui prédit l'abondance des états de charge d'un élément dans un plasma à l'équilibre. L'équation 3.1 suppose donc l'existence d'un plasma à l'équilibre juste au-dessus de la surface du matériau.

Quand le travail de sortie W est plus grand que l'énergie de première ionisation E_1 , la probabilité d'ionisation par contact est proche de 1 pour les éléments alcalins à basses températures, et tend vers 1/3 à haute température. À l'inverse, si W est plus petit que E_1 , la probabilité d'ionisation à basse température est proche de 0, et tend vers 1/3 à haute température.

Le rubidium a l'énergie de première ionisation parmi les plus faibles de tous les éléments : 4,18 eV. En utilisant des surfaces chaudes ayant un travail de sortie supérieur comme le carbone (W = 4,75 eV) ou le tungstène (W = 4,55 eV), l'efficacité d'ionisation par contact calculée pour une température inférieure à 2000 K est supérieure à 85 %.



Figure 3.4 – Probabilité qu'un atome quitte une surface de carbone sous forme d'un ion 1+ en fonction de la température et pour les éléments alcalins du Cs au Na.

La figure 3.4 montre la probabilité d'ionisation pour différents éléments alcalins en fonction de la température pour une surface en carbone. Cela montre que dans ces conditions, l'ionisation de surface est efficace pour le Cs, le Rb et le K, et qu'elle l'est moins pour le sodium qui a une énergie de première ionisation plus élevée ($E_1 = 5.14 \text{ eV}$). Changer le matériau ioniseur peut permettre d'obtenir une efficacité plus élevée pour le sodium, en utilisant par exemple une surface en rhénium (W = 4,96 eV) ou de platine (W = 5,5 eV), qui permet d'augmenter la probabilité d'ionisation à 2000 K de 5 à 15 %.

Dès lors, on comprend que l'ionisation de surface n'est efficace que pour des éléments ayant une énergie de première ionisation E_1 inférieure à 5,5 eV, et donc qu'il s'agit d'un processus sélectif. L'ionisation de surface est adaptée principalement à la production de faisceau d'ions alcalins, et aide à la production de faisceaux peu contaminés.

3.2.3 Description matérielle du dispositif TULIP alcalin initial

La cavité TULIP initial est représentée sur la figure 3.5. Le corps de la cavité est composé d'un container en graphite d'un diamètre de 40 mm et de 12 mm de hauteur. Elle est fermée d'un côté par une cible en Ni de 4 µm d'épaisseur. De l'autre côté, la cavité est fermée par le catcher en graphite, d'une épaisseur de 200 µm. Le matériau retenu est le Papyex, une sorte de graphite souple. Le choix de ce matériau est expliqué dans la thèse de Venkateswarlu Kuchi [2], principalement pour

des raisons de résistance électrique et de coefficient de diffusion des atomes de Rb dans le papyex. Deux brides en graphite maintiennent ces trois pièces en sandwich, grâce à huit vis en graphite.



Figure 3.5 – Cavité TULIP.

La cavité est maintenue en place par la pièce appelée support source. C'est une roue en graphite qui vient se visser dans le container source. Des jours sont creusés dans la pièce pour limiter les déperditions thermiques par conduction, car elle est en contact à sa périphérie avec la chambre à vide refroidie de l'ECS.

De l'autre côté de la cavité, une lyre en tantale permet de l'alimenter en courant électrique. La forme de cette pièce et le choix d'un matériau flexible comme le Ta permet à la lyre de se déformer et d'absorber les dilatations thermiques des différentes parties. Elle est reliée à une arrivée de courant en cuivre refroidie.

L'ECS TULIP est installée dans une chambre à vide en aluminium dont les parois sont maintenues à température ambiante par une circulation d'eau.

3.2.4 Évolution de TULIP, besoin d'études

Le premier ECS a mis en œuvre le principe présenté dans la figure 3.3. La cible remplissait à la fois les fonctions de fermer la cavité, et de faire office de cible pour la production de noyaux radioactifs.

Les noyaux radioactifs sortant de la cible n'avaient pas besoin de traverser de matière supplémentaire avant d'être implantés dans le catcher. Ce choix technique posait un problème de tenue thermique, car en plus d'être chauffée par la puissance déposée par le faisceau primaire, la cible était chauffée par effet Joule ainsi que par le rayonnement émis par le reste de la cavité.

Une cible en nickel pur a un point de fusion de 1455 °C, qui fixe limite supérieure de température à laquelle l'ECS peut fonctionner (les autres éléments en carbone peuvent opérer à des températures supérieures à 2000 °C).

La température de fusion du Ni, la température d'opération maximale de la cavité avait donc été arbitrairement fixée à 1300 °C. À cette température, la feuille de Ni présentait une espérance de vie de quelques heures, alors que l'espérance de vie requise par l'exploitation d'un ECS de SPIRAL1 est au minimum de 14 jours. Plusieurs études de comportement du Ni à haute température ont été menées. Elles nous ont convaincus qu'une feuille de Ni pur ne pouvait pas répondre aux exigences d'exploitations (voir figure 3.6).



Figure 3.6 – Cible en nickel accroché à la cavité de TULIP après un chauffage à 1347 °C pendant moins de 5 h heures. Le trou présent au milieu de la cible permet d'observer le catcher à travers la cible durant les tests thermiques.

De plus, les tests thermiques étaient menés sans faisceau primaire sur cible, alors qu'un faisceau de 20 Ne à 4,5 MeV/A d'une puissance de 100W dépose \sim 30 W dans la cible, ce qui induit une élévation de température d'environ 80 °C au-dessus de 1300 °C.

Pour affranchir le dispositif de cette difficulté, il a été décidé de séparer les fonctions : une fenêtre mince en carbone fermerait la cavité, et les noyaux radioactifs seraient produits dans une cible en Ni placée en amont de la fenêtre.

Lors de l'étude menée sur la tenue de la cible, une solution théorique a émergé, en parallèle de la séparation de la cible de la cavité. Elle consistait à recouvrir la feuille de Ni d'une couche de 0,3 µm de Mo sur chaque face. Les tests ont rapidement montré que cette solution permettait d'une part de fortement réduire la contraction, la cristallisation et le déchirement de la feuille de Ni, et

d'autre part de fortement diminuer son taux d'évaporation.

L'avantage d'une cible découplée thermiquement et chimiquement de la cavité est d'offrir la possibilité de changer le matériau de la cible si on souhaite changer la réaction de fusionévaporation.

La présence d'une fenêtre d'entrée change la cinématique des noyaux produits dans la cible, car ils doivent traverser une feuille de carbone pour atteindre le catcher. Ce changement nécessite de refaire les calculs de production et de cinématique des noyaux radioactifs, et de déterminer les épaisseurs de la cible et de la fenêtre d'entrée pour maximiser le taux de noyaux atteignant le catcher.

Bien que la conception thermique de l'ECS ait déjà été en grande partie réalisée dans la thèse de mon prédécesseur, le découplage cible-cavité demandait de réaliser une étude thermique complémentaire pour s'assurer que la source fonctionnait à température nominale dans cette nouvelle configuration. Il fallait également trouver une distance optimale entre la cible et la cavité pour limiter son échauffement tout en maximisant la transmission des noyaux radioactifs de la cible à la cavité.

Ce chapitre porte sur les études réalisées suite à ce changement, ainsi que sur le test de production en ligne de faisceaux d'ions radioactifs réalisé pendant cette thèse.

3.3 Production et cinématique des noyaux produits dans la cible

Deux expériences de production en ligne ont eu lieu. L'une avec un faisceau de ²²Ne et l'autre avec du ²⁰Ne. On ne parle ici que de la deuxième, le faisceau de ²⁰Ne étant plus adapté à la production de noyaux déficients en neutron.

Pour la production de Rb, le couple cible-faisceau utilisé est ²⁰Ne - ^{nat}Ni. Cela produit des noyaux composés de strontium 78, 80, 81, 82 et 84 dans des états excités. Par évaporation de neutrons et de protons, des noyaux déficients en neutrons dont du rubidium sont créés.

La fenêtre d'entrée en DLC (Diamond Like Carbon) a une densité surfacique de 0.4 mg cm^{-2} et une épaisseur de $2 \mu \text{m}$. C'est un matériau constitué d'un mélange de graphite et de diamant, qui présente l'intérêt d'être assez solide pour être découpé avec une lame de cutter neuve, à la différence d'une feuille de carbone amorphe qu'il serait très difficile de manipuler. De plus, le DLC est proposé comme éplucheur dans les accélérateurs d'ions, ce qui nous a conduit à penser qu'il est capable de supporter une irradiation prolongé du faisceau primaire du GANIL, propriété essentielle pour l'ECS TULIP. Une étude bibliographique (rapport interne, non publié) ultérieure nous a conduit à remettre en question ce choix.

3.3.1 Épaisseur de la cible

Pour maximiser le taux de noyaux radioactifs implantés dans le catcher, le choix de l'épaisseur de la cible est crucial. Une cible trop mince limite la production dans la cible et donc le taux implanté dans le catcher. Une cible épaisse augmente la production, mais réduit leurs chances de sortir de la cible et de traverser la fenêtre d'entrée. Il faut donc trouver l'épaisseur optimale qui permet de maximiser le débit de noyaux implantés dans le catcher.

Il faut aussi prendre en compte l'aspect thermique. La puissance déposée par le faisceau primaire augmente avec l'épaisseur de la cible, et réduit la durée de vie de la cible.

On choisit donc une cible dont l'épaisseur fait que les noyaux produits à l'entrée de la cible ont juste assez d'énergie pour traverser la fenêtre d'entrée. Ces considérations ont amené à choisir une cible en Ni de 4 µm d'épaisseur.

L'intensité sera ajustée en fonction de la tenue thermique de la cible. La cible dissipant la puissance déposée par le faisceau primaire uniquement par rayonnement, à cause de sa faible épaisseur et de son diamètre.

3.3.2 Taux de production approché dans la cible

Une estimation de la production de noyaux radioactifs est réalisée avec le logiciel LISE++ [23]. Le code utilisé est LisFus [24], un code permettant de calculer les sections efficaces de production, ainsi que les dispersions angulaires et en énergie des faisceaux produits. Bien qu'approximés, les résultats des calculs permettent d'estimer de façon grossière les taux de noyaux produits. La proportion qui sort de la cible est transmise jusqu'au catcher.

Les simulations sont effectuées avec un faisceau primaire ayant une énergie de ²⁰Ne 4,5 MeV/A et une intensité de 1 μ Ap (6,24E12 pps). Cela correspond à une puissance faisceau de 100W de puissance.

⁷² Sr	⁷³ Sr	⁷⁴ Sr	⁷⁵ Sr	⁷⁶ Sr	⁷⁷ Sr	⁷⁸ Sr	⁷⁹ Sr
			4.56e+0 59.16%	2.69e+4 59.29%	1.18e+4 59.32%	5.66e+1 59.68%	
	⁷² Rb	⁷³ Rb	⁷⁴ Rb	⁷⁵ Rb	⁷⁶ Rb	⁷⁷ Rb	⁷⁸ Rb
			1.8e+2 58.92%	2.66e+5 59.92%	5.92e+6 60.15%	9.4e+4 60.21%	1.83e+2 60.63%
⁷⁰ Kr	⁷¹ Kr	⁷² Kr	⁷³ Kr	⁷⁴ Kr	⁷⁵ Kr	⁷⁶ Kr	⁷⁷ Kr
		2.75e+2 58%	7.79e+4 59.54%	5.17e+4 59.87%	1.18e+7 60.88%	1.74e+7 61.1%	1.26e+5 61.05%
	⁷⁰ Br	⁷¹ Br	⁷² Br	⁷³ Br	⁷⁴ Br	⁷⁵ Br	⁷⁶ Br
		1.37e+2 55.38%	5.07e+5 56.2%	2.86e+6 60.52%	5.96e+5 61.14%	1.34e+7 62%	5.92e+6 62.47%
⁶⁸ Se	⁶⁹ Se	⁷⁰ Se	⁷¹ Se	⁷² Se	⁷³ Se	⁷⁴ Se	⁷⁵ Se
1.41e-1 54.13%	1.73e+4 55.32%	1.71e+6 55.5%	7.94e+3 56.36%	3.8e+6 57.15%	2.74e+6 61.41%	7.97e+4 62.09%	9.61e+5 62.38%
⁶⁷ As	⁶⁸ As	⁶⁹ As	⁷⁰ As	⁷¹ As	⁷² As	⁷³ As	⁷⁴ As
4.79e-4 58.64%	3.35e+2 59.64%	1.61e+6 60.76%	7.06e+5 61.64%	5.37e+3 62.29%	8.25e+5 62.81%	8.47e-1 64.48%	5.06e+1 64.43%
⁶⁶ Ge	⁶⁷ Ge	⁶⁸ Ge	⁶⁹ Ge	⁷⁰ Ge	⁷¹ Ge	72 PROJECTILE FRAGMENT	
2.07e+5 55.37%	2.74e+4 56.3%	6.8e+4 57.39%	8.15e+5 58.62%	3.69e+2 59.34%	3.47e+0 60.27%		↓

Figure 3.7 – Taux de production en particules par seconde (pps) en sortie de cible. Le pourcentage correspond à la proportion de ce taux qui traverse la fenêtre d'entrée en DLC.

La figure 3.7 montre les taux prédits par LISE++. Le pourcentage pour chaque noyau sur la figure correspond à la proportion des noyaux en sortie de cible arrêtés dans le catcher, le reste étant arrêté dans la fenêtre d'entrée et la cible. Même si les noyaux arrêtés dans le DLC peuvent diffuser dans ce dernier et finir par être ionisés, les propriétés de diffusion du Rb en dehors de DLC sont mal connues, alors que le celle du Rb diffusant dans le Papyex ont fait l'objet de mesures dans le cadre du projet TULIP [25].

Une voie d'amélioration du pourcentage d'ions Rb transmis entre la cible et le catcher consisterait à réduire l'épaisseur de la fenêtre d'entrée à 1 μ m, passant la transmission de 60 à 90 %. Ce choix mènerait à une réduction de la durée de vie de l'ECS.

Il est à noter que dans le cadre de l'objectif final de production de ¹⁰⁰Sn, la cinématique de la réaction est différente. La réaction envisagée est ⁵⁰Cr 4,5 MeV/A sur la cible en ^{nat}Ni. Cela produit des noyaux radioactifs avec plus d'énergie cinétique, leur permettant de traverser plus facilement la cible et la fenêtre d'entrée. Le taux de transmission de la cible au catcher est de 95 % (toujours selon Lise++) avec une fenêtre en DLC de 2 μ m.

3.3.3 Dispersion en énergie et en angle en sortie de la cible des noyaux de Rb radioactif et du faisceau primaire

3.3.3.1 Perte d'énergie du faisceau primaire à travers les composants de l'ECS

Les pertes d'énergies du faisceau primaire dans la cible, la fenêtre d'entrée et le catcher sont présentés ici. Ces résultats sont réalisés avec LISE++, et serviront de données d'entrée aux simulations thermiques effectuées plus loin dans ce chapitre.



Figure 3.8 – Schéma de la configuration utilisée pour les calculs LISE++

Les calculs sont effectués avec une cible de 4 μ m de Ni recouverte de 0,3 μ m de Mo des deux cotés, avec une fenêtre d'entrée de 2 μ m de DLC (0,4 mg cm⁻²).

Table 3.1 – Puissance déposée par le faisceau primaire dans la cible, la fenêtre d'entrée et le catcher pour un faisceau primaire de 100 W de ²⁰Ni à 4,5 MeV/A.

	Énergie faisceau primaire	Proportion de la puissance	Puissance absorbée pour	
	avant interaction (MeV/A)	absorbée (%)	100 W de faisceau primaire (W)	
Cible	4.5	22.7	22.7	
Fenêtre d'entrée	3.48	3.6	3.6	
Catcher	3.32	73.8	73.8	

Le tableau 3.1 montre l'énergie du faisceau primaire à l'entrée de chaque composant, ainsi que la puissance absorbée par chaque composant. Dans cette configuration cible faisceau, la cible absorbe 22 % de la puissance faisceau, le reste étant absorbé par la fenêtre d'entrée et par le catcher où s'arrête le faisceau primaire.

3.3.3.2 Dispersion en énergie des faisceaux de Rb radioactifs

Ce paragraphe et le suivant s'intéressent aussi aux propriétés des faisceaux d'ions radioactifs en sortie de cible, ce qui a permis de déterminer la distance maximale à laquelle la cible peut se trouver par rapport à la source pour que les noyaux produits dans la cible finissent bien dans le catcher. Les résultats ont aussi permis de définir la forme du faisceau primaire sur la cible, qui permettra de minimiser la puissance surfacique maximale sur cette dernière.

La figure 3.9 montre la dispersion en énergie du faisceau prédite par LISE++ en sortie de cible et après la fenêtre d'entrée. Les ions Rb ont une énergie maximum de 0,2 MeV/A en sortie de cible et 0,1 après avoir traversé 2 µm de DLC. La figure montre aussi que la distribution ne varie pas vraiment d'un isotope de Rb à l'autre (cela s'explique par les cinématiques très similaires ayant mené à leurs productions).



Figure 3.9 -Résultats de la distribution de l'énergie des noyaux radioactifs avant (gauche) et après (droite) la fenêtre d'entrée de 2 μ m.

Un calcul de profondeur d'implantation a été effectué avec le logiciel SRIM [26]. Pour un catcher en carbone avec une densité de $1,1 \text{ g cm}^{-2}$, la profondeur d'implantation d'un ion de ⁸⁵Rb de 0,1 MeV/A est de 5,7 µm. La profondeur d'implantation des ions Rb est donc toujours inférieure à 6 µm, ce qui limite fortement la distance à travers laquelle un atome de Rb doit diffuser avant de sortir du catcher.

3.3.3.3 Dispersion angulaire des faisceaux de Rb radioactifs

Connaître la dispersion angulaire va permettre de déterminer une distance cible-fenêtre d'entrée qui permet de transmettre la majorité des ions Rb jusqu'au catcher, tout en limitant l'influence thermique de la source sur la cible.

Cette dispersion est calculé par LisFus [24], qui considère que la dispersion angulaire des noyaux créés par fusion-évaporation est causée par l'évaporation de nucléons du noyau composé. Le profil de cette distribution est gaussien, et la largeur à mi-hauteur est comprise entre 23 degrés pour le ⁷⁸Rb et 29 degrés pour le ⁷⁴Rb (voir figure 3.10).



Figure 3.10 – Dispertion angulaire du faisceau de ⁷⁶Rb.

La dispersion angulaire est d'autant plus importante que les noyaux du faisceau primaire sont légers par rapport aux noyaux de la cible. La dispersion angulaire du Rb produit par la réaction de 20 Ne + ^{nat}Ni est donc plus importante que celle attendue (10°) pour les noyaux de Sn issus de la réaction 50 Cr + ^{nat}Ni.

3.4 Profil du faisceau primaire sur cible

3.4.1 Ligne faisceau haute énergie SPIRAL1

Pour répartir la puissance déposée par le faisceau primaire sur la surface de la cible, le faisceau est mis en forme en amont de l'ECS. Cela permet de limiter la densité de puissance pour ne pas amener la température de la cible au point de fusion.

Le profil du faisceau avant mise en forme est considéré gaussien. Sa largeur radiale est ajustée à l'aide de quadrupôles magnétiques. Son centre décrit un cercle dont le diamètre est ajusté à l'aide du courant injecté dans un wobulateur qui consiste en l'association de deux dipôles magnétiques, un agissant sur l'axe horizontal et l'autre sur l'axe vertical. La fréquence d'oscillation du courant injecté est de 20 Hz. Un déphasage de 90° entre courants des dipôles conduit l'axe du faisceau à décrire un cercle sur la cible.



Figure 3.11 – Schéma de principe simplifié de la ligne du faisceau primaire. Q17 est le dernier quadrupôle magnétique pour donner au faisceau sa section finale, PR14 est un profileur qui contrôle la forme du faisceau, et le wobulateur fait tourner le faisceau primaire sur la cible.

3.4.2 Détermination des paramètres du wobulateur et distance cible source maximale via une méthode Monte-Carlo

On cherche les paramètres du wobulateur qui permettent de minimiser la puissance surfacique maximale déposée par le faisceau primaire tout en maximisant la transmission des noyaux de Rb radioactifs.

Avoir une puissance surfacique homogène va permettre de maximiser l'intensité faisceau sur la cible en minimisant les risques de destruction et donc de maximiser la production d'isotopes de Rb. Trois paramètres doivent être considérés : la distance cible-fenêtre d'entrée, la taille du faisceau primaire et le rayon de wobulation.

Un code utilisant une méthode de Monte-Carlo a été développé. Il utilise les données issues de la simulation LISE++ comme entrées, à savoir la proportion du faisceau primaire déposé dans chaque épaisseur qu'il traverse (cible, fenêtre d'entrée et catcher), la dispersion en angle du faisceau de Rb en sortie de cible et enfin les réglages du wobulateur (taille du faisceau primaire et rayon de wobulation). Avec ces paramètres d'entrée, il calcule la distribution de la puissance surfacique sur cible (qui sera utile aux simulations thermiques) et la proportion des ions Rb traversant la fenêtre d'entrée.

Ce code se base sur les hypothèses suivantes :

- La dispersion angulaire des ions radioactifs en sortie de cible a un profil gaussien fourni par LISE++
- 2. Le profil du faisceau primaire est supposé gaussien.
- 3. Les trajectoires des ions du faisceau primaire sont parallèles les unes aux autres et les ions ne sont pas déviés quand ils traversent la cible et la fenêtre d'entrée.

Le code Lua est disponible en annexe B. Son principe de fonctionnement est le suivant. Le nombre d'ions du faisceau primaire est divisé en 1 million d'ions, chacun emportant avec lui un

millionième de la puissance du faisceau. Un jeu de coordonnée (x,y) est généré pour chaque ion en suivant les distributions circulaires du wobulateur et gaussiennes du faisceau primaire. La figure 3.12 montre à titre d'exemple le tirage aléatoire avec et sans wobulateur.



Figure 3.12 – Exemple de génération aléatoire suivant une gaussienne 2D (à gauche, $R_{wobu} = 0$, Ecart-type = 7 mm) et une gaussienne 2D avec la wobulation (à droite, $R_{wobu} = 8$ mm, Ecart-type = 3 mm).

Le nombre de points obtenus par unité de surface est ensuite représenté sous forme la puissance surfacique reçue, en fonction de la distance au centre de la cible(figure 3.13). Quatre réglages du faisceau primaire sont comparés et montrent que l'usage du wobulateur permet une réduction de 30 % de la puissance surfacique maximale reçue par la cible.



Figure 3.13 - Résultats de la puissance surfacique pour différents réglages faisceaux. R_{wobu} correspond au rayon du wobulateur et sigma correspond à l'écart-type de la largeur du faisceau primaire. La puissance est calculée pour un faisceau de 500 W. Les distributions de la puissance surfacique absorbée par la cible, la fenêtre d'entrée et le catcher sont obtenus avec les pourcentages du tableau 3.1.

Ce code calcule aussi l'efficacité de transmission des ions Rb entre la sortie de la cible et la fenêtre d'entrée. Pour chaque ion du faisceau primaire généré, la trajectoire d'un ion Rb est calculée. Son angle d'émission est généré aléatoirement en suivant une loi gaussienne de la dispersion angulaire dont la largeur est prédite par LISE++. L'ion se déplace en ligne droite de la cible jusqu'à la fenêtre d'entrée, et le code vérifie si l'ion Rb parvient ou pas à atteindre la fenêtre en fonction de sa position initiale en sortie de cible et de la forme de la fenêtre d'entrée ainsi que de la distance cible-fenêtre.

Des calculs sont effectués pour une distance cible-fenêtre de 27 et 60 mm. L'efficacité de transmission est calculée en utilisant les réglages faisceau présentés figure 3.13 et avec une dispersion angulaire du Rb de 23° à mi-hauteur. On obtient une efficacité de transmission d'environ 78 % pour 60 mm de distance et d'environ 93 % pour une distance de 27 mm.

Ce résultat montre que pour la production du Rb, une distance de 27 mm est préférable du point de vue de la cinématique des ions Rb, bien qu'une distance de 60 mm ne diminue l'efficacité de transmission que de 15 %. La configuration à 60 mm aurait l'avantage de réduire l'influence thermique de la cavité sur la cible, et donc de compenser cette efficacité légèrement réduite en permettant l'envoi de plus de faisceau sur cible. Cet aspect thermique est évalué dans la partie ci-après.

3.5 Conception thermique

Des simulations sont effectuées avec le logiciel ANSYS (https://www.ansys.com/), un logiciel de simulation multiphysique. Les simulations utilisent en données d'entrée la géométrie des différentes configurations à tester, les propriétés des matériaux fournis dans la table 3.2 ainsi

que les puissances faisceaux calculées précédemment (voir 3.4).

Les simulations thermiques de l'ECS TULIP alcalins donnent la température des différents composants de l'ECS en fonction de la configuration mécanique, de la puissance et du profil du faisceau primaire, du courant de chauffage et des propriétés des matériaux qui composent l'ECS (voire tableau 3.2). Ces simulations ont été en grande partie menées dans le travail de thèse de V. Kuchi [2], dans une configuration légèrement différente.

L'objectif de ces simulations est de vérifier la faisabilité de la nouvelle configuration avec cible déportée et séparée de la cavité source de TULIP. On s'intéresse particulièrement à l'influence de la distance cible-source sur la température de la source.

			Rési	stivité	Cor	ductivité
Matériaux	Émis	ssivité	électrique		thermique	
			(ohm.m)		(W/m-K)	
	à 20°C	à 2000°C	à 20 °C	à 1400 °C	à 20 °C	à 1400 °C
Nickel	0,1-0,2	0,1-0,2	7,20E-08	6,00E-07	90,7	80
Tantale	0,21	0,28	1,30E-07	6,00E-07	57	73
Aluminium	0,3	0,3	5,10E-08		134	150 (180°C)
Inox 304L	0,4	0,4	7,20E-07		16,2	
Papyex	0,4 (400°C)	0,6 (1000°C)	1,00E-05	1,00E-05	135	55
DLC	0,4	0,4	1,00E-05	1,00E-05	135	55

Table 3.2 – Données matériaux utilisées pour les simulations électro-thermiques.

3.5.1 Configurations mécaniques étudiées

Les figures 3.14 et 3.15 montrent les deux configurations thermo-mécaniques étudiées. La première est celle avec la cible placée à une distance de 27 mm de la fenêtre d'entrée, maintenue en place par une structure en graphite accroché à la cavité source par deux vis en graphite. Cette configuration implique qu'une partie de la chaleur de la cavité est transférée par conduction au cadre support de la cible.



Figure 3.14 – Vue en coupe de la configuration 27 mm de distance entre la cible et la fenêtre d'entrée.

La deuxième est celle avec une distance de 60 mm, avec la cible accroché à la chambre à vide via un anneau en aluminium. Cette configuration présente l'avantage de suspendre la cible dans un cadre refroidi par contact avec la chambre, et de placer la cible au fond d'un orifice refroidi d'environ 30 mm de long.



Figure 3.15 – Vue en coupe de la configuration 60 mm.

Ces configurations ont été choisies, car elles permettent de ne pas apporter de modifications à la chambre à vide, ce qui permet une mise en œuvre rapide. La configuration à 27 mm présente l'inconvénient de coupler la cible par conduction thermique avec la cavité, ce qui contribue à élever la température de la cible. La configuration à 60 mm permet d'éloigner et de refroidir la cible. De plus, elle peut être mise en œuvre simplement en modifiant l'anneau de centrage. Cette configuration a donc été retenue.

3.5.2 Simulations thermiques

Le résultat de la simulation pour la configuration 60 mm est présenté sur les figures 3.16, 3.17, 3.18 et 3.19. La cavité de la source dissipe une puissance électrique de 1900 W sous un courant de 400 A. La puissance du faisceau est de 150 W. La puissance reçue par la cible, la fenêtre d'entrée et le catcher utilisent les résultats calculés précédemment dans la partie 3.4.



Figure 3.16 – Résultats des simulations électro-thermiques pour 150W de puissance faisceau, 400 A et 1900 W de puissance electrique de chauffage, dans la configuration 60 mm.



Figure 3.17 – Même simulation, température de la cible. La température maximale est de 958 °C. Puissance du faisceau absorbée = 112 W



Figure 3.19 – Température du catcher. La température maximale est de 1358 °C. Puissance du faisceau absorbée = 370 W



Figure 3.18 – Température de la fenêtre d'entrée en DLC de 2 μ m. La température maximale est de 1090 °C dans sa zone utile. La temperature maximale est obtenue au contact des pieces en graphite de la cavité. Puissance du faisceau absorbée = 18 W

Ces résultats illustrent l'effet important qu'a le faisceau primaire sur la température du catcher. La différence de température entre le centre du catcher et de sa périphérie est de l'ordre de 100 °C, différence quasi absente sur la fenêtre d'entrée, car elle n'absorbe que 3 % du faisceau primaire, contre 74 % pour le catcher. Le point le plus incertain de cette simulation est la température de la fenêtre d'entrée, à cause l'incertitude importante sur son émissivité. Cette dernière n'a pas été trouvée dans la littérature dans la plage de températures de fonctionnement de l'ECS.

Une autre simulation a également été effectuée avec comme différence l'absence de faisceau primaire, et on obtient alors une température maximale de la cible de 340 °C. À 60 mm, la cible est donc quasiment completement découplée thermiquement de la cavité TULIP.

3.5.3 Test thermique

Un test thermique de la cavité TULIP a été réalisé. L'objectif principal était de vérifier la tenue en température des différents composants de l'ECS, notamment de la fenêtre d'entrée en DLC, car c'est un matériau qui n'avait jamais été utilisé dans SPIRAL1. Ce test permet de calibrer la température de la cavité en fonction du courant de chauffage, et de comparer ces expérimentaux avec la simulation.

Ce test a été réalisé sur le banc de test de SPIRAL1. Le banc reproduit les conditions de la casemate ¹ dans lesquelles l'ECS se trouve pour la production de faisceaux radioactifs. Il est constitué d'un système de vide, d'alimentations électriques de puissance et de plusieurs circuits de refroidissement à eau. L'ECS a été testé avec une fenêtre d'entrée en DLC de 2 μ m d'épaisseur et avec une cible en Ni naturel de 4 μ m d'épaisseur. La cible était placée à une distance de 16 mm de la cavité source (voir figure 3.20), car le test thermique a été fait avant de prendre la décision de placer la cible à 60 mm pour la découpler thermiquement de la cavité.

^{1.} Casemate de production : nom de l'endroit où les ECS sont placés pour être irradiés par le faisceau primaire pour produire des faisceaux d'ions radioactifs.



Figure 3.20 – ECS TULIP avant le test thermique. Les trous dans la cible permettent des mesures optiques de température de la fenêtre d'entrée et de la bride en graphite qui la maintient.

3.5.3.1 Méthode de mesure

Les mesures de températures sont effectuées avec un pyromètre à disparition de fil chaud. Cet instrument permet la mesure de températures de surface rayonnant dans le spectre visible, c'està-dire à partir d'une température supérieure à environ 800 °C. Pour effectuer une mesure précise, il faut fournir au pyromètre la valeur de l'émissivité de la surface observée. Pour chaque pas en température du DLC, deux mesures sont donc réalisées avec des émissivités de 0,5 et 0,3.

Le pyromètre est placé en vis-à-vis de la cible à environ 50 cm, la mesure se faisant à travers un hublot en verre. La cible est percée de trous de 4,5 mm. Il est ainsi possible de mesurer la température du graphite de la cavité, de la fenêtre d'entrée et de la cible à chaque pas de la puissance de chauffage.

3.5.3.2 Résultats

La figure 3.21 montre l'ECS pendant le test thermique. La cible étant à une température plus basse, elle émet moins de lumière que la fenêtre d'entrée qui rougeoie à l'arrière-plan.



Figure 3.21 – Photo de l'ECS TULIP pendant le test thermique vu à travers le hublot. La cible est visible au premier plan, avec une déchirure qui commence à se développer sur le trou central.

Le test thermique a dû être interrompu au bout d'un peu plus de 24 h, car la cible commençait à présenter des signes de déchirements autour des trous. Ces déchirements sont provoqués par la contraction du Ni de la cible. Ce comportement avait été constaté antérieurement, et cette contraction semble induite par la cristallisation du Ni [27].

Ce test a montré qu'une cible de Ni pur ne peut pas supporter d'être portée à une température de 900 $^{\circ}$ C pendant 24 h.



Figure 3.22 – Températures de la cible (TNi), de la fenêtre d'entrée (TDLC) et du graphite (TC) de l'ECS TULIP en fonction de la puissance absorbée par l'ECS. Le courant maximal est de 341 A à 1926 W. ε correspond à l'emissivité utilisée pour la mesure de température.

La fenêtre d'entrée en DLC a survécu à un chauffage à 1100-1150 °C pendant 24 h. Au contraire de la cible en Ni, le DLC s'est détendu avec le chauffage, ce qui a provoqué un affaissement de 2 mm de la fenêtre dans la cavité. Des mesures de masse du DLC effectuées avant et après le chauffage n'ont pas montré de différences significatives, ce qui indique que l'évaporation du DLC est inférieure à 2 % (précision de la mesure). Ces résultats encourageants suggèrent que le choix du DLC comme fenêtre d'entrée est adapté à l'ECS TULIP, et devrait pouvoir conserver son intégrité pendant plusieurs jours. Cependant, la température de la cavité pourra être supérieur à 1150 °C, et la dégradation de la feuille sous l'impact du faisceau primaire n'a pas été prise en compte.

3.5.4 Cible Mo-Ni-Mo

La cible de l'ECS TULIP alcalin est constituée d'une feuille de nickel recouverte de molybdène des deux côtés². L'utilisation d'une cible multicouches Mo-Ni-Mo est motivée par la tenue thermique insuffisante d'une cible de nickel pur. Le test thermique présenté dans la section 3.5.3 a conduit à une durée de vie d'environ 24 h à une température de 900 °C, température inférieure à celle prévue lorsque la cible sera irradiée par 150 W de faisceau primaire (1120 °C).

Le choix du Mo est justifié dans l'article [27]. L'idée est de réduire l'évaporation du Ni en la recouvrant d'un métal ayant un point de fusion beaucoup plus élevé (2623 °C). Le coefficient de

^{2.} Le dépôt de Mo a été effectué par pulvérisation cathodique par l'entreprise KERDRY (https://kerdry.com/).

diffusion du Ni dans le Mo $(5.10^{-14} \text{ cm}^2/\text{s} \text{ à } 1300 \text{ °C})$ étant beaucoup plus faible que le coefficient de self diffusion du Ni $(5.10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s} \text{ à } 1300 \text{ °C})$ [28].

Un autre critère de choix du Mo a été sa masse, suffisamment éloignée du Ni pour limiter la contamination isobarique. La fusion du molybdène avec le noyau du faisceau primaire produira un noyau composé de masse suffisamment éloignée (10 nucléons de plus au moins) de celui produit par la fusion du faisceau avec le Ni.

Un dernier critère de sélection du Mo est lié aux contraintes de radioprotection de SPIRAL1. Pour ne pas produire d'atomes radioactifs émetteurs alpha, on se limite aux éléments de la cinquième période. Dans cette période, le Mo est celui qui le point de fusion le plus élevé.

Le nickel utilisé pour la cible est du Ni naturel, c'est-à-dire non purifié isotopiquement. L'isotope le plus léger, le ⁵⁸Ni, est le plus présent avec 68 % d'abondance naturelle. Une cible isotopiquement pure de ⁵⁸Ni pourra être utilisée lorsque l'ECS TULIP sera mis au point.

3.6 Production d'ions Rb⁺

L'ECS TULIP a été testé en ligne pour la production de faisceaux d'ions radioactifs de rubidium de la masse 74 à 78. L'objectif de cette expérience était de caractériser les performances de production de l'ECS, ainsi que de mesurer le temps de réponse de l'ECS. Ces deux mesures servent à valider le concept de TULIP, c'est-à-dire de produire des faisceaux d'ions radioactifs avec une efficacité d'ionisation élevée dans le cas d'isotopes de courte durée de vie.

