

Évaluation de la méthode ISOL par fusion-évaporation à partir des faisceaux d'ions lourds stables de LINAG

L.C. Penescu

► To cite this version:

L.C. Penescu. Évaluation de la méthode ISOL par fusion-évaporation à partir des faisceaux d'ions lourds stables de LINAG. [Research Report] GANIL. 2005, pp.1-74. <in2p3-00024716>

HAL Id: in2p3-00024716 http://hal.in2p3.fr/in2p3-00024716

Submitted on 28 Sep 2005

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

GANIL R 05 02





Évaluation de la méthode ISOL par fusion-évaporation à partir des faisceaux d'ions lourds stables de LINAG

Liviu Constantin PENESCU



Juillet 2005

Table des matières :

1. Quelques cas physiques potentiellement intéressants	3
2. Ordre de grandeurs des faisceaux d'ions Lourds stables de Spiral2	4
3. Recherche bibliographique des sections efficaces de production de noyaux exotiques de masse intermédiaire déficients en neutrons	4
4. Comparaison des sections efficaces expérimentales avec les résultats des codes	
de simulation statistique.	7
4.1. Le principe de calcul pour un code de simulation à modèle statistique	8
4.2. Justifications des différences	9
4.3. Conclusion	11
5. Production de faisceaux riches en protons par la méthode ISOL	11
5.1 Production de faisceaux riches en protons par fusion-évaporation	
à l'Unilac	12
5.2. Production de faisceaux riches en protons par fusion-évaporation	
à Oak-Ridge	13
5.3. Production de faisceaux riches en protons par échange de nucléons	
à Louvain-la-Neuve	15
5.4. Conclusion	16
6. Réalisation d'un code pour estimer l'efficacité de capture dans le stoppeur des produits de fusion évaporation 15	
6.1. Les géométries possibles	17
6.2. La sélection des paramètres pour la production d'un faisceau radioactif	19
6.3. Le principe du code	21
6.4. L'analyse de la possibilité d'utiliser les distributions énergétiques	26
et angulaires d'un residu equivalent, avec une mellieure section efficace	26
7. La production du ⁸⁰ Zr	30
7.1. Production du ⁸⁰ Zr à partir de la réaction $\frac{36}{18}Ar + \frac{50}{24}Cr \rightarrow \alpha 2n + \frac{80}{40}Zr$	30
7.2. Comparaison au niveau du nombre de ⁸⁰ Zr arrêtés dans la cavité selon	
que la cible est interne ou externe	32
7.2.1. Cas de la cible externe	32
7.2.2. Cas de la cible interne	34
7.3. Réalisation de la cible de 50 Cr	34
7.4. Diffusion hors de la cible de 50 Cr et du stoppeur	35
7.5. L'effusion du ⁸⁰ Zr	36
7.5.1. L'effusion sous forme atomique du 60 Zr	36
7.5.2. L'ettusion sous forme molèculaire du ⁶⁶ Zr	38
7.5.5. Analyse de la possibilité d'ajout du SF_6 dans la cavite	20
pour produire du ZIF $_3$ 7.5.4. Rappel des résultats des tests à CSI et Oakridge	38 70
7.6 Autres réactions possibles	40 40
1.0. Auros reactions possibles	-+0

7.7. L'effet de «sputtering» de la cible	44
7.8. Les polluants pour la réaction ${}^{36}_{18}Ar + {}^{50}_{24}Cr \rightarrow \alpha 2n + {}^{80}_{40}Zr$	45
7.9. Analyse de la géométrie cible extérieur - stoppeur troué	
pour la réaction ${}^{36}_{18}Ar + {}^{50}_{24}Cr \rightarrow \alpha 2n + {}^{80}_{40}Zr$	46
8. La production du ⁹² Pd	52
8.1.Les fonctions d'excitation du ⁹² Pd pour les réactions analysées 8.2. Les distributions angulaires d'émission du ⁹² Pd pour les réactions	52
analysées	52
8.3. Les distributions énergétiques du ⁹² Pd au moment de l'émission	53
8.4. La diffusion du ⁹² Pd	54
8.5. L'effusion du ⁹² Pd	55
8.6. Analyse des dépôts de puissance	56
8.7. Le choix de la réaction	61
9. La production du ¹¹⁴ Ba	63
9.1. La fonction d'excitation du ¹¹⁴ Ba pour la réaction ⁵⁸ Ni+ ⁵⁸ Ni	63
9.2. La distribution angulaire du ¹¹⁴ Ba à l'émission	63
9.3. La distribution énergétique du ¹¹⁴ Ba à l'émission	64
9.4. La diffusion du ¹¹⁴ Ba	64
9.5. L'effusion du ¹¹⁴ Ba	65
9.6. Analyse des dépôts de puissance	66
9.7. Les polluants de la reaction	69
9.8. Conclusion	70
10. Conclusion	71
11. References	72

Evaluation de la méthode ISOL par fusion-évaporation à partir des faisceaux d'ions lourds stables de LINAG

Les réactions de fusion - évaporation à partir des faisceaux d'ions lourds stables de LINAG sont à priori bien adaptées pour étudier les noyaux exotiques, de masses intermédiaires, déficients en neutrons du point de vue :

- Nombre de nucléons disponibles dans les noyaux
- Grande sélectivité des réactions
- Grande intensité des faisceaux incidents d'ions lourds de LINAG.

Le but de ce travail est de chiffrer l'ordre de grandeur des paramètres en jeu, de mieux cerner les limitations dues aux difficultés technologiques prévisibles et, si possible et si l'extrapolation semble raisonnable, d'en déduire les taux potentiels des faisceaux résultants. Deux méthodes sont possibles pour sélectionner les produits de fusion -évaporation :

- La méthode ISOL : les produits de réactions sont arrêtés dans une matrice chaude, diffusent hors de cette matrice, sont transportés par conductance gazeuse jusqu'à une source d'ions où ils sont ionisés, puis extraits et accélérés. Cette méthode présente l'avantage de redéfinir l'émittance et l'énergie des faisceaux ainsi produits. Elle est cependant très pénalisante du point de vue efficacité d'autant plus que les éléments sont condensables, voire réfractaires.
- La méthode en vol : les produits de réactions quittent la cible mince grâce à leur vitesse, puis sont séparés du faisceau par un dispositif comme, par exemple, un filtre de Wien. La méthode en vol mériterait aussi une étude en soi pour les faisceaux LINAG : en effet, si elle ne permettra pas une aussi bonne définition de l'énergie des ions résultants que la méthode ISOL après accélération, elle semblerait au premier abord moins pénalisante que la méthode ISOL au niveau intensité résultante.

L'objet de ce rapport concerne uniquement la méthode ISOL.

<u>1. Quelques cas physiques potentiellement intéressants :</u>

Des challenges physiques, dans cette région de masse, sont nombreux. Quelques exemples sont :

- L'étude de la symétrie neutron- proton pour les noyaux N=Z : peut-on par exemple, étudier les états excités et les probabilités de transitions des ⁸⁰Zr, ⁹⁶Pd par excitations coulombiennes multiples ?
- L'étude des noyaux au voisinage de l'¹⁰⁰Sn dont ses nucléons occupent des couches magiques N=Z=50 : l'intensité des faisceaux d' ^{100,101,102}Sn seront-elles suffisantes pour «étudier de manière approfondie leur radioactivité ?

L'étude de la radioactivité Cluster à partir de l'état fondamental des noyaux. Si cette radioactivité est connue et observée pour des noyaux au-dessus du noyau doublement magique stable ²⁰⁸Pb, elle est prédite, à la « proton drip-line », pour quelques noyaux dont les ^{112,114}Ba [OGL],[[KUK05]. Elle n'a pas encore été observée directement à la « proton drip-line » [OGA94],[TRE97],[GUG95],[GUG95-2],[GUG97],[JAN97], [MAZ02],. Pourrait-on l'étudier à SPIRAL2 ?

2. Ordre de grandeurs des faisceaux d'ions Lourds stables de Spiral2

LINAG devrait dans un premier temps fournir les ions lourds Q/A =1/3 jusqu'au Krypton, avec des intensités pour les éléments gazeux variant de 1mAe pour l'oxygène (intensité mesurée sur plusieurs sources pour l'oxygène 6+), jusqu'à quelques 10 microampères pour le Krypton. Dans un premier temps, le rapport charge sur masse Q/A sera de 1/3. L'objectif de Spiral2, en ions métalliques, serait de pouvoir faire des Cr et des Ni avec des intensités d'environ 50 μ Ae. L'énergie, quant à elle, peut varier de 0.75 à 14.5 MeV/A. Les énergies requises pour la fusion - évaporation sont donc bien adaptées à LINAG.

Une des questions qui se pose pour la méthode ISOL est : Les cibles pourront elle supporter des intensités aussi importantes ?

3. Recherche bibliographique des sections efficaces de production de noyaux exotiques de masse intermédiaire déficients en neutrons

Typiquement, des intensités de quelques dizaines de nAp sont utilisées sur des cibles de quelques microns. La recherche bibliographique, que nous avons effectuée pour les noyaux riches en protons, est résumée ci-dessous :

3.1. La réaction ⁵⁸Ni + ²⁴Mg a été utilisée à Daresbury (Nuclear Structure Facility) pour produire le ⁸⁰Zr [Lis87]. Ils ont utilisé un faisceau de ⁵⁸Ni de 190 MeV et une intensité jusqu'à 20nAp sur une cible de 500µg/cm². Pour le ⁸⁰Sr, la section efficace de production a été mesurée directement ; pour ⁸⁰Zr et ⁸⁰Y, les sections efficaces relatives ont été estimées en utilisant les intensités des raies γ caractéristiques.

Noyau	Canal	Section	Section
	d'évaporation	efficace	efficace
		expérimentale	calculée
			(PACE)
⁸⁰ Sr	2p	44±4 mb	22,8 mb
⁸⁰ Y	1p 1n	2±1 mb	28,7 mb
⁸⁰ Zr	2n	10±5 mb	3,28 mb

Les résultats sont présentés dans le tableau 3.1 :

Tableau 3.1 : Sections efficaces expérimentales et calculées par C. J. Lister at al. [Lis87].

3.2. La réaction ⁵⁰Cr + ⁵⁸Ni a été utilisée à GANIL [Cha96] pour l'analyse de l'¹⁰⁰Sn. L'énergie du faisceau incident était de 255 MeV. Les sections efficaces relatives du ¹⁰⁰Cd, ¹⁰⁰In et ¹⁰⁰Sn ont été calculées à partir des taux des résidus détectés à l'intérieur du cyclotron CSS2 avec un détecteur silicium. Les sections efficaces absolues ont été obtenues par normalisation à partir de la section efficace de production de l'¹⁰⁰Ag, mesurée à GSI [Schu95].

Le tableau 3.2 présente les sections efficaces obtenues, comparées avec les prévisions des codes PACE, HIVAP et CASCADE.