3.6.1 Description de l'expérience

L'ECS est placé dans la casemate de production de SPIRAL1. Un faisceau de ²⁰Ne en provenance des cyclotrons du GANIL est envoyé sur la cible. L'énergie du faisceau est de 4,5 MeV/A à une intensité maximale de 6,9E12 pps, ce qui correspond à une puissance maximale envoyée sur cible de 100 W. Les paramètres du wobulateur correspondent à l'optimale déterminée dans la partie 3.3, avec $R_{wobu} = 8$ mm et une largeur de faisceau avec un écart-type de 4,5 mm.

Le faisceau d'ions Rb⁺ radioactifs produit par l'ECS est accéléré par une tension proche de 8 kV qui est ajustée de façon à conserver une même rigidité magnétique pour tous les isotopes du Rb⁺. Il est ensuite transporté dans la ligne basse énergie où il est séparé en masse par les dipôles magnétiques de la ligne. Le faisceau est ensuite envoyé vers deux instruments de mesures : une station de décroissance gamma pour la mesure de taux de production, ou vers GASTRO, un instrument qui mesure le débit d'ions au cours du temps, utile pour les mesures de temps de réponse.



Figure 3.23 – Schéma de l'installation SPIRAL1.

3.6.2 Taux de production mesurés par la station d'identification gamma de SPIRAL1

Les taux de production des ions Rb⁺ de la masse 74 à 78 sont présentés dans le tableau 3.3. Ils sont mesurés par la station d'Identification Basse Energie (IBE), dispositif dont une description détaillée est donnée dans [29].

Les ions radioactifs sont séparés et implantés sur une bande de PET (polytéréphtalate d'éthylène) aluminisée. En face de la zone d'implantation se trouve un détecteur germanium à haute précision. Les raies caractéristiques mesurées par le détecteur permettent l'identification des noyaux présents sur la bande, ainsi que le taux d'implantation T (en particules par seconde) du faisceau sur la bande, calculé par la formule : $T = I_{sat}/(P_{\gamma}\varepsilon_{det})$. I_{sat} correspond au nombre de coups par seconde dans l'un des photopics caractéristiques du noyau se désintégrant, P_Y est la probabilité que ce pic soit émis pour une désintégration et ε_{det} est l'efficacité de la détection pour la longueur d'onde de ce photopic.

Une fois la mesure effectuée, la bande est déplacée par un moteur, ce qui permet d'exposer au faisceau une portion de bande exempte d'activité, et d'éviter que de la radioactivité ne s'accumule pendant les expériences, ce qui pourrait nuire à la mesure en augmentant le bruit de fond.

Table 3.3 – Intensités maximales des faisceaux de Rb mesurées dans la station d'identification gamma de SPIRAL1. Mesures effectuées pour une puissance faisceau primaire de 100 W, faisceau de 20 Ne @ 4,5 Mev/A.

Masse Rb	Intensité (pps)
74	17
75	1.5E+04
76	2.6E+04
77	1.9E+05
78	1.3E+05

Les taux mesurés ont été reproductibles tout au long de l'expérience, ce qui permet de conclure que l'ECS n'a pas été dégradé au cours de l'étude en ligne.

L'intensité de ⁷⁴Rb est trois ordres de grandeurs plus faible que les isotopes 75 à 78. Cette différence peut s'expliquer par une section efficace de production plus faible, et/ou par des pertes par décroissance plus importantes. Étant donné la faible demi-vie du ⁷⁴Rb (65 ms) par rapport à celle des isotopes de masse supérieures (19 s ou plus), les pertes par décroissance sont nécessairement plus importantes pour le ⁷⁴Rb.

3.6.3 Mesure de temps de réponse

Des mesures de temps de transformation des atomes en ions ont été effectuées, en utilisant la méthode "beam-on beam-off". Le principe de la mesure est présenté sur la figure 3.24.



Figure 3.24 – Principe de la mesure de temps de réponse de l'ECS TULIP par la méthode "beam-on beam-off".

L'intensité du faisceau est régulièrement hachée. Le faisceau d'ions en sortie d'ECS est accéléré et séparé en masse par un système de dipôle magnétique et de fentes. Le faisceau ainsi sélectionné est envoyé vers le système GASTRO, capable de compter le nombre d'ions incidents. Les impulsions générées sont ensuite converties en signal TTL, puis transformées via un circuit électronique passif qui génère une tension proportionnelle à la fréquence d'ions détectés. Le signal est enregistré sur un oscilloscope, qui réalise une moyenne glissante sur plusieurs dizaines de périodes beam-on beam-off afin de réduire le bruit.

Le dispositif qui mesure les ions, appelé GASTRO, est décrit dans [30]. Les ions à basse énergie percutent une feuille de Mylar aluminisée, ce qui provoque l'émission d'électrons secondaires. Ces électrons sont accélérés par une différence de potentiel d'environ 3000 V, pour être ensuite collectés et amplifiés sur une galette de microcanaux. Le signal est converti en impulsion TTL pour l'adapter à la chaine d'électronique d'aquisition.

La réponse en temps de l'ECS semble constituée de la superposition de deux composantes, une composante rapide dont le temps caractéristique est inférieur à 1 ms et une composante lente dont le temps caractéristique est de quelques secondes. Un exemple est donné figure 3.25 pour la transformation du ⁷⁷Rb en ⁷⁷Rb⁺. La période de hachage du faisceau primaire était de 40 ms. À cette échelle de temps, les deux composantes de la réponse en temps apparaissent clairement.



Figure 3.25 – Exemple de temps de réponse dans l'ECS pour la transformation du ⁷⁷Rb en ⁷⁷Rb⁺.

L'analyse menée sur l'origine de ces composantes a conduit à proposer le scénario suivant pour l'expliquer.

L'envoi du faisceau primaire sur la cible et sur l'ECS induit simultanément la production de

noyaux radioactifs de Rb et une augmentation de température du catcheur estimée à ~ 100 °C.

Les noyaux de Rb produits sont implantés dans le matériau du catcheur (Papyex). Ils diffusent en dehors du matériau, effusent, sont ionisés et émergent de l'ECS après un temps relativement long (environ 4 s) qui correspond à la composante lente de la réponse. A une température de cavité proche de 1200 °C, le temps de réponse est cohérent avec le temps caractéristique déduit des mesures effectuées par J. Guillot [25]. Que la composante lente de la réponse ne puisse être correctement ajustée qu'à l'aide d'une fonction caractéristique d'un processus de diffusion, et que le temps caractéristique qui en est extrait soit cohérent avec les mesures de J. Guillot indique que la composante lente du temps de relâchement est principalement gouvernée par la diffusion des noyaux dans le Papyex.

Les composantes lente et rapide résultent toutes les deux de la convolution du temps de réponse de la chaine électronique ($420 \,\mu s$) et du processus de relâchement des ions en dehors de la cavité. Mais dans le cas de la composante rapide, le temps de réponse de la chaine électronique n'est plus négligeable, car les temps caractéristiques des composantes rapides sont tous inférieurs à 1 ms (voir figure 3.26).



Figure 3.26 – Temps caractéristique de la variation du taux pour les modes Beam Off-Beam On et Beam On-Beam Off en fonction de la masse des isotopes de Rb. Temps extrait de l'ajustement réalisé dans les 5 premières millisecondes. Période de hachage du faisceau : 40 ms. Puissance du faisceau primaire : 105 W et 35 W. Erreur relative sur la détermination du temps inférieur à 1 %.

Le temps minimum de la composante rapide est donc fixé par l'électronique. Il peut être allongé par le temps de relâchement des ions, qui peuvent être des ions stables déjà présents dans la cavité, et/ou des ions radioactifs. Si le taux d'ions radioactifs est faible par rapport au taux d'ions stables, l'écart entre temps électronique et temps mesuré sera principalement dû au temps de relâchement des ions stables. C'est le cas du temps mesuré à la masse 74 à laquelle le taux de 74 Rb⁺ mesuré est faible (17 pps) comparé au taux d'ions stables (~6E3 pps). A contrario, si le taux d'ions radioactifs est important par rapport au taux d'ions stables, l'écart entre temps électronique et temps mesuré sera principalement dû au temps de relâchement des ions radioactifs. C'est le cas à la masse 75, à laquelle le taux de 75 Rb⁺ mesuré est important (1.5E4 pps) comparé au taux d'ions stables (~5E+3 pps). L'écart en temps sera donc plus important, car augmenté par le processus de diffusion des ions radioactifs en dehors du catcheur.

La figure 3.26 montre aussi l'effet de la présence du faisceau primaire sur le temps de relâchement. Lorsque le faisceau est présent sur l'ECS et est instantanément arrêté (Beam ON-OFF), les temps de relâchement sont plus courts que dans le cas où le faisceau est absent puis est envoyé sur l'ECS (Beam OFF-ON). Cette différence de temps est attribuée à la température de l'ECS, plus élevée en début de mode Beam ON-OFF qu'en début de mode Beam OFF-ON.

Cette différence de temps est encore plus marquée pour une puissance de faisceau primaire de 35 W que pour une puissance de faisceau primaire de 105 W, et les valeurs absolues de temps de relâchement sont aussi plus élevées (mesurées à la masse 76).

Enfin, la seule masse à laquelle l'écart entre le temps mesuré en présence et en l'absence du faisceau primaire est négligeable est la masse 74, masse pour laquelle le taux d'ions radioactifs ⁷⁴Rb⁺ est très faible par rapport au taux d'ions stables. Il paraît donc cohérent que l'influence de la variation de température induite par le faisceau sur le temps de relâchement du ⁷⁴Rb en dehors du catcheur ne soit pas perceptible sur la mesure du temps.

Le temps caractéristique de transformation des atomes de Rb en ions mesuré lors de cette étude est de l'ordre de 4 secondes. Ce temps peut être comparé au temps mesuré par V. Kuchi qui injectait des ions Rb+ à une énergie de 1 keV dans la cavité TULIP et observait leur temps de sortie. Pour une température de cavité proche, comprise entre 1200 °C et 1300 °C, le temps était de l'ordre de 20 ms. Bien que significativement plus court que le temps mesuré pour les ions radioactifs (~4 s), ces temps restent compatibles si l'on considère que les ions injectés à 1 keV étaient arrêtés en surface du catcheur, donc n'avaient que quelques couches atomiques à traverser avant d'être relâchés en dehors du catcheur. Alors que les noyaux radioactifs en provenance de la cible ont une énergie de 80 keV, ce qui leur permet de pénétrer plus profondément la matière du catcheur, et les amène à être relâchés plus lentement.

Il est donc nécessaire d'augmenter la température de la cavité pour diminuer les temps de transformation et augmenter l'efficacité de production des noyaux de courte durée de vie. La figure 3.27 montre l'évolution du temps de relâchement déduit des mesures de J. Guillot.



Figure 3.27 – Temps caractéristique de relâchement $T_D (= ln(2)/\lambda_D)$ en fonction de la température. Courbe bleue : Temps de diffusion calculé à partir d'une extrapolation à plus haute température des paramètres de diffusion mesurés par J. Guillot pour le Rb dans le Papyex. Les courbes Max. et min. ont été tracées à partir des barres d'erreurs fournies sur ces valeurs. Le triangle correspond au temps de relâchement extrait de la présente étude.

A 1200 °C, l'efficacité de transformation déduite pour le 74 Rb⁺ est estimée à 12 %. A 1500 °C, cette efficacité devrait être de 54 %.

Ce gain en efficacité d'un facteur 4 reste insuffisant pour atteindre un taux de production de l'ordre de 1E+4 pps espéré par extrapolation à la masse 74 de l'évolution des taux de production des masses 78 à 75, et qui permettrait au dispositif TULIP de rivaliser avec la production de ⁷⁴Rb⁺ obtenue à ISAC/TRIUMF (figure 3.28). Cependant, comme montré au chapitre 4, le temps de transformation des atomes de Rb en ions est principalement gouverné par l'effusion. Il est donc raisonnable de penser qu'une augmentation de température destinée à accélérer le processus de diffusion contribuera aussi à accélérer le processus d'effusion.



Figure 3.28 – Taux de production des ions ^{74 à 78}Rb⁺ obtenus avec TULIP alcalins à SPIRAL1 (croix rouges) et mesurés à l'aide du taux et de la signature gamma des ions collectés dans le système d'identification. Croix bleues : taux produits à ISAC/TRIUMF (https://yield.targets.triumf.ca/search/yield/data). Les taux Max. et min. sont déduits des mesures de temps de transformation.

Difficile à ce stade de donner un facteur d'amélioration. Un nouveau test devra être réalisé en ligne pour l'évaluer, test qui consistera à observer l'évolution du taux de production du ⁷⁴Rb⁺ en fonction de la température de la cavité. La cavité étant uniquement réalisée à base de matériaux en carbone pur (catcheur en feuille de graphène ou Papyex, corps en graphite dur et fenêtre d'entrée en Diamond Like Carbon), une température de fonctionnement située entre 1500 °C et 2000 °C devrait être accessible.

La figure 3.28 montre une importante différence de l'évolution des taux de production en fonction de la masse de l'isotope dans le cas d'une production par réaction de spallation (ISAC) et dans le cas d'une réaction par fusion évaporation (TULIP/SPIRAL1). Dans le cas de la spallation d'une cible de Nb bombardée par un faisceau de protons de 500 MeV sous une intensité de plusieurs dizaines de μ Ae (correspondant à une puissance de faisceau primaire comprise entre 5 et 50 kW), le taux de production des ions Rb+ décroit de 6 ordres de grandeur de la masse 78 à la masse 74. Dans le cas de la réaction de fusion-évaporation utilisée dans TULIP, obtenue à l'aide d'un faisceau primaire de ²⁰Ne à une énergie de 4,5 MeV/A et sous une intensité de ~1 μ Ap (correspondant à une puissance de 100 W) le taux de production des ions Rb+ ne décroit que d'un ordre de grandeur de la masse 78 à la masse 75. Outre l'espoir que cela offre de produire des ions ⁷⁴Rb⁺ en quantité plus importante (moyennant une optimisation du relâchement par TULIP), cette comparaison montre l'efficacité du dispositif TULIP en terme d'ions radioactifs produits par watt de faisceau primaire pour la production d'isotopes déficients en neutrons de courte durée de vie, objectif du projet ANR TULIP. Cette efficacité constitue un atout à exploiter pour une installation comme SPIRAL1 qui dispose d'une gamme très large de faisceaux primaires et d'énergies.

3.6.4 Démontage de l'ECS en boîte à gant

Compte tenu de la faible activité artificielle générée lors de l'irradiation de l'ECS par le faisceau primaire de ²⁰Ne à 4,5 MeV/A sous 1 μ A, l'ECS a été démonté en boite à gants 6 mois après son irradiation. Le débit d'équivalent de dose à 10 cm de la cible était alors de 0.08 μ Sv/h. Les figures 3.29 et 3.30 montrent les photos de la cavité et de la cible lors du démontage.



Figure 3.29 – Fenêtre en DLC après mise à l'air de l'ECS. Le déchirement de la fenêtre en DLC est attribué à une mise à l'air brutale de l'ECS après l'étude en ligne.


Figure 3.30 – Cible TULIP après 24h d'irradiation.

La fenêtre d'entrée de la cavité est déchirée au démontage, ce que l'on explique par une aération trop rapide de l'ECS, car l'endommagement est différent de celui causé par une pulvérisation par un faisceau d'ions. À part cette déchirure, elle semble en bon état, sans trou apparent.

La cible a, elle aussi, résisté à l'irradiation. Elle n'est pas percée, bien qu'elle a visiblement changé. Son aspect est passé de brillant à terne, sans doute causé par une cristallisation due à la chaleur. La cible est restée brillante au niveau de ses fixations, car refroidie par conduction. La cible parait s'être rétractée pendant l'irradiation, et de façon non homogène. Cette observation pose la question : le faisceau primaire était-il bien centré et réglé?

3.7 Conclusions

L'ECS TULIP alcalins a été étudié dans ce chapitre. La conception de la source a été modifiée : la cible et de la cavité sont maintenant séparées.

Une étude de la thermique et de la cinématique des ions produits a été menée. Elle a montré qu'en plaçant la cible à une distance de 60 mm, on découple thermiquement la cible et la cavité, tout en maintenant une transmission correcte des ions de recul produits dans la cible.

Le test en ligne a montré que l'ECS est capable de produire des faisceaux de Rb allant de la masse 75 à 78, et ce, de façon reproductible sur une durée de 24 h.

Enfin, les mesures de temps de transformation des atomes en ions montrent que la température de la cavité est trop faible, ce qui ralentit la sortie du Rb, et empêche une production efficace du

 $^{74}Rb^{+}$.

La prochaine étape consistera à tester la possibilité de faire fonctionner l'ECS à plus haute température (1500 °C à 2000 °C) puis à tester ses performances de production en ligne.

Chapitre 4

Système de production FEBIAD/VADIS à SPIRAL1

4.1 Introduction

Au début de ma thèse, j'ai contribué à l'amélioration et à la fiabilisation de l'ECS FEBIAD pour SPIRAL1. Lorsque je suis arrivé, le système de production n'était pas encore assez fiable pour produire un faisceau d'ions radioactifs de manière stable. En effet, les tests hors ligne ont révélé une efficacité d'ionisation de l'argon d'environ 3 %, pour une dure de vie de quelques jours avant de décliner. L'efficacité était en deçà de celle obtenue par d'autres installations dans le monde utilisant la FEBIAD, qui parvenaient à atteindre des efficacités d'environ 10 % pour l'argon. Augmenter l'efficacité d'ionisation de cet ECS était donc une priorité pour le GANIL, avec pour objectif une valeur proche de 10 %. Obtenir une durée de vie de deux semaines était le second objectif pour répondre aux exigences d'opération.

Ma participation à ce travail est justifiée par les fortes similitudes entre l'ECS FEBIAD et mon sujet de thèse qui porte sur la création d'un système d'ionisation d'éléments métalliques pour TULIP. En effet, ces deux ECS utilisent le même processus d'ionisation : l'impact électronique, dans le but de produire des éléments condensables, ce qui implique des contraintes similaires de fonctionnement à haute température, et la mise en œuvre de techniques proches. Enfin, l'environnement dans lequel ces ECS sont utilisés est le même : le banc de test est identique, et la casemate de production est la même. Il était important que j'y consacre quelques mois. Les modifications auxquelles j'ai contribué m'ont permis d'acquérir le savoir-faire nécessaire pour le montage des ECS. Les tests effectués pour caractériser le comportement de la FEBIAD m'ont également fourni une précieuse expérience dans l'utilisation de l'instrumentation associée aux tests d'ECS (spectromètre de masse, alimentations haute tension, interface de commande du banc de test).

Cette section est consacrée à la source de l'ECS. Bien que la cible ait également été modifiée, elle ne présentait pas de problèmes de fiabilité, ce qui explique pourquoi ce sujet n'est pas abordé.

4.1.1 Principe de fonctionnement de la source FEBIAD

La FEBIAD a connu plusieurs versions depuis la publication du premier article par R. Kirchner [31] en 1976. Dans cette étude, nous nous concentrons sur la version utilisée à SPIRAL1 : la version VADIS [32] (Versatile Arc Discharge Ion Source), qui est une évolution de la version MK5 (figure 4.1).



Figure 4.1 – Vue en coupe de la source FEBIAD VADIS fournie par le CERN. Ses principaux composants sont : cathode (14), container source (2), écrans thermiques avant (9), chambre source (3), écrans thermiques (10). L'anode est composée d'une grille (5), d'une "électrode plasma" (7) et d'un tube anode (1). L'anode est suspendue et électriquement isolée par 3 ensembles de plots (11), d'isolants (13) et d'écrous (12). La source est reliée à la chambre à vide l'ECS par une bride (8).

Le principe général de la source est le suivant : la cathode en tantale est chauffée, ce qui provoque l'émission d'électrons par effet thermoïonique. Ces électrons sont accélérés par une différence de potentiel en direction de la grille de l'anode. Le faisceau d'électrons pénètre dans l'anode creuse. La source est plongée dans un champ magnétique perpendiculaire à la grille, ce qui limite la divergence du faisceau d'électrons, due à la répulsion coulombienne. De plus, ce champ

magnétique induit des trajectoires hélicoïdales pour les électrons, augmentant ainsi la distance qu'ils parcourent et donc la probabilité qu'ils entrent en collision avec un atome.

Les atomes provenant de la cible effusent à travers le tube de transfert relié à la cathode et pénètrent dans la source. Une fois à l'intérieur, ceux qui sont ionisés par le flux d'électrons peuvent être extraits grâce au champ électrique présent dans l'anode. Ce champ est à la différence de potentiels entre la cathode et l'anode, et à la charge d'espace.

Pour atteindre la température de fonctionnement de la cathode de 1800 °C, nécessaire à l'émission d'un courant d'électrons suffisamment important (environ 100 mA), la cathode est chauffée par effet Joule. Un courant électrique d'environ 300 A circule, entrant par le tube de transfert relié à la cathode (numéro 14 sur le schéma) et sortant par la chambre de la source (numéro 3).

4.1.2 Historique de l'ECS FEBIAD à SPIRAL1

La première version testée à SPIRAL1 (figure 4.2) utilisait la source VADIS en respectant les plans fournis par le CERN. Dans cette configuration, la cible et la source étaient toutes deux rigidement fixées à la chambre de l'ECS, sans possibilité d'expansion entre les points de fixations.



Figure 4.2 – Vue en coupe de la première version de la source FEBIAD couplée à la cible épaisse en graphite de SPIRAL1.

Pendant le premier test, l'ECS a été endommagé par la dilatation des différentes pièces chauffées et particulièrement du tube de transfert, qui exerce une force sur la cible et la source, entraînant la destruction de la cible en graphite. L'augmentation de la longueur du tube de transfert est d'environ 1 mm pour un tube en tantale de 90 mm à une température de 2000 °C. Ce problème de dilatation du tube de transfert n'est pas un problème à ISOLDE, car dans leurs ECS, la cible a une marge de déplacement, qui permet au tube de transfert de se dilater librement.

La configuration de la liaison cible-source de SPIRAL1 étant différente, il a fallu l'adapter pour qu'elle offre une souplesse capable d'absorber la dilatation du tube sans entrainer de dégât.

Cette deuxième version est présentée sur la figure 4.3. La source est fixée au tube de transfert, et le guidage axial de la source est assuré par un système de coulisseau en graphite. Le coulisseau externe mobile est fixé au corps de la source, tandis que le coulisseau interne est fixé à la chambre à vide de l'ECS.

Afin de permettre la circulation du courant sans trop limiter la translation de la source, le courant de chauffage passe à travers des pattes flexibles en tantale reliées au coulisseau externe. Les écrans thermiques en tantale autour de la source sont conservés dans cette version.



Figure 4.3 – Vue en coupe de la deuxième version de la source FEBIAD pour SPIRAL1. La source peut se déplacer selon l'axe du faisceau d'ions grâce à l'ajout de coulisseau.

De plus, la liaison du coulisseau externe à la chambre refroidie via des pattes en Ta réduit la conduction thermique entre coulisseau externe et chambre refroidie. Par rapport à la source du CERN, la dissipation de puissance par conduction est donc nécessairement plus faible. On verra par la suite que cette différence revêt une grande importance. Cette configuration sert de point de départ au travail de modification et de test présenté dans ce chapitre.

4.2 État des lieux et des modifications de l'ECS

Les principaux critères d'appréciation des performances d'un ensemble cible-source sur banc de test, donc hors production d'ions radioactifs, sont l'efficacité de transformation des atomes en ions, le temps de transformation des atomes en ions et la longévité du dispositif dans des conditions thermiques proches des conditions d'exploitation (ECS sous faisceau primaire).

La qualification sur banc de test de l'efficacité de transformation est régime continu est obtenue en faisant le rapport du courant d'ions Ar⁺ en sortie de la source divisé par le flux d'atomes d'Ar injecté au travers d'une fuite calibrée.

Pour maximiser cette efficacité, il est possible de jouer sur les paramètres de fonctionnement de la source qui sont limités à la température de la cathode et à la tension U_{CA} appliquée entre la cathode et l'anode. La température de la cathode et la tension U_{CA} conditionnent le courant d'électrons émis.

La température de la cathode dépend de sa conception et de celle de son environnement. Le tantale est choisi, car son travail de sortie est faible, parce qu'il est relativement aisé à façonner et parce que sa température de fusion est élevée. Sa température de fonctionnement est ajustée à l'aide du courant qui la traverse, et dépend de son environnement (matériaux en vis-à-vis, états de surfaces, réflecteurs). Le seul paramètre ajustable en fonctionnement et qui permet de modifier la température de la cathode est le courant.

La tension U_{CA} peut aussi être ajustée en fonctionnement. Elle permet de modifier le courant I_{CA} d'électrons échangés entre cathode et anode, et d'ajuster l'énergie des électrons. Cette tension a donc aussi une conséquence sur la puissance dissipée dans le système cathode-anode au travers du produit courant d'électrons-énergie des électrons.

L'ionisation des atomes est obtenue en soumettant ces atomes à un flux d'électrons. On s'attend donc à ce que le nombre d'atomes ionisés, et par conséquent l'efficacité d'ionisation augmente avec le courant d'électrons I_{CA} . Et dans le cas idéal où tous les électrons échangés seraient utilisés pour l'ionisation, on s'attend à ce que le nombre d'atomes ionisés soit proportionnel au courant d'électrons.

Un des premiers histogrammes du courant d'ions Ar+ et du courant d'électrons (I_{anode}, figure 4.4) enregistré au début de cette étude montre que cette proportionnalité n'est pas respectée. Le courant d'électrons varie de 67 % alors que le courant d'Ar+ varie de 340 %. D'autre part, les paramètres de fonctionnement ajustables, à savoir tension U_{CA} et courant de chauffage de la cathode ayant été maintenus constants, l'efficacité d'ionisation aurait dû être constante.



Figure 4.4 – Histogramme des courants I_{CA} et I_{Ar^+} enregistré sur 7 h à U_{CA} constante. La puissance $P_{cathode}$ de chauffage de la cathode a été légèrement réduite environ 3 h après le début d'enregistrement de l'histogramme.

Enfin, les premiers tests ont montré l'apparition systématique d'ions Be⁺ et Mg⁺ en sortie de la source, éléments qui sont contenus dans le matériau BeO qui constitue les isolants de l'anode. La production de ces ions a été interprété comme la conséquence de l'exposition des isolants à une température excessive, conduisant à une évaporation de ces éléments. Le Mg n'étant pas un constituant essentiel du BeO, son évaporation pouvait être acceptée. Mais l'évaporation du Be signait une dégradation de l'isolant, sans permettre pour autant de dire à quel terme cette dégradation empêcherait la source de fonctionner.

La dérive du point de fonctionnement était apparemment reliée à une température excessive sans que le lien entre dérive de ICA et I Ar+ et température soit clairement compris.

4.2.1 Instabilité en température de la cathode

La température de la cathode est directement liée à la puissance que la cathode dissipe. Si la structure mécanique de la cathode est stable dans le temps, sa résistance est stable. Sa température doit donc être stable si le courant qui la traverse est stable. Un enregistrement de la valeur du courant en fonction du temps a montré que ce n'était pas le cas (figure 4.5). Le courant présentait des variations de \pm -0.5 A avec une période de \sim 30 min. De plus, sur 17 h, le courant moyen dérivait de plusieurs ampères. Ces variations étaient bien réelles car leurs conséquences étaient observables sur le courant d'électrons I_{CA} échangé entre cathode et anode et sur le courant d'ions Ar+.



Figure 4.5 – Évolution dans le temps du courant de chauffage de la cathode (figure du haut), du courant I_{CA} (figure du bas, courbe rouge) et du courant d'ions Ar^+ (courbe bleue)

L'origine de l'instabilité du courant était due au système de régulation en température de la cathode. Lors de la conception du dispositif d'alimentation de l'ECS, l'hypothèse avait été faite que la température de la cathode devait être stable si la puissance injectée dans le circuit de chauffage de la cathode était stable. Cette hypothèse impliquait que tous les éléments placés en série dans le circuit d'alimentation de la cathode avaient une résistance qui augmentait avec le courant qui les traversait. Une fois que les éléments auraient atteint leur température de fonctionnement, le courant et la tension aux bornes du circuit devaient être stables.

Cela n'est pas le cas car le circuit est composé de plusieurs éléments, dont plusieurs sont à base de graphite (graphite rigide et feuilles souples, dénomination commerciale Papyex) et d'autre de métal. Contrairement aux métaux (comme le Ta de la cathode) dont la résistivité augmente régulièrement avec la température, les matériaux à base de graphite possèdent une résistivité qui diminue avec la température jusqu'à ~ 1500 °C puis qui augmente régulièrement. Certains des éléments du circuit fonctionnent à une température inférieure à 1500 °C, et d'autres à une température supérieure à 1500 °C. Tenter de réguler en température la cathode en régulant la puissance électrique injectée dans le circuit signifie ajuster le couple courant-tension en fonction de l'évolution des résistances des différents éléments du circuit dont certaines sont positives, d'autres négatives, et qui de plus ont des temps de relaxation thermique individuels différents. L'expérience montre que le principe de régulation en puissance de l'ensemble du circuit conduit à des instabilités de courant de chauffage de la cathode, donc à une instabilité du courant d'électrons et d'ions Ar⁺.

La solution a consisté à réguler le courant de chauffage de la cathode plutôt que la puissance globale du circuit. Le courant passant en série dans tous les éléments du circuit, sa régulation a permis de stabiliser la puissance dissipée par la cathode et donc sa température.

4.2.2 Limite d'efficacité d'ionisation liée à la température

Une fois le courant de chauffage de la cathode stabilisée, sa température dépend de la puissance qu'elle dissipe (quelques dizaines de watts) et de son environnement. Par rapport à la configuration de l'ECS du CERN/ISOLDE (voir figure 4.2), l'écrantage de la source de SPIRAL1 est plus important.

Dans le cas de la source d'ISOLDE, en partant de l'intérieur de la source vers l'extérieur, on trouve un premier écran (3) constitué d'un tube en graphite relié à la bride (8). L'écran (3) étant épais, la dissipation de chaleur par conduction vers la bride (8) ne peut pas être négligée. Ensuite, un ensemble de trois écrans en Ta couvre le premier écran (3). Le premier est en contact direct avec le premier écran (3). Il joue un rôle de centreur mécanique des deux autres réflecteurs, mais ne peut pas lui-même jouer le rôle de réflecteur.

Dans le cas de la source de SPIRAL1, toujours en partant de l'intérieur de la source vers l'extérieur, on trouve un premier écran constitué du coulisseau interne en graphite, relié à la chambre de l'ECS. Ce coulisseau étant épais, la dissipation de chaleur par conduction vers la chambre ne peut pas être négligée non plus, comme dans le cas d'ISOLDE. Vient ensuite la partie mobile du coulisseau, qui glisse sur la partie fixe mais n'est contact avec lui qu'au travers de portées limitées sous forme de bagues. Ce coulisseau externe peut donc jouer un rôle de réflecteur, car sa dissipation thermique par conduction est plus faible que celle du coulisseau interne. De plus, le coulisseau externe est traversé par le courant d'alimentation de la cathode (~300 A) qui donne lieu à une dissipation de puissance de ~350 W. Il contribue donc activement à l'élévation de température. Viennent ensuite trois écrans concentriques en Ta, dont le premier est mécaniquement séparé du coulisseau externe qui les supporte. Ces trois écrans peuvent donc tous jouer le rôle de réflecteur. Au final, l'écrantage autour de la cathode, partie la plus chaude de la source, est plus important dans le cas de la source de SPIRAL1 que dans la source d'ISOLDE. Il est donc logique que par proximité, la température des isolants en BeO soit plus élevée.

Ce constat, et la présence de BeO dans le faisceau d'ions ne démontrent pas pour autant qu'une température excessive soit à l'origine de la limitation de l'efficacité d'ionisation et n'expliquent pas pourquoi l'efficacité d'ionisation n'est pas proportionnelle au courant d'électrons I_{CA}.

Six tests consécutifs ont été réalisés pour tenter de comprendre l'origine de ces limitations et y remédier. Les résultats sont en partie regroupés sur la figure 4.6.

Les trois premiers tests ont été réalisés avec l'ECS de la figure 4.3, c'est-à-dire avec tous les écrans et l'orifice d'origine autour du support de l'isolant en BeO. Le but était de faire un état des lieux du fonctionnement avant modifications.

Le premier test a été fait à courant de chauffage cathode fixe, égal à 281 A (points jaunes). Une fois ce courant et la tension d'anode fixés, le courant d'Ar⁺ est enregistré pendant 16 h. Il est libre d'évoluer si les conditions internes de fonctionnement de la source changent. Il augmente d'abord régulièrement avec le courant d'électrons, puis plus rapidement. Pour le courant de chauffage de

la cathode de 281 A, aucune dérive spontanée (c'est-à-dire sans intervention sur les paramètres extérieurs) du courant I_{CA} n'a été observée. Le rapport entre le pourcentage d'efficacité d'ionisation de l'Ar⁺ et le nombre d'électrons était de ~0.8 % /100 mA, puis de ~5 % /100 mA. Ces rapports correspondent à des pentes locales. L'efficacité maximum observée a été de ~3 %.

Le deuxième test a été fait à courant légèrement plus élevé, en l'augmentant de 282.5 A à 286.5 A par pas de 1 A/90 min. Le rapport entre le pourcentage d'efficacité d'ionisation de l'Ar⁺ et le nombre d'électrons était de nouveau de ~0.8 % /100 mA, et l'efficacité maximum observée a été légèrement supérieure à 1 %. Pour ces courants de chauffage de la cathode, aucune dérive du courant I_{CA} n'a été observée.

Le troisième test a été fait pour un courant plus élevé (288 A) laissé constant pendant une durée de 8 h. Le courant d'ions Ar⁺ a régulièrement augmenté alors que le courant d'électrons dérivait jusqu'à ce qu'il atteigne le courant maximum délivré par l'alimentation (250 mA). Le rapport entre le pourcentage d'efficacité d'ionisation de l'Ar⁺ et le nombre d'électrons était encore de ~0.8 % /100 mA jusqu'à ce que I_{CA} atteigne 175 mA. Au-delà, ce rapport est plus difficile à déterminer.



Figure 4.6 – Efficacité d'ionisation de l'Ar en fonction du courant d'électrons I_{CA} pour les différentes conditions d'écrantage et de dimension de l'orifice réalisé dans le coulisseau externe autour du support de l'isolant en BeO. La durée de chaque enregistrement est indiquée.

Il est à noter qu'à la suite de chaque dérive du courant I_{CA} , il n'était plus possible de retrouver les conditions de fonctionnement antérieures en diminuant le courant de chauffage. Une modification du dispositif avait donc eu lieu.

Le quatrième test a été fait en retirant les écrans en Ta pour limiter la température des isolants

en BeO. Le courant de chauffage a été porté de 280 A à 304 A, courant qu'il était auparavant impossible d'atteindre sans entrainer une dérive rapide du courant I_{CA} jusqu'au maximum de l'alimentation. De plus, le rapport entre le pourcentage d'efficacité d'ionisation de l'Ar et le nombre d'électrons a été significativement augmenté, passant de 0.8 % /100 mA à 6.8 % /100 mA. Enfin, une efficacité d'ionisation de 4.4 % a été obtenue pour un courant d'électrons plus faible que les courants d'électrons observés antérieurement, ce qui signifiait qu'auparavant seule une partie des électrons servait à l'ionisation des atomes d'Ar, le reste du courant I_{CA} mesuré étant perdu.

Ce résultat nous a encouragés à renforcer le refroidissement de l'isolant en BeO lors du cinquième test. Le refroidissement serait obtenu par rayonnement en augmentant le diamètre des orifices situés autour des supports d'isolants. Le courant de chauffage de la cathode a alors été porté à 308 A et la source a été laissée dans les mêmes conditions de courant de chauffage cathode et de tension U_{CA} pendant 5 h. Après avoir atteint une efficacité d'ionisation de l'Ar de 6 %, le courant I_{CA} a dérivé jusqu'au courant maximum de l'alimentation sans donner lieu à une efficacité d'ionisation supérieure. Les performances d'ionisation avaient donc été améliorées mais la fuite de courant, attribuée à la détérioration des isolants, apparaissait toujours après une exposition prolongée des isolants à une température qu'ils n'étaient pas en mesure de supporter.

Un ensemble de photos (figure 4.7) prises à la suite des tests précédents montrent des dépôts sur les isolants en BeO, sur les plots en Re et à l'intérieur des écrous qui couvrent les isolants. Ces dépôts sont soupçonnés d'être à l'origine des fuites de courant I_{CA} . Il est cependant difficile de caractériser les courants de fuite que ces dépôts pouvaient induire. À partir du quatrième test, les isolants ont été remplacés entre chaque test.



Figure 4.7 – Photos des isolants et de leurs supports prises après les tests précédents.

Ces observations montrent que les isolants n'étaient toujours pas en mesure de conserver leurs propriétés à la température induite par un courant de chauffage de la cathode 308 A sur une durée supérieure à quelques heures.

Le sixième et dernier test a été effectué avec des orifices élargis à un diamètre de 16 mm autour des supports des isolants (figure 4.8). Cette configuration a permis de minimiser le courant d'électrons nécessaire pour obtenir une efficacité donnée (points verts figure 4.6), ainsi que le courant de chauffage de la cathode (296 A) pour lequel aucune dérive du courant I_{CA} n'a été observée.





Une efficacité d'ionisation de plus de 7 % a été obtenue, pour un courant I_{CA} de moins de 100 mA. De plus, on remarque que dans les conditions de ce test, l'efficacité d'ionisation est quasiment proportionnelle au courant I_{CA} , et que par extrapolation la droite correspondante passe quasiment par l'origine. Cela est interprété comme une absence de courant inutile, ou de fuite.

Un test de plus longue durée a alors été entrepris. L'histogramme du courant d'Ar+ et du courant I_{CA} enregistré est donné figure 4.9.



Figure 4.9 – Historique des courants I_{CA} et I_{CA} Ar⁺ du 24/11/20 8h00 au 27/11/20 à 8h00. Les événements intervenus sont indiqués, ainsi que les intensités du courant de chauffage $I_{cathode}$. Les triangles correspondent au courant total relevé sur les spectres (en nA/20)

On observe qu'après une période de montée progressive du courant de chauffage de la cathode, le courant d'ions Ar^+ se stabilise, voir augmente légèrement alors que le courant d'électrons I_{CA} diminue légèrement. Ce comportement est attribué à une diminution progressive de la pression de gaz résiduel dans l'enceinte de l'ECS.

4.2.3 Comportement du matériau BeO en fonction de la température

On suspecte que la dérive du courant I_{CA} pourrait être causée en partie par la conduction électrique à travers les isolants en BeO. La figure 4.10 montre l'évolution de la résistivité électrique des isolants en fonction de la température, en prenant en compte la résistance volumique et surfacique du BeO dans le vide. À 1400 °C, le courant pouvant passer à travers les isolants est d'environ ~ 10 mA. En extrapolant les données issues de la bibliographie, les isolants devraient être à 1600 °C pour expliquer un courant de l'ordre de 100 mA.



Figure 4.10 – Estimations de la résistivité électrique des trois isolants en BeO en fonction de la température. Valeurs extrapolées au-delà de 1400 °C [33].

L'article de A. W. Pryor [33] explique que les mesures de résistivité ont été effectuées entre 600 °C et 1400 °C, car une température supérieure aurait pu entraîner des "changements irréversibles" aux échantillons de BeO. Il semble donc que la résistivité du BeO puisse être modifiée de manière irréversible par une température supérieure à 1400 °C, une température qu'il ne faudrait pas dépasser dans la FEBIAD. Par ailleurs, des simulations thermiques effectuées par Olivier Bajeat (rapport interne, 2019) suggèrent que la température des isolants pourrait atteindre 1400 °C à leur point le plus chaud. Il est donc probable que les isolants soit à une température supérieure à 1400 °C.

Le courant de Be⁺ est contrôlé après chaque augmentation de I_{cathode}. On constate une augmentation très significative du courant d'ions Be⁺ lorsque I_{cathode} augmente, comme le montre la figure 4.11. Cette augmentation s'explique simplement par une augmentation du taux de décomposition des isolants avec la température, ce qui ne peut pas être attribué à une augmentation de l'efficacité d'ionisation. En effet, celle-ci augmente de moins d'un ordre de grandeur tandis que I_{Be^+} augmente de deux ordres de grandeur. De plus, un courant de Mg est corrélé avec celui de Be. Après consultation auprès du fournisseur des isolants, il s'avère que le BeO utilisé dans la FEBIAD contient 0,1 % de Mg, ce qui explique sa présence dans le faisceau d'ions.



Figure 4.11 – Estimations de la résistivité électrique des trois isolants en BeO en fonction de la température. Valeurs extrapolées au-delà de 1400 °C.

Le succès de la dernière version de notre FEBIAD, ainsi que les conclusions de l'article de Pryor et l'évolution du courant de Be⁺, confortent l'hypothèse d'un problème de température excessive des isolants. Ce problème a été partiellement résolu par le retrait des écrans isolants, mais mérite encore d'être exploré.

4.2.4 Conclusions des tests

Ces tests ont permis d'identifier l'origine de la limitation de l'efficacité d'ionisation et de la longévité de la source. La puissance dissipée par la cathode porte les isolants à une température qu'ils ne peuvent supporter longtemps sans être endommagés et devenir légèrement conducteurs. Le courant de fuite induit était auparavant interprété comme un courant d'électrons entre cathode et anode, alors qu'il ne s'agissait que d'un courant électrique au travers d'un dépôt conducteur ou au travers d'isolants dégradés.

Les modifications effectuées pour réduire la température des isolants ont conduit d'une part à permettre leur fonctionnement pendant trois jours en continu, sans dégradation des performances d'ionisation et en obtenant sur cette durée une efficacité d'ionisation de 7 %.

Les performances obtenues suggèrent de poursuivre l'amélioration du refroidissement des isolants pour permettre d'augmenter le courant de chauffage de la cathode, le courant d'électrons entre cathode et anode et donc l'efficacité d'ionisation.

4.2.5 Version actuelle de l'ECS FEBIAD

Cette version découle directement des conclusions précédentes. Elle est décrite de façon synthétique car mon implication dans ces travaux a été moindre. Il me semble cependant intéressant de présenter aux lecteurs comment ces conclusions ont été mises en œuvre et à quels résultats elles ont mené à ce jour.

Pour améliorer le refroidissement des isolants, les modifications suivantes ont été réalisées par rapport à la version initiale :

- Les écrans extérieurs en Ta ont été retirés.
- Les isolants ont été éloignés du cœur de la source de 7 mm, pour bénéficier du gradient de température présent entre le cœur de la source et sa périphérie.
- Les écrous contenant les isolants ont été amincis pour limiter la conduction thermique dans leurs parois, et leur surface extérieure a été usinée en anneaux pour augmenter la surface de rayonnement.
- Les plots support ont été allongés et la matière, initialement en Mo a été remplacée par du Re dont la conduction thermique est plus faible.
- Les plots ont été munis en leur centre de tiges filetées en Ta pour diminuer leur température au niveau de leur contact avec les isolants en BeO.
- L'orifice réalisé dans le coulisseau externe, coaxialement à l'axe des plots supports a été agrandi à 12 mm. Ce diamètre ne correspond pas à celui déterminé à l'issue des tests (16 mm) pour deux raisons. D'une part parce que les tests présentés ont été réalisés avec les isolants initiaux, plus courts, exposés à une température plus élevée donc nécessitant des orifices de rayonnement plus larges. D'autre part parce que ces orifices de 16 mm étaient réalisés dans un coulisseau externe dont l'épaisseur était plus faible et donc dans lequel la puissance électrique dissipée était plus importante.



Figure 4.12 - Schéma actuel (2023) de la source FEBIAD utilisée dans SPIRAL1

L'ensemble de ces modifications, ajouté à un agrandissement du diamètre de sortie du tube de transfert (de 1.2 mm à 3 mm) a conduit aux performances actuelles de l'ECS FEBIAD.



Figure 4.13 – Efficacité d'ionisation de l' Ar^+ en fonction de I_{CA} pour la version actuelle de la FEBIAD.

La figure 4.13 montre l'efficacité d'ionisation de l' Ar^+ en fonction de I_{CA} de la FEBIAD actuelle. Les tests effectués sur le banc de test montrent que cette version a besoin d'encore moins de I_{anode} par rapport aux versions précédentes pour être efficace. Pour 50 mA, l'efficacité est de 10 %, alors qu'elle était de 3,5 % pour la version précédente.

Entre 0 et 100 mA, l'efficacité est proportionnelle à I_{CA} , après quoi elle sature jusqu'à 22 %. Cette saturation pourrait s'expliquer par une limitation en charge d'espace à l'extraction, bien que cette hypothèse n'ait pas été explorée hors ligne à SPIRAL1. La figure 4.13 montre aussi les résultats hors ligne obtenus dans la casemate de production avant irradiation de l'ECS, avec une efficacité similaire. En revanche, pendant les tests en ligne, on observe une diminution de l'efficacité pour I_{CA} compris entre 50 et 80 mA. Cette diminution est revenue à son efficacité hors ligne après quelques heures. Elle est probablement due à la limitation en charge d'espace causée par le dégazage de la cible au début de son irradiation, plus de 10 μ A d'ions CO⁺ ayant alors été mesurés. Quand le courant de CO⁺ a diminué, l'efficacité d'ionisation de l'Ar⁺ est redevenue normale.

L'ECS a permis d'obtenir une efficacité d'ionisation de l'Ar de 23 %, équivalente à l'efficacité maximum obtenue avec la source VADIS du CERN, et a en plus permis de maintenir une efficacité de 20 % pendant plus de 15 jours consécutifs. Ces performances inégalées remplissent les objectifs

d'exploitation de SPIRAL1 qui avaient été fixés au début de cette étude à une efficacité d'ionisation de l'Ar de 7 % pendant une durée de deux semaines.

4.3 Test en ligne et production de faisceaux d'ions radioactifs accelerés

L'ECS FEBIAD tel que présenté dans la partie 4.12 a été testé en ligne, c'est-à-dire avec un faisceau primaire en provenance des cyclotrons du GANIL envoyé sur la cible en graphite. Les faisceaux suivants ont été utilisés :

- ⁸⁴Kr à 67 MeV/A (Éléments produits : Ni, Ga, Ge, Cu, Zn, As, Se, Br, Kr, Br et Rb)
- ⁴⁸Ca à 60 MeV/A (Éléments produits : S, Cl, K et Ar)
- ⁵⁰Cr à 72 MeV/A (Éléments produits : Cr et Mn)
- ³⁶Ar à 74 MeV/A (Éléments produits : Ar, Na, F, Mg, Ne, Al et O)

4.3.1 Faisceaux radioactifs basse énergie (E < 30 keV/A)

Ces essais ont permis la production de faisceau d'ions radioactifs avec les éléments suivant : Li, Na, Mg, Ne, Al, O, Cl, Ar, S, K, Cr, Mn, Ni, Ga, Ge, Cu, Zn, As, Se, Br, Kr et Rb. La liste complète des noyaux produits avec leurs intensités est fournie en annexe C. La mesure des intensités a été effectuée dans la station d'identification basse energie (IBE) de SPIRAL1. Le principe de la mesure est présenté dans le chapitre 3.

Certaines des mesures ont été effectuées avec un faisceau primaire de faible puissance (20 W pour le faisceau de ⁵⁰Cr), qui n'est pas représentatif de l'intensité maximale que peut fournir le GANIL. Les taux mesurés sont extrapolés pour les puissances maximales du faisceau primaire, ce qui permettrait d'obtenir plus de 60 noyaux avec des taux de production en sortie d'ECS supérieurs à 1E5 pps.

4.3.2 Faisceaux radioactifs haute energie

La post-accélération des faisceaux radioactifs en sortie d'ECS a été testé avec les faisceaux d'ions radioactifs de ^{38m}K et ³⁷K.

Le potassium ayant une énergie de première ionisation de 4,34 eV, cet atome peut être ionisé par ionisation de surface. La FEBIAD a donc été utilisée sans polarisation de l'anode et donc sans faisceau d'électrons accéléré dans l'anode, et a fait office de cavité chaude permettant l'ionisation. Le faisceau ainsi produit a ainsi eu une grande pureté, grâce au mode d'ionisation chimiquement sélectif.

Ces deux faisceaux d'ions ont été portés à des états de charge plus élevés par le booster de charge de SPIRAL1 puis accélérés par le cyclotron CIME.

4.3.3 Temps de transformation des atomes en ions

Une expérience de temps de transformation des atomes en ions a été réalisée sur l'ECS FEBIAD. La méthode beam on-beam off a été utilisée (la méthode est décrite dans la chapitre 3).

La méthode beam on-beam off peut présenter un biais. Si la puissance déposée par le faisceau sur la cible est significative par rapport à la puissance de chauffage électrique de la cible, elle peut faire varier le temps de transformation des atomes en ions au cours du temps.

Pour éviter ce problème, la mesure est effectuée avec un faisceau de ⁸⁴Kr avec une puissance d'environ 12 W, une valeur bien inférieure à la puissance de chauffage la cible de 2,2 kW. Les atomes pour lesquels la mesure est effectuée sont le ⁸⁰Rb (radioactif) et le ⁸⁴Kr (stable).



Figure 4.14 – Comparaison des temps de transformations de la FEBIAD pour le ⁸⁰Rb (à droite) et le⁸⁴Kr (à gauche). Les courbes noires sont les données expérimentales et les rouges les ajustements. Échelle de temps en s, amplitude en unité arbitraire.

La figure 4.14 montre la décroissance de l'intensité du faisceau ⁸⁰Rb et du ⁸⁴Kr au cours du temps. Le faisceau primaire est coupé à t = 8 s sur les histogrammes.

L'évolution du courant de ⁸⁰Rb⁺ en fonction du temps est ajustée par une exponentielle décroissante qui permet d'en extraire un temps caractéristique T_{ai} de 4.4 s. Le fait que la courbe soit ajustable par une exponentielle unique révèle que la transformation des atomes en ions est dominée par le processus d'effusion. On peut déduire de cette remarque et du temps caractéristique que l'efficacité ε_{tai} de transformation dans l'ECS FEBIAD des isotopes du Rb ayant une demi-vie égale à T_R , toutes conditions de production par ailleurs identiques, sera égale à :

$$\varepsilon_{tai} = \frac{T_R}{T_R + T_{ai}} \tag{4.1}$$

L'évolution du courant de ⁸⁴Kr⁺ en fonction du temps est ajustée à l'aide d'une somme d'ex-

ponentielles décroissantes, tel qu'expliqué au paragraphe 2.2.4 du chapitre 2. Cela suggère que la transformation est principalement gouvernée par le processus de diffusion des atomes de Kr en dehors du matériau d'arrêt. L'ajustement permet de déduire un temps caractéristique égal à 231 s. Ce temps caractéristique de diffusion n'est pas directement comparable à un temps d'effusion. Cependant, si on assimile les disques de la cible en carbone à des feuilles dont l'épaisseur est beaucoup plus faible que ses autres dimensions, il est possible d'évaluer l'efficacité de transformation qu'auraient des isotopes du Kr ayant une demi-vie égale à TR via la formule suivante :

$$\varepsilon_{tai} = \frac{tanh(\sqrt{T_{ai}/T_R})}{\sqrt{T_{ai}/T_R}}$$
(4.2)

Les efficacités de transformation de différents isotopes de Rb et de Kr en ions sont données figure 4.15



Figure 4.15 – Extrapolation de l'efficacité de transformations pour le Kr et le Rb en fonction de la demi-vie. L'efficacité est normalisée à 1 pour les demi-vies tendant vers l'infini.

On observe que pour les durées de vie supérieures à \sim 80 ms, les isotopes de Rb seront produits plus efficacement que les isotopes de Kr. Pour des durées de vie inférieures à 80 ms, les isotopes de Kr seront produits plus efficacement que les isotopes de Rb.

4.4 Conclusions

L'étude de l'ECS FEBIAD et plus particulièrement de la source, les tests sur banc et les résultats obtenus pour la production d'ions Ar⁺ et d'ions radioactifs montrent que le diagnostic qui a été fait de l'origine des performances initiales était pertinent. Les solutions mises en œuvre pour y remédier ont permis d'améliorer les performances de façon significatives, passant de quelques pourcents pour l'efficacité d'ionisation de l'Ar à plus de 20 % et rendant cette efficacité pérenne

sur une durée supérieure aux exigences d'exploitation de SPIRAL1. Cette évolution considérable a permis d'ouvrir la voie à une production élargie d'ions radioactifs en termes d'intensité et de nature des ions, étendant de la production d'ions à partir de gaz rares et d'alcalins à la production à partir d'éléments métalliques.

Pour plusieurs des faisceaux d'ions déjà produits, les intensités obtenues dans des conditions de production dégradées permettent d'envisager l'obtention d'intensités supérieures à 1E+5 pps pour plus de 60 noyaux (dans des conditions optimales de faisceau primaires), ce qui leur permettra d'être post-accélérés par le cyclotron CIME.

Au-delà de ces résultats, mon implication dans cette étude m'a permis d'en comprendre les enjeux, de mettre en œuvre les principes physiques et d'acquérir par la pratique les connaissances instrumentales nécessaires à la poursuite de mon travail de doctorat.

Chapitre 5

Canon à ions métalliques

5.1 Introduction du chapitre

Pour que la caractérisation d'un dispositif ISOL soit complète, deux données doivent être disponibles : son efficacité d'ionisation pour l'élément d'intérêt en régime permanent, et le temps de transformation de cet élément en ion, ce qui permet de déduire l'efficacité de transformation d'un isotope radioactif de cet élément en ion. Depuis le début des dispositifs ISOL, l'outil capable d'effectuer la mesure du temps de transformation hors ligne, c'est-à-dire sans avoir recours à l'utilisation d'un faisceau primaire qui induit la production des isotopes d'intérêt, manque. Il s'agit d'une source pulsée d'atomes qui délivre l'élément d'intérêt de façon discontinue et qui permet d'extraire une information sur le temps de transformation. Un tel dispositif, nommé canon à ions alcalins pulsé, a été développé en 2005 au GANIL pour la caractérisation des ensembles ciblesource, produisant des ions à partir d'isotopes radioactifs d'éléments alcalins (dans le cas d'atomes de gaz, une vanne pulsée peut être utilisée). Pour la caractérisation des ensembles cibles-sources, produisant des ions à partir d'isotopes radioactifs d'éléments métalliques, un canon à ions métalliques devait être développé. Le principe envisagé pour l'ionisation des ions dans la cavité TULIP pouvant a priori être utilisé pour réaliser un canon à ions, il a été décidé de tester ce principe dans le cadre de la réalisation d'un canon à ions métalliques, avant de l'appliquer à l'ionisation d'éléments métalliques dans TULIP.

Ce chapitre présente donc le travail de conception et de test d'un canon à ions métalliques, dont l'objectif est de produire un faisceau d'ions métalliques stables d'une intensité de l'ordre de quelques centaines de nA.

Dans un premier temps, les principes physiques d'une source d'ions à impact électronique sont présentés en détails, en s'attardant tout particulièrement sur l'émission d'électrons depuis une cathode. Le principe de la mesure de temps de transformation avec un canon à ions est présenté.

Le reste du chapitre porte sur la conception du canon à ions, de la modélisation physique détaillée de la source d'ions, ainsi que des résultats expérimentaux obtenus avec ce dispositif.

Étant donné qu'il existe une forte similarité entre le canon à ions et la source SPEED présentée au chapitre suivant (ionisation d'éléments métalliques, utilisation d'une cathode chaude), beaucoup des principes physiques et des équations présentés dans ce chapitre seront utilisés dans le suivant. La cathode chaude du canon à ions est identique à celle utilisée pour SPEED, donc la caractérisation de celle-ci effectuée dans ce chapitre reste partiellement valable pour le chapitre sur SPEED.

5.2 Physique des sources d'ions à impact électronique

5.2.1 Principe

L'impact électronique est un processus d'ionisation utilisé dans plusieurs types de sources d'ions, dont voici quelques exemples :

- **Source ECR (Electron Cyclotron Resonance) :** Un plasma est confiné par un champ magnétique. Les électrons sont accélérés par une onde électromagnétique, généralement de quelques GHz. Des atomes sont injectés dans la chambre, sont ionisés par collisions avec les électrons et piégés dans le plasma. Les ions peuvent être amenés à des états de charge élevés, voir complètement épluchés. Ils effusent ensuite en dehors du plasma et sont accélérés par une électrode polarisée pour former un faisceau d'ions. Une source ECR peut avoir une efficacité totale d'ionisation pour les gaz allant jusqu'à 100 %, et généralement inférieure à 20 % pour les éléments métalliques. Ce sont des sources souvent volumineuses, à cause de leur structure magnétique, nécessitant des servitudes (eau, courant, hautes fréquences) mal adaptées aux contraintes de minimisation de volume et de simplicité des ECS.
- **Source à décharge :** Dans une source à décharge, un gaz est introduit dans une chambre à vide où sont présentes deux électrodes portées à différents potentiels électriques. Un débit de gaz constant est injecté dans la chambre. Selon les conditions de pression et de champ électrique, un arc électrique apparait entre les électrodes. Les électrons se déplacent vers le potentiel positif et entrent en collision avec les atomes de gaz. Les ions positifs partent en direction de l'électrode d'extraction négative et forment un faisceau d'ions qui passe au travers d'un orifice situé au milieu de l'électrode.
- Source à faisceau d'électrons forcé : Dans ce type de source, un faisceau d'électrons est créé par émission thermoélectronique. Les atomes ou molécules exposés au flux électronique sont ionisés par impact électronique. Dans une source comme la FEBIAD, les ions sont majoritairement monochargés. Leurs états de charge peuvent cependant aller jusqu'au 3+.

Ce dernier système est celui retenu pour l'ECS SPEED métallique et pour le canon à ions. Il présente des avantages dans le contexte d'une source ISOL : la simplicité, la robustesse obtenue

grâce à de nombreuses mises en applications antérieures, et une efficacité pouvant atteindre 25 %. Qui plus est, son faible volume de chambre, même comparé aux plus petites sources ECR (quelques cm³ [34]), induit un temps de transformation des atomes en ions qui peut être court, qualité importante lorsque l'on souhaite produire des ions radioactifs exotiques à la demi-vie courte.

5.2.2 Processus d'émission électronique

Les processus donnant lieu à une émission électronique ont été intensivement étudiés du 19^e siècle jusqu'au milieu du 20^e siècle, donnant naissance aux systèmes cathode-anode et aux tubes électroniques, ensuite remplacés par les semi-conducteurs. Sont présentés ci-après les principaux processus d'émission électronique.

5.2.2.1 Émission par effet de champ

Lorsqu'un champ électrique intense est appliqué en surface d'un métal, des électrons de la bande de conduction peuvent quitter le métal par effet tunnel. Cette émission est décrite de façon approchée par l'équitation de Fowler–Nordheim [35]. La valeur typique du champ électrique nécessaire est de l'ordre du GV/m, champ qui peut être obtenu par effet de pointe. Cet effet est utilisé dans les canons à électrons des microscopes électroniques pour produire des faisceaux d'électrons avec une émittance faible.

5.2.2.2 Effet photoélectrique

Lorsqu'une surface est irradiée par des photons d'énergies suffisamment élevées, des électrons peuvent être émis. L'énergie seuil à partir de laquelle l'émission est possible dépend du matériau et est typiquement de l'ordre de l'eV. L'effet photoélectrique est par exemple utilisé dans les photocathodes des tubes photomultiplicateurs qui utilisent les photons incidents pour émettre des électrons.

5.2.2.3 Émission secondaire électronique

L'émission secondaire est à la base de l'amplification des signaux dans les tubes photomultiplicateurs. Des électrons entrent en collision avec une surface et provoquent l'émission d'autres électrons. La quantité et l'énergie moyenne des électrons secondaires dépendent du matériau et de l'énergie de l'électron incident[36]. Pour des surfaces métalliques et des électrons incidents avec une énergie de quelques centaines d'eV, le rendement d'émission secondaire est compris généralement entre 0,5 et 2, et l'énergie des électrons secondaires dépasse rarement 50 eV (hors accélération).

5.2.2.4 Émission induite par des ions

De façon similaire à l'émission secondaire électronique, un ion entre en collision avec une surface et arrache un ou des électrons à cette dernière. Le rendement d'émission secondaire pour une surface d'aluminium est montré à titre d'exemple dans la figure 5.1.



Figure 5.1 – Rendement d'émissions secondaires d'électrons pour de l'aluminium irradié par des faisceaux d'ions. À titre d'exemple, un ion 40 Ar⁺a un rendement d'émission de 0,1 à 1 keV et de 1,2 à 30 keV. Reproduit à partir de [37].

5.2.2.5 Émission thermoïonique

Ce mode d'émission correspond à l'émission d'électrons par une surface chauffée. Dans le modèle de l'électron libre, on considère qu'un métal est composé d'un cristal d'ions de charge positive, dans lequel se déplacent des électrons libres. La distribution en énergie de ces électrons augmente avec la température. Certains ont assez d'énergie pour surmonter la barrière de potentiel W (exprimée en eV), appelée travail de sortie. L'émission thermoïonique a été décrite pour la première fois par O. W. Richardson en 1901. L'équation de Richardson-Dushman décrit la densité de courant émis par une surface à une température T(K) [38] :

$$J = AT^2 e^{-\frac{W}{k_B T}}$$
(5.1)

A et *W* sont des constantes propres à chaque matériau. Quelques exemples sont donnés dans la table 5.1 :

Matériau	W (eV)	A (A cm ^{-2} K ²)
Molybdène	4.15	55
Nickel	4.61	30
Tantale	4.12	60
Tungstène	4.54	60
Baryum	2.11	60
Césium	1.81	160
Iridium	5.4	170
Platine	5.32	32
Rhénium	4.85	100
Thorium	3.38	70
Thorium	2.54	3
TaC	3.14	0.3
LaB6	2.7	29

Table 5.1 – Valeurs du travail de sortie W et de A pour différents matériaux. Valeurs obtenues d'après [22][39].

La constante A et le travail de sortie W sont des valeurs qui varient selon les sources bibliographiques. Pour des matériaux avec des valeurs de A et W relativement similaires, la densité de courant peut être assez différente, ce qu'illustre la figure 5.2.



Figure 5.2 – Densité de courant émise par une surface de tungstène et de tantale, en fonction de la température, selon la loi de Richardson-Dushman.

Si un champ électrique de norme $F(Vm^{-1})$ est appliqué en surface du matériau, le travail de

sortie est modifié [40] par l'effet Schottky :

$$W(F) = W(F=0) - \Delta W = W_0 - \sqrt{\frac{e^3 F}{4\pi\varepsilon_0}}$$
(5.2)

Avec e la charge de l'électron et ε_0 la permittivité du vide. En injectant ce travail de sortie modifié dans l'équation (5.1), on obtient une augmentation de la densité de courant pour une même température. Cette correction de W perd en exactitude pour des champs supérieurs à 10^8 Vm⁻¹ car l'émission par effet de champ n'est plus négligeable.

5.3 Limitation de l'émission thermoïonique

Parmi les modes d'émission présentés dans le paragraphe 5.2.2, le plus utilisé dans les sources d'ions à impact électronique est l'effet thermoïonique [22]. Une cathode électro-émettrice chauffée (typiquement par effet joule) est placée sous vide face à une anode, un faisceau d'électron est alors créé. Le courant maximal entre la cathode et l'anode dépend du matériau de la cathode, de sa température, de la géométrie de la cathode et de l'anode, ainsi que de la différence de potentiel cathode-anode. Le courant émis peut être prédit par des lois physiques qui dépendent du régime d'émission.

À titre d'exemple, la source FEBIAD mentionnée au chapitre 4 génère un faisceau d'électrons d'environ 100 mA. Sa cathode en tantale est portée à une température d'environ 1500 °C, elle a une surface émissive de 4,5 cm² et la distance entre la cathode et l'anode est d'environ 1 mm.

5.3.1 Régime d'émission limité en charge d'espace

Dans le cas où la participation des électrons au champ électrique entre l'anode et la cathode peut être négligée, le calcul du champ électrique se fait en résolvant l'équation de Maxwell-Gauss sans charge d'espace.

Dans le cas où la participation des électrons au champ électrique n'est plus négligeable, et à partir d'un certain courant échangé, la densité de charge en surface de la cathode vient écranter le champ électrique en surface de la cathode. Cet écrantage limite le courant maximal qui peut être échangé entre cathode et anode. Cette limite s'appelle la limite en charge d'espace, et elle est régie par la loi de Child-Langmuir [41][42].

5.3.1.1 Loi de Child-Langmuir à une dimension

Pour un système de deux plaques parallèles de surface infinie, il est possible de déterminer la densité de courant J_{CL} maximale échangeable entre les deux plaques. On suppose qu'elles sont séparées d'une distance *d* et par une différence de potentiel *U*. Dans le cas d'électrons de charge *e*

et de masse m_e , J_{CL} (A m⁻²) échangé entre cathode et anode s'exprime :

$$J_{CL} = \frac{4\varepsilon_0}{9} \sqrt{\frac{2e}{m_e}} \frac{U^{\frac{3}{2}}}{d^2}$$
(5.3)

Cette équation suppose que les électrons quittent la surface sans vitesse initiale. Une démonstration de la loi de Child-Langmuir est disponible en annexe D.

La figure (5.3) représente le profil du potentiel électrique entre la cathode et l'anode en fonction de la densité de courant émis par la cathode. Pour J = 0, c'est-à-dire sans charge d'espace, la résolution de l'équation de Poisson donne une évolution linéaire du potentiel en fonction de la position. Pour J compris entre 0 et J_{CL} , on observe une diminution de la dérivée de V en surface de la cathode. Pour $J = J_{CL}$, la dérivée du potentiel en surface de la cathode est nul, c'est-à-dire que le champ électrique est nul en surface. $J > J_{CL}$ n'est pas possible pour une vitesse initiale des électrons nulle, car une densité de courant supérieure à J_{CL} crée une barrière de potentiel infranchissable.



Figure 5.3 – Profil du potentiel électrique entre cathode et anode pour différentes densités de courant J échangées. Figure d'après [43]).

Dans le cas où les électrons ont une vitesse initiale non nulle, constante et perpendiculaire à la cathode, la loi de Child-Langmuir à une dimension est corrigée d'un facteur Γ tel que $J_{max} = J_{CL}\Gamma$ avec Γ défini comme suit :

$$\Gamma = \left[\left(1 + \frac{E_e}{U}\right)^{\frac{1}{2}} + \left(\frac{E_e}{U}\right)^{\frac{1}{2}} \right]^3 \tag{5.4}$$

Comme la vitesse initiale des électrons émis par une cathode thermoïonique suit une distribution de Maxwell-Boltzmann [44], l'équation (5.4) n'est pas exacte, mais donne une tendance. En réalité, à la limite en charge d'espace, les électrons les plus énergétiques passent la barrière de potentiel (ligne pointillé rouge figure 5.3) tandis que les moins énergétiques sont renvoyés vers la cathode.

5.3.1.2 Loi de Child-Langmuir à deux et trois dimensions

La limite en charge d'espace est connue de façon analytique dans les systèmes à une dimension, mais la complexité des géométries en 2D et 3D complique ou empêche la résolution analytique de l'équation de Maxwell-Gauss dans la plupart des cas. Pour les géométries complexes, le courant maximal doit être calculé numériquement par simulation, ce qui nécessite de pouvoir rendre compte de la forte variation de la densité de charge en surface de la cathode ainsi que des trajectoires empruntées par le faisceau d'électrons.

Une solution analytique de la densité J_{2D} a été trouvée dans la littérature [45]. Il s'agit d'une configuration qui ressemble un peu à un filament face à une plaque, ce qui est similaire à la configuration envisagée pour la cathode de SPEED métallique. Il s'agit d'une bande de largeur W et de longueur infinie placée parallèlement à une plaque infinie à une distance D. Elle n'est valable que pour D/W < 10:

$$J_{2D} = J_{CL}(1 + \frac{D}{\pi W})$$
(5.5)

L'équation (5.5) a été vérifiée par des simulations numériques [46]. Lorsque W tend vers ∞ , on retrouve $J_{2D} = J_{CL}$.

La limite en charge d'espace a été étudiée analytiquement pour des sphères concentriques, des cylindres coaxiaux, une cathode circulaire face à une anode plate [47] [48]. Dans tous les cas, en 2D et en 3D, il n'est pas possible de prédire le courant limité en charge d'espace en fonction de la distance cathode-anode d sans calculs élaborés ou simulations. La relation $J_{CL} \approx 1/d^2$ n'est pas valable, ou seulement en première approximation. En revanche, la relation $J_{CL} \approx U^{\frac{3}{2}}$ apparaît comme étant toujours vérifiée.

Dans ce régime d'émission, augmenter la température de la cathode n'a pas d'effet significatif sur le courant I_{CA} .

5.3.2 Régime d'émission limité en température

Dans ce régime, tous les électrons émis par la cathode sont extraits. Le courant émis est limité par le processus thermoïonique et est gouverné par l'équation de Richardson-Dushman. Il se calcule en multipliant l'équation 5.3 par la surface de la cathode.

Une autre limitation provient de la température maximale à laquelle la cathode peut opérer. Une limite évidente est la température de fusion du matériau de la cathode, mais la température de fonctionnement est généralement inférieure, pour limiter l'évaporation ou garder une certaine résistance mécanique. Certaines cathodes, comme le tungstène dopé au thorium, ont des températures de fonctionnement limitées par l'évaporation du dopant.

Dans ce régime, augmenter la tension U_{CA} n'augmente pas I_{CA} à moins que le champ en surface soit suffisant pour que l'effet Schottky (équation 5.2) soit non négligeable.

5.3.3 Régime mixte

Dans une configuration géométrique complexe, le régime d'émission peut être simultanément limité en température et en charge d'espace. Augmenter U_{CA} ou la température de la cathode augmentera alors les deux I_{CA} .

5.4 Développement d'un canon à ions métalliques pour la caractérisation d'une source d'ions radioactifs

La caractérisation des performances des ECS est essentielle avant leur mise en exploitation pour la délivrance de faisceaux d'ions radioactifs aux utilisateurs. Cette étape dans le processus de développement est effectuée sur banc de test, où les ions produits sont obtenus par l'ionisation d'atomes stables. Dans le cas de la production d'ions radioactifs, l'efficacité de transformation des atomes radioactifs en ions dépend de la compétition entre le temps de transformation des atomes en ions et le temps de disparition des atomes, soit par effusion sans ionisation en dehors de l'ECS, soit par décroissance radioactive (équation 5.6).

$$Efficacit\acute{e} = \frac{\lambda_{ai}}{\lambda_{ai} + \lambda_{eff} + \lambda_R}$$
(5.6)

Où λ_{ai} est le taux (en Hz) ou la probabilité par unité de temps de transformation des atomes en ions, λ_{eff} est le taux d'effusion des atomes stables en dehors de l'ECS et λ_R le taux de décroissance radioactive. Chaque taux λ_x est lié au temps caractéristique τ_x de son processus ($\lambda_x = 1/\tau_x = 1/T_{1/2}$).

Il est donc possible de prédire les performances de production en ions radioactifs d'un ECS, à partir de la mesure préalable du temps de transformation des atomes stables en ions et de l'efficacité en régime permanent. Cependant, et à moins d'implanter les atomes dans la cible, cette méthode ne prend pas en compte le temps de relâchement d'atomes en dehors des matériaux où ils sont produits ou arrêtés. Ce temps induira nécessairement une augmentation du temps de transformation total, et donc une diminution de l'efficacité totale pour des atomes radioactifs.

Dans le cas d'atomes de gaz, la mesure en régime permanent est simplifiée par la possibilité d'injecter un flux de gaz dont la valeur est fixée, et connue grâce à l'utilisation d'une fuite calibrée. La mesure du temps de transformation est effectuée en injectant des pulses de gaz, très courts par rapport au temps d'effusion des atomes en dehors de l'ECS, au travers d'une vanne rapide.