Résidu	Intensité	Section	Section	Section	Section
	(ev/h nAe)	efficace	calculée	calculée	calculée
		(mb)	(PACE)	(HIVAP)	(CASCADE)
¹⁰⁰ Ag	~40	3,9[Schu95]	30	38	38
100 Cd	~10	~1	16	7	3,2
¹⁰⁰ In	~0,01	~0,01	0,02	0,014	0,027
¹⁰⁰ Sn	$\sim 4 \bullet 10^{-4}$	~4•10 ⁻⁵		0,0003	

Tableau 3.2 : sections efficaces expérimentales et calculées par M. Chartier et al. [Cha96].

3.3. À GSI, un faisceau de ⁵⁸Ni de 30-40 nAp et une cible de ⁵⁰Cr ont été utilisés pour étudier les isotopes proches de l'¹⁰⁰Sn [Com00]. Ils ont déduit les sections efficaces à partir des intensités du faisceau séparé en masse (calculées sur la base des activités βp et βγ expérimentales). Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 3.3, et une comparaison entre les résultats expérimentaux et les prévisions des models statistiques HIVAP et BUSCO est présentée dans la figure 3.1.

Réaction	Énergie	Canal	Noyau	Section
	faisceau	évaporation	résiduel	efficace
	(à mi-cible)			mesurée (mb)
	(MeV)			
⁵⁸ Ni+ ⁵⁰ Cr	249	αpn	102 In	0,9±0,5
⁵⁸ Ni+ ⁵⁰ Cr	249	αpn	102 In	1,3±0,7
⁵⁸ Ni+ ⁵⁰ Cr	348	αpn	¹⁰² In	1,1±0,6
⁵⁸ Ni+ ⁵⁰ Cr	249	2an	⁹⁹ Cd	$(3,2\pm2,0)$ x10 ⁻²
⁵⁸ Ni+ ⁵⁰ Cr	225	2an	⁹⁹ Cd	$(2,5\pm0,8)$ x10 ⁻²
⁵⁸ Ni+ ⁵⁰ Cr	319	ap3n	¹⁰⁰ In	$2,6x10^{-3}$
⁵⁸ Ni+ ⁵⁰ Cr	249	α	^{101}Sn	$(1,6\pm0,4)$ x10 ⁻⁵
$^{58}Ni + ^{50}Cr$	250	α	101 Sn	$1,0x10^{-5}$

Tableau 3.3 : sections efficaces expérimentales par M. Commara et al. [COM00].



3.4. La réaction ⁵⁸Ni + ⁵⁸Ni a été utilisée à GSI pour produire les ^{113,114}Ba [Maz02]. Ils ont utilisé un faisceau de ⁵⁸Ni de 36 nAp, ayant une énergie de 248 MeV pour la production du ¹¹³Ba et de 222-248 MeV pour la production du ¹¹⁴Ba. L'épaisseur des cibles de ⁵⁸Ni était de différentes épaisseurs, entre 2,0 et 3,8 mg/cm². Ils ont ajouté du CF₄ dans l'ioniseur, à la fois pour accélérer l'effusion mais aussi pour supprimer le césium qui pourrait polluer le faisceau secondaire, mais qui ne se combine pas avec le fluor; ils ont extrait les Ba sous la forme de BaF⁺. Ils ont calculé les sections efficaces de production (moyennées pour l'épaisseur de la cible) à partir des intensités déduites pour le faisceau séparé de BaF⁺. Ces intensités ont été calculées en utilisant la spectroscopie de désintégration. La transmission dans le séparateur était de 80% et l'efficacité de transport pour BaF⁺:11⁺⁴₋₃. Le résultat pour ¹¹⁴BaF⁺ a été de 4molecules/min.

Ils ont considéré que tous les produits de réaction reculent sans aucune perte d'intensité dans le stoppeur de la source d'ions. Les cibles ont été montées sur une roue, à l'aide de laquelle elles pouvaient être changées quand elles présentaient des signes de dégradation. Un autre faisceau, plus intense, issue de la réaction était sélectionné sur une autre voie du séparateur pour contrôler en ligne le bon réglage du système et donc en particulier l'usure des cibles.

Les sections efficaces obtenues sont présentées dans le tableau 3.4 :

Noyau	Canal évaporation	Section efficace expérimentale (µb)	Section efficace calculée (HIVAP) (µb)
¹¹⁴ Ba	2n	$0,20_{-0,09}^{+0,13}$	5
113 Ba	3n		0,07

Tableau 3.4 : sections efficaces expérimentales et calculées par C. Mazzocchi et al.. [MAZ02].

3.5. Dans une autre expérience, avec la même configuration, les noyaux ¹¹⁴⁻¹¹⁸Ba ont été produits avec un faisceau de ⁵⁸Ni et des cibles de ⁵⁸Ni, ⁶⁰Ni et ⁶³Cu [Jan97]. Le faisceau a eu une intensité de 40 nAp et les épaisseurs des cibles ont été 2mg/cm² (⁵⁸Ni enrichi à 99,9%, ⁶⁰Ni enrichi à 99,1% et ⁶³Cu enrichi à 95,5%). L'énergie du faisceau primaire, de 4,9 MeV/u, a été réduite a 4,2 MeV/u sur la cible de nickel, en utilisant comme dégradeur une feuille de Nb ou de ⁶³Cu (qui servait aussi comme cible de production pour ¹¹⁶Ba, ¹¹⁷Ba et ¹¹⁸Ba). Les produits de réaction ont été arrêtés sur un stoppeur de tantale situé dans la source de thermo-ionisation, d'où ils ont été évaporés, ionisés et accélérés à 55keV et séparés magnétiquement. Les sections efficaces expérimentales ont été estimées comme pour l'expérience présentée ci-dessus, [Maz02]. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.5 :

Réaction	Énergie faisceau (MeV/u)	Intensité (BaF/s)/1 nAp	Section efficace expérimentale
⁵⁸ Ni(⁵⁸ Ni, 2n) ¹¹⁴ Ba	3,5-4,2	3(1)•10 ⁻³	0,20 ^{+0,13} _{-0,09}
⁵⁸ Ni(⁵⁸ Ni, 1n) ¹¹⁵ Ba	3,5-4,2	< 3 •10 ⁻³	<0,2
⁶⁰ Ni(⁵⁸ Ni, 3n) ¹¹⁵ Ba	3,6-4,3	< 2 •10 ⁻²	<1
⁵⁸ Ni(⁵⁸ Ni, 0n) ¹¹⁶ Ba	3,5-4,3	< 3 •10 ⁻⁴	<0,03
⁵⁸ Ni(⁵⁸ Ni, 2n) ¹¹⁶ Ba	3,6-4,3	$4(1) \cdot 10^{-2}$	3(1)
⁶³ Cu(⁵⁸ Ni, 1p4n) ¹¹⁶ Ba	4,3-4,9	8(3)•10 ⁻³	0,8(4)
⁶³ Cu(⁵⁸ Ni, 1p3n) ¹¹⁷ Ba	4,3-4,9	$6(2) \bullet 10^{-1}$	55(20)
63 Cu(58 Ni, 1p2n) 118 Ba	4,3-4,9	$4(1) \bullet 10^{-1}$	19(6)

Tableau 3.5 : sections efficaces expérimentales et calculées par Z. Janas. [JAN02].

<u>4. Comparaison des sections efficaces expérimentales avec les résultats des codes de simulation statistique.</u>

On peut voir dans le paragraphe 3 que les sections efficaces sont souvent obtenues auprès d'appareillage ayant des efficacités faibles, imposant des normalisations expérimentales.

En plus, dans cette région de masse, peu de sections efficaces mesurées sont reportées.

On peut observer que les codes de calcul ont toujours tendance à surestimer les sections efficaces de production des fragments évaporés.

Les différences augmentent pour les sections efficaces estimées à partir des mesures relatives. Les différences ne sont donc pas uniquement dues aux programmes de simulation statistique. Cependant, même pour des sections mesurées avec une meilleure précision, la différence entre l'expérience et la simulation peut aller jusqu'à un facteur 10.

Ces différences peuvent avoir plusieurs causes, principalement en fonction de la région de la carte des nuclides en cause. Pour faire des simulations en utilisant des codes de simulation statistique, le plus important est de choisir les paramètres spécifiques pour la région du noyau analysé.

Pour choisir ces paramètres, on doit faire appel soit aux résultats expérimentaux proches du noyau d'intérêt soit, si on n'a pas, aux codes préliminaires (qui analysent la réaction en utilisant des calculs de voies couplées) : PTOLEMY [Das93], CCDEF [Hag99], CCFULL [Pie76].

4.1. Le principe de calcul pour un code de simulation à modèle statistique

En gros, tous les codes de simulation à modèle statistique suivent les mêmes étapes de calcul, elles sont présentées ci-dessous.

Pour la formation du noyau composé, le code prend en compte les sections efficaces de fusion expérimentales, présentes dans sa base de données ; si la valeur expérimentale pour le système analysé n'est pas connue , il calcule la section efficace en utilisant la méthode de Bass [Bass77].

Pour chaque énergie incidente, la section efficace partielle de formation du noyau composé, ayant un moment angulaire l est donnée par la formule :

$$\sigma_l = \pi \chi^2 (2l+1) T_l \tag{4.1}$$

 χ est la longueur d'onde réduite et T₁ est donné par :

$$T_{l} = \left[1 + \exp\left(\frac{l - l_{\max}}{\Delta}\right)\right]^{-1}$$
(4.2)

 Δ est un paramètre de diffusivité et l_{max} est déterminé par la section totale de fusion, σ_F :

$$\sigma_F = \sum_{l=0}^{\infty} \sigma_l \tag{4.3}$$

Pour la désexcitation du noyau excité, le code suit une procédure de couplage de moment angulaire à chaque étape de désexcitation.

Les coefficients de transmission pour l'émission des particules légères (n, p, α) sont déterminés en utilisant les potentiels du model optique.

Pour le calcul des sections efficaces pour les résidus évaporés, le code considère aussi deux autres paramètres :

- Le rapport de densités de niveaux au puits de potentiel (« saddle point ») et à l'état de base, a_f et a_n;
- La hauteur de la barrière de fission (qui dépend du spin total).

L'expression pour la densité des niveaux, $\rho(E,J)$, est :

$$\rho(E,J) = \rho_0(U) \cdot (2J+1) \cdot \exp\left\{2 \cdot \left[a(U-E_{rot}(J))\right]^{\frac{1}{2}}\right\}$$
(4.4)

U=E-P, P=l'énergie d'association ; E_{rot} = l'énergie de rotation.

Le processus de désexcitation est suivi par une procédure Monte Carlo (qui peut avoir, dans le cas du code PACE, jusqu'à 10⁶ événements).

Pour la détermination de la distribution angulaire des résidus, le code calcule pour chaque étape les projections du moment angulaire.