Dans le cas d'atomes condensables, le contrôle de flux à mieux que 10% est techniquement difficile. Une solution consiste à injecter non pas un flux d'atomes, mais un courant, dont la mesure d'intensité peut être faite avec une précision de l'ordre du pourcent. Et si les atomes sont injectés sous forme d'ions, il est aussi possible de hacher leur injection pour effectuer des mesures de temps.

Ces considérations justifient les efforts fournis pour développer un canon capable de délivrer un faisceau d'ions métalliques, continu ou pulsé.

5.4.1 Exemple du canon à ions alcalins

Avant le travail présenté dans cette thèse, l'ECS TULIP d'ions alcalins a été testé hors ligne au cours de la thèse de Kuchi Venkateswarlu [2]. Un canon commandé par un générateur d'impulsions envoie un faisceau d'ions Rb⁺ de courte durée dans l'ECS. Les ions sont arrêtés dans les premières couches atomiques du catcher, sont thermalisés et ensuite transformés en un faisceau d'ions par l'ECS. Le faisceau est alors séparé selon le rapport masse/charge par un dipôle magnétique, puis le courant du faisceau de Rb⁺ est mesuré. Les signaux du générateur d'impulsion et du courant de Rb⁺ sont mesurés sur un oscilloscope, comme décrit dans la figure 5.4. Cette méthode permet de mesurer la réponse du système à une impulsion. Le signal obtenu sur la CF résulte d'une convolution du signal rectangulaire qu'est le faisceau en provenance du canon à ions, par la réponse de l'ECS.

Cette méthode présente l'intérêt de pouvoir être effectuée hors-ligne, mais induit un biais sur la mesure. En effet, le faisceau du canon à ions n'ayant que quelques keV d'énergie, il n'est pas capable de traverser la cible ou la fenêtre d'entrée. Pour pouvoir injecter le faisceau d'ions Rb⁺ à l'intérieur de la cavité de l'ECS, un trou de quelques mm est donc percé dans la cible. Ce trou crée une voie de sortie supplémentaire pour les ions ou atomes de Rb qui effusent dans la cavité, ce qui diminue l'efficacité d'ionisation. Ce trou a aussi pour effet d'accélérer le taux de sortie des ions en dehors de la cavité, de diminuer le temps de réponse de l'ECS et donc de sous-évaluer le temps de transformation atomes-ions.



Figure 5.4 – Principe général du dispositif de mesure de temps de réponse hors ligne de l'ECS TULIP. Figure d'après la thèse de Kuchi Venkateswarlu [2].

5.5 Canon à ions métalliques

Le même principe de mesure peut être appliqué à d'autres systèmes de production. Pour un ECS destiné à produire des ions métalliques comme l'ECS FEBIAD ou TULIP métallique, "il suffit" de remplacer le canon à ions de Rb¹⁺ par un canon à ions capable de produire des ions métalliques, et de les injecter dans la cavité d'un ECS. Un trou doit aussi être fait dans la cavité pour laisser passer le faisceau.

L'objectif de ce travail a été d'étudier puis de réaliser un canon capable de délivrer des faisceaux d'ions mono-chargés de Ni⁺, Ag⁺ et Sn⁺ continus et pulsés à une énergie de l'ordre de 1 keV, et avec une intensité suffisante pour que l'intensité de ces ions en sortie de l'ECS soit mesurable à l'aide d'une coupe de Faraday et d'une électronique standard (résolution de 1 nA).

5.5.1 Principe de fonctionnement du canon à ions

Le principe consiste à placer un gaz d'atomes sous un flux d'électrons : $e + X \longrightarrow 2e + X^{1+}$.

Le flux électronique créé par effet thermoïonique depuis une cathode chaude est accéléré vers une anode. Les électrons ont donc une énergie comprise entre 0 et $U_{CA}q_e$ (en eV), avec U_{CA} la différence de potentiel entre la cathode et l'anode.



Figure 5.5 – Principe général du canon à ions métallique. $D_{anode} = 4,5$ mm. $D_{CA} = 1,5$ mm.

Le métal évaporé est celui qui constitue l'anode. Son chauffage résulte de deux effets :

- **Rayonnement thermique en provenance de la cathode :** le filament en W qui constitue la cathode est porté à une température de 2400 °C et absorbe environ 20 W de puissance par effet joule. La majorité de cette puissance est dissipée sous forme de rayonnement thermique. Comme l'anode se trouve en vis-à-vis direct de la cathode, elle reçoit quelques W de puissance par rayonnement.
- **Chauffage par bombardement électronique :** le courant I_e d'électrons est en partie collecté par l'anode. La puissance déposée par les électrons est égale à : $P = U_{CA}I_{anode}$, avec I_{anode} le courant d'électrons collecté par l'anode, et U_{CA} la tension qui les a accélérés. Cette équation est valide si les électrons incidents déposent l'intégralité de leurs énergies cinétiques dans le matériau de l'anode.

5.5.2 Taux d'évaporation d'un matériau

Pour ioniser les atomes métalliques dans une source à ionisation par impact électronique, ceuxci doivent être sous forme de vapeur. Plus la quantité d'atomes dans la zone balayée par le flux d'électrons est grande, plus le courant d'ions produits sera important. Le taux d'évaporation du matériau correspond au débit de matière qui quitte la surface de l'échantillon métallique, et qui permet d'estimer la densité du gaz métallique dans la zone d'ionisation. Le taux d'évaporation est décrit par l'équation de Hertz-Knudsen [49] :

$$\frac{1}{S}\frac{dN}{dt} = \frac{\alpha p N_A}{\sqrt{2\pi MRT}} = \frac{\alpha p}{\sqrt{2\pi m k_B T}}$$
(5.7)

Avec :

- N : le nombre d'atomes évaporés.
- *S* : la surface chauffée qui évapore les atomes (m²).
- *p*: la pression de vapeur saturante de la matière à évaporer (Pa). Cette grandeur dépend de la température et du matériau (elle correspond à la pression gazeuse à l'équilibre à laquelle le taux d'évaporation est égale au taux de condensation dans un système fermé).
- N_A : le nombre d'Avogadro.
- M: la masse molaire du gaz évaporé (kg mol⁻¹).
- R: la constante des gaz parfaits (JK⁻¹mol⁻¹).
- T : la température de la surface à évaporer (K).
- α : coefficient de collage. Ce terme, compris entre 0 et 1, correspond à la probabilité que l'atome ou la molécule évaporée colle à la paroi d'où il provient. Il rend compte du fait que l'évaporation est un processus hors équilibre lorsqu'il n'a pas lieu dans un système fermé. Pour un métal, d'après [50], ce terme est égal à 1.
- *m* : la masse d'une particule du gaz évaporé (kg).
- k_B : la constante de Boltzmann (1,380649 × 10⁻²³ J K⁻¹).

Pour que l'équation 5.7 soit valide, il faut que les collisions du gaz évaporé avec lui-même ou avec le gaz résiduel soient négligeables, c'est-à-dire que l'écoulement soit en régime moléculaire. Lorsque les collisions entre les particules évaporées ne sont plus négligeables, la pression p utilisée dans l'équation 5.7 est corrigé et devient plus petite. Cela limite le taux d'évaporation [49]. Étant donné la très basse pression dans l'enceinte de notre canon à ions (environ 1×10^{-5} mbar) et sa petite taille, le régime de vide est considéré moléculaire.

La pression de vapeur saturante est connue expérimentalement pour de nombreux corps purs et composés. On s'intéresse ici au nickel et à l'argent, ainsi qu'à l'étain.



Figure 5.6 – Pression de vapeur saturante de l'étain, du nickel et de l'argent en fonction de la température. Les courbes de pression de vapeurs sont continues, même à la transition solide-liquide du métal.

Parmi ces trois éléments, l'étain a le point de fusion le plus faible. Les pressions de vapeur de ces trois éléments au point de fusion sont :

	Point de fusion (°C)	Pression de vapeur au point de fusion (Pa)
Nickel	1453	0.455
Argent	962	0.365
Étain	232	8.57E-21

Table 5.2 – Pressions de vapeur aux points de fusion du Ni, Ar et Sn

La pression de vapeur relativement importante du Ni et de l'Ag devrait permettre de faire évaporer les échantillons métalliques sans avoir à les placer dans une phase liquide. Par contre, l'évaporation du Sn doit se faire à l'état liquide, car la pression de vapeur au point de fusion est beaucoup trop faible pour obtenir une évaporation permettant la production d'un courant d'ions de quelques nA. Cela présente des contraintes de conception, notamment au niveau mécanique, car un échantillon liquide doit être maintenu en place (dans un creuset par exemple) alors qu'un échantillon à l'état solide peut être maintenu dans n'importe quelle position.

5.5.3 Estimation de la probabilité d'ionisation

En connaissant le taux d'évaporation des atomes à ioniser, le courant d'électrons et la section efficace d'ionisation, il est possible d'estimer le courant d'ions métalliques que peut produire le canon à ions.

Pouvoir prédire le courant de l'élément à produire permet de guider la conception du canon à ions. Cela permet d'augmenter les chances que la source produise plus de courant d'ions d'intérêts
que d'ions issus de l'ionisation du gaz résiduel. Cela permet aussi de prédire l'évolution du courant d'ions en fonction des grandeurs mesurées, telles que le courant d'électrons I_{CA} , la tension U_{CA} , le taux d'évaporation de l'échantillon métallique et la section efficace d'ionisation.

Pour calculer ce courant d'ions, on a besoin de connaître la probabilité d'ionisation d'un atome évaporé. L'efficacité d'ionisation ε implique deux phénomènes consécutifs : la probabilité qu'un atome soit ionisé et la probabilité que celui-ci soit extrait et forme un faisceau d'ions.

$$\varepsilon = p_{ionisation} p_{extraction} \tag{5.8}$$

La probabilité d'extraction dépend du champ électrique dans la source et de la densité d'électrons, donc du potentiel et de la géométrie des électrodes du canon à ions. Ce terme est difficile à estimer analytiquement, mais on peut le considerer comme constant en première approximation.

La probabilité d'ionisation peut cependant, moyennant quelques hypothèses simplificatrices, être estimée. Ces hypothèses sont que :

- Les trajectoires des électrons sont parallèles. Le faisceau formé est un cylindre de section S et de diamètre égal à celui de la cathode et de longueur égale à D_{CA}
- Les électrons ont une énergie qui correspond à celle obtenue lorsqu'ils sont accélérés par la différence de potentiel entre la cathode et l'anode U_{CA} .
- La section efficace d'ionisation est considérée indépendante de l'énergie des électrons. La section efficace retenue pour le calcul est choisie arbitrairement comme étant située entre le maximum de section efficace (situé à environ 20-30 eV) et la section efficace à l'énergie maximum des électrons (environ 200 eV ici).
- La distance parcourue par les atomes évaporés dans le flux d'électrons est de l'ordre de la distance cathode-anode D_{CA}. Une fois qu'ils sortent de la zone d'ionisation, ils sont considérés comme perdus.
- La vitesse des atomes dépend de la température de la surface depuis laquelle ils sont émis et suivent une distribution de Maxwell-Boltzmann. Pour simplifier, on considère que les atomes sont monocinétiques, et on retient comme vitesse moyenne : $v = \sqrt{\frac{8k_bT}{\pi m}}$ (1300 m s⁻¹ pour du Ni à 1500 K).

Le libre parcours moyen correspond à la distance moyenne parcourue par une particule avant qu'elle interagisse avec la matière traversée. Cette distance est d'autant plus petite que la section efficace σ (en m²) de l'interaction est importante et que la densité de matière *n* (en m⁻³) est élevée. Dans le cas de l'ionisation d'atomes, la section efficace σ est celle de l'ionisation par impact électronique, la densité *n_e* celle des électrons du faisceau, et *l* le libre parcours moyen avant ionisation.

$$l = \frac{1}{\sigma n_e} \tag{5.9}$$

La fréquence à laquelle l'ionisation est possible est f = 1/t = v/l avec t le temps moyen avant qu'une ionisation ait lieu. De plus, comme la vitesse des atomes par rapport aux électrons v est égale à celle des électrons par rapport aux atomes, alors :

$$f = v_e n_e \sigma \tag{5.10}$$

La vitesse des électrons ($\approx 1 \times 10^7 \text{ m s}^{-1}$ pour 200 V de tension accélératrice) étant très largement supérieure à celle des atomes ($\approx 1 \times 10^3 \text{ m s}^{-1}$, vitesse thermique), la vitesse des électrons par rapport aux atomes est considérée égale à celle des électrons dans le référentiel du laboratoire.

La variation de N_{atome} (la quantité d'atomes dans la zone d'ionisation) en fonction du temps s'exprime :

$$\frac{dN_{atome}}{dt} = -fN_{atome} = -v_e n_e \sigma N_{atome}$$
(5.11)

Pour N_0 atomes initiaux, le nombre d'atomes non ionisés au temps t est :

$$N_{atome}(t) = N_0 exp(-v_e n_e \sigma t)$$
(5.12)

Et comme $p_{ioni} + p_{atomep as ioni} = 1$, alors :

$$p_{ioni} = 1 - exp(-\lambda_{ioni}t) \tag{5.13}$$

$$\lambda_{ioni} = v_e n_e \sigma \tag{5.14}$$

Avec λ_{ioni} en s⁻¹ qui est la constante de temps d'ionisation, c'est-à-dire la probabilité par unité de temps qu'un atome soit ionisé.

L'équation 5.13 n'est pas exploitable en l'état, car les grandeurs plus pratiques à manipuler et à mesurer sont le courant échangé entre la cathode et l'anode I_{CA} et U_{CA}. Le lien s'effectue avec la définition de la densité de courant d'électrons : $\vec{j} = \vec{v_e} n_e q_e$. Comme on fait l'hypothèse d'un faisceau d'életrons parallèle : $I_{CA} = jS = v_e n_e q_e S$, avec q_e la charge de l'électron (avec q_e = -1,602 × 10⁻¹⁹ C, valeur qu'on fixe positive par aisance de notation) et *S* la section du faisceau. On peut réécrire l'équation 5.13 ainsi :

$$p_{ioni} = 1 - exp(\frac{I_{CA}\sigma}{Sq_e}t)$$
(5.15)

Le temps passé par un atome dans la zone d'ionisation dans l'équation 5.15 est approximé par la relation v = d/t avec v la vitesse thermique de l'atome et d la distance qu'il parcourt sous le flux d'électrons.

Pour une distance cathode anode de 2 mm, une surface de faisceau de quelques mm², un courant I_{CA} de quelques dizaines de mA, une tension U_{CA} de 200V, une section efficace d'ionisation d'environ 1×10^{-16} cm² et une vitesse des atomes évaporés de quelques centaines de m s⁻¹, le terme

dans l'exponentiel est très petit devant 1. Dans ce cas, l'équation 5.15 peut être approximée par son développement limité à l'ordre 1 :

$$p_{ioni} \approx \frac{I_{CA}\sigma}{Sq_e}t \tag{5.16}$$

5.5.4 Courant d'ions dû à l'ionisation du gaz résiduel

Lors des premiers essais du canon à ions Ni^+ , la source produisait un courant de 2 μ A, alors même que l'échantillon de Ni était à une température trop faible pour permettre une évaporation significative. Lorsque le Ni était a priori suffisamment chaud pour s'évaporer, on ne parvenait toujours pas à distinguer le courant de Ni du courant parasite, soupçonné de résulter de l'ionisation du gaz résiduel. Ce problème a motivé les calculs présentés ci-dessous.

Le gaz résiduel peut être composé par exemple de diazote, de dioxygène, de monoxyde de carbone, d'eau, d'hydrogène, etc. Il peut provenir de fuites de l'enceinte à vide, ou de la désorption des matériaux constituant la source d'ions. Comme l'ionisation par impact électronique permet d'ioniser tous les atomes, des ions issus de l'ionisation du gaz résiduel peuvent aussi être délivrés par le canon à ions.

Déterminer une relation entre les grandeurs de fonctionnement du canon à ions et le courant d'ions de gaz résiduel pourrait peut-être permettre de trouver un moyen pour réduire la contribution du gaz résiduel.

Pour estimer ce courant, la méthode est similaire à la démarche précédente, mais on se place cette fois du point de vue du faisceau d'électrons. L'atténuation de ce faisceau étant un processus stochastique dont on rend compte par une section efficace, elle s'exprime par définition par l'équation différentielle suivante :

$$\frac{d\Phi}{dx} = -n_g \sigma \Phi \tag{5.17}$$

Avec Φ le flux d'électrons (s⁻¹), n_g la densité atomique ou moléculaire du gaz résiduel (m⁻³), σ la section efficace d'ionisation du gaz résiduel par impact électronique et x la longueur traversée par le faisceau. La densité de gaz est considérée homogène. Comme précédemment, on suppose que les électrons parcourent la distance entre la cathode et l'anode d_{CA} . L'intégration de cette équation donne :

$$\frac{\Phi(d_{CA})}{\Phi_0} = exp(-n_g \sigma d_{CA}) \tag{5.18}$$

Le rapport $\Phi(d_{CA})/\Phi_0$ correspond à la probabilité qu'un électron n'interagisse pas avec le gaz résiduel. La probabilité $p_{interaction}$ qu'il interagisse et donc qu'un atome du gaz résiduel soit ionisé est $1 - \Phi(d_{CA})/\Phi_0$. Cette formule suppose que la densité n_g reste constante et qu'elle n'est pas influencée par le faisceau d'électrons. Si $n_g \sigma d_{CA}$ est petit devant 1, alors $p_{interaction} \approx n_g \sigma d_{CA}$.

On suppose le gaz résiduel comme étant un gaz parfait. Donc $PV = RTN_g/N_A$ est utilisé pour déterminer la densité d'atomes ou de molécules : $n_g = PN_A/RT$. La probabilité qu'un électron crée

un ion est donc $p_{interaction} = \sigma d_{CA} P N_A / RT$. Le produit de ce terme par le débit d'électrons donne le nombre d'ions créés par unité de temps. En supposant que tous les ions soient extraits et forment un faisceau d'ions, le courant d'ions +1 est :

$$I_{ion \ gaz \ residuel} = I_{CA} \sigma d_{CA} \frac{PN_A}{RT}$$
(5.19)

Cette équation relie le courant d'ions aux différents paramètres de fonctionnement et de géométrie du canon à ions. Le canon à ions se comporte comme une jauge de pression : plus la pression est élevée, plus le courant d'ions est important. On comprend que pour minimiser ce courant, il faut réduire au minimum la pression dans la zone d'ionisation.

Pour effectuer les mesures suivantes, on a donc pris soin de réduire la distance entre la pompe et la zone d'ionisation, ainsi que de maximiser les conductances de pompage pour réduire la pression, et donc le courant d'ions de gaz résiduel.

5.5.5 Température à l'équilibre de l'échantillon

On cherche à prédire la température de l'échantillon à évaporer en fonction des paramètres de fonctionnement du canon à ions, ce qui va permettre de calculer son taux d'évaporation et finalement l'intensité du faisceau d'ions métalliques.

À l'équilibre thermique, la somme des puissances absorbées par l'échantillon métallique est égale à la somme des puissances qu'il dissipe : $\sum P_{entrant} + \sum P_{sortant} = 0$ avec $P_{entrant}$ positif et $P_{sortant}$ négatif par convention.

En transfert thermique, il y a trois modes de transfert de la chaleur :

Convection : Sous vide, ce phénomène est négligeable.

- **Conduction :** La conduction thermique est un transfert de puissance induit par un gradient de température dans un matériau.
- **Rayonnement :** La puissance rayonné par une surface exposée au vide est donnée par la loi de Stefan–Boltzmann : $P = S\varepsilon\sigma T^4$. Avec ε l'émissivité, grandeur comprise entre 0 et 1 qui montre dans quelle proportion le corps émetteur se comporte comme un corps noir. T est la température en Kelvin et S la surface émissive en m⁻². σ est la constante de Stefan– Boltzmann qui est égale à 5,67 × 10⁻⁸ W m⁻² K⁻⁴.

Une surface peut aussi recevoir de la chaleur par rayonnement. La proportion du rayonnement incident absorbé se détermine avec l'absorptivité, grandeur comprise entre 0 et 1. Un corps noir a une absorptivité de 1.

L'émissivité et l'absorptivité sont des grandeurs qui varient avec de multiples paramètres : angles, matériaux, température de la surface, longueur d'onde du rayonnement émis ou reçu, état

de surface ou encore la structure cristallographique de la surface. Dans le cas où le rayonnement reçu et émis a le même spectre lumineux, alors l'émissivité est égale à l'absorptivité.

Pour estimer la puissance échangée d'une surface à l'autre, on utilise la notion de facteur de forme. Il s'agit d'un nombre compris entre 0 et 1 qui décrit la proportion de l'énergie thermique émise par une surface et reçue par une autre surface se trouvant en vis-à-vis. La puissance reçue par une surface A depuis une surface B s'exprime ainsi :

$$P_{B\to A} = F_{B\to A} \alpha_A P_B \tag{5.20}$$

 α_A correspond à l'absorptivité de la surface A du rayonnement émis par B. Elle est considérée en première approximation comme étant égal à l'émissivité de A pour la longueur d'onde (ou la "température de rayonnement") de B.

Les transferts par rayonnement sont assez complexes à prédire avec précision dans des systèmes complexes, car le facteur de forme est difficile à calculer pour des géométries complexes. De plus, si un rayonnement incident est en partie absorbé, une autre partie est réfléchie. Cette partie réfléchie peut, au gré d'autres réflexions, revenir sur la surface incidente.

5.5.6 Production d'ions nickel

Le premier élément dont la production a été testée est le nickel. Cette version du canon à ions utilise le bombardement électronique et le rayonnement thermique de la cathode comme sources de chaleur pour chauffer l'échantillon de Ni. Le taux d'évaporation est donc fortement couplé au chauffage de la cathode, au courant I_{CA} , à la tension U_{CA} , et à la géométrie du canon à ions.



5.5.6.1 Dispositif expérimental, configuration mécanique et électrique

Figure 5.7 – Configuration mécanique du canon à ions. L'échantillon métallique est monté sur une table de translation, non représentée ici.

La figure 5.5 montre la configuration électrique dans laquelle le canon à ions a été testé, et la figure 5.7 la configuration mécanique correspondante. Quatre pièces métalliques isolées les unes des autres sont placées à des potentiels électriques différents. La chambre à vide est reliée à la terre, définie comme le 0 V. L'anode en Ni est reliée à la masse de la chambre vide à travers une résistance d'1 k Ω utilisée pour la lecture du courant d'électrons qu'elle collecte, appelée I_{anode}. La cathode est chauffée par une alimentation isolée qui délivre quelques Ampères et est polarisée à -200 V par rapport à la terre. Enfin, l'électrode de collecte des ions (ou électrode d'extraction) est placée à -30 V par rapport à la cathode ou -230 V par rapport à la terre.

Dans cette configuration, les ions percutent l'électrode de collecte, qui fait aussi office d'électrode d'extraction. Comme elle est à un potentiel électrique inférieur à celui de la cathode et de l'anode, les électrons secondaires émis peuvent quitter l'électrode de collecte et partir vers un potentiel supérieur. Cela peut fausser la mesure du courant I_{Ion}, qui est alors égal à $I_{Ion mesure} =$ $I_{Ion reel} + I_{electron secondaire}$. D'après la figure 5.1, et en extrapolant à une énergie de l'ordre de 200 eV, le courant d'électrons secondaires est un ordre de grandeur plus petit que le courant d'ions. Dans la suite, on considèrera donc que le courant mesuré est égal au courant d'ions.

On a vu dans la partie 5.5.4 que la pression de gaz résiduel génère un courant d'ions parasite. Une attention particulière a été portée au pompage dans ce dispositif, pour réduire au maximum la pression dans la zone d'ionisation. Une turbopompe moléculaire a été utilisée pour faire le vide dans l'enceinte, est reliée au dispositif par des tubes de sections élevées (50 mm) au regard du volume de la chambre ($\sim 1L$), du côté de l'extraction et de la source. Une jauge mesurait la pression dans l'enceinte au niveau de l'extraction.

5.5.6.2 Cathode électro-émettrice

La cathode électro-émettrice présentée est utilisée dans le canon à ions ainsi que pour le dispositif TULIP métalliques. Elle doit avoir une durée de fonctionnement de plusieurs jours pour répondre à la durée de fonctionnement attendue d'un ECS de SPIRAL1. Son comportement ne doit pas évoluer dans le temps, elle doit garder sa forme et conserver le même travail de sortie tout au long de son fonctionnement.

Une qualité importante de la cathode est le courant d'électrons qu'elle peut émettre. Pour permettre une efficacité d'ionisation satisfaisante (au moins quelques %) de TULIP métallique, une estimation grossière montre qu'il faut que la cathode émette entre 10 et 50 mA. Le calcul se base sur l'équation 5.16, avec pour principale incertitude le temps passé par l'atome à ioniser dans la zone d'ionisation.

La figure 5.8 montre le plan et une photo du filament cathode monté sur son support. Le matériau utilisé est le tungstène, car c'est le métal réfractaire avec le plus haut point de fusion ($3422 \,^{\circ}$ C) et avec l'une des pressions de vapeurs les plus faibles. Un filament de tungstène chauffé à $2400 \,^{\circ}$ C sous vide peut avoir une durée de vie de plusieurs dizaines de milliers d'heures dans le contexte d'une lampe à filament incandescent. Comme le filament de la cathode a un diamètre largement supérieur à celui d'un filament de lampe ($0,25 \,$ mm contre quelques dizaines de μ m), la durée de vie sera plus importante. Un autre avantage du matériau est sa résistance à la contamination cathodique, car sa haute température de fonctionnement fait qu'un atome qui colle à la surface sera plutôt évaporé qu'absorbé. On peut donc supposer que le filament est composé principalement de tungstène tout au long de son usage, même dans un environnement comme celui d'un ECS ISOL. Un dernier avantage est l'abondance de la littérature au sujet des filaments en tungstène, due à leurs usages très variés dans les lampes à incandescence et les tubes à vide au cours du 20^{e} siècle.

Le filament est supporté par deux plaques en tantale, comme montré sur la figure 5.8b. Le tantale est aussi un matériau réfractaire (point de fusion : 3020 °C), choisi ici pour sa résistance à la chaleur et sa facilité de mise en forme. De plus, le Ta est utilisé dans les ECS de SPIRAL1, ce qui montre qu'il est capable de supporter l'environnement d'un ECS.

Le choix d'une cathode en tungstène de cette forme et dimension provient des tests effectués pendant mon stage de Master 2. Les expériences qui ont été réalisées nous ont amenés à conclure qu'un filament de tungstène avec un diamètre (0,25 mm) et trois spires de \sim 4 mm de diamètre devrait permettre d'émettre jusqu'à 60 mA à une température maximale de 2150 °C.



(a) Plan du filament. Le filament fourni par le fabri-(b) Photo du filament installé dans son cant a un diamètre mesuré de 0,25 mm. porte-filament en Tantale.

Figure 5.8 – Cathode du canon à ions.

Pour extraire le maximum de courant de la cathode, celle-ci est maintenue à une température élevée. Le point le plus chaud est maintenu à ≈ 2500 °C pour assurer une durée de vie du filament d'au moins 15 jours. Des mesures et des calculs ont été effectués pour déterminer le lien entre la température maximum du filament et le courant de chauffage, présenté dans l'annexe E. La conclusion est qu'un courant de 7 A est requis pour obtenir une température de 2500 °C, courant qu'on ne dépassera pas pour que la durée de vie du filament soit de plusieurs jours au moins.

5.5.6.3 Anode en nickel chauffée par rayonnement et par bombardement électronique

L'échantillon en Ni sert d'électrode d'accélération (aussi appelé anode) pour le faisceau d'électrons en provenance de la cathode, et fournit une source d'atomes de nickel à vaporiser.

La figure 5.9a montre l'anode. Elle est constituée d'une feuille de nickel de 0,1 mm d'épaisseur et de 4,5 mm de diamètre (d_{anode}). Elle est suspendue sur une boucle de nickel de 4 mm de diamètre, réalisée à partir d'un fil de nickel de 0,25 mm de diamètre. La boucle est suspendue à l'extrémité de pattes d'environ 15 mm de long, qui limitent la dissipation de chaleur par conduction thermique vers le domino. La position de l'anode peut être ajustée par translation dans les directions xy (perpendiculaire au faisceau d'électrons), à l'aide de deux tables de translations micrométriques, et z à l'aide des vis de support, ce qui permet le centrage de l'anode et l'ajustement de la distance cathode-anode.



(a) Anode en Ni.



(b) Montage de l'anode sur un domino en céramique. L'ensemble peut être déplacé par deux tables de translations.

Figure 5.9 – Anode du canon à ions.

La température de l'anode peut être estimée de la même façon que celle de la cathode. La puissance reçue par impact électronique est le produit du courant I_{anode} d'électrons collecté par l'anode et de la tension d'accélération. La puissance reçue par rayonnement depuis la cathode est déterminée par l'équation 5.20, avec la puissance émise par la cathode considérée comme dissipée uniquement par rayonnement. Le rayonnement se fait des deux cotés du disque de l'anode. Le bilan des puissances émises et reçues par l'anode donne :

$$P_{emis \ rayonnment} = P_{bombardement \ electronique} + P_{recu \ rayonnment}$$
(5.21)

$$\frac{1}{2}\pi d_{anode}^2 \sigma \varepsilon_{anode} T_{anode}^4 = U_{CA}I_{anode} + P_{cathode}F_{cathode} \rightarrow anode \alpha_{anode}$$
(5.22)

Comme la cathode et l'anode sont en vis-à-vis direct, on suppose le facteur de forme $F_{cathode \rightarrow anode}$ comme étant inférieur à 1/2, car au moins la moitié de la puissance rayonnée part du côté où l'anode ne se trouve pas. L'émissivité et l'absorptivité du Ni sont estimées d'après [51]. On retient une valeur d'environ 0,3 pour l'absorptivité du rayonnement en provenance de la cathode sur l'anode, ce qui correspond à l'émissivité du Ni solide proche du point de fusion.

L'équation 5.22 permet de déterminer la température de l'anode.

5.5.6.4 Résultats

Le canon à ions nickel a été testé dans plusieurs configurations. Les résultats présentés ici sont ceux effectués dans la configuration qui a permis d'obtenir une intensité de 400 nA d'ions Ni. La distance cathode anode était de 1,5 mm et la tension U_{CA} était de 200 V. Le courant de chauffage de la cathode I_{cathode} est augmenté progressivement pour faire varier le courant d'électrons émis

par la cathode. Les données de la mesure sont présentées dans le tableau 5.3.

U _{cath} (V)	$I_{\text{cath}}(A)$	I _{CA} (mA)	I _{anode} (mA)	$I_{CF}(\mu A)$	P(mbar)
2,77	5,15	1	0,773	0,01	4,30E-06
2,92	5,33	2,1	1,728	0,02	4,40E-06
3,03	5,46	3,1	2,618	0,03	4,50E-06
3,16	5,62	4,2	3,51	0,04	4,70E-06
3,33	5,77	5,1	4,45	0,048	4,80E-06
3,51	5,96	6,1	5,32	0,057	4,90E-06
3,71	6,14	7,1	6,22	0,067	5,10E-06
3,88	6,29	8,0	7,12	0,077	5,30E-06
4,07	6,46	9,2	8,22	0,088	5,50E-06
4,22	6,6	10,3	9,17	0,11	6,10E-06
4,35	6,73	11,2	10	0,127	6,30E-06
4,44	6,82	11,9	10,6	0,146	6,50E-06
4,51	6,89	12,5	11,2	0,177	6,90E-06
4,6	6,96	13	11,67	0,22	7,30E-06
4,67	7,03	13,5	12,17	0,251	7,50E-06
4,73	7,08	13,9	12,54	0,289	7,80E-06
4,81	7,14	14,5	13,07	0,344	8,10E-06
4,91	7,2	14,9	13,47	0,4	8,50E-06
4,94	7,26	15,4	13,94	0,473	8,80E-06
5,04	7,34	16,1	14,62	0,602	9,30E-06

Table 5.3 – Mesures du test du canon à ions Ni. $U_{CA} = 200 \text{ V}$

La figure 5.10 montre que I_{CA} est supérieur à I_{anode} de 10 à 20 %, donc que 10 à 20 % des électrons ne sont pas collectés par l'anode, mais perdus dans la chambre.



Figure 5.10 – Courant I_{CA} d'électrons émis par la cathode (points bleus) et reçu pas l'anode (points rouges) en fonction de la température au point le plus chaud de la cathode. La courbe noire montre la forme qu'aurait une émission purement limitée en température pour une cathode en tungstène (d'après l'équation 5.1, W = 4,54 eV, amplitude arbitraire).

La figure 5.10 montre l'évolution du courant émis par la cathode et du courant collecté par l'anode, en fonction de la température au point le plus chaud de la cathode. Comme décrit dans la partie 5.3.3, le régime d'émission est mixte. En effet, si l'émission était limitée en charge d'espace, I_{CA} ne varierait pas avec la température, et si l'émission était limitée en température, $I_{CA}(T)$ suivrait la loi de Richardson-Dushman.

La conclusion de ces mesures est que pour augmenter le courant I_{CA} , il est encore possible d'augmenter la température du filament et la tension U_{CA} . De plus, une augmentation de U_{CA} permettrait de plus chauffer l'anode par bombardement électronique et donc d'augmenter son évaporation, mais cela diminuerait aussi la section efficace d'ionisation. Des mesures non présentées ici ont montrées que I_{CA} augmente plus rapidement que la section efficace ne diminue avec U_{CA} , le produit de ces deux termes croît avec U_{CA} . Cela est vrai dans l'intervalle de tension testé (0 à 200 V). En extrapolant à des tensions plus élevées et si la tendance d'augmentation de I_{CA} est conservée, on devrait obtenir une probabilité d'ionisation plus élevée.

La figure 5.11 montre le courant d'ions qui sort de la source et la pression mesurée dans la chambre en fonction du courant I_{CA} . On observe que la pression augmente avec I_{CA} , ce qui est attendu, car l'augmentation de la température du système stimule le dégazage dans l'environnement de la source.



Figure 5.11 – Courant d'ions et pression mesurés en fonction du courant I_{CA} . La ligne pointillée sépare les deux régimes de fonctionnement, à gauche ionisation du gaz résiduel seulement, à droite ionisation de gaz résiduel et du nickel.

Pour $0 \text{ mA} < I_{CA} < 10 \text{ mA}$, le courant d'ions est proportionnel à I_{CA} . Dans cet intervalle, l'anode n'est pas assez chaude pour s'évaporer et donc seul le gaz résiduel est ionisé.

À partir de $I_{CA} > 10 \text{ mA}$, le courant d'ions augmente plus rapidement que la pression. Cela laisse penser que dans cette zone, le courant d'ions résulte de la somme du courant d'ions de gaz résiduel, et du courant d'ions Ni⁺ produit par l'évaporation de l'anode.

5.5.6.5 Intensité et pureté du faisceau d'ions Ni⁺

On cherche à déterminer l'intensité du courant d'ions Ni^+ pour caractériser le canon. La comparaison de cette intensité avec l'intensité requise pour les tests des ECS (entre 100 nA et 1 μ A) déterminera si le canonoffre les performances attendues. Il faut pour cela soustraire le courant d'ions de gaz résiduel du courant total émis. Cette soustraction s'effectue par une modélisation et un ajustement du courant d'ions en fonction des grandeurs collectées lors du test présenté dans ce chapitre.



Figure 5.12 – Courant d'ions normalisé par la pression lu sur la jauge et le courant I_{CA} , en fonction de I_{CA} .

L'équation 5.19 déterminée dans la section 5.5.4 montre que le courant d'ions du gaz résiduel devrait suivre la relation $I_{ion} \propto I_{CA}P/T$, avec P la pression du gaz résiduel dans la zone d'ionisation et T sa température. On suppose que la pression du gaz résiduel dans la zone d'ionisation est proportionnelle à la pression mesurée par la jauge de pression. On suppose aussi la température moyenne T du gaz résiduel constante. Dans ces conditions, dans la zone $0 \text{ mA} < I_{CA} < 10 \text{ mA}$, le courant normalisé $I_{ion \ gaz \ residuel}/(I_{CA}P)$ devrait être constant. Or, la figure 5.12, montre que ce courant diminue aussi avec I_{CA} . Cela signifie que les hypothèses ne sont pas valides, bien qu'il soit difficile de savoir si cette variation du courant est due à une variation de température ou à une non-proportionnalité de P_{gaz} avec P_{jauge} , et de savoir lequel a le plus d'influence. Dans la suite, on fait une correction à l'ordre 0 et 1. À l'ordre 0, $I_{ion \ normalisé}$ est considéré constant et comme étant la moyenne de la valeur qu'il a sur la figure 5.12. À l'ordre 1, $I_{ion \ normalisé}$ est estimé par une relation linéaire déterminée par régression linéaire.

Le courant I_{ion gaz résiduel} est alors extrapolé dans la zone I_{CA} > 10 mA en multipliant $I_{ion gaz residuel}/(I_{CA}P)$ à l'ordre 0 et 1 par $I_{CA}P$. Le courant d'ions soustrait de la contribution du gaz résiduel en fonction de I_{CA} est visible sur la figure 5.13. Le courant d'ions Ni⁺ résulte du courant d'ions total duquel le courant d'ions du gaz résiduel a été soustrait (figure 5.13).

Pour ajuster le courant d'ions de Ni^{1+} en fonctions de $\mathrm{I}_{\mathrm{CA}},$ on pose que :

$$I_{Ni^+} = q_{Ni^+} \frac{dN_{Ni}}{dt} p_{ioni} p_{extr}$$
(5.23)

Les équations 5.7 et 5.16 qui décrivent respectivement le taux d'évaporation du Ni et la probabilité d'ionisation sont injectées dans 5.23 :

$$I_{Ni^+} = q_{Ni^+} \frac{P_{vap}(T)}{\sqrt{2\pi m k_b T}} S_{anode} \frac{I_{CA}\sigma}{S_{faisceau}q_e} t p_{extr}$$
(5.24)

Dans le canon à ions, la section du faisceau d'électrons est posée égale à celle de l'anode. La charge de l'ion et de l'électron sont égales (au signe près). Le temps t qu'un atome évaporé passe dans la zone d'ionisation est $t = d_{CA}/v$ avec $v = \sqrt{\frac{8k_bT}{\pi m}}$ et d_{CA} la distance cathode-anode. L'équation 5.24 devient :

$$I_{Ni^+} = \frac{P_{vap}(T)I_{CA}\sigma d_{CA}p_{extr}}{4k_bT}$$
(5.25)

La température de l'anode ne pouvant pas être mesurée directement, on utilise l'équation du bilan thermique de l'anode 5.22 pour la déterminer :

$$T = \left(\frac{U_{CA}I_{anode} + U_{cath}I_{cath}F_{cathode \to anode}\alpha_{anode}}{2\pi d_{anode}\varepsilon_{anode}}\right)^{1/4}$$
(5.26)

Elle est utilisée pour calculer la pression de vapeur du nickel avec l'équation d'Antoine pour le Ni et d'après [52] :

$$\log_{10}(P_{vap}) = 15.563 - 22606/T - 0.8717log_{10}(T)$$
(5.27)

Avec la pression en Pa et la température en K. Cette équation n'est valable que pour du Ni à l'état solide et est précise à 5% ou mieux [52].

La combinaison des équations 5.25, 5.26 et 5.27 permet d'exprimer I_{Ni^+} en fonction des grandeurs mesurées, présentées dans le tableau 5.3. Les valeurs de l'émissivité et l'absorptivité du Ni sont utilisées comme variables d'ajustement pour ajuster le modèle aux données, sans trop dévier des valeurs de la littérature. Le facteur de forme $F_{cathode \rightarrow anode}$ est aussi un paramètre d'ajustement, à priori inférieur à 0,5. La probabilité d'extraction est fixée à 1, car l'électrode d'extraction/collecte est de grand diamètre, et la cathode est assez transparente.

La courbe noire de la figure 5.13 montre le résultat de l'ajustement. Les valeurs des paramètres issues de l'ajustement sont : $\varepsilon = 0,155$, $\alpha = 0,45$ et $F_{cathode \rightarrow anode} = 0,3$. La proximité de ces valeurs avec celles trouvées dans la littérature apporte de la crédibilité au modèle utilisé et à ses hypothèses, et conforte l'idée que l'échantillon de Ni s'évapore effectivement et que le canon à ions produit des ions Ni⁺.



Figure 5.13 – Courant d'ions corrigé à l'ordre 0 et 1 en fonction de I_{CA} . La courbe noire correspond à la valeur attendue par le modèle avec des paramètres ajustés pour s'approcher au mieux du courant d'ions Ni corrigé.

Pour $I_{CA}=16,1$ mA, la température de l'anode prédite par le modèle est de 1358 °C, un peu moins de 100 °C en dessous du point de fusion du Ni. La probabilité d'ionisation est de 0,006 %, valeur extrêmement faible, mais suffisante pour produire quelques centaines de nA de courant de nickel.

Remarque : pour le dernier point ($I_{cath} = 7,34 \text{ A}$), et d'après le modèle, l'anode a reçu 2,9 W par bombardement électronique et 5,0 W par rayonnement.

5.5.6.6 Conclusion de l'expérience de production de Nickel

Les mesures effectuées ont permis la caractérisation de la cathode. Elle est capable d'émettre quelques dizaines de mA d'électrons. Cela rend cette configuration de cathode utilisable pour la source d'ions TULIP métalliques. Le canon à ions a produit un courant de Ni d'un maximum de 430 nA, courant qui répond à l'objectif fixé, qui était de dépasser 100 nA.

La pureté du faisceau est de 71 %. Le reste du faisceau est composé d'ions d'autres éléments ou molécules que le Ni. Ces impuretés ne sont pas un problème si on souhaite utiliser ce faisceau pour la mesure d'efficacité des ECS, à condition que la pureté soit connue au moment de la mesure et que les ions soient séparés en sortie de l'ECS. Or, on a vu que la pureté est fortement influencée par la qualité du vide dans la source ou le dégazage dans la source. Si la configuration mécanique ou le pompage changent, l'abondance relative des polluants va changer. L'idéal serait de pouvoir séparer les ions suivant leurs rapports Q/M, afin de purifier le faisceau de Ni avant injection dans l'ECS.

L'émittance du faisceau produit par le canon à ions est inconnue. Une émittance trop élevée pourrait nuire à un transport efficace du faisceau d'ions jusqu'à l'intérieur de l'ECS à tester. Cette émittance devra être caractérisée.

Enfin, ce canon à ions a fait la preuve qu'utiliser le rayonnement et le bombardement électronique comme sources de chauffage de l'échantillon à évaporer, et utiliser ce même faisceau d'électrons pour produire des ions métalliques fonctionne.

Chapitre 6

Adaptation de TULIP à l'ionisation d'éléments métalliques : SPEED

Le dispositif TULIP à ionisation de surface est adapté à l'ionisation d'éléments ayant une énergie de première ionisation faible, principalement les atomes alcalins, alcalino-terreux et les lanthanides. L'ionisation de surface est efficace lorsque l'énergie d'ionisation de l'atome à ioniser est inférieure à environ 5,5 eV [22]. En effet, l'ionisation de surface est un processus dont l'efficacité dépend de la compétition entre l'énergie de première ionisation et le travail de sortie du matériau de la surface ionisante.

L'objectif du projet TULIP est de produire des ions à partir d'isotopes déficients en neutron dans la région de l'étain 100 : l'étain, l'indium, le cadmium et l'argent. L'ionisation de surface n'est pas une technique adaptée, car leurs énergies de première ionisation sont toutes supérieures à 5,7 eV. Il est donc nécessaire d'adapter le mode d'ionisation de TULIP pour produire ces éléments métalliques.

Deux processus sont envisageables pour l'ionisation des éléments métalliques : l'ionisation par laser et l'ionisation par impact électronique. La casemate de production de SPIRAL1 ne dispose pas de lasers et il n'est pas envisagé d'en installer à court ou moyen terme. L'ionisation par impact électronique est donc la solution retenue. Le nouvel ECS reprend la cavité et la cible de TULIP alcalin auquel on ajoute un système d'émission d'électrons pour l'ionisation. Cet ECS est nommé TULIP métalliques dans la suite du texte, ou projet SPEED.

Au début de ce travail de thèse en 2020, la source d'ionisation par impact électronique FEBIAD (Forced Electron Beam Ionisation by Arc Discharge, [53]) présentait des performances insatisfaisantes en termes d'efficacité d'ionisation (< 5%) de l'Ar, élément de référence qui permet de comparer les efficacités des différentes sources d'ionisation par impact électronique et en terme de longévité (15 jours, durée requise par l'exploitation de SPIRAL1). De plus, la configuration de cette source était mal adaptée à un couplage avec la cavité TULIP. Effectivement, le principe du dispositif TULIP visait à une ionisation des atomes dans la cavité, dès leur relâchement en dehors du matériau catcheur, pour permettre une production d'ions à partir d'isotopes radioactifs de courte durée de vie (< 100 ms). Dans le cas d'atomes d'alcalins, cette ionisation rapide est possible par contact des atomes avec les parois de la cavité. Pour permettre une ionisation rapide, donc intracavité d'atomes qui ne peuvent pas être ionisés par contact avec une surface chaude, il faut injecter dans la cavité des électrons d'une énergie suffisante (entre 50 et 200 eV, selon le maximum de section efficace d'ionisation des atomes par impact électronique). Une fois ionisés, les ions sont guidés vers l'orifice de sortie à l'aide du champ électrique interne à la cavité, pour ensuite former un faisceau.

Un système au principe beaucoup plus simple que celui du couplage de la cavité TULIP avec une source d'ions FEBIAD a donc été envisagé : placer une cathode chaude en sortie de la cavité TULIP, qui émet des électrons vers la cavité grâce à une différence de potentiel entre cathode et cavité ajustable entre 50 et 200 eV, et utiliser cette tension pour favoriser l'extraction des ions en dehors de la cavité (figure 6.1).

Ce principe, qui répondait a priori aux critères de simplicité requis par le besoin de fiabilité des dispositifs de production ISOL devait cependant être étudié en détails et testé, préalablement à son association avec la cavité TULIP, car plusieurs points devaient être vérifiés : le courant d'électrons qu'il serait possible d'injecter dans la cavité, sa répartition spatiale, et l'efficacité d'ionisation résultante.



Figure 6.1 – Schéma de principe de l'ECS SPEED. Les trajectoires des électrons sont représentées par les flèches bleues.

Ce chapitre décrit la démarche et les études effectuées, du principe d'émission électronique jusqu'aux tests hors ligne du dispositif SPEED.

6.0.1 Simulation de la source d'ions à impact électronique

La source SPEED a été simulée au début de mon travail de thèse. La simulation se concentre sur l'aspect source à impact électronique, car les autres aspects de la conception de l'ECS (thermique, production et cinématiques de noyaux radioactifs) sont traités dans le chapitre 3.

La motivation principale du travail de simulation était de vérifier si l'on peut injecter suffisamment de courant dans la cavité pour obtenir une efficacité d'ionisation d'au moins quelques pourcents. Il s'agissait aussi de vérifier que le faisceau produit avait les propriétés requises pour être utilisé en aval de l'ECS.

Un autre intérêt de la simulation est qu'elle apporte une compréhension du comportement de l'ECS. Cela a permis de développer un modèle analytique permettant de prédire l'efficacité de la source ainsi que le temps de transformation des atomes en ions, et au final de comparer les résultats à ceux de la simulation et de l'expérience.

Cependant, la simulation présente des limites. Certaines hypothèses simplificatrices induisent nécessairement une différence avec l'expérience. Les méthodes numériques utilisées peuvent provoquer des erreurs, et être limitées par le temps de calcul ou la mémoire disponible dans la machine. Il est aussi possible que certains phénomènes ne soient pas pris en compte. Ces points font que la simulation peut présenter des différences avec l'expérience, et qu'il est nécessaire de comparer les résultats de la simulation aux résultats expérimentaux.

La source SPEED est simulée en deux étapes successives. La première simulation consiste à déterminer la trajectoire des électrons, le potentiel électrique ainsi que la densité de charge dans la cavité. La deuxième étape simule l'effusion des atomes dans la cavité source, leur ionisation et trajectoire par une méthode de Monte-Carlo. Elle utilise le résultat de la première étape.

6.0.1.1 Logiciel SIMION

Les simulations sont effectuées avec SIMION [54]. C'est un logiciel d'optique de faisceau d'ions utilisant la méthode des éléments finis pour le calcul de potentiels électriques, couplée à un algorithme de calcul de trajectoire de particules chargées. La simulation s'effectue dans un volume découpé en un quadrillage de cubes, qui est soit un espace vide, soit défini comme appartenant à une électrode. Le potentiel électrique dans les volumes vides est calculé en résolvant l'équation de Laplace : $\Delta(V) = 0$. Le potentiel des électrodes fixe les conditions aux limites.

En plus de résoudre l'équation de Laplace, SIMION peut résoudre l'équation de Poisson $\Delta(V) = -\rho/\epsilon_0$, mais la charge d'espace ϵ dans chaque cellule doit être définie par l'utilisateur.

Le calcul de la trajectoire des ions est fait par un algorithme de type Runge-Kutta modifié, propre à SIMION. La force électrique appliquée sur une particule est calculée à partir des potentiels électriques des cellules voisines.

En plus de ces fonctionnalités de base, SIMION permet l'utilisation de scripts, qui permettent d'améliorer la simulation et de rajouter des fonctionnalités.

L'une des limites principales de SIMION est la mémoire disponible sur la machine effectuant la simulation. Chaque cellule prenant 10 octets de mémoire vive, la mémoire requise augmente au cube du nombre de cellules par unité de longueur. Le temps de calcul de la résolution de l'équation de Laplace observe la même tendance.

6.0.1.2 Émission électronique

Les lois qui gouvernent l'émission d'électrons thermiques et leur accélération décritent dans la partie 5.3 nous apprennent que l'on peut prédire le courant maximal échangé entre cathode et anode si elles ont une géométrie de type condensateur plan. La forme de la cathode de SPEED (la même que celle du canon à ions 5.5.6.2) et de la cavité de TULIP sont loin de cette géométrie, ce qui implique d'avoir recours à une simulation pour rendre compte de l'émission électronique.

6.0.1.2.1 Méthode numérique de calcul du champ électrique et de la densité de charges dans la cavité La méthode utilisée est présentée sur la figure 6.2. La première étape consiste à définir la géométrie de la simulation, c'est-à-dire la forme et le potentiel électrique de la cavité TULIP, la cathode et l'électrode d'extraction du faisceau. Le potentiel électrique est ensuite calculé en résolvant l'équation $\Delta V = 0$, sans charge d'espace. L'étape suivante consiste à simuler les trajectoires des électrons dont les points de départ sont sur la surface de la cathode. La charge d'espace est calculée à partir de la trajectoire des électrons, et le potentiel électrique est recalculé en résolvant $\Delta V = -\rho/\epsilon_0$.

Le courant émis étant de l'ordre de quelques dizaines de mA, il est impossible de simuler la trajectoire de $\approx 10^{17}$ particules. Le courant transporté par chaque électron est donc artificiellement augmenté de telle sorte que : $I_{electron} = \frac{I_{totale}}{N_{electrons}}$.



Figure 6.2 – Processus de la simulation de champs électriques en présence d'un faisceau de particules chargés (figure modifiée à partir de [22]).

Cette méthode repose sur plusieurs hypothèses :

- La première est balistique. Les trajectoires des électrons sont uniquement gouvernées par le champ électrique : les collisions électron-électron sont négligées.
- L'émission électronique est considérée comme indépendante du temps.
- La contribution des ions au potentiel dans la source est négligée dans la première partie de la simulation (calcul de champ électrique et de densité électronique)

La figure 6.3 montre une vue en perspective et en coupe de la géométrie de la simulation. La taille de cellule retenue est de 0,05 mm, et le volume simulé est de 41x16x81 mm. Il en résulte un espace pris dans la mémoire vive de 13 Go et des temps de simulation de 4 heures. Diminuer la taille des cellules conduit à dépasser la mémoire disponible de l'ordinateur. Des tests effectués nécessitant plus de de 20 Go ont montré des problèmes de stabilité de la simulation et de temps de calculs de plusieurs jours.



Figure 6.3 – Géométrie simplifiée de la source TULIP telle que définie dans le logiciel SIMION. L'électrode d'extraction se trouve à une distance de 25 mm de la cathode.

Pour les mêmes raisons, la reproduction de la cathode de SPEED est donc difficilement envisageable, car le fil en tungstène d'un diamètre de 0,25 mm, correspond seulement à cinq fois la taille d'une cellule. Cela ne permet pas de reproduire sa géométrie de façon fidèle. La forme utilisée pour la simulation est donc une plaque percée d'un trou de diamètre 2 mm, avec une surface d'émission d'électrons de 4 mm de diamètre. Cette forme retenue a aussi l'avantage de considérablement simplifier la définition de la géométrie dans SIMION et simplifie la définition de la position initiale des électrons.

6.0.1.2.2 Injection des électrons et potentiel électrique Un électron est tiré depuis chaque cellule de la cathode avec une énergie initiale de k_b *2500 K, et une direction perpendiculaire à la surface de la cathode. Les figures 6.4 et 6.5 montrent les trajectoires des électrons pour un courant émis de 30 mA, avec une projection en 2D. La tension d'accélération U_{CA} est de 270 V. Le nombre d'itérations de la simulation est fixé à 5, nombre qui permet d'atteindre une solution identique aux itérations 4 et 5, signe d'une convergence de la simulation vers une solution stable.

Par ailleurs, le potentiel de toute la surface de la cavité, qui fait office d'anode, est fixé au même potentiel. En réalité, le courant de chauffage génére un gradient de potentiel dans les parois de la cavité, effet non pris en compte dans cette simulation.



Figure 6.4 – Comparaison des trajectoires des électrons avec et sans prise en compte de la charge d'espace.



Figure 6.5 – Vue en coupe de la zone cathode et de l'orifice de sortie de la cavité de SPEED.

La simulation montre qu'une partie du faisceau d'électrons pénètre dans la cavité. On observe

également qu'en prenant en compte les effets de charge d'espace, le faisceau diverge davantage dans la cavité.

Les figures 6.6, 6.7 et 6.8 sont issues de la même simulation et montrent les lignes d'isopotentiels électriques générées par la densité de charges d'espace et par les potentiels des électrodes.



Figure 6.6 – Lignes d'isopotentiel dans la cavité SPEED. Vue en coupe au milieu de la cavité, orientation normale à l'axe du faisceau primaire. 50 V entre chaque ligne verte, 5 V entre chaque ligne rouge et 1 V entre chaque ligne bleue.



Figure 6.7 – Idem que la figure 6.6. Plan de coupe défini par l'axe faisceau primaire et l'axe faisceau secondaire.



Figure 6.8 – Zoom sur la zone d'émission électronique.

Le potentiel électrique dans la cavité est creusé par la densité électronique. Le faisceau d'électrons, en plus d'ioniser les atomes dès leur sortie du catcher, génère donc un champ électrique favorable à l'extraction des ions. La figure 6.9 montre le champ électrique dans la cavité en l'absence de densité de charge, où le potentiel électrique pénètre peu dans la cavité.



Figure 6.9 – Lignes d'isopotentiels électriques dans la cavité sans charge d'espace.

Il aurait été possible, moyennant plus de temps passé sur cette partie de la simulation, de rendre compte plus précisément de l'émission électronique. Par exemple, il devrait être possible avec SIMION de créer un espace de simulation avec une taille de cellule variable. Cela permettrait de reproduire plus fidèlement la géométrie de la cathode, et aussi de rendre compte avec une plus grande précision spatiale de la variation de la densité de charge en surface de la cathode.

Faute de temps, il a été décidé de passer rapidement au prototypage, pour confronter les résultats de la simulation à ceux de l'expérience, même si l'expérience ne permet pas de connaître la forme du potentiel électrique dans la cavité.

Un argument supplémentaire pour passer au prototypage est que cette méthode de simulation fonctionne mal dans le régime limité en charge d'espace. Lorsque qu'on augmente le courant émis par la cathode, la simulation cesse de converger. À la première étape de la simulation, les électrons vont tous vers l'anode et remplissent les cellules de charges d'espace. À l'étape suivante, le champ électrique créé par la densité de charge est si intense qu'il renvoie l'intégralité des électrons vers la cathode, ne remplissant quasiment pas les cellules de charges d'espace. Au troisième tour de la simulation, elle revient dans la situation de la première étape : la simulation oscille sans jamais converger.

6.0.1.3 Simulation Monte-Carlo de l'effusion et de l'ionisation

L'étape suivante consiste à utiliser les résultats de la première étape de la simulation pour évaluer l'ionisation dans la source. L'effusion et l'ionisation étant des processus aléatoires, une méthode de Monte-Carlo est adaptée pour les simuler.

On suppose que la densité d'atomes dans la cavité est suffisamment faible pour que la probabilité d'interaction entre atomes soit négligeable (libre parcours moyen très grand devant la taille de la cavité).

Lors de leur vol entre parois, les atomes ont la possibilité d'être ionisés par le flux d'électrons. On suppose que la seule interaction entre les particules et le faisceau d'électrons est l'ionisation, on néglige donc les collisions élastiques ou inélastiques atomes-électrons qui ne provoque pas une ionisation. La probabilité d'ionisation par unité de temps à un point donné de la simulation se calcule à partir de la densité électronique, de la section efficace d'ionisation et de l'énergie des électrons à l'endroit où se trouve l'atome.

Si l'ion est extrait de la cavité, passe à travers l'orifice de la cathode et à travers l'électrode d'extraction, il est comptabilisé comme une ionisation réussie. Si l'ion percute la paroi de la cavité SPEED, il est neutralisé et effuse de nouveau dans la cavité. Si l'ion finit sur la cathode, il est considéré comme perdu. Si un atome quitte la cavité sans être ionisé, il est aussi considéré comme perdu

6.0.1.3.1 Génération des directions et des vitesses d'émission des atomes Cette section décrit la méthode utilisée pour simuler l'effusion atomique des atomes dans la cavité. Le principe est comme suit : depuis sa position initiale, un atome quitte une surface avec une direction et une vitesse aléatoire. Il vole en ligne droite jusqu'à rentrer en contact avec une autre paroi, d'où il est

réémis de façon aléatoire. Ce processus de vol et de réémission se répète jusqu'à ce que l'atome sorte de la source. En répétant cette simulation pour un grand nombre d'atomes, on peut en tirer la distribution du nombre de rebonds et du temps passé par les atomes dans la cavité avant qu'ils n'en sortent.

La distribution des points de départ des atomes est supposée répartie suivant une distribution gaussienne en 2D sur la surface intérieure du catcher (écart-type de 6 mm). La distribution est tronquée à un diamètre de 40 mm pour ne pas créer d'atomes en dehors de la cavité.

L'émission des atomes lorsqu'ils quittent une surface utilise la même méthode que le code MOLFLOW++ [11], un code de simulation d'effusion en régime moléculaire. En coordonnées sphériques, les angles d'émission par rapport à la normale \vec{n} de la surface sont définis comme suit :



Figure 6.10 – Coordonnées sphériques utilisées pour la définition de l'angle d'effusion. Le vecteur n est la normale à la surface d'émission.

Cette distribution de l'angle d'émission correspond à un émetteur dit "Lambertien". X et Y dans les équations 6.1 et 6.2 sont des nombres pseudo-aléatoires indépendants compris entre 0 et 1.

La vitesse des atomes quittant une surface est aussi définie aléatoirement. La distribution de la vitesse suit la loi de Maxwell-Boltzmann. La température des parois est supposée homogène à 1700 K et la masse atomique est posée égale à 100.



Figure 6.11 – Reproduction de la distribution des vitesses de Maxwell-Bolztmann à l'aide du générateur. 10 000 tirages, incertitude $\pm 2\sqrt{N}$ (2 σ).

Le langage utilisé par SIMION est le Lua, un langage avec relativement peu de bibliothèques disponibles. Il a donc fallu écrire les générateurs de nombre aléatoire, dont le code est disponible en annexe A.

Avec ces deux générateurs d'angles et de vitesses, la simulation de l'effusion sans ionisation est possible. La figure 6.12 montre un exemple de l'effusion d'un atome. En répétant cette simulation, on peut obtenir des résultats de distribution de temps d'effusion et de nombre de rebonds sur les parois. Pour obtenir des résultats avec une incertitude statistique suffisamment faible (inférieur à 5%), le nombre d'atomes tirés est de l'ordre de plusieurs milliers. Pour chaque atome simulé, le nombre de rebonds ainsi que le temps passé dans la cavité sont enregistrés.



Figure 6.12 – Exemple de simulation trajectoire pour un atome. La simulation de cet atome est arrêtée quand l'atome rencontre une surface en dehors de la cavité.

L'histogramme 6.13 montre la distribution du temps de vol des atomes dans la cavité. Il a été réalisé avec 10 000 tirages. Sa forme suit une exponentielle décroissante, en accord avec une modélisation du temps d'effusion sans collage par une équation différentielle du premier ordre. Pour A = 100, T = 1700 K, et sans temps de collage des atomes sur les parois, cette simulation prédit un temps d'effusion moyen τ_{eff} de 10,4 ±0,1 *ms*. Cela correspond à $T_{1/2} = \tau_{eff} ln(2) = 7,2 ms$ et à un taux d'effusion de $\lambda_{eff} = 1/\tau_{eff} = 96 s^{-1}$.



Figure 6.13 – Histogramme du temps d'effusion atomique. A = 100, T = 1700 K.

Le nombre de rebonds moyen des atomes sur les parois de la cavité est de 341 ± 3 . Ce nombre de rebonds ne dépend pas de la température ou de la masse de l'atome qui effuse. Cette indépendance est aussi vraie pour la distance parcourue, ce qui permet de déterminer le temps d'effusion pour d'autres masses et d'autres températures en utilisant la relation suivante : $\lambda_{eff} \propto \sqrt{T/m}$.

La distribution du nombre de rebonds des atomes suit la même distribution en exponentielle décroissante que celle du temps de vol. Cela permet d'évaluer le temps de collage total si l'on connait le temps de collage par contact.

6.0.1.3.2 Probabilité d'ionisation L'étape suivante de la simulation consiste à combiner l'effusion atomique avec la probabilité d'ionisation. Quand un atome passe à travers une cellule de la simulation, dans laquelle il y a une densité d'électrons n_e , il y réside pendant un temps t. En connaissant l'énergie cinétique E_e du faisceau d'électrons dans cette cellule, l'équation 5.16 établie précédemment (dans la partie de ce chapitre sur le canon à ions 5.5.3) donne la probabilité d'ionisation :

$$p_{ioni} = \sqrt{\frac{2E_e}{m_e}} n_e \sigma(E_e) t \tag{6.3}$$

 E_e est déterminée à partir du potentiel électrique dans la cellule, par rapport au potentiel de la cathode.

Les sections efficaces de l'étain, l'indium, le cadmium et l'argent (éléments objectifs de cette thèse) sont données dans la figure 6.14. Les courbes ont la même forme avec au maximum un facteur deux de différence d'amplitude.



Figure 6.14 – Section efficace des éléments métalliques d'intérêts pour SPEED. D'après [55] pour Sn, In et Ag (données expérimentales), et d'après [56] pour le Cd (données théoriques).

La section efficace de l'étain est ajustée avec une fonction à quatre paramètres (équation 6.4) donnée par [57], voir figure 6.15. La fonction ainsi obtenue permet d'extrapoler la section efficace au-delà de 200 eV, pour permettre de calculer l'efficacité d'ionisation, même si les données expérimentales ne sont pas disponibles pour ces énergies.



$$\sigma(E) = \frac{A \ln(\frac{E}{I_1}) + [B \ln(\frac{E}{I_1}) + C(\frac{E}{I_1} - 1)]/(\frac{E}{I_1} + D)}{\frac{E}{I_1}}$$
(6.4)

Figure 6.15 – Section efficace d'ionisation de l'étain (points bleues) et courbe ajustée sur les donnés expérimentales (en rouge)

Dès que l'atome est ionisé, il devient sensible au champ électrique dans la source. Sa trajectoire est alors calculée par SIMION.

La double ionisation par impact électronique $(X + e \longrightarrow X^{+2} + 3e)$ est négligée, car la section efficace est environ un ordre de grandeur plus faible que celle de l'ionisation simple.

6.0.1.4 Résultats

Les résultats de la simulation combinant l'effusion, la probabilité d'ionisation et les trajectoires d'ions créés sont présentés ici.

Les figures 6.16 et 6.17 illustrent les différences de nombre de rebonds et de trajectoires des atomes et des ions dans la source. Elles montrent que les ions peuvent être extraits avec des trajectoires plus ou moins longues, et donc passer plus ou moins de temps dans la cavité. Certains ions peuvent même parfois passer plusieurs dizaines de ms dans la cavité, ce qui questionne la validité de l'hypothèse de la non-participation des ions à la charge d'espace dans la source. Mais comme la source a vocation à ioniser de très faibles débits d'atomes, très minoritaire devant le débit d'électrons injecté dans la cavité, on continue de négliger cette participation des ions à la densité de charge dans la cavité.



ionisé puis extrait.



Figure 6.17 – Exemple d'un atome ionisé puis extrait, mais cette fois avec Figure 6.16 – Exemple d'un atome un plus grand nombre de rebonds et avec une trajectoire de l'ion nettement

Les résultats présentés sont issus d'une simulation de 100 000 atomes. La simulation nécessitait 8 heures de calcul sur la machine dont je disposais. Pour chaque atome ionisé et extrait hors de la source, trois valeurs sont enregistrées : le nombre de rebonds de l'atome dans la cavité, le potentiel électrique à l'endroit de l'ionisation, ainsi que le temps entre l'ionisation et l'extraction. Le nombre

plus longue.

d'atomes ionisés au moins une fois mais non extraits (ils ne passent pas au travers de l'électrode d'extraction, donc ne forment pas de faisceau d'ions), est aussi enregistré.

L'efficacité d'ionisation obtenue est de $(2.78\pm0,05)\%$ pour un courant I_{CA} de 30 mA. Ce résultat est encourageant.

En passant I_{CA} à 50 mA, l'efficacité d'ionisation passe à $(3.20 \pm 0,08)\%$, ce qui est augmentation quasiment proportionnelle à l'augmentation de I_{CA}. Ce résultat est cohérent avec la vision que l'on a des sources à impact électronique comme la FEBIAD : taux d'ionisation proportionnel au courant d'électrons.

La probabilité d'extraction de la source correspond au rapport du nombre d'ions extraits et du nombre total d'atomes ionisés au moins une fois dans la cavité. La probabilité d'extraction obtenue est d'environ 40 %, avec plus de la moitié des ions créés terminant leurs courses sur la cathode. Cette probabilité d'extraction dépend du champ électrique dans la source, ainsi que de la géométrie de la cathode. Étant donné que la géométrie de la cathode a été simplifiée pour faciliter la simulation (cathode plate au lieu d'un filament hélicoïdal), il était difficile de savoir si la probabilité d'extraction prédite est représentative du comportement qu'aura SPEED. On peut espérer qu'en réalité la probabilité d'extraction de SPEED métalliques sera plus élevée que celle prédite par la simulation, étant donné que la transparence de la cathode avec un filament en tungstène est plus élevée que celle de la simulation. Si la probabilité d'extraction est proche de 100 %, alors on peut s'attendre à une efficacité d'ionisation de 6 %.

Une autre grandeur importante pour permettre l'utilisation du faisceau d'ions produit est la dispersion en énergie du faisceau. Le livre *The handbook of ion source* [22] prédit qu'une source d'ions du type de SPEED a une dispersion en énergie élevée, ce qui s'explique par le fait que l'ionisation est possible à tous les potentiels électriques compris entre U_{anode} et $U_{cathode}$ (ici environ 260 V). À titre de comparaison, la dispersion en énergie de la source FEBIAD est comprise entre 4 et 8 eV [58]. On souhaite donc vérifier que la dispersion en énergie prédite par la simulation n'est pas trop importante, ce qui compromettrait l'utilisation envisagée pour SPEED métalliques.

L'énergie cinétique en sortie est posée égale au potentiel électrique à l'endroit de l'ionisation. En effet, l'énergie initiale est l'énergie d'agitation thermique, de l'ordre de 100 meV. On considère donc que la dispersion provient seulement de la différence de potentiel entre la zone d'ionisation et est l'extraction.



Figure 6.18 – Distribution de l'énergie cinétique des ions produits par la source.

La figure 6.18 montre la distribution en énergie des ions extraits. L'écart-type de la distribution est de 11 eV, valeur du même ordre que celle de la FEBIAD. La valeur médiane de l'énergie est de 266 eV. Cette distribution nous apprend que les ions du faisceau produit proviennent d'une zone de la cavité où le potentiel est proche de celui de l'anode.

Le nombre de rebonds avant ionisation est égal à celui de l'effusion atomique sans ionisation : 303 ± 5 . La distribution du nombre de rebonds avant ionisation suit toujours une exponentielle décroissante (figure 6.19). Ce résultat s'explique par le fait que l'effusion atomique reste le processus majoritaire par lequel les atomes quittent la cavité. Tant que l'ionisation est une voie de sortie nettement moins probable que l'effusion atomique, le temps de réponse de la source SPEED est gouverné par l'effusion atomique.



Figure 6.19 – Histogramme du nombre de rebonds des atomes ionisés.

6.0.1.4.1 Conclusions de la simulation Ces résultats suggèrent que le dispositif SPEED devrait être capable d'ioniser quelques % des atomes injectés et d'en faire un faisceau d'ions exploitable

en termes de dispersion en énergie.

Néanmoins, la simulation basée sur des approximations et des simplifications ne rend probablement pas compte exactement du comportement qu'aurait la source SPEED.

Le point qui pose le plus question est le courant d'électrons injecté dans la cavité et le champ électrique qui en résulte. Car la géométrie de la cathode a été considérablement simplifiée. De plus, la méthode de simulation rend difficilement compte du courant maximal que le système cathode anode est capable d'échanger. Cela est notamment causé par les variations intenses de densité de charge en surface de la cathode. L'incertitude sur le courant injecté questionne aussi la validité de l'éfficacité d'ionisation et d'extraction prédite.

Un résultat plus sûr extrait de la simulation est le temps d'effusion, car basé sur de la physique et des méthodes numériques éprouvées. De plus, la valeur prédite peut être retrouvée par une modélisation analytique de l'effusion (voir plus loin 6.0.2).

Ces incertitudes appellent à poursuivre les simulations pour rendre mieux compte de la géométrie et des processus physiques impliqués dans SPEED. Nous avons préféré passer plus rapidement au prototypage de la source pour confronter l'expérience à la simulation et procéder à des améliorations successives jusqu'à l'obtention de la meilleure efficacité possible (dans le temps imparti).

6.0.2 Calcul analytique

La réalisation de la simulation m'a permis de mieux comprendre l'influence des phénomènes physiques en œuvre dans la source SPEED et d'évaluer leur importance. Les résultats des simulations suggèrent qu'une description du comportement de SPEED par un système linéaire du premier ordre est possible. On cherche à prédire l'efficacité d'ionisation, le temps de transformation des atomes en ions et le nombre de rebonds moyen des atomes.

L'efficacité d'une source d'ions peut être vue comme une compétition entre l'effusion atomique hors de la cavité et l'ionisation. Elles sont généralement exprimées par un taux de sortie par unité de temps en s⁻¹, $\lambda_{ionisation}$ et $\lambda_{effusion}$.

L'efficacité d'ionisation peut alors s'exprimer comme étant : $\varepsilon_{ionisation} = \varepsilon_{extraction} \frac{\lambda_{ionisation}}{\lambda_{ionisation} + \lambda_{effusion}}$. La probabilité d'extraction $\varepsilon_{extraction}$ rend compte de la probabilité qu'un atome ionisé soit extrait, grandeur que le modèle ne peut prédire.