Le code PACE considère aussi qu'il y a une corrélation linéaire entre la multiplicité moyenne des raies γ , M_{γ} , et le moment angulaire maximal des résidus évaporés, l_{max} .

4.2. Justifications des différences

Généralement, les différences proviennent des différences au niveau de la section efficace totale de production du noyau composé (fusion) ou au niveau de la compétition entre la fission et l'évaporation.

Les facteurs les plus importants qui peuvent introduire des différences sont les suivants :

• La section efficace de fusion – contraint la distribution des moments angulaires et normalise les sections efficaces des résidus évaporés.

• La définition de la hauteur **de la barrière de fission**, qui peut introduire une différence de section efficace pour les hautes énergies d'excitation. Le modèle utilisé pour calculer cette barrière est celui de « rotating liquid drop » et dans ce contexte est utilisée habituellement une expression Sierk [Kra79];

• Les **masses** des fragments (dans le même contexte de « rotating liquid drop model »). Habituellement, on utilise pour la goutte la paramétrisation de Myers, avec un facteur de Wigner [Mye77]. L'effet du facteur de Wigner d'éliminer une surestimation considérable de la section efficace de fission. Il est proportionnel à la différence (N-Z) ;

• La distribution des ondes partielles du noyau composé. Pour améliorer le modèle de « sharp cut-off » des populations du moments angulaires, on ajoute un paramètre de diffusivité, Δ , aux coefficients de transmission, T_1 (comme dans l'équation 4.2);

• Les paramètres de densité, a_r et a_n (correspondant au puits de potentiel et à l'état de base). Ils ont une influence sur la compétition entre la fission et l'évaporation des particules. Ils peuvent aussi avoir une influence sur la diffusivité de la surface nucléaire.

Habituellement, les codes considèrent que $a_f/a_n=1$. La prédiction du modèle du gaz de Fermi pour a_n est $a_n = A / 13,5$ (MeV⁻¹), mais la tendance expérimentale est $a_n = A / 8$ (MeV⁻¹) (figure 4.1).



Figure 4.1. La dépendance du paramètre a_n en fonction du noyau

Pour les canaux d'évaporation de faible section efficace, les calculs de modèle statistique dépendent fortement de la densité des niveaux pour les énergies d'excitation très faibles. Donc, pour un calcul plus exact, on aura besoin de considérer un paramètre variable pour la densité des niveaux.

À titre d'exemple, la figure 4.2, montre la dépendance du paramètre de densité des niveaux en fonction de l'énergie d'excitation, pour le noyau ⁸⁶Mo (qui est le noyau composeé de la réaction ${}^{36}_{18}Ar + {}^{50}_{24}Cr$, utilisée pour la production du ⁸⁰Zr, présentée en détail dans le chapitre 7).



<u>Figure 4.2.</u> Variation du paramètre de densité des niveaux (⁸⁶Mo) (obtenue avec le logiciel LISE++)

• « Overbinding » près de la ligne N=Z. Une différence entre les énergies de liaison du modèle en couches et les extrapolations du tableau des masses d'Audi-Wapstra [Audi93] a été vérifiée [Cha96] pour les noyaux avec N \approx Z (figure 4.3)



• L'effet « extra-push ». Présent dans les systèmes très lourds, où les forces intenses Coulomb et centrifuges empêchent la formation du noyau composé. Dans la figure 4.4 on peut observer les différences entre les calculs, avec et sans cet effet, et les mesures expérimentales [Les86]:



4.3 En conclusion

Il y a peu de données expérimentales loin de la vallée de la stabilité. Quand ces dernières existent, la comparaison des simulations avec des expériences présente des différences pouvant parfois atteindre plusieurs ordres de grandeur. Des valeurs expérimentales seraient les bienvenues.

5. Production de faisceaux riches en protons par la méthode ISOL

La production des faisceaux radioactifs riches en protons par la méthode ISOL est faite par spallation de la cible par des protons de hautes énergies (ISOLDE : 1,4 GeV ; TRIUMPH : 500 MeV). Des réactions à plus basses énergies présentent l'avantage d'être plus sélectives quant à la production du faisceau d'intérêt , moins coûteuses en terme de fonctionnement et surtout beaucoup plus favorable quand au rapport entre l'intensité du faisceau d'intérêt et le taux d'activité radioactive engendrée les autres noyaux produits simultanément. Deux types de réactions sont essentiellement utilisés :

- les réactions faisant intervenir la quasi totalité des nucléons des noyaux projectile et cible, suivie de l'évaporation de quelques nucléons ou noyaux légers (fusion évaporation)
- Les réactions faisant intervenir uniquement quelques nucléons des noyaux projectile et cible (transfert, échange de charge...)

La méthode ISOL utilisant la fusion - évaporation a été utilisée extensivement à l'UNILAC de GSI [Kir90], [Kir97] et à Oak-Ridge [ORNL], les réactions type échange de quelques nucléons à Louvain-la-Neuve [LLN].

5.1 Production de faisceaux riches en protons par fusion-évaporation à l'Unilac

La production d'un fragment donné, par fusion - évaporation, nécessite un projectile et une cible bien déterminés (contrairement par exemple à la réaction de fragmentation du projectile). Le choix des couples projectile - cible est très limité. La production du fragment présente un maximum pour une énergie incidente du projectile relativement basse et la plage en énergie autours de ce maximum est relativement étroite. La distribution en angle des fragments dans le référentiel du laboratoire est fortement piquée (de l'ordre de 5 à 10°) dans la direction du faisceau incident. Essentiellement à Unilac, les projectiles utilisés sont des ions lourds. L'avantage est de pouvoir produire des noyaux composés relativement lourds et loin de la stabilité. L'inconvénient sera des parcours faibles, de l'ordre du μ m. À titre indicatif, le parcours de l'³⁶Ar de 4MeV/A dans du ⁵²Cr est de 13 μ m et celui d'un ⁸⁰Zr formé est d'environ 5 μ m. Les dépôts de puissance sont importants par unité de longueur. Un des problèmes est la tenue dans le temps des cibles. Les dernières réactions étudiées à l'Unilac ont été principalement :

- ⁵⁰Cr +⁵⁸Ni et ⁵⁸Ni +⁵⁰Cr pour l'étude des noyaux ¹⁰⁰In, ¹⁰²In, ⁹⁹Cd, ¹⁰¹Sn, ¹⁰⁰Sn,... au voisinage de l'¹⁰⁰Sn [Jan97] ;
- ⁵⁸Ni +^{58,60}Ni pour l'étude des noyaux ¹¹⁴⁻¹¹⁸Ba, [COM00] et leurs descendants [Jan05].

Typiquement, les intensités utilisées sont de l'ordre du μ Ap en ions lourds métalliques : 40nAp de ⁵⁸Ni, [JAN97]) sur des cibles de quelques μ m.

La figure montre l'un des dispositifs utilisés. Il est à remarquer la taille-miniature de cet ensemble ; le volume de la cavité chaude d'arrêt est inférieur au cm³. Le catcheur est en Nb et Ta. L'épaisseur des cibles est typiquement inférieure à $5\mu m$.



<u>Figure 5.1</u>: Ensemble cible - source utilisé à l'UNILAC. Le barillet de cible n'est pas représenté, il est situé devant les réflecteurs et la fenêtre d'entrée.

La philosophie d'Unilac a été de prendre des matériaux non composites, qui résistent bien à la température. Ils n'ont pas cherché à extrapoler à de plus grandes dimensions avec le risque de perdre par diffusion et effusion.

5.2. Production de faisceaux riches en protons par fusion-évaporation à Oak-Ridge

Essentiellement à Oakridge [ORNL], les projectiles utilisés sont des protons, deutons, helium 3 et 4. Les faisceaux radioactifs riches en protons y sont produits par réaction de type fusion-évaporation entre le projectile et les atomes de cibles stables qui sont choisies pour produire le noyau radioactif désiré. Les énergies des p, d et ⁴He sont typiquement de 42, 49 et 85MeV. A titre indicatif, le parcours des protons de 42 MeV dans de 9.2 mm dans du C et de 2.2 mm dans du Ta.Le noyau composé ainsi formé évapore essentiellement 1 proton ou 1 alpha et éventuellement quelques neutrons. Les sections efficaces sont de l'ordre de 1 à 100mb. Les cibles utilisées sont typiquement de l'ordre de 1 à 2 g/cm². Typiquement, les intensités utilisées sont de l'ordre du 5 à 10 μ A. Les taux de productions des noyaux radioactifs dans la cible sont de l'ordre de 10⁻³ à 10⁻⁵ par ion incident. Bien qu'un effort considérable ait été consacré aux cibles et à la chimie, les matériaux des cibles ne peuvent supporter que quelques μ A, à titre d'exemple [Aub05] :

- Le ¹⁷F est créé à partir d'une cible de HfO₂ (voir Al₂O₃) qui supporte 10 µA de deutons incidents. La cible d'oxygène est fournit par de HfO2 de faible densité (3 à 10% de la densité normale) composé de fibres d'environ 15µm de diamètre ; si la densité normale de HfO2 étant de l'ordre de 8.9g/cm3, 2g/cm² de HfO2 correspondent à 225µm, soit de l'ordre de 2 mm pour une densité 10 fois moindre. L'avantage (mais aussi la difficulté) du F est qu'il peut se recombiner facilement avec d'autres éléments pour former 1 (voir plusieurs molécules différentes), ce qui conduit à une baisse de production du faisceau radioactif dont l'intensités des différentes molécules peuvent se disperser sur plusieurs masses.
- Le faisceau de ⁶⁹As et ⁶⁷Ga sont réalisés avec une cible de Germanium liquide qui supporte au maximum un faisceau de proton de 5µA à 42MeV. Une cible « voyageuse » est en cours d'étude (figures 5.2-5.4): des fibres solides (Mo ou SiC), présentant une grande porosité et pouvant être utilisés à plus haute température sert de support au Germanium issu d'un réservoir annexe pouvant être chauffé ; le germanium du réservoir annexe peut être évaporé pour imprégner les fibres au fur et à mesure de son évaporation. Un réservoir refroidit permet la condensation des vapeurs pour éviter une pression de vapeur trop importante dans la source.
- Le développement d'un réservoir incliné permet d'augmenter la surface radiative des cibles liquides et ainsi, cette dernière peut supporter plus de puissance faisceau.
- Un réservoir refroidit permet la condensation des vapeurs de cible pour éviter une pression de vapeur trop importante dans la source. Ceci permet d'utiliser la cible à une température plus élevée que ne le permet la pression de vapeur sans réservoir.

Les noyaux radioactifs les plus déficients en neutrons ainsi produits [ORNL] correspondent pour les plus déficients en neutrons à ceux de la ligne N=Z jusqu'au

germanium, puis un peu moins exotique A/Z =2.1 jusqu'au Rubidium. Le fait de disposer de projectiles ayant seulement quelques nucléons ne permet pas de s'éloigner beaucoup de la stabilité à ces énergies incidentes [ALT96, ALT96-2, ALT96-3, ALT99, ALT99-2, BIL03]



Figure 5.2: cible solide d'Oak Ridge, figure issue de [ORNL]



RECIRCULATING HORIZONTAL LIQUID METAL TARGET SYSTEM

Figure 5.3: cible liquide recyclée d'Oak Ridge, figure issue de [ORNL]

VERY HIGH POROSITY LIQUID METAL TARGET SYSTEM



Figure 5.4: cible poreuse d'Oakridge ; figure issue de [ORNL]

La philosophie d'Oak-Ridge est de rechercher une grande porosité et leur nouvelle technologie va dans le sens de reconstituer la cible directement en ligne au cours de son utilisation. Un équilibre difficile est à trouver entre la tension de vapeur de la cible et la diffusion des noyaux radioactifs.

5.3. Production de faisceaux riches en protons par échange de nucléons à Louvain-la-Neuve

Essentiellement à Louvain-la-Neuve, les projectiles utilisés sont des protons de 30 MeV. Les noyaux riches en protons sont produits par réaction de type (p,n),(p,2n), (p,a) sur des noyaux stables qui sont choisies afin de produire le noyau radioactif désiré. Les noyaux riches en protons ainsi produits sont 1 à 2 neutrons de moins que l'isotope stable correspondant. Les faisceaux radioactifs riches en protons disponibles sont ⁷Be, ¹⁰C, ¹¹C, ¹³N, ¹⁵O, ¹⁸F, ¹⁸Ne, ¹⁹Ne, ³⁵Ar. Les cibles utilisées sont principalement :

- Des matrices de C, percées de trous et imprégnées de LiF ou de NaCl, de la poudre de LiF ou de NaCl chauffé par la puissance faisceau imprègne la matrice de C [Gae99].
- BN parfois doppé en B₂O₃ pour donner de l'oxygène pour former le ¹¹C sous forme de molécules CO [Gae97].
- Des cibles liquides $H_2^{18}O$, [Loi96].

Certains faisceaux comme le F sont obtenus en mode batch (après séparation chimique hors ligne).

Les cibles utilisées sont épaisses, comparées à UNILAC ou Oak-Ridge car le processus de production est moins sélectif en énergie incidente. Des intensités jusqu'à 300µA

peuvent être utilisées pour interagir avec la cible, dépendant de la nature et de la tenue au faisceau de la cible. L'épaisseur des cibles est limitée pour que le faisceau primaire ne soit pas arrêté dans les cibles. À titre indicatif, le parcours des protons de 30MeV est de 5mm dans du C et de 1.25mm dans du Ta.



<u>Figure 5.5</u>: matrice de C imprégné de LiF utilisé à Louvain-la-Neuve ses dimensions sont : diamètre =50 mm, épaisseur =17 mm. 48 trous de 5 mm de diametre. Figure issue de [GAE99].

5.4. En conclusion :

De ces quelques exemples sur la méthode ISOL, on constate que :

- Les intensités des faisceaux incidents utilisés en fusion -évaporation sont faibles (μA) par rapport à celles dont on devrait disposer à SPIRAL-II
- Les cibles sont spécifiques à chaque cas et nécessitent une R&D en soi.
- Très souvent les éléments sont extraits sous forme moléculaire (avec un gaz-support ou évaporation d'un élément composant la cible)

6. Réalisation d'un code pour estimer l'efficacité de capture dans le stoppeur des produits de fusion évaporation

6.1. Les géométries possibles

Dans cette partie, nous présentons uniquement les principaux avantages et inconvénients de plusieurs géométries possibles. Quelques applications numériques de dépôts de puissance seront vues aux chapitres 7-9.

Pour gérer les puissances importantes éventuelles du faisceau peut avoir et les hautes températures dont on a besoin pour une bonne diffusion des produits hors de la cible, les possibilités suivantes ont été analysées:

- Séparation de la cible de production et du stoppeur, pour pouvoir mettre la cible à l'extérieur de la cavité chaude. Ceci nécessite d'utiliser une cible plus mince ;
- Utilisation d'un stoppeur percé pour minimiser le dépôt de puissance du faisceau incident dans le stoppeur, en laissant passer par le trou la plupart du faisceau : on profite que la distribution angulaire est plus large pour les résidus que pour le faisceau pour laisser passer par le trou la plupart du faisceau sans trop perdre sur les résidus de production.

Mais cette solution n'est pas utilisable pour tous les cas, particulièrement parce que les énergies des résidus sont faibles ; ils peuvent êtres arrêtés dans la cible ou dans la fenêtre d'entrée de la cavité.

En utilisant les principes ci-dessus, on peut choisir, en fonction de la réaction analysée, une des configurations suivantes :

a) Cible extérieure. Ce montage présente l'avantage de supporter la puissance la plus



la cible de production.

La cible étant à l'extérieur, la géométrie présente l'avantage de permettre de mieux dissiper la puissance déposée : différentes solutions sont possibles : cible tournante, plusieurs cibles (montées sur un barillet) qui seront changées lorsque la cible perd ses caractéristiques ou un système de refroidissement.

importante. Elle est limitée principalement par

Le principal désavantage demeurant est la présence de la fenêtre d'entrée entre la cible et le stoppeur : elle doit être mince, pour ne pas arrêter les produits de réaction et ne pas introduire un straggling angulaire important, mais aussi suffisamment solide pour ne pas fondre à cause de la puissance déposée par le

faisceau.

Cependant, même si les résidus ne sont pas arrêtés dans cette fenêtre, ils pourront éventuellement rediffuser par cette fenêtre hors de la cavité qui est à haute température pour minimiser les temps de collage des ions, ce qui donnera une perte du faisceau radioactif difficile à estimer. Cette fenêtre doit donc être de surface la plus petite possible par rapport à la surface de la cavité chaude et la surface du trou d'extraction. La dimension du trou du stoppeur sera choisie en fonction du pourcentage du faisceau dont le stoppeur peut supporter sans fondre ; donc, si on peut utiliser un matériel réfractaire (Ta, W,....) pour le stoppeur (il doit avoir un bon coefficient de diffusion des résidus), on pourra utiliser même un stoppeur non-percé.

b) **Cible intérieure.** Quand l'énergie du résidu est très faible, on n'a pas d'autres choix que de mettre la cible à l'intérieur de la cavité chaude. Cette géométrie présente l'avantage d'avoir une cavité mieux fermée (pas de fenêtre mince éventuellement poreuse), mais son grand inconvénient est la limitation en température résultant de la température de fusion de la cible, d'autant plus qu'en fusion évaporation, la nature de la cible possible est très limitée ; elle est déterminée par le noyau à produire. Elle n'a donc pas habituellement les meilleures proprietés ni de thermiques ni de diffusion pour les residus . Même, en l'absence de chauffage thermique, la cible interne ne pourra pas supporter la puissance deposée par le faisceau d'intensité maximale disponible en ions lourds à SPIRAL 2. Une cible interne nécessitera de limiter plus fortement l'intensité du faisceau incident car il ne sera ni facile de changer la cible (si elle présente des signes d'usures) , ni de dissiper la puissance en faisant tourner la cible. A priori, cette géométrie ne devrait donc pas permettre d'utiliser autant de puissance faisceau que dans le cas d'une cible externe.

Un autre aspect négatif est la limitation de la distance entre la cible de production et le stoppeur, si l'on veut conserver une dimension raisonnable pour la cavité qui doit être à température élevée. À cause de ça, en fonction de la largeur de la distribution angulaire des résidus et de l'épaisseur des parois et de la cible, c'est possible qu'on ne puisse pas séparer les résidus de faisceau sur le stoppeur.

Dans les quelques cas la cible où la cible aura des propriétés adéquates pour la diffusion des résidus et où elle pourra supporter suffisamment de puissance faisceau, la variante présentée dans la figure 6.2.b) pourra être utilisée : les résidus seront arrêtés dans la cible et seulement une partie de la puissance faisceau y sera déposée, le faisceau incident étant arrêté dans un arrêt faisceau refroidit situé hors de la cavité.



6.2. La sélection des paramètres pour la production d'un faisceau radioactif

Pour produire un noyau précis, avant de choisir la géométrie, on doit analyser les réactions possibles, puis sélectionner les paramètres pour les éléments de l'ensemble. Dans ce rapport, l'analyse du système n'est faite que jusqu'à la sortie de la cavité chaude sans prendre en compte ni l'aspect effusion précisément, ni l'analyse générale, jusqu'à la sortie de la source d'ions. Nous avons essentiellement étudié les répercutions de la géométrie utilisée sur la puissance potentielle du faisceau et sur le nombre de résidus de production arrêtés.

En effet, il s'agit de la sélection des paramètres du faisceau, de la cible, du stoppeur et de la cavité chaude.

• Pour le faisceau, on doit choisir son énergie incidente, son intensité maximale supportable par l'ensemble et sa largeur.

L'énergie incidente est choisie de sorte que son domaine d'énergie dans la cible, correspond au maximum de la fonction d'excitation du résidu d'intérêt. Cette fonction d'excitation est obtenue avec un programme de simulation statistique pour la fusionévaporation: PACE [Gav80], CASCADE [But91], HIVAP [Reis81], LILITA [Gom84] ou BUSCO [Gom91]. Les noyaux à étudier étant relativement loin de la stabilité, leur section efficace de production sont relativement faible et peu de données expérimentales sont disponibles, il y a des différences entre les simulations et l'expérience, ainsi que d'un programme de simulation à l'autre (voir paragraphe 4). Les données expérimentales issues de la littérature indiquent que les simulations ont une bonne précision pour la forme de la fonction d'excitation (et donc pour la position en énergie de la section efficace maximale), mais que la valeur absolue de la section efficace de production du résidu présentent des variations très importantes.

Pour les réactions de fusion – évaporation, induites par des ions lourds, les énergies nécessaires sont de l'ordre de 3 à 6MeV/A.

L'intensité maximale du faisceau sera essentiellement déterminée pour des raisons thermiques et sera limitée par rapport aux intensités disponibles. La limite est principalement imposée par la cible de production, mais on doit aussi considérer les pertes de puissance dans la fenêtre d'entrée dans la cavité chaude et dans le stoppeur. Si le système supporte bien la température, on peut aller éventuellement jusqu'à l'intensité maximale de la machine, laquelle est estimée pour SPIRAL2 à 1mAp pour les noyaux jusqu'à l'Ar et 50µAp pour les noyaux jusqu'au Ni. Pour augmenter l'intensité supportée par la cible, on peut defocaliser le faisceau ou utiliser une cible tournante ; pour augmenter l'intensité supportée par la fenêtre d'entrée, on peut seulement diminuer son épaisseur (jusqu'à la limite imposée par la résistance nécessaire) ; pour augmenter l'intensité supportée par le stoppeur on peut varier la dimension du trou (pour laisser passer un pourcentage plus important du faisceau), dans le cas ou on a une distribution angulaire assez large pour le résidu.