6.0.2.1 Effusion

L'effusion atomique est modélisée sur la base des hypothèses suivantes :

 La probabilité qu'un atome quitte la cavité entre chaque rebond est égale au rapport de la surface de l'orifice de sortie, par la surface interne des parois de la cavité : pquitter cavite = 0,00313. Cette méthode est exacte dans le cas d'une cavité sphérique percée d'un petit trou, configuration relativement similaire à celle de la cavité TULIP.

- 2. La distance moyenne parcourue entre chaque rebond est la moyenne du diamètre et de la hauteur de la cavité. $d_{rebond} = \frac{h+D}{2} = 26mm$
- 3. La vitesse d'un atome est égale la vitesse moyenne de la distribution de Maxwell-Boltzmann. Pour A = 100 et T = 1700 K : v_{mov} =598 m s⁻¹

Chaque rebond étant considéré comme indépendant du rebond précédent, la distribution du nombre de rebonds pour un atome suit une loi géométrique. L'espérance, c'est-à-dire le nombre de rebonds moyen avant qu'un atome quitte la cavité, s'exprime ainsi : $E(X) = 1/p_{quittercavit} = 319$. Cette valeur est proche de celle de la simulation (341 rebonds, 6 % de différence). Comme il s'agit d'une loi géométrique avec une espérance élevée, la distribution du nombre de rebonds suit une forme d'exponentielle décroissante.

Avec la vitesse moyenne et la distance moyenne, on en déduit que le temps moyen entre chaque rebond est de 43 μ s. En multipliant par le nombre de rebonds, on obtient un temps moyen d'effusion de 13,8 ms. Ce temps est plus éloigné de celui de la simulation (10,3 ms, 30 % de différence) mais reste en accord avec celle-ci. La différence s'explique en partie par l'approximation de la distance moyenne parcourue par rebond.

Cette valeur de temps moyen permet de calculer le taux de sortie de la cavité par effusion et par unité de temps : $\lambda_{effusion} = 72 \text{ s}^{-1}$

6.0.2.2 Ionisation





L'équation qui exprime le taux d'ionisation a été démontrée dans la partie sur le canon à ions (voir 5.5.3) :
$$\lambda_{ioni} = v_e n_e \sigma \tag{6.5}$$

Cette équation est valable si les électrons ont tous la même vitesse v_e et que la densité électronique n_e est homogène. Or, on sait grâce à la simulation que la densité et la vitesse des électrons varie dans la cavité. On peut néanmoins estimer la valeur de λ_{ioni} moyennant quelques hypothèses. Si on considère un faisceau monoénergétique, aux trajectoires parallèles de section S et parcourant une distance $d_{faisceau}$, alors :

$$\lambda_{ionifaisceau} = \frac{I_{CA}}{Sq_e} \sigma_{ioni} \tag{6.6}$$

Cette équation rend compte du taux d'ionisation dans la zone où se trouve le faisceau. On peut donc déduire le taux d'ionisation moyen dans la cavité en multipliant $\lambda_{ioni \ faisceau}$ par le rapport des volumes faisceau/cavité (avec D et h le diamètre et la hauteur de la cavité) :

$$\lambda_{ioni} = \lambda_{ionifaisceau} \frac{V_{faisceau}}{V_{cavite}} = \frac{I_{CA}}{Sq_e} \sigma_{ioni} \frac{4Sd_{faisceau}}{\pi D^2 h} = \frac{I_{CA}}{q_e} \sigma_{ioni} d_{faisceau} \frac{4}{\pi D^2 h}$$
(6.7)

Le résultat obtenu montre que le taux d'ionisation est proportionnel au courant injecté, à la section efficace et à la distance d_{faisceau} parcourue par les électrons. Cette modélisation montre qu'un électron qui parcourt une plus longue distance dans la cavité participe plus à l'ionisation. Pour un faisceau de 10 mA traversant la cavité, et pour une section efficace d'ionisation de l'étain de 5.0×10^{-16} cm² (valeur à 200 eV), on obtient $\lambda_{ioni} = 8.3$ s⁻¹.

6.0.2.3 Probabilité et efficacité d'ionisation

L'équation différentielle qui régit la population N d'atomes dans la cavité s'écrit :

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda_{ioni}N(t) - \lambda_{eff}N(t) + \overset{\circ}{N}$$
(6.8)

Avec $\overset{\circ}{N}$ le débit d'atomes entrant, $\lambda_{eff}N(t)$ et $\lambda_{ioni}N(t)$ correspondent respectivement aux débits sortants d'atomes et d'ions. À l'équilibre, on obtient $(\lambda_{ioni} + \lambda_{eff})N(t) = \overset{\circ}{N}$. L'efficacité d'ionisation s'obtient avec l'équation suivante :

$$\varepsilon_{ioni} = \varepsilon_{extraction} \frac{\lambda_{ioni}}{\lambda_{eff} + \lambda_{ioni}}$$
(6.9)

Avec les valeurs de $\lambda_{\text{ionisation}}$ et $\lambda_{\text{effusion}}$ calculées, et avec une probabilité d'extraction de 100 % ($\varepsilon_{\text{extraction}} = 100$), on obtient une efficacité d'ionisation ε de 10 %.

L'équation 6.9 est valable pour la production d'ions stables. Dans le cas d'une production d'ions radioactifs, la décroissance radioactive entre en compétition avec l'effusion atomique et l'ionisation. L'efficacité d'ionisation deviendrait alors : $\varepsilon_{ioni} = \varepsilon_{extraction} \frac{\lambda_{ioni}}{\lambda_{eff} + \lambda_{ioni} + \lambda_{decroissance}}$.

Cette formule ne prend en compte ni le temps de collage, ni le temps de diffusion.

6.0.3 Prototype SPEED froid

Les efficacités d'ionisation et les temps de transformations obtenus à l'aide de la simulation et du modèle analytique ont encouragé la mise en œuvre du concept de SPEED.

Cependant, la version finale de la cavité SPEED doit être chauffée à environ 1500 °C, ce qui nécessite l'utilisation du banc de test source de SPIRAL1 (alimentation de puissance, polarisation, refroidissement), dont la disponibilité est limitée, par les tests des autres ECS.

6.0.3.1 Principe et motivations

Pour tester progressivement le principe d'effusion et d'ionisation dans la cavité, j'ai proposé de réaliser une version intermédiaire allégée de SPEED utilisant des atomes de gaz rares et munie d'une cavité froide. L'utilisation de gaz rares permettait de s'affranchir du collage des atomes aux parois et donc d'affranchir la cavité d'un système de chauffage dont la mise en œuvre (alimentation de courant 500 A/10 V et circuits de refroidissement associés) nécessite des ressources humaines et un temps importants à l'échelle d'une thèse. La plateforme HT a, elle aussi, été simplifiée pour ne fonctionner qu'à 1 kV max. Enfin, cette version ne disposait pas de séparateur de masses. Ainsi, le dispositif expérimental pouvait être installé sur une simple paillasse de laboratoire, et pouvait être aisément transformé en fonction des besoins qui apparaîtraient lors des expériences.

La figure 6.21 montre le principe de SPEED froid. La cavité est découpée en plusieurs électrodes en aluminium, isolée les unes des autres par des isolants en PEEK (polyétheréthercétone, un polymère compatible avec l'ultravide, usinable). La géométrie de la surface intérieure respecte celle de TULIP. Chaque électrode est portée à un potentiel différent par un pont diviseur de tension. Cela permet d'imiter le champ électrique de la cavité TULIP, qui est causé par l'écoulement du courant de chauffage dans la cavité en graphite.



Figure 6.21 – Schéma de principe du prototype SPEED froid. La cavité est divisée en électrodes isolées polarisées par un pont diviseur.

En plus d'imiter le champ électrique, le découpage de la cavité permet de mesurer le courant d'électrons déposé sur chaque électrode.

Un gaz rare est injecté dans la cavité soit par une fuite calibrée, soit par une vanne pulsée. L'injection d'un débit constant de gaz permet de déterminer l'efficacité d'ionisation de SPEED froid, en comparant le débit d'atomes injecté avec celui d'ions extraits de la source. L'injection rapide de courte durée de gaz permet de mesurer la réponse de la source en fonction du temps.

6.0.3.2 Conception

Les cathodes utilisées pour SPEED froid et chaud sont identiques, et reprennent le design de celle utilisée pour le canon à ions (voir 5.5.6.2). Sa caractérisation a déjà été effectuée dans le contexte du canon à ions, et on s'attend à ce qu'elle ait un comportement similaire au niveau de la thermique et de l'émission électronique.



Figure 6.22 – Plan en coupe de la cavité de SPEED froid. Les parties en orange clair sont les isolants en PEEK. Les 5 électrodes sont numérotées.

La figure 6.22 montre une vue en coupe de la cavité SPEED froid. Elle met en œuvre le principe décrit dans la figure 6.21. Les figures 6.23 et 6.24 sont des photos de la cavité installée dans la chambre à vide et de l'intérieur de la cavité.





Figure 6.24 – Intérieur de la cavité SPEED froid.

Figure 6.23 – Cavité de SPEED froid installée sa chambre à vide.

Une vue en coupe de la configuration mécanique utilisée pour les tests de SPEED froid est présentée dans la figure 6.25. Les liaisons électriques entre l'extérieur et l'intérieur de la chambre

à vide sont faites par l'intermédiaire d'adaptateurs étanches, soit une traversée D-sub 15 voies, soit des ports pour câbles coaxiaux BNC. Le vide est réalisé par deux pompes turbo-moléculaire.



Figure 6.25 – Plan mécanique de la cavité SPEED, de la chambre à vide, et de l'optique électrostatique d'extraction et de mesure du courant d'ions.

Les mesures avec SPEED froid ont été faites dans deux configurations. La première est celle pour la mesure de temps de réponse. L'ensemble du dispositif était alors installé sur une table de 1 x 1,5m, électronique et système de vide inclus. La deuxième configuration est utilisée pour les mesures d'efficacité d'ionisation. SPEED froid était alors installé sur le banc de test SPIRAL1.



Figure 6.26 – Schéma électrique de SPEED froid dans la configuration mesure du temps de réponse.

Les alimentations sur le schéma électrique sont toutes isolées et alimentées par batterie. Cela présente l'avantage de simplifier considérablement l'installation des alimentations à des potentiels différents de la terre, et permet de réduire le bruit électronique. Une vanne permet l'injection d'un gaz dans la source SPEED froid. Elle est commandée par un générateur de signal (au potentiel de la terre) par l'intermédiaire d'un boîtier de commande isolé optiquement, car la vanne est au potentiel haute tension de la cavité.

Les cinq électrodes de la cavité sont polarisées par un pont diviseur de tension constitué de quatre résistances de mêmes valeurs. La cavité peut être polarisée à 5, 0 ou -5 V. Le courant collecté sur chaque électrode passe à travers des résistances de 10Ω , les courants sont lus par des voltmètres.

Trois électrodes sont utilisées pour accélérer et mettre en forme le faisceau d'ions. Il est ensuite envoyé une coupe de Faraday (CF) polarisée à 50 V.

6.0.3.3 Transposition des résultats SPEED froid à SPEED chaud

Transposer les résultats de SPEED froid à SPEED chaud nécessitera de considérer les points suivants.

Les trajectoires d'électrons émis ne sont pas sensibles à la température des parois, et vont donc être très similaires dans SPEED chaud et froid. Comme la tension d'accélération des électrons est beaucoup plus grande que celle générée dans la cavité par les parois, la trajectoire des électrons va être peu influencée par le potentiel des électrodes de SPEED froid ou par la chute de potentiel dans les parois de SPEED chaud.

On suppose donc que le flux électronique va être similaire ainsi que la contribution de la densité électronique au champ électrique.

Si l'élément ionisé change, alors la relation pour déterminer le nouveau taux d'ionisation est : $\lambda_{ioni \ 1} = \lambda_{ioni \ 2} \frac{\sigma_1}{\sigma_2}$. La principale différence va résider dans le temps d'effusion. La température est inférieure dans SPEED froid, et donc la vitesse moyenne des atomes effusants dans la cavité va être plus faible. Le taux d'effusion $\lambda_{effusion}$ est donc plus faible.

De plus, la masse des atomes utilisés pour la caractérisation de SPEED froid est différente de celle des atomes à ioniser dans SPEED chaud. Cela va aussi avoir une influence sur la vitesse d'effusion, modifier $\lambda_{effusion}$, et changer la section efficace d'ionisation.

On sait que $\lambda_{effusion} \propto \sqrt{\frac{T}{m}}$ avec T la température en Kelvin et m la masse de l'atome effusant. On en déduit que la relation pour transposer les résultats de temps d'effusion de SPEED froid vers SPEED chaud (sans temps de collage) sera :

$$\lambda_{effusion\ chaud} = \lambda_{effusion\ froid} \sqrt{\frac{T_{chaud}}{froid}} \frac{m_{froid}}{m_{chaud}}$$
(6.10)

Et la relation permettant de transposer l'efficacité de SPEED froid à SPEED chaud pour un même flux électronique sera :

$$\varepsilon_{chaud} = \varepsilon_{froid} \frac{\sigma_{chaud}}{\sigma_{froid}} \sqrt{\frac{T_{froid}}{T_{chaud}} \frac{m_{chaud}}{m_{froid}}}$$
(6.11)

Cette équation est valable à condition que le taux d'ionisation λ_{ioni} soit petit par rapport au taux d'effusion $\lambda_{effusion}$.

6.0.3.4 Configurations mécaniques SPEED froid : avec et sans grille à l'orifice de la cavité

Deux configurations mécaniques de la cavité de SPEED froid ont été testées. Une qui utilise l'orifice de sortie de la cavité TULIP (4 mm de diamètre), l'autre qui ferme partiellement cet orifice à l'aide d'une fine grille percée d'un trou.

La configuration sans grille est la plus simple, et la simulation montre qu'elle devrait fonctionner. Cependant, les simulations ont montré que l'efficacité d'ionisation est faible, au mieux inférieur à 7 % pour un courant d'électrons de 30 mA quittant la cathode. De plus, la dispersion en énergie prédite est relativement élevée pour un ECS (11 eV).

Trois raisons ont motivé l'installation d'une grille au niveau de l'orifice de sortie de la cavité. Premièrement, l'émission électronique est en partie limitée par la charge d'espace. C'était aussi le cas du canon à ions qui utilise la même cathode. Ajouter une grille réduit la distance moyenne entre l'anode et la cathode, ce qui doit augmenter le courant total d'électrons émis par la cathode. De plus, grâce à la modification de la forme des équipotentielles entre anode et cathode, on s'attend aussi à ce que la présence de la grille conduise à des trajectoires d'électrons plus parallèles qui leur permettront de pénétrer plus profondément dans la cavité et induiront une augmentation de la probabilité d'ionisation.

Le deuxième objectif est de limiter la dispersion en énergie du faisceau. La grille va fermer les lignes d'isopotentiels en sortie de cavité et limitera la pénétration du potentiel de la cathode dans la cavité.

Le dernier objectif est d'augmenter la probabilité d'extraction. La grille vient partiellement obstruer l'orifice de sortie. Elle est percée d'un trou de 2 mm pour permettre une légère pénétration du potentiel de la cathode dans la cavité, dont la forme des lignes devrait aider à l'extraction des ions. Les ions sortiraient alors d'un orifice de plus petit diamètre (2 mm au lieu de 4), qui permettrait au faisceau d'ions un transport plus aisé au travers de la cathode.

Les raisons qui ont motivé l'installation d'une grille sont principalement qualitatives. Plutôt que de tenter de simuler son effet, il a été jugé plus simple de l'installer et de directement quantifier son effet par des mesures.



Figure 6.27 – Orifice de sortie de la cavité de SPEED froid sans grille. L'irisation autour du trou est causée par le fonctionnement de la cathode à proximité pendant plusieurs dizaines d'heures.



Figure 6.28 – Grille en tungstène tissée installée devant la sortie de la cavité.

Une vue de l'orifice de la cavité sans grille est donné figure 6.27 et une vue avec grille est donnée figure 6.28

La maille est de 0,25 mm et le diamètre du fil est de 0,025 mm. La transparence qui en résulte est de 80 %. Le tungstène est choisi pour ses propriétés de résistance à la chaleur, car la grille est chauffée par bombardement électronique et par le rayonnement en provenance de la cathode.

6.0.4 Mesure d'émission électronique

L'objectif principal est de s'assurer que le faisceau d'électrons soit injecté à l'intérieur de la cavité, notamment jusqu'au fond de la cavité, et de trouver les paramètres permettant de maximiser ce courant. Cela permet d'estimer λ_{ioni} et d'évaluer l'efficacité d'ionisation.

Les mesures d'émission électronique sont les premières à avoir été effectuées sur SPEED froid. Le courant qui quitte la cathode, ainsi que celui collecté sur chaque électrode, est mesuré. Ces mesures sont effectuées en fonction de la polarisation U_{CA} , de la polarisation de la cavité et du chauffage de la cathode.

6.0.4.1 Influence de la température de la cathode

La première mesure effectuée est celle du courant I_{CA} échangé entre l'anode et la cathode (l'anode est ici la cavité SPEED froid). Elle permet de caractériser le régime d'émission, c'est-àdire soit limité en charge d'espace, limité en température ou bien mixte.

La figure 6.29 montre le courant d'électrons émis par la cathode en fonction de la température du point le plus chaud de la cathode. La tension U_{CA} est de 270 V. La mesure est effectuée dans la configuration avec grille. La distance minimale entre la cathode et l'anode est de 1,7 mm.



Figure 6.29 – Courant émis par la cathode en fonction de la température de son point le plus chaud. $U_{CA}=270$ V. configuration avec grille. L'erreur sur la température est de +-20 °C

Le courant I_{CA} augmente de façon grossièrement linéaire avec la température de la cathode et non pas en suivant la loi de Richardson-Dushmann, ce qui permet d'éliminer le régime d'émission limité en température. Le lien courant-température suit une tendance quasi-identique à celle du système cathode-anode du canon à ions. Le régime d'émission est donc probablement mixte.

Pour maximiser le courant émis par la cathode, et donc maximiser l'efficacité d'ionisation, on fixe le courant de chauffage de la cathode à 7 A lors de la suite des expériences sur SPEED froid.

Un courant plus élevé réduirait la durée de vie de la cathode.

6.0.4.2 Courants injectés dans la cavité : influence de la tension cathode-anode avec et sans grille

Des mesures de courants collectés sur les électrodes de la cavité en fonction de la tension U_{CA} sont présentées ici. Elles sont effectuées pour caractériser l'injection électronique en fonction de la profondeur dans la cavité.

Les mesures sont effectuées dans les configurations avec et sans grille à l'entrée de la cavité cathode. Les figures 6.30 et 6.31 montrent les courants d'électrons déposés sur chaque électrode de la cavité. Le courant qui pénètre dans la cavité correspond à la somme des courants 2 à 5. La cavité est polarisée à +5 V, ce qui place l'électrode numéro 5 à 5 V de plus que la numéro 1.

Les mesures sans grille ont été faites jusqu'à $U_{CA} = 200$ V, parce qu'il n'y avait pas d'alimentation disponible pour atteindre une tension supérieure au moment de la mesure. Les conclusions des mesures doivent pouvoir être extrapolées à une tension de 270 V.





Figure 6.30 – Courants collectés sur les éléctrodes de la cavité SPEED froid en fonction de la tension U_{CA}. Configuration sans grille.

Figure 6.31 – Même mesure dans la configuration avec grille.

Ces graphiques montrent une évolution quasi-linéaire du courant avec la tension, qui ne suit pas la loi de Child-Langmuir, ce qui élimine la possibilité d'une émission limitée en charge d'espace. Que l'émission ne soit pas non plus limitée en température confirme que le régime d'émission électronique est donc mixte : une partie du courant émis par la cathode est limitée en charge d'espace, tandis que le reste est limité en température.

En comparant la configuration avec et sans grille, on voit que le courant injecté dans la cavité (somme des courants I2 à I5) à 200 V est 50 % plus élevé avec la grille, ce qui confirme que

l'ajout d'une grille à l'entrée de la cavité améliore l'injection d'électrons dans la cavité.

Le dernier résultat de ces mesures est que pour maximiser le courant injecté, il faut maximiser la tension U_{CA} . La modélisation de SPEED prédit que l'efficacité est proportionnelle à la section efficace d'ionisation et au courant injecté. Comme le courant injecté augmente plus vite que la section efficace ne diminue, fixer U_{CA} à 270 V devrait maximiser l'efficacité d'ionisation. Pour une certaine tension, on s'attend à ce que le courant injecté n'évolue plus et que l'émission soit intégralement limitée en température, mais aucune limite de ce type n'a été observée jusqu'à 270 V.

6.0.4.3 Influence de la polarisation de la cavité

Comme le courant qui va jusqu'au fond de la cavité participe plus à l'ionisation, on souhaite le maximiser. Pour cela, on cherche à savoir si la tension de polarisation de la cavité a une influence.

La figure 6.32 montre le courant déposé sur chaque électrode en fonction de la polarisation de la cavité. La tension U_{CA} est fixée à 270 V et seule la configuration avec grille est présentée, la configuration sans grille présentant un comportement très similaire. +5 V correspond à la configuration la plus proche de TULIP alcalin, où le champ électrique est dirigé vers la sortie pour y pousser les ions alcalins chargés positivement vers la sortie. La cavité a aussi été polarisée à 0 et - 5 V.



Figure 6.32 – Courants déposés sur les électrodes de la cavité SPEED froid en fonction de la polarisation de la cavité.

La polarisation a une influence mineure sur les courants collectés. La somme des courants I2 à I5 augmente peu, tandis que les courants I2 à I4 diminuent un peu. L'évolution de I5 est en revanche

plus significative, car elle augmente de 25 % avec la polarisation de la cavité. La polarisation + 5 V devrait donc maximiser le taux d'ionisation λ_{ioni} .

En plus d'augmenter λ_{ioni} , la polarisation de la cavité a une influence sur le champ électrique dans la cavité. Cela devrait avoir une influence sur les trajectoires des ions dans la cavité, et donc probablement sur l'efficacité d'extraction des ions hors de la source. Les courants d'ions permettront de déterminer avec certitude la polarisation optimale.

6.0.5 Mesure du temps de réponse

La mesure de temps de réponse va permettre de connaitre la valeur du temps de transformation de la source SPEED froid. Cela va permettre de confronter les résultats expérimentaux à ceux de la simulation et de la modélisation.

6.0.5.1 Principe de la mesure

La figure 6.33 montre le schéma de principe de la mesure. Un générateur d'impulsion envoie un signal rectangulaire de courte durée (2,5 ms) qui commande l'ouverture d'une vanne électromécanique rapide. Une pulse de gaz rare est injectée. La réponse de SPEED froid à cette impulsion est mesurée sur une coupe de Faraday et enregistrée sur un oscilloscope. Le signal rectangulaire sert de déclencheur pour l'oscilloscope, qui effectue une moyenne du signal sur plusieurs périodes pour réduire le bruit.

La réduction du bruit, bien que non traitée dans ce mémoire, a fait l'objet de beaucoup d'attention. Pour limiter la perturbation du régime de fonctionnement de SPEED froid lors de l'envoi des pulses de gaz, l'amplitude de ceux-ci a été réduite au minimum. Le courant d'ions produit avait une amplitude typique de l'ordre de quelques dizaines de nA. La mesure d'aussi faibles courants nécessite l'emploi d'appareils ayant une impédance d'entrée élevée, qui favorise la captation de perturbations électromagnétiques, donc de bruit.



Figure 6.33 – Schéma de principe de la mesure de temps de réponse de SPEED froid.

Conformément au modèle analytique utilisé, on s'attend à obtenir la réponse caractéristique d'un système du premier ordre, c'est-à-dire une exponentielle décroissante. Par ajustement du signal obtenu, on récupère la constante de temps du signal, aussi appelé temps moyen de transformation des atomes en ions.

6.0.5.2 Résultats

Tous les résultats de temps de réponse présentés ont été faits avec la configuration SPEED froid sans grille, avec $U_{CA} = 200$ V et un courant de chauffage cathode d'environ 7 A.

6.0.5.2.1 Exemple de temps de réponse mesuré et fonction d'ajustement La figure 6.34 montre un exemple de signal obtenu en injectant de l'Ar pulsé dans la cavité avec son ajustement.

Le signal est constitué d'une ligne de base et d'une exponentielle décroissante. Le 0 de l'axe du temps est défini par le début de la commande envoyée à la vanne. 10 ms après le début de la commande d'ouverture, le signal correspond à une exponentielle décroissante. Ce signal décroissant reflète l'évolution du courant d'Ar⁺, tandis que la ligne de base est dû au courant du gaz résiduel ionisé.



Figure 6.34 – Évolution du courant d'ions collecté en sortie de SPEED froid suite à l'injection d'un pulse de gaz Ar.

La fonction d'ajustement utilisée pour le signal collecté sur la CF est :

$$I_{CF}(t) = LdB + Ke^{-t/\tau}$$
(6.12)

L'ajustement est effectué à partir du moment où le signal correspond à une exponentielle. Le signal entre 0 et 10 ms n'est pas pris en compte. Les termes LdB (ligne de base), K (amplitude de l'exponentiel) et τ (temps caractéristique de l'exponentiel) sont les variables d'ajustement. Dans le cas de la figure 6.34, τ = 16,8 ms.

La forme du signal obtenue est en accord avec la simulation et la modélisation, et le temps de transformation cohérent avec la simulation.

6.0.5.2.2 Influence de la polarisation de la cavité sur l'efficacité d'ionisation et sur le temps de réponse Des mesures de temps de réponse en fonction de la polarisation sont effectuées pour la transformation $Ar \rightarrow Ar^+$. Si le temps de réponse est gouverné par l'effusion atomique, la polarisation de la cavité ne devrait pas avoir d'influence, ce que l'on cherche à vérifier ici.

La figure 6.36 montre le résultat des mesures. Plusieurs mesures consécutives à différentes polarisations de la cavité ont été effectuées, ce qui permet aussi d'estimer la déviation d'une mesure à l'autre.



Figure 6.35 – Variation du temps de réponse τ obtenue par ajustement, en fonction de la polarisation de la cavité.

Ces mesures montrent que le temps de réponse semble être très faiblement influencé par la polarisation cavité. Le temps de réponse pour $U_{cav} = +5$ V est plus long de 1 %, différence qui pourrait être attribuée à une erreur de mesure. On en conclut que la polarisation de la cavité n'a pas d'influence sur le temps de réponse. Un résultat similaire a été obtenu sur les temps de réponse des autres gaz rares.

La figure 6.36 montre les signaux obtenus pour $U_{cav} = -5$; 0; +5 V. La polarisation est le seul réglage modifié d'une mesure à l'autre, la même quantité de gaz est injectée. L'amplitude du signal étant proportionnelle à l'efficacité d'ionisation, cela montre que l'efficacité d'ionisation est fortement influencée par la polarisation de la cavité, avec une efficacité 2,5 fois plus élevée à +5 V qu'à -5 V. D'où provient cette différence d'efficacité d'ionisation ? On sait que le faisceau d'électrons injecté dans la cavité est peu perturbé par la polarisation de la cavité (voir figure 6.32), et donc que le taux d'ionisation ($\lambda_{ionisation}$) dans la cavité est conservé. On sait aussi que l'efficacité d'ionisation $\varepsilon_{ionisation}$ est proportionnelle à la probabilité d'extraction $\varepsilon_{extraction}$ et à $\lambda_{ionisation}$. La différence d'efficacité en fonction de la polarisation de la cavité ne peut s'expliquer que par une probabilité d'extraction qui augmente avec la polarisation de la cavité.



Figure 6.36 – Signaux obtenus pour une même quantité de gaz injecté en fonction de la polarisation de la cavité. La ligne de base est soustraite pour aider la comparaison.

On en conclut que la polarisation de la cavité est effectivement favorable à l'efficacité d'extraction des ions en dehors de la source. Cette mesure permet pour la première fois de quantifier le gain obtenu.

6.0.5.2.3 Temps de réponse de SPEED froid à tous les gaz rares stables La mesure des temps de réponses de SPEED froid a été faite pour tous les gaz rares stables (He, Ne, Ar, Kr, Xe). Cela a permis d'observer l'influence de la masse atomique du gaz sur le temps de réponse. Si le temps de réponse est bien gouverné par l'effusion, on s'attend à ce que $\tau \propto \sqrt{m/T}$, avec T constant d'une mesure à l'autre.

Puisque la mesure de ce temps de transformation est basée sur la transformation des atomes en ions, alors que la relation $\tau \propto \sqrt{m/T}$ est uniquement basée sur l'effusion atomique, cette relation ne sera respectée que si la transformation des atomes en ions n'influence pas l'effusion atomique. En d'autres termes, elle ne sera respectée que si l'efficacité d'ionisation est faible.

La figure 6.37 montre les signaux obtenus. Pour faciliter la comparaison, la ligne de base a été soustraite et les amplitudes normalisées. Ces mesures ont toutes été faites avec les mêmes paramètres de fonctionnement, seul le gaz injecté est changé. Le temps de réponse, s'allonge pour les masses atomiques élevées.



Figure 6.37 – Signaux des temps de réponses pour tous les gaz rares. La ligne de base est soustraite et les amplitudes normalisées pour faciliter la comparaison.

La figure 6.38 montre les temps de réponse extraits par ajustement, en fonction de la racine carré du nombre de masse des gaz rares utilisés. Une régression linéaire donne le temps de réponse en seconde en fonction du nombre de masse A : $\tau = 3,75.10^{-3}\sqrt{A}$ avec un R² = 0,997. La figure montre clairement la proportionnalité entre le temps de réponse et la racine de la masse atomique. C'est là une preuve expérimentale que le temps de réponse de SPEED froid est gouverné par l'effusion, et que l'efficacité d'ionisation est un processus minoritaire dans la disparition des atomes en dehors de la cavité.



Figure 6.38 - Évolution des temps de réponse en fonction de la racine du nombre de masse du gaz testé. Les incertitudes sur les temps caractéristiques sont inférieures à 0,1 % et donc non représentés sur ce graphique.

6.0.6 Mesures d'efficacité

Des mesures d'efficacité d'ionisation pour tous les gaz rares ont été effectuées sur le banc de test de SPIRAL1.

Mesurer l'efficacité pour tous les gaz rares va nous permettre :

- de connaitre sa valeur
- d'observer si elle suit la tendance $\varepsilon \propto T \sqrt{m}$ prédite dans la partie 6.0.3.3

Ces mesures vont aussi nous permettre de comparer la probabilité d'extraction de SPEED froid dans les configurations avec et sans grille.

6.0.6.1 Banc de test SPIRAL1 et adaptation de SPEED froid

Le banc de test de SPIRAL1 présente l'avantage d'être doté d'un dipôle magnétique entre la source et la CF qui permet de séparer les ions du faisceau en fonction de leurs rapports M/Q, et donc de mesurer les courants d'ions de chaque élément ionisé. L'intérêt est de pouvoir mesurer le courant d'ions du gaz injecté dans la source, sans mesurer en même temps le courant d'ions produit par l'ionisation du gaz résiduel.

Le dispositif SPEED froid est adapté pour être installé sur le banc de test (figure 6.39), avec une extraction et une mise en forme du faisceau réalisées par des électrodes avec des géométries différentes de celles de SPEED sur paillasse. L'électrode d'extraction est d'un diamètre plus important (12 mm) et à une distance de la cathode plus importante (17 mm). Comme la tension d'extraction est la même que précédemment ($\approx 1 \text{ kV}$) et que la distance est plus importante, le champ d'extraction va être plus faible. Cela va avoir une influence sur le champ électrique entre la cathode et la cavité, que l'on suppose peu importante, car la cathode fait office d'écran au champ d'extraction.



Figure 6.39 – Adaptation mécanique de SPEED froid pour la mesure d'efficacité sur le banc de test SPIRAL1.

La figure 6.40 montre le schéma de principe de la mesure, qui est simplifié par rapport au dispositif de mesure de temps de réponse.



Figure 6.40 – Schéma électrique et de principe de SPEED froid pour la mesure d'efficacité d'ionisation.

La vanne pulsée est remplacée par un tube capillaire qui injecte un gaz rare à l'intérieur de la cavité. Le débit de gaz est fixé par une fuite calibrée. En faisant varier la pression en amont de la fuite avec un détendeur, le débit injecté est ajusté.

6.0.6.2 Efficacité d'ionisation de l'Argon avec et sans grille

La première expérience effectuée sur le banc de test consiste à comparer l'efficacité d'ionisation de l'⁴⁰Ar avec et sans grille. L'efficacité d'extraction a aussi été estimée et comparée. La configuration qui présentera l'efficacité la plus élevée sera conservée pour la suite des mesures.

Les paramètres de fonctionnement sont : $U_{CA} = 270$ V, courant chauffage cathode = 7 A, $U_{HT} = 1$ kV. Les paramètres des lentilles électrostatiques situées entre la source et le dipôle sont optimisés pour maximiser le courant d'Ar collecté sur la CF.

L'efficacité d'ionisation obtenue est de 2,0 % sans grille et 4,1 % avec grille. Cette comparaison montre clairement le gain obtenu avec la grille. Mais quand on compare les courants injectés d'électrons dans la cavité avec et sans grilles (tableau 6.1), on constate que la différence de courant injecté ne permet pas d'expliquer ce facteur deux de différence d'efficacité d'ionisation. D'où provient cette différence?

grille	Ica (mA)	I1(mA)	I2(mA)	I3(mA)	I4(mA)	I5(mA)
sans	17.50	9.00	0.90	1.00	1.00	5.60
avec	20.90	10.00	2.10	1.80	1.70	5.30

Table 6.1 – Comparaison des courants injectés dans la cavité avec et sans grilles à $U_{CA} = 270$ V.

Puisque les courants injectés sont similaires, on suppose qu'une différence de probabilité d'extraction est responsable de cette différence d'efficacité d'ionisation. On peut estimer l'efficacité d'extraction en utilisant la formule $\varepsilon_{ioni} = \varepsilon_{extraction} \frac{\lambda_{ioni}}{\lambda_{eff} + \lambda_{ioni}}$ (voir 6.0.2.3). Dans le cas des mesures sur le banc de test, $\varepsilon_{extraction}$ correspond à la probabilité qu'un atome ionisé dans la cavité soit collecté par la CF. On connaît $\lambda_{effusion}$ et ε_{ioni} pour l'Ar grâce aux mesures expérimentales de temps d'effusion et de courants d'électrons injectés, il ne reste plus qu'à estimer le taux d'ionisation en adaptant l'équation 6.7 :

$$\lambda_{ioni} = \frac{\sigma_{ioni}}{q_e} \frac{4}{\pi D^2 h} \sum_{n=1}^5 I_n d_n \tag{6.13}$$

I_n correspond au courant d'électrons déposé sur chaque électrode et d_n à la distance moyenne entre l'électrode et la cathode (0,8; 2; 2,8; 3,6; 4,4 cm, respectivement pour les électrodes 1 à 5). On obtient ainsi des taux d'ionisation λ_{ioni} de 3,82 s⁻¹ sans la grille et 4,45 s⁻¹ avec. On en déduit que les probabilités d'extractions sont de 17 et 40 % respectivement sans et avec la grille.

Ces résultats montrent l'intérêt de la configuration avec grille, que l'on garde pour la suite des mesures. Le fait que l'efficacité d'extraction ne soit pas de 100 % est une piste d'amélioration possible. Modifier la géométrie de la cavité et de la cathode peut mener à une meilleure efficacité d'ionisation, et ce pour un même courant d'électrons injecté dans la cavité.

6.0.6.3 Détermination des courants d'ions Kr⁺ et Xe⁺

La détermination des courants d'He⁺, d'Ar⁺ et de Ne⁺ ne pose pas de difficultés. Ces éléments ont un isotope largement majoritaire, ce qui fait qu'ils génèrent un seul pic lors des spectres de masses effectués sur le banc de test. La lecture du courant maximal collecté par la CF permet alors le calcul de l'efficacité d'ionisation.