Pour choisir *la largeur du faisceau*, on doit faire un compromis entre dissiper au mieux la puissance déposée par le faisceau dans la cible (et donc augmenter la taille du faisceau) et minimiser les pertes des résidus de production par le trou du stoppeur (ce qui demande la diminution de la taille du faisceau).

• Pour la cible, on doit définir le matériel (l'élément, la pureté) et les dimensions (diamètre et épaisseur).

L'élément est fixé par la réaction choisie ; comme on veut produire des noyaux riches en protons, les réactions sur des noyaux correspondant à l'isotope le plus déficient en neutrons donnera la meilleure section efficace.

Pour certains noyaux, il est difficile de faire des cibles minces d'une grande *pureté*, on pourra utiliser éventuellement des cibles naturelles. Ces dernières donneront en conséquence une production pour le résidu plus faible (nombre d'atomes de l'isotope considéré moins grand pour une cible d'épaisseur donnée). Dans le cas où la séparation isotopique est possible, mais où les cibles ne sont pas résistantes pour l'épaisseur souhaitée, on pourra utiliser des cibles avec un autre matériel comme *support* (dans le cas de l'utilisation d'un stoppeur de faisceau, le support sera placé de préférence avant la cible pour laisser s'échapper les résidus vers le stoppeur.

Pour choisir *le diamètre de la cible*, on tient compte de la largeur choisie pour le faisceau, mais on sera limité par les possibilités de réaliser la cible de l'épaisseur choisie en grandes dimensions.

L'épaisseur de la cible est choisie par rapport à la fonction d'excitation du résidu. Un bon choix au niveau taux de production est de choisir l'épaisseur pour laquelle on a dans la cible le domaine d'énergie du faisceau correspondant a deux fois la largeur à mi-hauteur de la fonction d'excitation. Dans le cas où on serait limité par l'énergie faible des résidus et si on ne veut pas arrêter les résidus dans la cible, on sera contraint à utiliser une cible plus mince, qui couvrira par exemple seulement une fois la largeur à mi-hauteur de la fonction d'excitation.

Comme ordre de grandeur, la cible a l'épaisseur de quelques microns.

• Pour le stoppeur, sa nature, ses dimensions mais aussi sa position par rapport à la cible et à la fenêtre d'entrée (si c'est le cas) sont des paramètres importants à définir.

Le matériel du stoppeur est choisi de façon à optimiser la diffusion et l'effusion du résidu, mais l'aspect thermique est aussi très important puisqu'il sera exposé à de hautes températures. Pour avoir une bonne diffusion hors du stoppeur, le matériel doit avoir un bon coefficient de diffusion pour le résidu souhaité. Pour une bonne effusion hors de la cavité, le résidu doit avoir des temps courts de collage (à la température de fonctionnement) sur la surface des matériaux à l'intérieur de la cavité, parce que, en fonction de la géométrie et des dimensions de la cavité, une particule effectue plusieurs centaines voir milliers de collisions avec les parois avant de sortir de la cavité.

Les dimensions du stoppeur sont choisies en fonction de la distribution estimée pour les résidus (avec le code qui sera présenté dans le paragraphe 6.3). Un bon compromis sera de dimensionner le trou dans le stoppeur de façon à laisser passer 95% du faisceau. Le diamètre extérieur du stoppeur est limité par les dimensions de la cavité chaude (laquelle est aussi limitée par le four). Comme ordre du grandeur, le four qui est en cours de développement pour SPIRAL2 a les dimensions 8cm de diamètre pour 14cm de longueur. Ce qui est beaucoup plus important que les dimensions des cavités chaudes utilisées à GSI qui sont de l'ordre de 0.75cm de diamètre sur 0.25cm de longueur. Du point de vue de l'effusion, la cavité chaude doit avoir un petit volume, (ou plutôt avoir un trou d'extraction de la cavité et ne pas présenter de recoins où les particules peuvent rester piéger) mais la séparation des résidus du faisceau nécessite d'augmenter le diamètre de la cavité

L'épaisseur du stoppeur est choisie en fonction de l'énergie des résidus.

La position du stoppeur est choisie en utilisant aussi le code du paragraphe 6.3. Ce choix doit être fait de façon à perdre le minimum des résidus par le trou central du stoppeur et à l'extérieur de celui-ci en raison de son rayon limité.

6.3. Le principe du code

Le code utilise la méthode de simulation Monte-Carlo. Elle consiste à générer une statistique d'événements, en analysant le comportement des particules une par une dans le système simulé.



Figure 0.3. E organigramme du code pour un evenement

La procédure de calcul pour un événement est présentée dans la figure 1.

Les données d'entrée utilisées sont les propriétés physiques et géométriques du système analysé, en particulier les résultats d'un programme de simulation statistique pour la fusion-évaporation : PACE [GAV80], CASCADE [BUT91], HIVAP [REIS81], LILITA [GOM84] ou BUSCO [GOM91]. Il s'agit de :

• *la fonction d'excitation du résidu d'intérêt* (pour tout le domaine d'énergie du faisceau dans la cible de production)

• des *distributions en énergie et en angles* des résidus au moment de l'émission (la liste exhaustive des paramètres est présentée dans l'annexe 1).

<u>La sélection de la particule du faisceau</u>

On considère un faisceau, spécifié par le numéro atomique et sa masse Z, A, ayant un profil gaussien de largeurs à mi-hauteur sur les axes x et y.



Figure 6.4. Le référentiel de calcul par rapport au faisceau gaussien

On tire au hasard la position de la particule du faisceau en choisissant ses coordonnées x et y, lesquels respectent les distributions gaussiennes données par leur largeur à mi-hauteur FWHM.

Dans le programme, il y a deux boucles séparées, une pour l'analyse de la propagation du faisceau où l'on considère qu'aucune particule n'interagit, et une pour l'analyse de la propagation des résidus où l'on considère que toutes les particules vont interagir dans la cible pour produire le résidu d'intérêt. De cette façon, on a tout de suite une plus grande statistique pour les particules du faisceau. Cela évite la méthode standard qui consiste à découper la cible en petites tranches et d'estimer à chaque pas la probabilité d'interaction qui demande beaucoup de temps et conduit à des faibles statistiques pour les résidus avec des sections efficaces faibles. Ceci nous donne les distributions en énergies et angles des particules du faisceau et des résidus. Les distributions des résidus (ayant A nucléons et Z protons) sont ensuite normalisées par **le taux de production du résidu** $\tau(A,Z)$ selon la formule suivante:

$$\tau(A,Z) \approx \Phi_0 \cdot N \cdot \sigma(A,Z) \cdot dz \tag{6.1}$$

où : Φ_0 = le nombre de projectiles incidents par seconde ;

N = le nombre d'atomes cible par cm³;

 $\sigma(A,Z) = la$ section efficace de production, en cm², du noyau possédant A nucléons et Z protons (à la position z dans la cible);

dz = l'épaisseur élémentaire considérée pour la cible, en cm.

Pour réduire le temps d'exécution du code, on construit au début du programme des tableaux avec la variation de l'énergie des particules dans les matériaux, pour tout le domaine des énergies possibles et pour les épaisseurs données pour les matériaux. La procédure de calcul des pertes d'énergie est celle de Ziegler [Zieg85].

Pour chaque matériel, on estime quel est le domaine des énergies initiales pour chaque type de particule qui le traverse, quelle est la distance maximale à traverser par la particule. Puis, on construit un tableau *en_mat(i)*, $i = \overline{1,100}$, de la manière suivante :

- On calcule l'énergie maximale, E_{max1}, dont la particule peut avoir à l'entrée du matériel (au point (1) dans la figure 6.5) et l'on fait *en_mat[0]*= E_{max1};
- On calcule le parcours maximal, Lmax, possible pour le noyau dans le matériel (qui correspond à la plus grande déviation) : le trajet (1)→(2) dans la figure 6.5 ;
- On calcule l'énergie minimale, E_{min2}, dont la particule peut avoir a la sortie du matériel. Celle-ci correspond à une particule qui entre dans le matériel



du noyau dans le matériel

avec l'énergie minimale de la distribution énergétique valable au point (1), E_{min1} , et qui traverse le matériel avec la plus grande déviation possible (donc une distance **Lmax**); on fait *en_mat[100]*= E_{min2} ;

On calcule la distance Ldiff, qui correspond a la perte d'énergie de E_{max1} jusqu'à E_{min1} (figure 6.6) ; Lmax+Ldiff sera la distance traitée par le programme ;



Figure 6.6 : Sélection de la distance traitée

- On calcule les éléments du tableau avec la relation $en_mat[i+1] = en_mat[i] - dE \cdot dz$, où $dz = \frac{Lmax + Ldiff}{100}$ et dE est le pouvoir d'arrêt correspondant à l'énergie $en_mat[i]$.

<u>La sélection du lieu d'interaction</u>

À partir de la fonction d'excitation du résidu considéré, on construit la variation de la section efficace de production du résidu en fonction de la position dans la cible. Cette dépendance sera utilisée dans la formule (6.1), mais aussi comme fonction de probabilité pour le tirage au hasard du lieu d'interaction dans la cible.

<u>Le calcul du straggling angulaire</u>

Le straggling est caractérisé par les angles de déviation θ et ϕ . L'angle ϕ est tiré au hasard uniformément dans l'intervalle [0,2 π]. L'angle θ (entre la direction de propagation et l'axe Oz) est tiré au hasard selon une distribution gaussienne dont la largeur à mi-hauteur FWHM= $\theta_{1/2}$ provient des formules de [ANNE88] :

$$\theta_{1/2} = \frac{\tilde{\theta}_{1/2} \cdot Z_{frag} \cdot Z_{t \operatorname{arg}} \cdot \left(Z_{frag}^{2/3} + Z_{t \operatorname{arg}}^{2/3}\right)}{16,26 \cdot E}$$
(6.2)

où : $\tilde{\theta}_{1/2} = 0.92 \cdot \tau^{0.56}$ (avec une déviation standard de ±9%) où $\tilde{\theta}_{1/2} = 1.00 \cdot \tau^{0.55}$, pour $\tau > 10^3$ (avec une déviation standard de ±7,5%) $\tau = \frac{41,5 \cdot 10^{3} \cdot e}{A_{t \, \text{arg}} \cdot \left(Z_{frag}^{2/3} + Z_{t \, \text{arg}}^{2/3}\right)}$

E = l'énergie de la particule à l'entrée de la région considérée (en MeV) ;e = l'épaisseur traversée de la cible (en mg/cm²).

<u>La sélection de l'angle d'émission et de l'énergie du résidu</u>

Ensuite, l'angle d'émission du résidu et son énergie sont tirés au hasard, en accord avec les distributions données au début (en angle et en énergie). Le **straggling du résidu jusqu'à la sortie de la cible** est calculé avec la même procédure que pour le faisceau.