Ce n'est pas le cas pour le Kr et le Xe. Les figures 6.41 et 6.42 montrent les spectres de masses de ces deux éléments. Comme pour le Kr, les courants des différents isotopes du Xe sont superposés, ce qui empêche de lire le courant d'ions par simple lecture graphique. Cette superposition provient du fait que le banc de test n'a pas un pouvoir de séparation suffisant. On pourrait remédier à ce problème en utilisant un gaz purifié isotopiquement, mais le coût est élevé. Le courant déposé sur la CF par les faisceaux de Kr⁺ et de Xe⁺ a donc été déterminé par ajustement avec une fonction appropriée.

La fonction utilisée pour l'ajustement est une somme de fonctions "Bump" dont voici la définition.

$$f(x) = \begin{cases} \exp\left(-\frac{1}{1-x^2}\right), & x \in (-1,1) \\ 0, & \text{sinon} \end{cases}$$
(6.14)

Elle est modifiée pour permettre de faire varier sa position centrale ainsi que sa largeur. La position des centroïdes est fixée par une courbe de calibration qui relie le courant dans le dipôle à la masse du faisceau d'ions¹⁺. Le rapport des amplitudes est fixé par l'abondance naturelle de chaque isotope. L'amplitude maximale de chaque fonction Bump correspond au courant maximal déposé sur la CF par chaque isotope. La somme des amplitudes permet de récupérer le courant total d'ions Kr^+ et Xe^+ transporté par le faisceau. Cela permet de calculer l'efficacité d'ionisation.



Figure 6.41 – Courants d'ions Kr¹⁺ lu sur la CF en fonction du courant dans le dipôle magnétique.



Figure 6.42 – Courants d'ions Xe¹⁺ lu sur la CF en fonction du courant dans le dipôle magnétique.

Un ajustement effectué avec des gaussiennes produit une courbe qui colle moins bien aux

données, bien que la différence de courant obtenue ne soit que de 5 % au maximum. Dans la suite, on utilise les résultats des ajustements avec les fonctions Bump pour les calculs d'efficacité.

6.0.6.4 Efficacité pour tous les gaz rares stables

Les efficacités obtenues avec SPEED froid avec grille pour chaque gaz rare sont présentées dans le tableau 6.2. On observe la tendance générale d'une efficacité d'ionisation qui augmente avec la masse atomique, tendance qui est aussi constatée sur la source FEBIAD[32].

Ces mesures ont toutes été faites dans les mêmes conditions expérimentales. $U_{CA} = 270$ V, Chauffage cathode = 7 A, $U_{HT} = 1$ kV. La seule différence étant le gaz injecté et les paramètres de la ligne du banc de test.

Table 6.2 – Efficacité d'ionisation pour chaque gaz rare, avec le courant d'ions maximum obtenu et la section efficace d'ionisation.

Élément	He	Ne	Ar	Kr	Xe
Efficacité (%)	0.22	1.11	4.1	6.2	10.9
Courant maximal (nA)		383	733	246	484.00
Section efficace à 250 eV (1e-16 cm ²)	0.31	0.70	2.00	2.70	3.00

On a observé que l'efficacité ne variait pas avec le débit de gaz injecté dans la source pour l'He, le Ne, l'Ar et le Kr. Les courants maximum qui ont pu être extraits sont indiqués dans le tableau.

En revanche, passée 500 nA, l'efficacité pour le Xe diminue avec le débit de gaz injecté. Cette diminution de l'efficacité n'est pas expliquée avec certitude. Elle pourrait peut-être provenir d'une limitation en charge d'espace du courant d'ions extrait.

6.0.6.4.1 Compatibilité de la modélisation de la source avec les mesures d'efficacité Les résultats d'efficacité d'ionisation sont comparés avec la modélisation de la source. S'ils sont en accord, les résultats de SPEED froid pourront être transposés à SPEED chaud.

On vérifie l'une des prédictions du modèle, qui est que l'efficacité d'ionisation est proportionnelle à la section efficace d'ionisation et à la racine carrée de la masse atomique (voir partie 6.0.2).

La figure 6.43 montre l'efficacité d'ionisation en fonction du produit section efficace d'ionisation (à 250 eV), par la racine de la masse.



Figure 6.43 – Efficacité d'ionisation en fonction du produit de la section efficace par la racine carré de la masse pour les gaz rares de l'hélium au xénon.

On observe un lien de proportionnalité assez clair, à l'exception du point du Kr dont l'efficacité est de 20 % inférieure à la courbe de tendance. On suspecte que cette différence a été causée par une erreur de mesure, car la bouteille de gaz de Kr utilisée était presque vide.

Cette proportionnalité repose sur l'hypothèse que la probabilité d'extraction ne varie pas avec la masse de l'ion extrait, ce que suggère cette figure.

Le modèle pourrait aussi être invalide, mais jusqu'à maintenant, il n'a pas été mis en défaut, et la relation de proportionnalité montrée sur la figure 6.43 pour les autres éléments est excellente.

6.1 Transposition des résultats de SPEED froid à la production d'ions au voisinage de l'étain 100

La transposition des résultats de SPEED froid à SPEED chaud est effectuée dans cette partie. Dans un premier temps, l'efficacité d'ionisation est calculée en négligeant la décroissance radioactive. Ensuite, une estimation qualitative du temps de transformation des atomes en ions est proposée.

Comme les tests de TULIP alcalin ont montré que la cavité devait fonctionner à une température plus élevée, les estimations sont effectuées pour une température de 2000 °C. Des tests doivent encore être effectués pour vérifier si la source peut supporter cette température.

6.1.1 Extrapolation de l'efficacité de transformation en ions d'atomes stables de Sn, Ag, Cd et In

L'équation 6.11 est utilisée pour extrapoler à haute température les résultats expérimentaux de SPEED froid. On utilise comme efficacité de référence celle du xénon à température ambiante (10,9 %) présentée dans la table 6.2.

La transposition est effectuée pour les éléments d'intérêt du projet TULIP, c'est-à-dire l'étain et ceux à son voisinage : Ag, Cd et In. On prend un nombre de masse de 100 et une température de 2000 °C. La section efficace retenue est celle à 250 eV.

Les résultats sont présentés dans le tableau 6.3 :

Table 6.3 – Efficacité d'ionisation prédite par la modélisation pour Sn, Ag, Cd et In dans SPEED chaud à 2000 °C.

	Ag	Cd	In	Sn
Section eff à 250 eV (1e-16 cm ²)	3	2.8	5.2	4.7
Efficacité d'ionisation à 2000 °C (en %)	3.4	3.2	5.9	5.4

Comme l'efficacité est proportionnelle à $\sqrt{m/T}$, ces prédictions restent valables pour des masses proches de 100 et des températures proche de 2000 °C.

Ces efficacités ne rendent compte que de l'efficacité de transformation en ions des atomes supposés stables.

L'incertitude de ces efficacités extrapolées est difficile à évaluer. En propageant les incertitudes, on constate qu'elle est causée principalement par les sections efficaces du Xe (utilisé comme référence dans la transposition) et celles des éléments pour lesquels on transpose l'efficacité. Cette incertitude est de l'ordre de 10 %. L'incertitude systématique est en revanche bien plus dure à estimer, et soulève plusieurs questions. À quel point l'injection d'électrons est-elle différente entre SPEED froid et chaud? À quel point l'utilisation d'électrodes pour reproduire la chute de potentiel électrique dans les parois de la cavité est-elle similaire au potentiel dans les parois de SPEED chaud? En l'absence de réponse à ces questions, on estime de façon très arbitraire que l'erreur systématique est probablement de l'ordre de plusieurs dizaines de pourcents.

6.1.2 Extrapolation de l'efficacité de transformation en ions d'atomes radioactifs de Sn et Ag

Pour estimer l'efficacité de transformation d'atomes radioactifs en ions, il est nécessaire de connaitre la durée de vie des noyaux radioactifs et le temps de transformation d'atomes stables en ions.

Comme déjà mentionné, ce dernier est une combinaison du temps de diffusion des atomes en dehors du matériau d'arrêt et de leur temps d'effusion dans la cavité de l'ECS.

Le temps de diffusion dépend de leur profondeur d'implantation dans le matériau. Pour les noyaux de Sn et d'Ag dans le Papyex, cette profondeur est comprise entre 0 et 5 µm, selon leur énergie de recul. Le temps de diffusion dépend aussi du coefficient de diffusion et donc de la température du matériau. Ces coefficients n'ont pas été trouvés dans la littérature.

Le temps de collage par contact de ces atomes sur du carbone (Papyex, DLC et graphite qui constituent la cavité de TULIP) n'a pas non plus été trouvé.

Il n'a donc pas été possible prédire les temps de transformation des éléments Sn et Ag dans l'ECS TULIP à partir de temps mesurés propres aux processus de diffusion, effusion et collage.

Cependant, ces éléments sont régulièrement produits à l'aide d'ECS qui utilisent des cibles de carbure d'uranium, dans lesquelles le rapport d'abondance entre carbone et uranium est proche d'un demi. Dans la référence [59], B. Roussière présente les temps de transformation d'isotopes de Sn et d'Ag mesurés pour l'ECS présenté figure 6.44. Il est constitué d'une cible d'UCx faite d'un ensemble de 149 disques de 14 mm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur. La cible est liée à une source d'ionisation de type FEBIAD via un tube de transfert en Ta, source et liaison très proches de celle présentée figure 4.1. La cible opère à une température de 2080 °C et le tube de transfert à 2150 °C. Dans cette configuration, les temps de transformation du Sn et de l'Ag sont respectivement de 55 s et de 3,2 s. L'article montre qu'à partir de la forme du relâchement en fonction du temps, il est possible de conclure que le relâchement du Sn et de l'Ag est principalement gouverné par le processus d'effusion (collage inclus) et donc que la part relative du processus de diffusion est négligeable.



Figure 6.44 – ECS utilisé pour les mesures de temps de transformation présentées dans [59]. Image tirée du même article.

Dans l'ECS cible UCx-FEBIAD, le nombre de collages des atomes sur les parois de la cavité cible est estimé à \sim 1E+4, alors qu'il n'est que de 3E+2 dans l'ECS TULIP. Le rapport de ces valeurs conduit à des temps d'effusion du Sn et de l'Ag dans l'ECS TULIP qui devraient être respectivement de 1.7 s et de 100 ms.

Dans ces conditions, négliger le temps de diffusion par rapport au temps d'effusion devient discutable. Mais par rapport à l'ECS UCx-FEBIAD, l'ECS TULIP présente aussi l'avantage d'une implantation des noyaux de Sn et Ag sur une profondeur de Papyex de quelques µm. Ces noyaux n'auront donc que quelques µm à traverser pour être relâchés en dehors du catcheur, à comparer au millimètre d'épaisseur des cibles d'UCx. Le temps de diffusion étant proportionnel au carré de l'épaisseur de la cible, le relâchement en dehors du catcheur devrait être beaucoup plus rapide (d'environ quatre ordres de grandeur) qu'en dehors de la cible d'UCx. Il doit donc aussi être possible de négliger le temps de diffusion par rapport au temps d'effusion dans l'ECS TULIP. Au final, le temps de transformation des atomes de Sn et Ag en ions dans l'ECS TULIP devrait effectivement être de l'ordre de 1.7 s et de 100 ms.

Cette comparaison repose sur l'hypothèse d'un fonctionnement des deux ECS à une température identique de ~ 2100 °C. Compte tenu des matériaux qui le constituent, l'ECS TULIP devrait pouvoir fonctionner à cette température, mais cela reste à démontrer expérimentalement.

Cette comparaison entre l'ECS UCx-FEBIAD et l'ECS TULIP-SPEED repose aussi sur l'hypothèse que le coefficient de diffusion du Sn et de l'Ag dans le Papyex du catcheur et dans l'UCx de la cible est le même. Cette hypothèse est évidemment fausse. Faute d'avoir une valeur expérimentale de ces coefficients, il est nécessaire de déterminer la tendance de l'évolution du coefficient de diffusion lors du passage de l'UCx au Papyex.

Un premier indice sur cette tendance peut être trouvé dans l'observation globale de l'évolution des coefficients de diffusion des atomes en fonction des caractéristiques des matériaux. Les matériaux considérés sont les Zr, le Nb et le Mo. Ces matériaux ont été choisis car il existe de nombreuses données dans la littérature. Ces éléments ont des numéros atomiques adjacents (40, 41, 42) et ils font partie des métaux de transitions de la même période chimique. Leurs rayons atomiques sont proches (respectivement de 160 nm, 147 nm et 140 nm). Malgré la « proximité » de ces paramètres, on observe une différence de plusieurs ordres de grandeurs entre les coefficients de diffusion des éléments dans ces trois matériaux. On observe aussi une plage de densité massique relativement étendue, de 6,49 g cm⁻³ pour le Zr, à 8,57 g cm⁻³ pour le Nb et à 10,2 g cm⁻³ pour le Mo.



Figure 6.45 – Coefficient de diffusion de différents éléments chimiques en fonction de leur numéro atomique dans le Nb, le Zr et le Mo. Données tirées de [28]

La valeur du coefficient de diffusion des atomes semble donc corrélée à la densité ou à la distance inter-atomique du matériau dans lequel ils diffusent, distance qui est plus importante pour le Zr que pour le Mo. Cette corrélation peut aussi être observée au travers des coefficients de self-diffusion des atomes, qui reflète la mobilité des atomes dans un matériau pur. Ce coefficient de self-diffusion est reporté figure 6.46 en fonction du paramètre de maille pour le Zr, le Nb et le Mo. Il diminue clairement lorsque le paramètre de maille diminue.



Figure 6.46 – Coefficient de self-diffusion des atomes de Zr, Nb et Mo en fonction du paramètre de maille de ces matériaux (structure cubique centrée)

Ces observations sur le comportement général de la diffusion d'atomes dans les matériaux suggèrent que la diffusion des atomes de Sn et d'Ag sera probablement plus rapide dans un matériau peu dense tel que le carbone graphite où le paramètre de maille est de 0,246 nm dans le plan le plus dense du graphène (voir figure 6.47 gauche) et de 0,336 nm entre plans, que dans l'UCx où la distance entre atomes de C et de U est quasiment égale (2,48 nm, voir figure 6.47 droite) à celle du graphène, mais dans lequel le volume occupé par l'uranium (rayon atomique de \sim 0,180 nm) est beaucoup plus important que celui occupé par le carbone (rayon atomique \sim 0,07 nm).



Figure 6.47 – Arrangement atomique du graphène dans son plan le plus dense (fig. gauche, structure hexagonale) et du monocarbure d'uranium (fig. droite, structure cubique face centrée). Les diamètres représentés sont les diamètres atomiques.

L'ensemble de ces remarques suggère que si la température de l'ECS TULIP est portée à \sim 2000 °C, le temps de relâchement des atomes de Sn et d'Ag en dehors du Papyex devrait être de l'ordre de la seconde. L'efficacité de relâchement en dehors du Papyex devrait donc être de plusieurs dizaines de pourcents pour les isotopes du Sn et de l'Ag ayant des durées de vie supérieures à la seconde.

Enfin, avec les efficacités d'ionisation de l'étain et de l'argent stables, et en ayant estimé leurs temps de transformation, on peut maintenant calculer l'efficacité de transformation qui prend en compte la décroissance radioactive. Le temps de transformation étant gouverné par l'effusion, on sait que l'efficacité d'ionisation peut s'exprimer : $\varepsilon_{radioactif} = \lambda_{ioni}/(\lambda_{ioni} + \lambda_{eff} + \lambda_R)$, avec λ_R la constante radioactive de l'isotope à produire. Comme on sait que $\varepsilon_{stable} = \lambda_{ioni}/(\lambda_{ioni} + \lambda_{eff})$ et que λ_{ioni} est petit devant λ_{eff} , alors on peut exprimer l'efficacité d'ionisation pour les atomes radioactifs :

$$\varepsilon_{radioactif} \approx \varepsilon_{stable} \frac{\lambda_{eff}}{\lambda_{eff} + \lambda_R}$$
(6.15)

Pour des isotopes avec des demi-vies supérieures à la seconde, les efficacités devraient donc être supérieures à 3,1 % pour l'argent et 2,0 % pour l'étain.

6.1.3 Conclusions

L'ECS SPEED froid a été caractérisé. Il a montré un temps de réponse très court, de l'ordre de la dizaine de ms à température ambiante pour l'Ar⁺, valeur qui devrait être plus courte pour la source SPEED chaud (diffusion et temps de collage exclus). Ces temps de réponse sont à comparer

avec les demi-vies des noyaux que SPEED cherche à produire : la plupart ont plusieurs secondes. L'efficacité d'ionisation a pu être mesurée pour tous les gaz rares, et les valeurs obtenues sont en accord avec la modélisation.

Pour complètement caractériser le faisceau d'ions issus de SPEED froid, il aurait fallu en plus réaliser des mesures d'émittance du faisceau d'ions produit, ainsi que des mesures de dispersion en énergie.

Les mesures ont montré que l'efficacité d'ionisation n'est pas assez élevée. 4 % pour l'argon est une valeur faible comparée au 20 % que la FEBIAD peut avoir pour ce gaz. Quelques voies d'améliorations sont cependant possibles. Augmenter la tension entre la cathode et l'anode devrait augmenter le courant d'électrons injecté dans la cavité et donc augmenter l'efficacité. L'efficacité d'extraction mesurée à 40 % devrait aussi pouvoir être améliorée par des modifications de la géométrie de la source. Une modification de la cathode pourrait augmenter le courant d'électrons injecté dans la cavité, et donc augmenter le taux d'ionisation dans la cavité.

Enfin, ce prototype froid a montré que l'ionisation des atomes dès leur sortie du catcher est possible. En effet, en injectant les électrons directement dans la cavité, les atomes qui effusent n'ont pas besoin de d'abord se déplacer dans un tube de transfert, car SPEED en est dénué. Cela remplit l'un des objectifs initiaux du projet TULIP, qui était d'extraire les ions dès leurs sorties du catcher.

Dans le cas où on arriverait à obtenir un taux d'ionisation dans la cavité similaire aux taux d'effusion, le temps de transformation des atomes en ions ne serait plus seulement gouverné par l'effusion atomique. Le faisceau d'électrons viendrait alors pomper les ions en dehors de la cavité, en réduisant leurs temps de résidence et leur nombre de rebonds dans la cavité.

Conclusions

Cette thèse a été réalisée dans le cadre du projet SPIRAL1. Le travail présenté dans ce mémoire porte sur la R&D des ECS de SPIRAL1, qui ont conduit et conduiront à la production de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs.

Un travail d'amélioration de l'ECS FEBIAD, couplée à une cible graphite épaisse, a été mené. La source FEBIAD s'est révélée fiable : elle a fonctionné pendant 15 jours avec des performances stables sans signes de dégradations, et pourrait donc fonctionner plus longtemps. De plus, la source s'est avérée efficace : elle produit des ions Ar^+ avec une efficacité d'ionisation de plus de 20 %. Ces résultats sont le fruit de modifications thermiques et mécaniques apportées à la source à l'issue d'un travail de diagnostic, ayant conduit à préserver les isolants. Cet ECS permet aujourd'hui au GANIL de produire une grande variété de faisceaux d'ions radioactifs, ouvrant des perspectives importantes pour les usagers du laboratoire.

L'ECS TULIP pour l'ionisation des éléments alcalins a été modifié. La cible de production a été séparée et éloignée de la cavité pour réduire les dommages causés par une température excessive. Des simulations thermiques ont confirmé que cette modification conduit à une température de la cible faiblement influencée par la température de la cavité. Le dépôt d'énergie par le faisceau primaire est donc maintenant le paramètre prépondérant qui conditionne la température de la cible. Cette modification ouvre la voie à l'utilisation de matériaux cibles autres que le Ni. Les métaux de transition des périodes 4 et 5 du tableau de Mendeleïev peuvent maintenant être considérés comme des matériaux cibles potentiels pour la production d'isotopes radioactifs par réactions de fusion évaporation avec TULIP. Une étude détaillée au cas par cas reste cependant nécessaire pour vérifier leurs conditions de mise en œuvre.

Des ions de ^{74 à 78}Rb+ ont été produits à partir de la réaction entre un faisceau de ²⁰Ne à 4.5 MeV/A sur une cible de ^{nat}Ni. Les taux des ions ^{75 à 78}Rb+ révèlent que le taux de production avec la masse des isotopes varie seulement d'un ordre de grandeur, et permettent par extrapolation d'attendre un taux de production de ⁷⁴Rb+ de l'ordre de quelques milliers de particules par seconde. Ce taux n'a pas été obtenu, mais l'analyse des résultats a mis en évidence la responsabilité d'une température insuffisante de la cavité TULIP. La séparation de la cible et de la cavité doit permettre d'augmenter cette température et par conséquent les taux de production des ions de courtes durées de vie tels que celui du ⁷⁴Rb+.

Le reste du mémoire est consacré au développement de deux sources d'ions à ionisation par impact électronique : un canon à ions métalliques et une adaptation de la cavité TULIP à ce mode d'ionisation.

Un canon à ions métalliques a été développé dans le but de caractériser sur banc, sans faisceau primaire, les temps de transformation des atomes en ions dans les ECS, préalablement à leur utilisation pour la production d'ions radioactifs. Le canon à ions construit a permis la production d'un faisceau d'ions Ni⁺ d'une intensité d'environ 400 nA qui répond à l'objectif d'intensité fixé. Cependant, le principe d'ionisation conduit à l'ionisation simultanée d'atomes du gaz résiduel. Pour limiter cette quantité d'ions indésirables injectés dans l'ECS, il semble nécessaire de réduire leur abondance, par exemple en diminuant la pression de gaz résiduel et/ou en insérant un séparateur de masse entre le canon à ions et l'ECS à qualifier. Moyennant cette évolution, il devrait être utilisable pour déterminer le temps de transformation d'atomes stables de Ni en ions dans les ECS destinés à la production d'ions radioactifs de Ni⁺. Au-delà, ce principe devrait être transposable à la production de faisceaux d'ions stables d'autres métaux, moyennant de reproduire la démarche suivie pour l'obtention d'un faisceau d'ions Ni⁺.

Enfin, le principe de cathode électro-émissive développée pour le canon à ions a été adapté pour l'ionisation d'atomes métalliques dans l'ECS TULIP. L'injection d'électrons et l'ionisation des atomes dans la cavité ont été simulées et en partie analytiquement modélisées. Un prototype de test fonctionnant à température ambiante a été conçu, réalisé et caractérisé sur banc. Les mesures d'efficacité et de temps de transformation des atomes en ions pour tous les gaz rares qui ont été effectuées ont montré leur accord avec les simulations et modélisations. Une transposition des résultats à l'étain permet de prédire que l'efficacité d'ionisation de l'étain dans un ECS à 2000 °C devrait être d'environ 5 %, en négligeant les pertes par décroissance si l'atome est radioactif.

Des pistes d'amélioration sont envisageables pour augmenter l'efficacité d'ionisation de l'ECS TULIP métalliques. La modélisation et les mesures ont montré que l'augmentation du courant d'électrons injecté dans la cavité entraîne une augmentation de l'efficacité d'ionisation. Cette augmentation du courant d'électrons peut certainement être améliorée, en modifiant la géométrie de la cathode et en augmentant la différence de potentiel entre la cathode et la cavité. L'utilisation d'un champ magnétique colinéaire à l'axe d'injection des électrons pourrait aussi contribuer à faciliter leur injection dans la cavité. Cette idée a été considérée au début de ce travail, mais sa mise en œuvre semble particulièrement difficile dans un environnement contraint par les dimensions de TULIP et par sa température de fonctionnement.

Perspectives

L'objectif de ce travail de thèse et plus particulièrement du projet SPEED était de produire des ions métalliques déficients en neutrons et de courte durée de vie, en partant des principes utilisés pour le dispositif TULIP. À savoir production des noyaux par réaction de fusion-évaporation, implantation dans un catcher, ionisation des atomes radioactifs dès leur sortie du catcher, dans une cavité qui aurait la double fonction de cavité cible et de source d'ionisation pour minimiser le temps de transformation des atomes en ions. Le projet SPEED servait donc directement l'objectif final du projet ANR TULIP, dans lequel les ions visés étaient les ions métalliques au voisinage de l'étain 100.

Au début de ce travail, l'association de la source FEBIAD à la cavité TULIP aurait pu être envisagée. Mais d'une part, son efficacité d'ionisation sur le long terme n'était ni démontrée, ni suffisante (durée de vie de quelques jours, efficacité < 5 %), et d'autre part, son association à la cavité TULIP via un tube de transfert ne répondait pas au besoin d'ioniser les atomes dès leur sortie du catcheur. Elle ne répondait donc pas au souhait de minimiser le temps de transformation. Le projet SPEED était donc justifié, car il visait cet objectif.

À l'issue de ce travail de thèse, les modifications apportées à la source FEBIAD en font la source FEBIAD la plus performante à ce jour en termes d'efficacité d'ionisation et de durée de vie (efficacité supérieure à 20 %, durée de vie supérieure à 15 j). Il aura fallu environ 40 ans d'évolutions pour parvenir à ce résultat. Par comparaison, en seulement trois ans, la source d'ionisation SPEED a démontré que son principe fonctionne et que ses performances d'ionisation sont comparables à celles de la source FEBIAD avant amélioration. L'évolution simultanée des performances de la FEBIAD implique que celles de SPEED doivent être encore améliorées pour pouvoir rivaliser. Compte tenu de la jeunesse de SPEED, ses performances sont cependant encourageantes et justifieraient de poursuivre son développement.

Aujourd'hui, l'efficacité d'ionisation de l'étain prédite pour la FEBIAD est de 40 %. Il a donc été choisi de privilégier son couplage à la cavité TULIP, pour tenter de produire les éléments métalliques au voisinage de l'étain 100 plutôt que d'utiliser la version SPEED. Ce couplage à la FEBIAD conduira inévitablement à un allongement du temps de transformation de l'ECS, dont l'impact sur l'efficacité globale devrait cependant être limité par le fait que les noyaux voisins de l'étain 100 ont tous des durées de vie supérieures à la seconde. Le choix de la FEBIAD a aussi été motivé par l'échéance du projet TULIP (reportée à juillet 2025), dont un des livrables est un premier prototype d'un dispositif de production d'ions métalliques voisins de l'étain 100. Entamer le processus d'amélioration des performances du dispositif SPEED aurait nécessité un temps de développement supplémentaire incompatible avec l'échéance du projet TULIP.

Une vue en coupe du couplage TULIP-FEBIAD est donnée figure 6.48. Les principaux composants y sont reportés. Ce dispositif a déjà été réalisé et devrait être testé hors faisceau primaire au printemps 2024.



Figure 6.48 – Couplage de la cavité TULIP avec la source à impact électronique FEBIAD.

Un deuxième axe d'amélioration concerne la cible de l'ECS. Afin d'augmenter la puissance du faisceau envoyé sur la cible, et ainsi accroître la production de noyaux radioactifs, il a été décidé de lancer le développement d'une cible tournante pour TULIP.

C'est une solution technique couramment mise en œuvre dans les séparateurs en vol, mais qui est restée étrangère aux systèmes ISOL. Le principe consiste à faire tourner une cible pour répartir la puissance du faisceau déposée sur une plus grande surface. Cela permet d'envoyer un faisceau plus intense sur la cible, tout en limitant sa température.

La figure 6.49 montre l'adaptation d'une cible tournante à l'ECS TULIP. Un faisceau primaire 7 fois plus intense devrait ainsi pouvoir être employé.



Figure 6.49 – Adaptation d'une cible tournante à l'ECS TULIP/FEBIAD.

Si la combinaison de la TULIP-FEBIAD et le fonctionnement de la cible tournante sont validés hors faisceau primaire, il est prévu de les utiliser en 2025 en ligne pour tester la production d'ions métalliques voisins de l'étain 100 avec un faisceau primaire de ⁵⁰Cr sur une cible de Ni.

Au-delà, l'emploi de ce dispositif dépendra des performances de production démontrées, des performances raisonnablement envisageables pour de nouveau faisceaux et de l'intérêt que la communauté de physiciens utilisateurs du GANIL exprimera pour les faisceaux d'ions radioactifs déficients en neutrons et de courte durée de vie. Chapitre 7

Annexes
Annexe A

Code de génération de nombre aléatoire et de direction de réémission

```
local uma = 1.66e-27 --en kg
local kB = 1.38065e-23 --en J.K-1
function NormaliserVect(nx,ny,nz)
--normalise un vecteur
   local norme = math.sqrt((nx*nx)+(ny*ny)+(nz*nz))
   local n1x = nx/norme
   local n1y = ny/norme
   local n1z = nz/norme
   return n1x,n1y,n1z
end
function RanLambAngle()
--donne des angles theta et phi pour un émetteur lambertien en radian
    local theta = math.acos(math.sqrt(rand()))
   local phi = 2*math.pi*rand()
   return theta, phi
end
function PerpVect(nx,ny,nz)
--donne un vect perpendiculaire à un autre
    if nx==-ny and nz == 0 then
    --juste au cas où pour ne pas renvoyer de vecteur nul (perpendiculaire certes,
mais inutile ici)
```

```
return NormaliserVect(-ny-nz,nx,nx)
    else
        return NormaliserVect(nz,nz,-nx-ny)
    end
end
function RotationVect(nx,ny,nz,kx,ky,kz,angle)
--réalise une rotation d'un vecteur n autour d'un vecteur k, par un angle en rad
--formule de Rodrigues
    local n1x = nx*math.cos(angle) + (ky*nz-kz*ny)*math.sin(angle) + kx*kx*nx*(1-math.cos(angle))
    local n1y = ny*math.cos(angle) + (kz*nx-kx*nz)*math.sin(angle) + ky*ky*ny*(1-math.cos(angle))
    local n1z = nz*math.cos(angle) + (kx*ny-ky*nx)*math.sin(angle) + kz*kz*nz*(1-math.cos(angle))
    return n1x,n1y,n1z
end
function RanLambVect(nx,ny,nz)
--donne un vecteur normalisé par rapport à une surface définie par un
--vecteur normal pour un émetteur Lambertien
    local theta, phi = RanLambAngle()
    --print("theta et phi",theta,phi)
    local npx,npy,npz = PerpVect(nx,ny,nz)
    local n1x,n1y,n1z = RotationVect(nx,ny,nz,npx,npy,npz,theta)
    --rotation de theta autour d'un vect perp à la normale
    local n2x,n2y,n2z = RotationVect(n1x,n1y,n1z,nx,ny,nz,phi)
    --rotation de phi autour de la normale
    return NormaliserVect(n2x,n2y,n2z)
end
function RanGauss(sigma) --donne un RNG selon une loi normale tronquée à +-3sigma
    local x, y = 0, 1
    local twosigmasq = 2*sigma*sigma
    while y >= math.exp(-x*x/(twosigmasq)) do
        x = -3*sigma + 6*sigma*rand()
        y = rand()
    end
return x
end
function GaussianDistCircleUy(xc,yc,zc,sigma)
-- génère une dist 2d gaussienne dans un cercle appartenant a ux uz,
-centre en x y z, tronqué à un rayon de 3 sigma
    local x,z =4*sigma,4*sigma
    while math.sqrt((x*x)+(z*z)) > 3*sigma do
```

```
x = RanGauss(sigma)
        z = RanGauss(sigma)
    end
return x+xc,yc,z +zc
end
function PDFVitMaxwellMT(T,A,v) --Fonction densité de probabilité NON NORMÉE
--fonction de la temp T (en kelvin), du nombre de masse A de l'atome et de la vitesse
(m/s)
--Ne prend pas en compte la constante de normalisation de la PDF
    local m = A*uma --en kg. Ne prend pas en compte le default de masse (négligeable)
    local v2 = v*v
    return v2*math.exp(-m*v2/(2*kB*T))
end
function RandomSpeed(T,A) -- donne une vitesse aléatoire suivant une distrib de Maxwell
Boltzmann.
--tronqué à 3,5 fois la moyenne quadratique
    local v = 0
    local MaxPDF = 2*kB*T/(A*uma)
    local MaxV = 3.5*math.sqrt(MaxPDF) --vitesse a laquelle df(v)/dv = 0
    --print("vitesse a laquelle df(v)/dv = 0",MaxV/3.5)
    while v == 0 do
        local Vrng = rand()*MaxV
        local PDFrng = rand()*MaxPDF
        if PDFrng<=PDFVitMaxwellMT(T,A,Vrng) then
            v = Vrng
        end
    end
    return v
end
local a1 = 6.580061e-15
local b1 = 4.527418e-15
local c1 = -8.474448e-15
local d1 = -3.024854e-01
local I1 = 7.34392
function GetCrossSectionSn(E)
    --renvoie la section efficace d'ionisation simple par impact électronique en cm2
    --E = énergie de l'électron en eV
    local X=E/I1
    if E < I1 then
```

```
return 0
else
    return (a1*math.log(X) + (b1*math.log(X) + c1*(X-1))/(X+d1))/X
end
end
```

Annexe **B**

Code Monte-Carlo de réglage des paramètres wobulateur de SPIRAL1 et de densité de puissance sur cible.