Pour le calcul des coordonnées x et y du résidu à la sortie de la cible, on doit calculer l'angle résultant de propagation de la particule (qui prend en compte le straggling du faisceau avant l'interaction, l'angle d'émission du résidu et le straggling du résidu jusqu'au stoppeur).

Pour faire cela, on doit faire plusieurs changements de référentiel. Le straggling de la particule du faisceau est caractérisé par les angles θ_{s1} et φ_{s1} par rapport aux axes de propagation de la particule à l'entrée de la cible. L'émission du résidu est caractérisée par les angles θ_{em} et φ_{em} , par rapport aux axes de propagation, que la particule a au lieu de l'interaction. Le straggling du résidu dans la cible est caractérisé par les angles θ_{s2} et φ_{s2} par rapport à la direction d'émission.



Figure 6.7: Le changement de référentiel

aussi une translation.

La matrice de rotation autour de Oy' avec $-\theta$ est :

$$M_{-\theta} = \begin{pmatrix} \cos\theta & 0 & \sin\theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin\theta & 0 & \cos\theta \end{pmatrix}$$
(6.3)

La matrice de rotation autour de Oz avec $-\varphi$ est :

$$M_{-\varphi} = \begin{pmatrix} \cos\varphi & -\sin\varphi & 0\\ \sin\varphi & \cos\varphi & 0\\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$
(6.4)

On veut obtenir les résultats dans le référentiel du laboratoire présenté dans la figure 6.4. La transformation de référentiel sphérique est divisée en trois parties : une rotation avec l'angle φ autour de l'axe Oz, une rotation avec l'angle θ autour de l'axe Oy et une translation avec (dx, dy, dz)entre les deux origines.

Pour revenir dans le référentiel (xyz) du système (x'y'z'), on doit faire premièrement une rotation autour de l'axe Oy' avec l'angle $-\theta$, suivit d'une rotation autour de l'axe Oz' avec l'angle $-\phi$ (figure 6.7). Si c'est le cas, on ajoute Donc, la matrice de transformation $(x'y'z') \rightarrow (xyz)$ est :

$$M_{-\varphi-\theta} = M_{-\varphi} \cdot M_{-\theta} = \begin{pmatrix} \cos\varphi \cdot \cos\theta & -\sin\varphi & \cos\varphi \cdot \sin\theta \\ \sin\varphi \cdot \cos\theta & \cos\varphi & \sin\varphi \cdot \sin\theta \\ -\sin\theta & 0 & \cos\theta \end{pmatrix}$$
(6.5)

Dans cette approche, pour la particule initiale, on change le référentiel plusieurs fois :

- quand on considère le straggling avant l'interaction (caractérisé des angles θ_{s1} et φ_{s1});
- quand on considère l'émission (caractérisé des angles θ_{em} et ϕ_{em});
- quand on considère le straggling après l'interaction (caractérisé des angles θ_{s2} et φ_{s2});

Pour revenir au référentiel originel, on doit employer la transformation avec la matrice :

$$M_{Cible} = M_{-qs1-\theta s1} \cdot M_{-qem-\theta em} \cdot M_{-qs2-\theta s2}$$
(6.6)

Pour faire cela, le code contient une procédure de construction de la matrice $M_{\phi\theta}$ quand on connaît les angles ϕ et θ , et une procédure pour le calcul du produit des matrices.

I <u>Le calcul de la perte d'énergie du résidu dans la cible</u>

Pour calculer les coordonnées de la particule à la sortie de la cible, on considère la relation :

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z_{fin} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ z' \end{pmatrix}$$
(6.7)

Ou z_{fin} est la coordonnée de la fin de la cible. Dans le dernier référentiel (celui du deuxième straggling), on a x'=y'=0.

On peut donc exprimer x et y en fonction du z_{fin} :

$$\begin{cases} x = \frac{m_{13}}{m_{33}} \cdot z_{fin} \\ y = \frac{m_{23}}{m_{33}} \cdot z_{fin} \end{cases}$$
(6.8)

La distance parcourue par le résidu dans la cible est :

$$d = \sqrt{\left(x - x_0\right)^2 + \left(y - y_0\right)^2 + \left(z_{fin} - z_0\right)^2}$$
(6.9)

où (x_0, y_0, z_0) sont les coordonnées de l'interaction.

Pour calculer la perte d'énergie, on lit dans un tableau construit au début du programme quel est la perte d'énergie du résidu quand il a traversé la distance d dans la cible, pour l'énergie initiale générée antérieurement.

Le code donne comme résultat la distribution en énergie des résidus à la sortie de la cible.

La traversée de la fenêtre

Le programme peut prendre en compte aussi les effets introduits par la fenêtre d'entrée de la cavité chaude : la perte d'énergie et le straggling angulaire. La nature et l'épaisseur de cette fenêtre sont les 2paramètres de cette fenêtre, le diamètre de la fenêtre est imposé par le diamètre du stoppeur (quand le stoppeur est tout près de la fenêtre, ils ont le même diamètre ;

quand il est plus éloigné, le diamètre de la fenêtre sera plus petit, en fonction de la divergence des particules entre la fenêtre et le stoppeur).

Pour calculer la direction de propagation de la particule dans et après la fenêtre, on ajoute encore une transformation de référentiel, caractérisé par les angles θ_{s3} et ϕ_{s3} , donc par la matrice $M_{\omega 3\theta 3}$.

Les coordonnées de la particule à l'entrée de la fenêtre, $(x_1, y_1, z_{fenetre})$ sont calculées avec la formule (6.8), où z_{fin} est la coordonnée de la fenêtre. L'épaisseur de la cible est ici négligée car elle est de l'ordre du micromètre, comparé à la distance cible-stoppeur qui est de l'ordre du centimètre.

L'étape suivante consiste à calculer la nouvelle matrice de transformation générale, $M_{\mbox{\tiny fenetre}}$:

$$M_{Fenetre} = M_{-\varphi s1-\theta s1} \cdot M_{-\varphi em-\theta em} \cdot M_{-\varphi s2-\theta s2} \cdot M_{-\varphi s3-\theta s3}$$
(6.10)

Les formules (6.3.8-9) (avec $x_1y_1z_1$ au lieu du $x_0y_0z_0$) permettent de calculer le parcours dans la fenêtre, puis la perte d'énergie de la particule.

Le code donne la distribution en énergie des résidus à la sortie de la fenêtre.

Construction de la distribution des particules sur le stoppeur

La formule (6.8) permet de calculer, au niveau du stoppeur, les coordonnées de la particule (x_2, y_2, z_{stop}), où $z_{fin}=z_{stop}$ est la distance entre la fenêtre et le stoppeur.

On enregistre comme résultat le rayon sur le stoppeur, auquel la particule arrive, $r = \sqrt{\left(x_2^2 + y_2^2\right)}$.

Si la symétrie n'est pas circulaire (c'est le cas d'un faisceau dont les largeurs sont différentes sur x et sur y), on enregistre les deux coordonnées polaires dans le plan du stoppeur, r et φ .

On construit un tableau avec les nombres de particules enregistrées dans des anneaux d'épaisseur dr = 0,01cm. Le rayon du stoppeur est un paramètre réglable. En comparant les distributions du faisceau et du résidu sur le stoppeur, on optimise les paramètres géométriques du système pour mieux séparer le résidu du faisceau.

On choisit le pourcentage maximum du faisceau que l'on veut arrêter dans le stoppeur, puis on analyse le pourcentage des résidus perdu ainsi par le trou pour laisser passer le faisceau. Les pertes sont dues à ce trou central, mais aussi aux résidus qui sont émis à des angles plus grand que l'angle solide du stoppeur (queue de la distribution dépassant le rayon du stoppeur).

6.4. L'analyse de la possibilité d'utiliser les distributions énergétiques et angulaires d'un résidu équivalent, avec une meilleure section efficace

Pour les résidus avec une faible section efficace de production, la statistique obtenue avec les codes de calcul est insuffisante pour avoir la forme correcte des distributions en angles et angulaires. On analyse, dans ce paragraphe, la possibilité d'extrapoler les distributions obtenues pour d'autres résidus, avec une statistique plus importante, pour le résidu d'intérêt.

Les résidus équivalents du point de vue cinématique sont ceux qui proviennent de l'évaporation du même nombre de nucléons.

L'avantage d'une distribution avec une statistique plus importante n'est pas seulement la réduction des erreurs sur la forme de la distribution, mais aussi la possibilité d'utiliser les distributions en fonction de l'angle d'émission calculées par le code PACE (les résultats présentés ici sont intégrés pour tous les angles).

On a fait la comparaison des distributions en énergies et angulaires des résidus obtenus par l'évaporation de 2 nucléons pour les réactions :

- a) ${}^{58}\text{Ni} + {}^{58}\text{Ni}$ (utilisée pour la production du ${}^{114}\text{Ba}$);
- b) 36 Ar + 58 Ni (utilisée pour la production du 92 Pd) ;
- c) 40 Ca + 54 Fe (utilisée pour la production du 92 Pd).
- a) On a représenté les distributions différentielles en énergies et en angles pour trois résidus (¹¹⁴Ba voie «2n»; ¹¹⁴Cs voie «pn»; ¹¹⁴Xe voie «2p»), et ceux pour trois énergies du faisceau incident.

Les distributions en énergies sont présentées dans les figures 6.8-6.11 et les distributions angulaires dans les figures 6.12-6.13 (dans la figure 6.13, le nombre de particules est intégré sur l'angle solide).





b) On a représenté les distributions en énergies et en angles pour trois résidus (92 Pd – voie «2n» ; 92 Rh – voie «pn»; 92 Ru – voie «2p») dans les figures 6.14-6.15 pour l'énergie du faisceau au milieu de la cible (117MeV).



c) On a représenté les distributions énergétiques et angulaires pour trois résidus (⁹²Pd – voie «2n» ; ⁹²Rh – voie «pn»; ⁹²Ru – voie «2p») dans les figures 6.16-6.17 pour l'énergie du faisceau au milieu de la cible (125MeV).



On peut observer que la position du maximum des distributions en énergies est la même pour les trois résidus ; la largeur de la distribution dépend de la statistique. Aussi, la distribution est plus pointue pour l'évaporation des protons que pour l'évaporation des neutrons, à cause de la barrière coulombienne.

On peut donc utiliser la distribution en énergie d'un résidu équivalent, avec la largeur corrigée pour la statistique du résidu analysé (et éventuellement corrigé de l'effet de la barrière pour les protons).

Pour les distributions angulaires, la similitude est visible dans la représentation du nombre des résidus intégré sur l'angle solide (figure 6.13).

Un problème, particulièrement pour les résidus ayant des faibles angles de recul, est dû à la faible résolution angulaire du code PACE, qui ne donne pas assez de points pour extraire très bien l'allure de la distribution, notamment aux extrémités de la distribution.

On peut donc utiliser la distribution angulaire d'un résidu équivalent, corrigée pour la différence de statistique.