Ce code appelle la fonction "RanGauss()" présent dans l'annexe A. Il est exécuté avec SIMION, mais peut fonctionner avec LUA standard si la fonction rand() de SIMION est remplacée par math.random() et en remplaçant seed(os.time()) par math.randomseed(os.time()).

```
local EMI = simion.import "emissionlib.lua"
seed(os.time()) --set the seed of the SIMION RNG
--Primary Beam Caracteristics (assumed gaussian)
local BeamEmittance = 4.5 -- standard deviation of the primary beam in the x and y
axis, in mm
local BeamPower = 500 --Primary beam Power, in Watt
--Fraction of power deposited in each layer of the Target ion source system. The sum
of these parameters must equal 1
local FracTarget = 0.27 --Fraction of the primary beam power deposited in the target
local FracWindow = 0.048 --for the window
local FracCatcher = 0.682 --for the catcher
--Setting of the wobulator
local Rwobu = 8 -- Radius of the wobulator, in mm
--Angular dispersion of the secondary beam (assumed gaussian)
```

```
local AngularDispersion = 0.1 --standard deviation in radian
```

```
--TISS geometry definition
local DTargetWindow = 60 --mm
local TISSRadius = 20.0 --mm
local TISSWidth = 17 --mm
--Simulation Parameters
local Nsample = 1000000
local BeamPowerPerParticle = BeamPower/Nsample
local Nzone = 5 --the area of the foils are divided in Nzone. One disk in the middle
and Nzone-1 annulus around.
local r = TISSRadius/Nzone
 _____
local ListRadius = {}
local PrimaryBeamPowerPerZone = {}
local ZoneSurface = {}
local SurfacePowerDensity = {}
local NParticlePrimaryBeamRejected = 0
local NrecoilIonAccepted=0
for i=0,(Nzone*2)+1 do
ListRadius[i] = i*r
end
for i=0,Nzone*2 do
ZoneSurface[i] = math.pi*(ListRadius[i+1]*ListRadius[i+1]-ListRadius[i]*ListRadius[i])
end
for i=0,Nzone*2 do
PrimaryBeamPowerPerZone[i] = 0
end
function RandomWobu(Rwobu,BeamEmittance)
--return the x and y of a random sample from wobulated gaussian beam, centered at (0,0)
local RNGTheta = rand()*2*math.pi --use the Built-in random number generator of SIMION
local x = Rwobu*math.cos(RNGTheta) + RanGauss(BeamEmittance)
local y = Rwobu*math.sin(RNGTheta) + RanGauss(BeamEmittance)
return x,y
end
--test the primary beam wobulator
---[[
```

```
local f = io.open("test2Dwobu.txt", "w")
for i=0,10000 do
local x,y = RandomWobu(Rwobu,BeamEmittance)
f:write(x," ",y,"\n")
end
f:close()
--11
function RecoilIonRandomDeviator(x0,y0,AngularDispersionSigma,D)
--take the coordinate of the point of interaction on the target and give the new coordinates
of the recoil ion on the entrance window
local RNGTheta = rand()*2*math.pi --uniform RNG between 0 and 2pi
local DispAngle = RanGauss(AngularDispersionSigma) --give a random dispersion angle
in radian following a gaussian distribution law
local x = x0 + D*tan(DispAngle)*cos(RNGTheta)
local y = y0 + D*tan(DispAngle)*sin(RNGTheta)
return x,y
end
function RecoilIonPositionOnWindow(Rwobu,BeamEmittance,AngularDispersion,DTargetWindow)
local x0,y0 = RandomWobu(Rwobu,BeamEmittance)
local x,y = RecoilIonRandomDeviator(x0,y0,AngularDispersion,DTargetWindow)
return x,y
end
--test the secondary beam position on the window generator
-- [ [
local f = io.open("test2DRecoilIon.txt", "w")
for i=0,10000 do
local x,y = RecoilIonPositionOnWindow(Rwobu,BeamEmittance,AngularDispersion,DTargetWindow)
f:write(x," ",y,"\n")
end
f:close()
--]]
function IsParticleInsideTargetOrWindow(x,y,TISSRadius,TISSWidth)
--this is a function that returns true if the recoil ion will go through the entrance
window or the target
--the target and the window have the same geometry
local bool=true
if math.sqrt(x*x+y*y) < TISSRadius and math.abs(x) < TISSWidth then
bool = true
```

else

```
bool = false
end
return bool
end
for j=0,(Nsample-1) do
local xTarget, yTarget = RandomWobu(Rwobu, BeamEmittance)
local RTarget= math.sqrt((xTarget*xTarget)+(yTarget*yTarget))
local PrimaryBeamHitTarget = IsParticleInsideTargetOrWindow(xTarget,yTarget,TISSRadius,TISSWidth)
if PrimaryBeamHitTarget == false then --if false it means that the primary beam particle
gets lost somewhere
NParticlePrimaryBeamRejected = NParticlePrimaryBeamRejected +1
end
for i=0,Nzone*2 do
if RTarget > ListRadius[i] and RTarget < ListRadius[i+1] then
PrimaryBeamPowerPerZone[i] = PrimaryBeamPowerPerZone[i] + BeamPowerPerParticle
end
end
local xRecoil,yRecoil = RecoilIonRandomDeviator(xTarget,yTarget,AngularDispersion,DTargetWindow)
if IsParticleInsideTargetOrWindow(xRecoil,yRecoil,TISSRadius,TISSWidth) == true and
PrimaryBeamHitTarget == true then
NrecoilIonAccepted = NrecoilIonAccepted + 1
end
end
for i=0,Nzone*2 do
SurfacePowerDensity[i] = PrimaryBeamPowerPerZone[i]/ZoneSurface[i] --W/mm2
end
local BeamInteractingWithTargetFraction = (Nsample-NParticlePrimaryBeamRejected)/Nsample
print("BeamInteractingWithTargetFraction",BeamInteractingWithTargetFraction)
local GlobalRecoilIonTransmissionEfficiency = (NrecoilIonAccepted)/Nsample
print("GlobalRecoilIonTransmissionEfficiency",GlobalRecoilIonTransmissionEfficiency)
local h = io.open("PowerPerZoneAndSurfacePowerPerZone.txt", "w")
h:write("Rwobu(mm):",Rwobu," SigmaBeam(mm):",BeamEmittance," BeamPower(W):",BeamPower,"\n")
h:write("zone PowerPerZone(Watt) SurfacePowerDensity(W/mm2)\n")
for i=0,Nzone*2 do
h:write(ListRadius[i],"-",ListRadius[i+1],"mm ",PrimaryBeamPowerPerZone[i]," ",SurfacePowerDensity
end
h:close()
```

Annexe C

Faisceaux d'ions radioactifs produits par l'ECS FEBIAD à SPIRAL1

Latest results for SPIRAL1 beam developpements Previous beams with ECR (gas) and FEBIAD ion sources are still available on GANIL-SPIRAL2 chart beam

		lsotopes			Extranolated rate (nns) for the	Expected rate with the best primary beam		Order of magnitude of
		Mass	lsotope(s)	T _{1/2} (s)	maximum primary beam intensity	Element_Energy_Power	Rate (pps)	post-accelerated beam rate (pps)
ſ		80	80Rb	34	7.16E+07	84Kr 67MeV/A 500W	7.2E+07	4.E+05
			79mKr	50	3.04E+07	84Kr 67MeV/A 500W	3.0E+07	2.E+05
		79	79Kr	126144	3.45E+07	84Kr 67MeV/A 500W	3.5E+07	2.E+05
			79Rb	1374	1.13E+07	84Kr 67MeV/A 500W	1.1E+07	6.E+04
			79mBr 78mPh	4.85	8.132+06	84Kr 67MeV/A 500W	8.1E+06	4.E+04
		78	78Rb	1059.6	2.96E+06	84Kr 67MeV/A 500W	3.0E+06	1.E+04
			78Br	387	4.69E+07	84Kr 67MeV/A 500W	4.7E+07	2.E+05
			77Rb	226.8	4.01E+05	84Kr 67MeV/A 500W	4.0E+05	2.E+03
			77Kr	4275	2.30E+07	78Kr 70MeV/A 800W	8.3E+08	4.E+06
	V 2022	//	77mBr	256.8	4.24E+07	78Kr 70MeV/A 800W	2.0E+08	1.E+06
	Year: 2022		77mSe	205344	4.49E+07 1 83E+04	78KF 70WeV/A 800W 84Kr 67MeV/A 500W	2.1E+08 1.8F+04	1.E+06 9 F+01
			76Rb	36.5	1.76E+04	84Kr 67MeV/A 500W	1.8E+04	9.E+01
	Target Ion Source n°55 Target : Graphite	76	76Kr	53280	5.40E+06	78Kr 70MeV/A 800W	1.9E+08	1.E+06
		70	76Br	58320	4.45E+07	78Kr 70MeV/A 800W	7.1E+08	4.E+06
	Source : FEBIAD		76mBr	1.31	1.61E+06	78Kr 70MeV/A 800W	2.6E+07	1.E+05
	Primary boam	75	75Kr	276	7.78E+05	84Kr 67MeV/A 500W	7.8E+05	4.E+03
	84Kr 67MeV/A	/5	75Br 75Ga	126	3.96E+07	76Ge 61MeV/A 500W	0.7E+08 2.8E+06	3.E+06 1 F+04
	Power: 10W		71Se	284.4	2.20E+04	78Kr 70MeV/A 800W	5.2E+05	3.E+03
	Maximum power available : 500W	71	71As	235080	1.85E+07	78Kr 70MeV/A 800W	8.2E+07	4.E+05
		/1	71Zn	147	1.63E+04	76Ge 61MeV/A 500W	6.6E+05	3.E+03
			71mZn	14256	1.31E+05	76Ge 61MeV/A 500W	5.3E+06	3.E+04
			69As	912	1.48E+05	78Kr 70MeV/A 800W	2.3E+06	1.E+04
		69	69Ge	140580	1.24E+07	76Ge 61MeV/A 500W	1.4E+08 2.3E±07	7.E+05 1 E±05
			69Cu	49521.0	3.74E+04	76Ge 61MeV/A 500W	1.1E+06	6.E+03
		69	68mCu	225	8.53E+04	76Ge 61MeV/A 500W	1.5E+06	7.E+03
		68	68Ga	4062.6	5.04E+07	70Ge 71MeV/A 600W	3.0E+08	1.E+06
		67	67Ge	1134	1.33E+05	70Ge 71MeV/A 600W	8.0E+05	4.E+03
			67Ga	281810.88	3.28E+07	70Ge 71MeV/A 600W	2.2E+08	1.E+06
		65	65Ga	912	5.52E+06	/0Ge /1MeV/A 600W	4.1E+07	2.E+05
ŀ	Vear: 2021	47	05INI 47K	9001.884	2.952+04	48Ca 60MeV/A 700W	2.82+05	1.E+05
	Target Ion Source n°53		45Ar	21.48	5.68E+06	48Ca 60MeV/A 700W	5.7E+06	3.E+04
	Target : Graphite	45	45K	1038	4.95E+08	48Ca 60MeV/A 700W	4.9E+08	2.E+06
	Source : FEBIAD	43	43Cl	3.3	6.84E+04	48Ca 60MeV/A 700W	6.8E+04	3.E+02
	Primary beam	45	43Ar	322.2	3.92E+07	48Ca 60MeV/A 700W	3.9E+07	2.E+05
	48Ca 60MeV/A	42	42K	44496	6.24E+08	48Ca 60MeV/A 700W	6.2E+08	3.E+06
	Power : 200W	42	H41CI	38.4	3.48E+05	48Ca 60MeV/A 700W	3.5E+05	2.E+03
	available : 700W	37	375	303	9 27F+04	40Ar 95MeV/A 1000W	5.2E+05	2.E+03
ŀ	Year: 2023	50	50mMn*	105	3.85E+05	50Cr 72MeV/A 500W	3.8E+05	2.E+03
	Target Ion Source n°55 Target : Graphite Source : FEBIAD Primary beam 50Cr 72MeV/A Power : 20W Maximum power available : 500W	48	48Cr*	77616	5.94E+06	50Cr 72MeV/A 500W	5.9E+06	3.E+04
ľ		35	35Ar	1.7756	1.54E+08	36Ar 95Mev/A 1500W	2.3E+08	1.E+06
1			H34mCl	1919.4	1.89E+07	36Ar 95Mev/A 1500W	2.9E+07	1.E+05
		34	34Ar 34Cl	0.8438	7.02E+06 2.39E+07	36Ar 95MeV/A 1500W	1.1E+07 3.6E±07	5.E+04 2 E±05
		0.	34mCl	1919.4	7.90E+07	36Ar 95Mev/A 1500W	1.2E+08	6.E+05
		33	33Ar	0.173	9.81E+04	36Ar 95Mev/A 1500W	1.5E+05	8.E+02
		55	33CI	2.511	2.21E+06	36Ar 95Mev/A 1500W	3.4E+06	2.E+04
		32	32Ar	0.098	1.14E+03	36Ar 95Mev/A 1500W	1.7E+03	9.E+00
	Year: 2022		32Cl	0.298	8.52E+04	36Ar 95Mev/A 1500W	1.3E+05	7.E+02
	Target Ion Source n°55	31	C190	26 91	0.U3E+U2 1 92F+03	36Ar 95Mev/A 1500W	1.2E+03 2 9F+03	0.E+00 1 F+01
		30	30AI	3.62	1.30E+03	36S 77.5Mev/A 1500W	1.9E+04	1.E+02
1	Target : Graphite	20	29AI	394	1.14E+05	36S 77.5Mev/A 1500W	7.1E+05	4.E+03
1	Source : FEBIAD	29	29Mg	1.3	2.27E+03	36S 77.5Mev/A 1500W	4.3E+04	2.E+02
1	.	28	28AI	134.7	3.27E+06	36S 77.5Mev/A 1500W	9.5E+06	5.E+04
	Primary beam	27	27Mg	567.5	2.62E+05	36S 77.5Mev/A 1500W	1.3E+06	6.E+03
	36Ar 74MeV/A Power : 850W Maximum power available : 850W	26	26Na	1.07128	2.21E+05	365 //.5Mev/A 1500W	1.5E+06	7.E+03 7.E+02
1			25AI	7 183	3.80E+04	325 95Mev/A 800W	5.7E+04	3.E+02
1		25	25Na	59.1	8.67E+06	36S 77.5Mev/A 1500W	3.7E+07	2.E+05
1			25Ne	0.602	6.52E+03	36S 77.5Mev/A 1500W	5.9E+04	3.E+02
1			24Ne	202.8	2.18E+05	26Mg 80MeV/A 1500W	3.8E+06	2.E+04
1		24	24Na	53989.2	9.25E+07	26Mg 80MeV/A 1500W	9.1E+08	5.E+06
1			24mNa	0.0202	2.87E+05	26Mg 80MeV/A 1500W	2.8E+06	1.E+04
ļ			24AI 23Ne	2.053	9.47E+02 1.43E+06	26Mg 80MeV/A 800W	1.4E+U3 1.6F+07	7.E+00 8 F+04
1		23	23Mg	11.3046	4.27E+06	24Mg 95Mev/A 1500W	8.8E+07	4.E+05
1		21	21Na	22.49	1.13E+07	24Mg 95Mev/A 1500W	1.0E+08	5.E+05
1		21	1H20F	11	3.90E+04	24Mg 95Mev/A 1500W	2.0E+05	1.E+03
1		20	20Na	0.4479	1.38E+06	24Mg 95Mev/A 1500W	1.3E+07	6.E+04
I		8	8Li	0.84	1.00E+05	13C 60MeV/A 800W	1.88E+06	9.E+03

Beam intensity compatible for post-acceleration with intensity >10⁴pps, considering accelearation efficiency equal to 0,5%

rates evaluation from the 2023 measurements are still ongoing.

Contact chartbeams-spiral1@ganil.fr for informations about purity, other isotopes or energy available

Annexe D

Démonstration de la loi de Child-Langmuir à une dimension

Démonstration : Soit deux plaques parallèles infinies perpendiculaires à l'axe x, avec l'anode et la cathode situées respectivement en x=0 et x=d. La cathode est à 0V et l'anode au potentiel U. Pour retrouver l'équation de CL, on part de l'équation de Maxwell-Gauss (D.1) couplée à la relation champ-potentiel électrique (D.2), ce qui donne l'équation de Poisson (D.3) :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\varepsilon_0} \tag{D.1}$$

$$\vec{E} = -\vec{\nabla}V \tag{D.2}$$

$$\Delta V = -\frac{\rho}{\varepsilon_0} \tag{D.3}$$

La densité de courant échangée entre la cathode étant constante quelle que soit la position, on exprime la densité de charge ρ en fonction de la vitesse \vec{v} des électrons et de la densité de courant \vec{j} :

$$\vec{j} = \rho \, \vec{v} \tag{D.4}$$

La géométrie étant invariante par translation suivant les axes parallèles à la cathode et l'anode, le problème est à une dimension. On réécrit (D.3) et (D.4) avec x comme axe perpendiculaire aux plaques :

$$\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} = -\frac{\rho}{\varepsilon_0} \tag{D.5}$$

$$j = \rho v \tag{D.6}$$

On exprime maintenant la vitesse des électrons en fonction du potentiel électrique, avec une vitesse initiale v(x=0)=0 lorsqu'ils sont émis depuis la surface de la cathode. Comme la force

électrique est conservative, l'énergie mécanique $E_{cinetique} + E_{potentiel} = eV + \frac{1}{2}mv^2$ reste constante, ce qui donne :

$$v = \sqrt{-\frac{2eV}{m}} \tag{D.7}$$

On insère (D.7) dans (D.6), ce qui permet d'exprimer ρ en fonction du potentiel électrique, que l'on peut ensuite mettre dans (D.5) :

$$\rho = -j\sqrt{\frac{m}{2qV}}V^{-\frac{1}{2}} \tag{D.8}$$

$$\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} = \frac{j}{\varepsilon_0} \sqrt{-\frac{m}{2e}} V^{-\frac{1}{2}} = A V^{-\frac{1}{2}}$$
(D.9)

Le courant maximum échangeable J_{CL} correspond à l'écrantage du champ en surface de la cathode, c'est à dire E(x = 0) = 0. Lorsque le champ est nul en surface de la cathode, les électrons émis commencent à être renvoyés vers la cathode. On cherche à trouver J_{CL} qui satisfait l'équation différentielle non-linéaire (D.9) avec comme conditions aux limites :

$$\partial V(x=0)/\partial x = 0$$

 $V(x=0) = 0$ potentiel de la cathode
 $V(x=d) = U$ potentiel de l'anode

Comme : $V' = \partial V / \partial x \Longrightarrow \partial x = \partial V / V'$ Que l'on injecte dans (D.9) :

$$V'\frac{\partial V'}{\partial V} = AV^{-\frac{1}{2}} \tag{D.10}$$

On intègre :

$$\frac{1}{2}V^{\prime 2} = 2AV^{\frac{1}{2}} + K \tag{D.11}$$

Les conditions aux limites imposent K=0. On réécrit (D.11) avec $V' = \partial V / \partial x$:

$$\frac{\partial V}{\partial x} = 2\sqrt{A}V^{\frac{1}{4}} \tag{D.12}$$

On intègre une deuxième fois en injectant :

$$\int_{V(x=0)=0}^{V(x=d)=U} V^{-\frac{1}{4}} \partial V = 2\sqrt{A} \int_{x=0}^{x=d} \partial x$$
(D.13)

$$\Longrightarrow \frac{4}{3}U^{\frac{3}{4}} = 2\sqrt{A}d \tag{D.14}$$

On remplace A par son expression et on extrait j qui correspond à J_{CL} . On retrouve l'équation de Child-Langmuir :

$$J_{CL} = \frac{4\varepsilon_0}{9} \sqrt{-\frac{2e}{m} \frac{U^{\frac{3}{2}}}{d^2}}$$
(D.15)

Annexe E

Mesures et calculs thermiques de la cathode du canon à ions et de SPEED métallique

La puissance absorbée par effet joule est $P = RI^2$. Pour un fil de diamètre d, de longueur l et de résistivité $\rho(\Omega m)$, $R = \frac{4\rho l}{\pi d^2}$. En se plaçant à l'équilibre thermique et en négligeant la conduction thermique aux extrémités du fil, la puissance électrique est égale à la puissance rayonnée $RI^2 = S\varepsilon\sigma T^4$, et en remplaçant R et S (la surface filament) on obtient alors :

$$\frac{4\rho l}{\pi d^2} I^2 = l d\pi \varepsilon \sigma T^4 \tag{E.1}$$

En première approximation, on considère ρ et ε constants en fonction de la température. Si l'on se place dans le cadre des hypothèses de la relation E.1, la température devrait suivre une loi linéaire avec la racine du courant.

Des mesures de températures du filament cathode en fonction du courant de chauffage sont effectuées. La température est mesurée par un pyromètre à disparition de filament. La figure E.1 est une photo du filament cathode chauffé par un courant de 3 A. La température n'est pas homogène, avec des points froids proches des plaques de support en Ta. Ces points froids s'expliquent par la conduction thermique qui refroidit le tungstène. La température du point le plus chaud est mesurée en fonction de la racine du courant de chauffage, et est ajustée par une régression linéaire (figure E.2).



Figure E.1 – Photo de la cathode chauffée par un courant de 3A, vue à travers un hublot. Le chevron sombre au milieu de l'image est le filament du pyromètre à disparition de fil chaud.

L'équation obtenue donne la relation Courant-Température maximale du filament : $T = 1380\sqrt{I} - 1154$ avec T en °C. En extrapolant cette formule à un courant supérieur, on trouve qu'un courant de 7A place le filament à une température maximale de 2500°C, courant qu'on ne dépassera pas pour que la durée de vie du filament soit de plusieurs dizaines d'heures au moins. Que la température du filament (figure E.2) évolue linéairement en fonction de la racine du courant est un hasard, car la relation entre température du filament et courant a été établie en supposant que la résistance du tungstène était indépendante de la température alors que l'on sait qu'elle varie grossièrement d'un facteur 2 sur la plage de température 1100-2000 K. Cependant, notre filament n'est pas idéal : sa température varie le long du fil. Elle est significativement plus faible à ses extrémités qu'au centre à cause du contact du filament avec les plaques de Ta qui le supportent. Finalement, les effets de variation de résistivité et de gradient thermique semblent se compenser pour donner lieu à une relation linéaire entre la température et la racine du courant de chauffage. Cette relation, qui n'est bien sûr valable que pour cette configuration de filament, présente l'avantage de permettre une extrapolation aisée du couple courant/température.



Figure E.2 – Tempérture du point le plus chaud du filament en fonction de la racine du courant de chauffage

Bibliographie

- [1] A. Gottberg. «New Target Material Developments for Exotic ISOL Beams». EMIS2015. 2015. url:https://indico.fnal.gov/event/9140/contributions/112620/.
- [2] Venkateswarlu Kuchi. « Development of an innovative ISOL system for the production of short-lived neutron-deficient ions ». Theses. Normandie Université, oct. 2018. url : https: //theses.hal.science/tel-01994668.
- [3] O. Kofoed-Hansen et K. O. Nielsen. « Short-Lived Krypton Isotopes and Their Daughter Substances ». In: Phys. Rev. 82 (1 avr. 1951), p. 96-97. doi: 10.1103/PhysRev.82.96.2. url: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.82.96.2.
- [4] T Stora. Radioactive Ion Sources. en. 2014. doi : 10.5170/CERN-2013-007.331. url : http://cds.cern.ch/record/1693046.
- Y Blumenfeld, T Nilsson et P Van Duppen. « Facilities and methods for radioactive ion beam production ». In : *Physica Scripta* 2013.T152 (jan. 2013), p. 014023. doi : 10.1088/0031-8949/2013/T152/014023. url : https://dx.doi.org/10.1088/0031-8949/2013/T152/014023.
- [6] Christoph Schuy. « Fragmentation of 400 MeV/u 12C on a thin graphite target ». en. Thèse de doct. Darmstadt : Technische Universität, mai 2015. url : http://tuprints.ulb.tudarmstadt.de/4538/.
- J. Crank. *The Mathematics of Diffusion*. Oxford science publications. Clarendon Press, 1979.
 isbn: 9780198534112. url: https://books.google.fr/books?id=eHANhZwVouYC.
- [8] P Jardin et al. « Total efficiency of an isotope-separator-on-line production system based on an electron cyclotron resonance ion source associated with a carbon target : The case of SPIRAL 1 ». In : *Review of scientific instruments* 77.3 (2006).
- J.R.J. Bennett et al. « The development of fast tantalum foil targets for short-lived isotopes ».
 In : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms 204 (2003). 14th International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to their Applications, p. 215-219. issn : 0168-

583X. doi: https://doi.org/10.1016/S0168-583X(02)01909-2. url: https: //www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X02019092.

- G.P. Brivio et T.B. Grimley. « Dynamics of adsorption/desorption at solid surfaces ». In : Surface Science Reports 17.1 (1993), p. 1-84. issn : 0167-5729. doi : https://doi.org/ 10.1016/0167-5729(93)90023-I. url : https://www.sciencedirect.com/ science/article/pii/016757299390023I.
- [11] R. Kersevan et J.-L. Pons. « Introduction to MOLFLOW+ : New graphical processing unit-based Monte Carlo code for simulating molecular flows and for calculating angular coefficients in the compute unified device architecture environment ». In : *Journal of Vacuum Science & Technology A* 27.4 (juin 2009), p. 1017-1023. issn : 0734-2101. doi : 10.1116/ 1.3153280. eprint : https://pubs.aip.org/avs/jva/article-pdf/27/4/1017/ 13303413/1017_1_online.pdf. url : https://doi.org/10.1116/1.3153280.
- [12] A. Pichard. « Développement de faisceaux d'ions radioactifs pour le projet SPIRAL 2 ». Theses. Université de Caen, nov. 2010. url : https://theses.hal.science/tel-00544206.
- U. Köster. « Resonance ionization laser ion sources ». In : Nuclear Physics A 701.1 (2002).
 5th International Conference on Radioactive Nuclear Beams, p. 441-451. issn : 0375-9474.
 doi : https://doi.org/10.1016/S0375-9474(01)01625-6. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947401016256.
- [14] Available beam at GANIL. https://u.ganil-spiral2.eu/chartbeams/. Donnée mise à jour en 2017 pour les faisceaux primaires de carbone.
- [15] Patrick Dolegieviez et al. « Status of the SPIRAL2 Project ». In : Proc. 10th Int. Particle Accelerator Conf. (IPAC'19). 2019, p. 844-847.
- [16] Héloïse Goutte et Alahari Navin. « Microscopes for the Physics at the Femtoscale : GANIL-SPIRAL2 ». In : Nuclear Physics News 31.1 (2021), p. 5-12.
- [17] C Eléon et al. « Development of a surface ionization source for the production of radioactive alkali ion beams in SPIRAL ». In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* 266.19-20 (2008), p. 4362-4367.
- [18] Cyrille Eleon. « Recherche et développement concernant la production d'ions radioactifs dans le cadre de SPIRAL ». 2007CAEN2057. Thèse de doct. 2007, 1 vol. (227 p.) url : http://www.theses.fr/2007CAEN2057/document.
- [19] A. Pichard et al. « Development of a surface ionization source for the SPIRAL 2 project ». In: *Review of Scientific Instruments* 81.2 (fév. 2010), 02A908. issn: 0034-6748. doi: 10. 1063/1.3258498. eprint: https://pubs.aip.org/aip/rsi/article-pdf/doi/10. 1063/1.3258498/13931265/02a908_1_online.pdf. url: https://doi.org/10. 1063/1.3258498.

- [20] Pierre Bricault et al. « TRIUMF-ISAC target station and mass separator commissioning ».
 In : Nuclear Physics A 701.1 (2002). 5th International Conference on Radioactive Nuclear
 Beams, p. 49-53. issn : 0375-9474. doi : https://doi.org/10.1016/S0375-9474(01)
 01546-9. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947401015469.
- [21] M. J. Dresser. « The Saha-Langmuir Equation and its Application ». In : Journal of Applied Physics 39.1 (nov. 2003), p. 338-339. issn : 0021-8979. doi : 10.1063/1.1655755. eprint : https://pubs.aip.org/aip/jap/article-pdf/39/1/338/7940613/338_1__online.pdf. url : https://doi.org/10.1063/1.1655755.
- [22] Bernhard Wolf. Handbook of Ion Sources. Juill. 2017, p. 1-544. isbn : 9781315214054. doi : 10.1201/9781315214054.
- [23] O.B. Tarasov et D. Bazin. «LISE++: design your own spectrometer ». In: Nuclear Physics A 746 (2004). Proceedings of the Sixth International Conference on Radioactive Nuclear Beams (RNB6), p. 411-414. issn: 0375-9474. doi: https://doi.org/10.1016/j. nuclphysa.2004.09.063.url: https://www.sciencedirect.com/science/ article/pii/S0375947404010048.
- [24] O.B. Tarasov et D. Bazin. « Development of the program LISE : application to fusionevaporation ». In : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms 204 (2003). 14th International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to their Applications, p. 174-178. issn : 0168-583X. doi : https://doi.org/10.1016/S0168-583X(02)01917-1. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X02019171.
- [25] Julien Guillot et al. « Extraction of diffusion coefficients from the study of Rb release in different carbon catchers ». In : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms 526 (2022), p. 9-18. issn : 0168-583X. doi : https://doi.org/10.1016/j.nimb.2022.06.005.url : https: //www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X22001562.
- [26] James F. Ziegler, M.D. Ziegler et J.P. Biersack. «SRIM The stopping and range of ions in matter (2010) ». In : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms 268.11 (2010). 19th International Conference on Ion Beam Analysis, p. 1818-1823. issn : 0168-583X. doi : https://doi.org/10. 1016/j.nimb.2010.02.091.url : https://www.sciencedirect.com/science/ article/pii/S0168583X10001862.
- [27] Pascal Jardin et al. « Ni target development for the TULIP project ». In : EPJ Web Conf. Volume 285, 2023, 30th Conference of the International Nuclear Target Development Society (INTDS2022) (). doi: https://doi.org/10.1051/epjconf/202328508001.

- [28] G. Neumann et C. Tuijn. Self-diffusion and Impurity Diffusion in Pure Metals : Handbook of Experimental Data. ISSN. Elsevier Science, 2011. isbn : 9780080560045. url : https: //books.google.fr/books?id=ELDKujhMuYgC.
- [29] G.F. Grinyer et al. « Upgrade of the SPIRAL identification station for high-precision measurements of nuclear β decay ». In : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 741 (2014), p. 18-25. issn : 0168-9002. doi : https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.11.106. url:https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900213016719.
- [30] Marie Gélin. γ ray spectroscopy of neutron rich nuclei around N= 20. Rapp. tech. Caen Univ. Basse-Normandie, 2007, p. 36-37.
- [31] R. Kirchner et E. Roeckl. « Investigation of gaseous discharge ion sources for isotope separation on-line ». In : *Nuclear Instruments and Methods* 133.2 (1976), p. 187-204. issn : 0029-554X. doi : https://doi.org/10.1016/0029-554X(76)90607-8. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0029554X76906078.
- [32] L Penescu et al. « Development of High Efficiency Versatile Arc Discharge Ion Source (VADIS) at CERN Isolde ». In : *Rev. Sci. Instrum.* 81.CERN-EN-2009-001 (2009), 02A906.
- [33] A.W. Pryor. « The electrical conductivity of beryllium oxide ». In : Journal of Nuclear Materials 14 (1964), p. 258-264. issn : 0022-3115. doi : https://doi.org/10.1016/0022-3115(64)90186-2. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/ 0022311564901862.
- [34] P. Sortais et al. « Ultracompact/ultralow power electron cyclotron resonance ion source for multipurpose applicationsa) ». In: *Review of Scientific Instruments* 81.2 (fév. 2010), 02B314. issn: 0034-6748. doi: 10.1063/1.3272878. eprint: https://pubs.aip.org/aip/ rsi/article-pdf/doi/10.1063/1.3272878/13935557/02b314_1_online.pdf. url: https://doi.org/10.1063/1.3272878.
- [35] Ralph Howard Fowler et L. W. Nordheim. « Electron Emission in Intense Electric Fields ». In : Proceedings of The Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences 119 (1928), p. 173-181.
- [36] A.J. Dekker. « Secondary Electron Emission ». In : Advances in Research and Applications. Sous la dir. de Frederick Seitz et David Turnbull. T. 6. Solid State Physics. Academic Press, 1958, p. 251-311. doi : https://doi.org/10.1016/S0081-1947(08)60728-6. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0081194708607286.
- [37] Raúl A. Baragiola. « Principles and mechanisms of ion induced electron emission ». In : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms 78.1 (1993), p. 223-238. issn : 0168-583X. doi : https://doi.

org/10.1016/0168-583X(93)95803-D.url:https://www.sciencedirect.com/ science/article/pii/0168583X9395803D.

- [38] Saul Dushman. « Thermionic Emission ». In : Rev. Mod. Phys. 2 (4 oct. 1930), p. 381-476. doi: 10.1103/RevModPhys.2.381. url: https://link.aps.org/doi/10.1103/ RevModPhys.2.381.
- [39] «Front Matter ». In : Smithells Metals Reference Book (Eighth Edition). Sous la dir. de W.F. Gale et T.C. Totemeier. Eighth Edition. Oxford : Butterworth-Heinemann, 2004, p. iii. isbn : 978-0-7506-7509-3. doi : https://doi.org/10.1016/B978-0-7506-7509-3.50046-4. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/ B9780750675093500464.
- [40] Manuel Vogel. « Handbook of Charged Particle Optics, 2nd edition, edited by J. Orloff ». In : *Contemporary Physics - CONTEMP PHYS* 51 (juill. 2010), p. 367-367. doi : 10.1080/ 00107510903220705.
- [41] C. D. Child. « Discharge From Hot CaO ». In : Phys. Rev. (Series I) 32 (5 mai 1911), p. 492-511. doi: 10.1103/PhysRevSeriesI.32.492. url: https://link.aps.org/doi/10. 1103/PhysRevSeriesI.32.492.
- [42] Irving Langmuir. « The Effect of Space Charge and Residual Gases on Thermionic Currents in High Vacuum ». In : *Phys. Rev.* 2 (6 déc. 1913), p. 450-486. doi : 10.1103/PhysRev.2. 450. url : https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.2.450.
- [43] Peng Zhang et al. «100 years of the physics of diodes ». In : Applied Physics Reviews 4.1 (2017), p. 011304. doi : 10.1063/1.4978231. eprint : https://doi.org/10.1063/1.4978231.
- [44] L. H. Germer. « The Distribution of Initial Velocities Among Thermionic Electrons ». In : Phys. Rev. 25 (6 juin 1925), p. 795-807. doi : 10.1103/PhysRev.25.795. url : https: //link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.25.795.
- [45] Y. Y. Lau. «Simple Theory for the Two-Dimensional Child-Langmuir Law ». In : Phys. Rev. Lett. 87 (27 déc. 2001), p. 278301. doi : 10.1103/PhysRevLett.87.278301. url : https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.87.278301.
- [46] J. W. Luginsland, Y. Y. Lau et R. M. Gilgenbach. «Two-Dimensional Child-Langmuir Law ». In: Phys. Rev. Lett. 77 (22 nov. 1996), p. 4668-4670. doi: 10.1103/PhysRevLett. 77.4668. url: https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.77.4668.
- [47] Yongdong Li et al. « Two-dimensional Child-Langmuir law of planar diode with finiteradius emitter ». In : Applied Surface Science 251.1 (2005). The 5th International Vacuum Electron Sources Conference, p. 19-23. issn : 0169-4332. doi : https://doi.org/10. 1016/j.apsusc.2005.03.160. url : https://www.sciencedirect.com/science/ article/pii/S0169433205005350.

- [48] Benjamin Ragan-Kelley, John Verboncoeur et Yang Feng. « Two-dimensional axisymmetric Child-Langmuir scaling law ». In : *Physics of Plasmas* 16.10 (oct. 2009), p. 103102. issn : 1070-664X. doi : 10.1063/1.3243474. eprint : https://pubs.aip.org/aip/pop/ article-pdf/doi/10.1063/1.3243474/14058648/103102_1_online.pdf. url : https://doi.org/10.1063/1.3243474.
- [49] Yuri B. Zudin. «Non-equilibrium Effects on the Phase Interface ». In : Non-equilibrium Evaporation and Condensation Processes : Analytical Solutions. Cham : Springer International Publishing, 2021, p. 17-45. isbn : 978-3-030-67553-0. doi : 10.1007/978-3-030-67553-0_2. url : https://doi.org/10.1007/978-3-030-67553-0_2.
- [50] Yoshihito Ogasawara, S.Hadi Tabaian et Masafumi Maeda. « Rates of Evaporation in a Vacuum in Liquid Ni-Ti Alloys ». In : *Isij International - ISIJ INT* 38 (jan. 1998), p. 789-793. doi: 10.2355/isijinternational.38.789.
- [51] H. Watanabe et al. « Phase (Liquid/Solid) Dependence of the Normal Spectral Emissivity for Iron, Cobalt, and Nickel at Melting Points ». In : *International Journal of Thermophysics* 24 (mars 2003), p. 473-488. doi : 10.1023/A:1022924105951.
- [52] C. B. Alcock, V. P. Itkin et M. K. Horrigan. « Vapour Pressure Equations for the Metallic Elements : 298–2500K ». In : *Canadian Metallurgical Quarterly* 23.3 (1984), p. 309-313. doi: 10.1179/cmq.1984.23.3.309. eprint : https://doi.org/10.1179/cmq.1984.23.3.309. url : https://doi.org/10.1179/cmq.1984.23.3.309.
- [53] R. Kirchner et E. Roeckl. «A novel isol ion source ». In : Nuclear Instruments and Methods 139 (1976), p. 291-296. issn : 0029-554X. doi : https://doi.org/10.1016/0029-554X(76)90687-X. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/ pii/0029554X7690687X.
- [54] David A Dahl. « simion for the personal computer in reflection ». In : International Journal of Mass Spectrometry 200.1 (2000). Volume 200 : The state of the field as we move into a new millenium, p. 3-25. issn : 1387-3806. doi : https://doi.org/10.1016/S1387-3806(00)00305-5. url : https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/ S1387380600003055.
- [55] Robert S. Freund et al. « Cross-section measurements for electron-impact ionization of atoms ». In : *Phys. Rev. A* 41 (7 1990), p. 3575-3595. doi : 10.1103/PhysRevA.41.3575. url : https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.41.3575.
- [56] H. Deutsch, Kurt Becker et Tilmann Märk. « Calculated absolute cross-sections for the electron-impact ionization of atoms with atomic numbers between 20 and 56 using the Deutsch-Märk (DM) formalism ». In : *International Journal of Mass Spectrometry - INT* JMASS SPECTROM 271 (avr. 2008), p. 58-62. doi: 10.1016/j.ijms.2007.10.001.

- [57] Yong-Ki Kim. « Compact fitting formulas for electron-impact cross sections ». In : *Journal* of research of the National Institute of Standards and Technology 97.6 (1992), p. 689.
- [58] Liviu Constantin Penescu. « Techniques to produce and accelerate radioactive ion beams. Tehnici de producere si accelerare a fasciculelor radioactive ». Presented 2009. 2009. url : https://cds.cern.ch/record/2259078.
- [59] B Roussière et al. « Release of kr, ag, sn, i and xe from ucx targets ». In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* 246.2 (2006), p. 288-296.