7. La production du ⁸⁰Zr

Ce chapitre détaille les étapes décrites dans le paragraphe 6.2 pour le cas de la production du ⁸⁰Zr.

LINAG devant fournir des intensités plus importantes pour des éléments gazeux que pour des éléments métalliques, la réaction ${}^{36}_{18}Ar + {}^{50}_{24}Cr \rightarrow \alpha 2n + {}^{80}_{40}Zr$ semble à priori un choix évident. Nous allons donc étudier ce cas en regardant successivement :

- Production à partir de la réaction ${}^{36}_{18}Ar + {}^{50}_{24}Cr \rightarrow \alpha 2n + {}^{80}_{40}Zr$ La comparaison au niveau du nombre de ${}^{80}Zr$ arrêtes dans la cavité selon que la ٠ cible est interne ou externe
- Le taux de production des noyaux arrêtés en fonction de la puissance incidente supportable par la cible externe et interne
- La possibilité de réaliser une cible de ⁵⁰Cr
- La diffusion hors de la cible et du stoppeur
- L'effusion sous forme atomique du ⁸⁰Zr
- L'effusion sous forme moléculaire du ⁸⁰Zr

Ensuite nous allons considérer la possibilité de production par les autres réactions possibles, en analysant les différences entre elles.

7.1. Production du ⁸⁰Zr à partir de la réaction ${}^{36}_{18}Ar + {}^{50}_{24}Cr \rightarrow \alpha 2n + {}^{80}_{40}Zr$

La fonction d'excitation, déterminée avec le code PACE4 (inclus dans LISE++), est présentée dans la figure 7.1



L'énergie du faisceau incident sur la cible est déterminée à partir de cette fonction d'excitation et de l'épaisseur de la cible.

Si on veut utiliser, pour produire le noyau d'intérêt dans la cible, seulement les énergies correspondant à une fois la largeur à mi-hauteur de la fonction d'excitation, le domaine en énergie correspondant dans la cible est de 126 à 148MeV. Ce qui correspond à une énergie initiale du faisceau d'argon de 148MeV et une épaisseur de la cible de chrome de 2,72 μ m (2 mg/cm²).

Un domaine correspondant à deux fois la largeur à mi-hauteur correspond au domaine d'énergies est de 115 à 165 MeV, soit une énergie incidente de 165 MeV et à

une épaisseur de la cible de $5,4\mu m (3,9 \text{ mg/cm}^2)$.



Le code PACE4 fournit aussi la distribution angulaire (figure 7.2) et la distribution énergétique (figure 7.3) des résidus.

La probabilité d'émission dp/d θ d ϕ est maximale à θ =0 (direction du faisceau incident). La probabilité d'émission dp/d θ , correspondant à la probabilité dp/d θ d ϕ intégrée de 0 à 2π sur ϕ autours de la direction du faisceau incident est présentée (figure 7.2a et 7.2b) en fonction de l'angle θ . Elle présente un maximum à un angle différent de zéro.

On a représenté trois courbes, lesquelles correspondent à différentes énergies du faisceau, donc à différentes positions de production du résidu dans la cible. Si on normalise au nombre des particules, on peut observer que le domaine de la distribution angulaire reste le

même, mais pour une énergie plus faible du faisceau, une partie plus grande des résidus sont émises à des angles plus petits.



On observe que l'énergie des résidus augmente légèrement pour des énergies plus faibles du faisceau.

Si on était capable de faire une cible pure de ⁵⁰Cr qui supporte l'intensité de 1mAe d'³⁶Ar et dont l'épaisseur correspond à deux fois la largeur à mi-hauteur de la fonction d'excitation, le taux de production potentiel serait de 2,0•10⁷pps. Ce chiffre, tel quel n'est pas réaliste puisqu'il faut prendre en compte le dépôt de puissance dans la cible pour déterminer l'intensité du faisceau incident pouvant être obtenue.

7.2. Comparaison au niveau du nombre de ⁸⁰Zr arrêtés dans la cavité selon que la cible est interne ou externe

À partir de la distribution énergétique des résidus, on reconsidère l'épaisseur de la cible imposée par le faisceau. La figure 7.4 montre les parcours des résidus dans une cible de ⁵⁰Cr de 5,4µm, en fonction du lieu de production.



Figure 7.4. Le parcours des résidus dans la cible de ⁵⁰Cr

Les lignes continues représentent les parcours des résidus émis avec l'énergie minimale de la distribution et les lignes pointillées représentent les parcours des résidus émis avec l'énergie maximale. Les couleurs correspondent à ceux des figures 7.3. La position « A » se

trouve à un tiers de la cible et correspond à une énergie du faisceau de 150MeV. « B » se trouve au milieu (énergie faisceau : 141MeV) et « C » à deux tiers (énergie faisceau : 133MeV).

Selon qu'on choisira de mettre une cible externe ou interne à la cavité chaude, le taux de ⁸⁰Zr ne sera pas le même :

- selon les pertes dans la cible et la fenêtre d'entrée dans le cas d'une cible externe
- selon la limitation en température dans le cas d'une cible interne à la cavité chaude

Si on choisit une cible correspondant à 2 fois la largeur à mi-hauteur de la fonction d'excitation (cible dite « 2·FWHM »), tous les résidus produits dans les premiers 1,44µm de la cible seront arrêtés dans la cible. Le code de calcul, présenté dans le paragraphe 6.3, permet de calculer le pourcentage des résidus qui sortiront de la cible, en tenant compte de la fonction d'excitation et de la distribution en énergie. Pour la cible dite « 2·FWHM », seulement 6,5% des résidus seront arrêtés dans la cible, les autres 93.5% pourront être arrêtés plus loin dans le stoppeur (à l'exception de ceux qui seront arrêtés dans la fenêtre d'entrée).

7.2.1. Cas de la cible externe :

Un premier ordre de grandeur des intensités incidentes possibles peut être donné à partir d'un calcul succinct à partir de la loi de Stephan-Botzmann :

$$\mathbf{P} = \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{T}^4 \tag{7.1}$$

où P = la puissance en watt ;

T = la température en K ;

 $\varepsilon = l'$ émissivité du matériau cible (choix approximatif $\varepsilon = 0,7$);

 $\sigma = 5,67 \cdot 10^{-8} \text{W/m}^2 \text{K}^4.$

Dans ce calcul, on définit arbitrairement que la cible ne doit pas dépasser 85% de la température de fusion du matériau de la cible. Pour définir plus précisément la température maximale de la cible, on doit considérer deux aspects :

- La variation de la pression des vapeurs en fonction de la température. La pression maximale (et par conséquence, la température maximale) est imposée par les caractéristiques de la source d'ionisation ; au-dessus d'un seuil caractéristique, l'efficacité d'ionisation décroît sensiblement.
- L'usure de la cible. On doit analyser le taux d'évaporation de la cible comme fonction de température. En fonction de la durée de vie nécessaire, on peut être obligés de réduire la température de fonctionnement.

Le tableau 7.1 présente les intensités maximales possibles pour le faisceau (et les taux de production correspondantes) pour une cible fixe. Pour pouvoir utiliser toute l'intensité disponible du faisceau, on peut utiliser une roue tournante de cibles. Pour les rayons nécessaires pour arriver a 1mAe intensité du faisceau, on peut voir les taux maximales de production dans la cible. Le faisceau incident a 1,18 cm à mi-hauteur, correspondant à une hauteur de cible de 30mm.

	Fixe e=1FWHM	Fixe e=2FWHM	Tournante rr≥1,46 cm e=1FWHM	Tournante rr≥3,31 cm e=2FWHM
Intensité Potentielle				
faisceau (µAe)	327	144	1000	1000

Taux 80Zr	4,8•10 ⁶	2,89•10 ⁶	1,47•10 ⁷	2,01•10 ⁷
(pps)				

<u>Tableau 7.1 :</u> Ordre de grandeur de l'intensité possible pour cible fixe et tournante d'épaisseur e et pour une roue de rayon rr (nécessaire pour supporter 1mAe).

Si on veut mettre la cible hors de la cavité chaude, on doit choisir une cible plus mince, parce que les résidus ne doivent pas seulement sortir de la cible, mais aussi traverser la fenêtre d'entrée de la cavité. Pour le chrome, il est très difficile de réaliser une cible d'un diamètre de 2-3cm et une épaisseur de 2,7µm comme il sera vu au paragraphe **7.3.** Une solution alternative est de réaliser une cible supportée, le matériel support étant traversé par le faisceau avant la cible, pour ne pas ralentir ou arrêter les résidus ; l'énergie du faisceau incident sera augmentée de manière qu'à la surface d'entrée dans le Cr, on aura l'énergie prévue pour la fonction d'excitation. Plus la partie cible de production est choisie mince, plus le domaine d'énergie incident est étroit, plus il sera important d'ajuster au mieux l'énergie incidente du faisceau de façon à ne pas perdre un facteur important pour la production. Pour pallier ce problème, des mesures de production en fonction de l'énergie incidente peuvent s'avérer nécessaires. Le calcul succinct de l'intensité supportable dans la cible doit évidemment être reconsidéré en fonction du support utilisé, du dépôt de puissance plus important et de l'adhésion de la cible à son support.

7.2.2. Cas de la cible interne :

Une autre possibilité est de mettre la cible de production directement dans la cavité chaude où tous les produits de réaction y seront soit arrêtés dans cette cible et diffusés hors de cette cible, soit arrêtés dans un stoppeur dans la cavité puis diffusé hors de ce stoppeur. Cette possibilité présente plusieurs inconvénients :

- 1) La cavité et donc la diffusion dans la cible et l'effusion dans cette cavité devront êtres limités en température par la température de fusion du chrome (2130K*85%)
- 2) La puissance déposée par le faisceau dans la cible sera plus difficile à dissiper et donc l'intensité incidente sera moins importante que dans la possibilité cible externe. Il résulte du tableau 7.1 une intensité de faisceau incident de l'ordre de 330µAe et donc un taux de production de 4,8•10⁶ pps ⁸⁰Zr.
- 3) Il peut éventuellement être plus difficile de changer une cible dans une cavité chaude que hors.

De plus, il n'existe pas des mesures expérimentales pour la diffusion du Zr dans Cr et de l'effusion du ⁸⁰Zr sur les parois de la cible en Cr

7.3. Réalisation de cible de ⁵⁰Cr

Pour préparer la cible d'épaisseur choisie, il est possible d'acheter le chrome naturel, puis de séparer le ⁵⁰Cr qui a une abondance de seulement 4,345%, ensuite de préparer la cible dans le laboratoire local.

La société Goodfellow, (<u>http://www.goodfellow.com</u>), fournit uniquement du chrome naturel :

- en poudre depuis un diamètre moyen à partir de 10µm avec une pureté chimique de 99%
- sous forme de granules avec le diamètre moyen de l'ordre du centimètre et une pureté chimique de 99,95%;
Le ⁵⁰Cr peut être trouvé sous forme isotopique chez Euriso-Top (<u>http://www.eurisotop.fr</u>), avec une pureté supérieure à 90%.

Pour réaliser la cible à partir du ⁵⁰Cr, on peut choisir parmi plusieurs méthodes :

- Le laminage ([FRI77], [MAN95]);
- L'évaporation ([STO02]);
- L'electrodéposition ([KUE72]);
- Sputtering ([MAI91]).

Certaines cibles peuvent aussi être achetées directement préparées, auprès d'un des laboratoires de l'INTDS (International Nuclear Target Development Society). Les Laboratoires d'Argonne et de Daresbury, par exemple, prennent des commandes extérieures.

Il est très difficile de préparer une cible de ⁵⁰Cr d'une épaisseur de quelques microns. Différents problèmes surviennent :

- à la consolidation du métal isotopique par la fusion car il a la tendance de sublimer ;
- lors de l'amincissement de la feuille, laquelle doit être recuite de nombreuses fois.

Le laboratoire d'Oak Ridge a déjà préparé des cibles [GRE05], par électrodéposition, ayant des caractéristiques proche de celles qui sont demandées ci-dessus.

7.4. Diffusion hors de la cible de ⁵⁰Cr et du stoppeur :

Le matériel du stoppeur est choisi en fonction de ses caractéristiques vis-à-vis de la diffusion du résidu et de la température. La diffusion est caractérisée par le coefficient de diffusion D, qui a l'expression donnée par l'équation d'Arrhenius :

$$D = D_0 \cdot e^{-\frac{-E_a}{RT}}$$

(7.2)

où Les coefficients D₀ et E_q s'appellent les coefficients d'Arrhenius avec

 $D_0 = le paramètre de fréquence (en cm²/s);$

 $E_a = l'énergie d'activation (en J/mole);$

 $R = 8,31 \text{ J/mole} \cdot K$ (la constante des gaz) ;

T = la température absolue (en K).

Pour la diffusion à l'état solide, le processus peut être divisé en deux pas :

- Le transport du noyau du lieu de production jusqu'à la surface de la cible (diffusion dans le grain) ;

- La désorption de la surface.

Dans le cas idéal, le produit radioactif doit avoir des propriétés physiques et chimiques presque opposées à celles du matériel de la cible.

La figure 7.4 et le tableau 7.2, issue de la base de données TARGISOL (<u>http://www.targisol.csic.es</u>), présente les coefficients de diffusion des matériels pour lesquels la diffusion du Zr a été mesurée. À partir de ces informations, on peut choisir comme matériel pour le stoppeur le vanadium, le molybdène ou le niobium.



Figure 7.4. Le coefficient de diffusion du Zr dans diffèrents matériaux

À partir des données de la figure 7.4, il semblerait raisonnable de retenir le Nb comme élément pour le stoppeur. Des mesures seraient toutefois à faire avec du Ta ; ceci pour vérifier si la diffusion dans cet élément est suffisamment mauvaise pour retenir ce matériau pour la fenêtre d'entrée de la cavité qui doit être mince, solide et non poreuse.

Element	Matrix	Temperature range [K]	D ₀ [m²/s]	E ₀ [KJ/mol]	weight	D(T[K]) [m²/s] weight	Reference
Zr	Ti	1193-1773	4.7E-07	148			[Pav67]
Zr	V	1578-1883	8.1E-03	369			[Pru84]
Zr	Zr	1200-2000	6.1E-06	227			[Bey77]
Zr	Zr	1441-1776	2.4E-08	126			[Kid61]
Zr	Zr	1218-1518	6.8E-08	145			[Pat81]
Zr	Zr	1167-1476	3.1E-09	105			[Pru82]
Zr	Nb	2000-2600	7.3E-05	436			[Bey76]
Zr	Nb	1855-2357	4.7E-05	364			[Rou70]
Zr	Nb	1923-2523	8.5E-05	379			[Ein78]
Zr	Mo	2200-2870	5.8E-04	502			[Bey77]
Zr	Мо	2200-2870	5.6E-03	503			[Bey76]
Zr	Th	1113-1233	2.1E-07	261			[Tho65]
Zr	Th	1113-1233	6.9E-11	516			[Tho65]
Zr	U	1023-1873	2.0E-05	385			[Tak65]
Zr	U	1393-1693	3.0E-07	248			[Lin61]
Zr	U	1073-1223	1.2E-13	512			[Tho65]
Zr	U	993-1223	2.6E-12	512			[Tho65]
Zr	U	1023-1873	4.6E-05	435			[Oi,64]

Tableau 7.1 : Les coefficients d'Arrhenius mesurés pour la diffusion du Zr

7.5. L'effusion du ⁸⁰Zr

On peut maintenant faire l'analyse du point de vue de l'effusion du Zr. Celle-ci aura lieu contre les parois :

- de la cavité chaude ;
- du stoppeur de résidus ;
- de la fenêtre d'entrée dans la cas où la cible est externe et que la paroi est différente de celle de la cavité ;
- de la cible si celle-ci est interne.

Pour ne pas altérer les matériaux, il est habituel de ne pas dépasser 85% de leur température de fusion, ce qui limite la température maximale dans la cavité, si on met la cible de Cr à l'intérieur à 1800K.

La température maximale à laquelle on peut monter la cible ou la cavité chaude dépend principalement de la pression de vapeur du matériel de la cible ou de la cavité chaude, en relation avec la pression maximale d'opération de la source d'ions (donnée par la sensibilité du processus d'ionisation à la densité des particules dans le volume d'ionisation de la source).

Des matériaux réfractaires, comme le tantale ou le tungstène, sont des bons choix généralement utilisés pour les parois de la cavité.

7.5.1. L'effusion sous forme atomique du ⁸⁰Zr

L'effusion est caractérisée par le temps de collage de l'atome sur une surface après une collision. Le temps moyen de collage est gouverné par une équation Frenkel :

$$t = t_0 \cdot e^{-\frac{H_a}{RT}} \tag{7.2}$$

ou $1/t_0 =$ le facteur de fréquence ;

 $H_a = l'$ enthalpie molaire partielle d'adsorption.

Élément	Température	Température	Temps	Enthalpie	Enthalpie
	fusion	optimale	de collage	d'adsorption	d'adsorption
	$T_{f}[K]$	de travail,	à T ₀ ,	[kJ/mol]	[eV]
		$T_{o}[K]$	t[s]		
		$(=85\% \bullet T_{f})$			
Cr	2130	1810	-		
Nb	2741	2330	7.05E+00	617,7	6,40
V	2163	1839	-		
Mo	2896	2462	4.63E+01	689,8	7,15
Та	3683	3130	4.87E-01	675	7,00
W	3269	2779	1.26E-01	724,5	7,51

<u>Tableau 7.2</u>: Températures de fusion et optimale de travail en K. Enthalpie d'adsorption en kj/mol et en eV, pour différents matériaux potentiels du stoppeur ou des parois de la cavité.

Le tableau 7.2 présente la température de fusion, la température optimale de travail et l'enthalpie d'adsorption pour différents matériaux potentiels du stoppeur ou des parois de la cavité. Ces valeurs sont extraites de la base de données de TARGISOL. Les données expérimentales pour le Cr (qui intervient si la cible est interne) et pour le V (qui est un matériel potentiel pour le stoppeur) ne sont pas connues.

À partir des donnés pour les autres matériaux, on peut extraire les temps moyens de collage du Zr sur la surface des matériaux d'intérêt, en fonction de température. La figure 7.6 présente la variation du temps de collage en fonction de la température, pour les surfaces d'intérêt en échelle logarithmique. Il s'agit du temps moyen de collage en seconde pour seulement 1 collision ; Le résidu fera des centaines, voir des milliers de collisions dans la cavité chaude. L'ensemble de la cavité serait limité en température par l'élément ayant la température de fusion la moins élevée : 2330 K si on a retenu le Nb comme stoppeur, 1800K si on a mis la cible de Cr interne à la cavité.

Les courbes d'effusion en fonction de la température de la figure montre que le Nb présente le temps d'effusion le plus faible et serait à retenir. Cependant à 2300K qui est sa température optimale de fonctionnement par rapport à sa température de fusion, le temps de collage par collision est log t=0.9 s , soit 8s par collision, soit 800s si on suppose que le résidu ne fait que 100 collisions sur le stoppeur de la cavité. À de telle température, les temps de collage sont prohibitifs par rapport aux temps de vie du ⁸⁰Zr : $T_{1/2}\approx5s$ ([Sto01], [Res00]). Si on essaie de travailler à plus haute température, par exemple en réalisant une cavité entièrement en Ta, ce qui est souvent fait à GSI pour d'autres résidus à des températures de l'ordre de 2700K, le temps par collisions semble encore prohibitif pour le Zr. De plus, cela rend probablement aussi prohibitive la diffusion hors d'un stoppeur en Tantale.

Ces temps d'effusion nous montrent la nécessité d'avoir des données expérimentales pour la diffusion et l'effusion des noyaux dans différents milieux pour être capable de choisir les conditions qui permettront d'observer le noyau d'intérêt. Ce n'est pas la peine d'aller plus loin dans l'optimisation de la géométrie de la cavité quant au nombre de collision et au parcours des résidus dans cette cavité car même un gain d'un ordre de grandeur sur le nombre de collision sera encore prohibitif.

Devant ces temps de diffusion et d'effusion prohibitifs, des essais ont été réalisés à GSI et à Oak-Ridge pour faire sortir le Zr sous forme moléculaires.



Figure 7.6. La variation du temps de collage du Zr en fonction de température

7.5.2. L'effusion sous forme moléculaire du ⁸⁰Zr

Dans la situation présente, il semble donc difficile au vue des temps ci-dessus et des essais réalisés à Oakridge et GSI de faire sortir le ⁸⁰Zr sous forme d'atome. Si on veut utiliser la méthode ISOL, on est obligé de faire sortir le Zr de la cavité sous forme de molécules, qui

auront un temps de collage beaucoup plus faible. Cela devrait rendre possible l'extraction hors de la cavité.

7.5.3. Analyse de la possibilité d'ajout du SF₆ dans la cavité pour produire du ZrF₃.

Nous avons analysé la possibilité d'ajouter du SF₆ dans la cavité, pour produire du ZrF₃.

Le plus important dans cette technique est de contrôler et d'optimiser la formation des molécules souhaitées. Les pressions partielles du réactant et des molécules résultantes doivent être loin de gêner le fonctionnement de la source d'ions.

À une température élevée, le SF₆ va se dissocier et le F pourra se recombiner avec le Zr. La figure 7.7 présente l'évolution du SF₆ et de ses composés qui apparaîtront au cours de la dissociation en fonction de température. Cette dépendance est pour une kmole de SF₆ initiale et une pression constante de 10⁻⁶bar. Elle est obtenue avec le logiciel HSC Chemistry. On a négligé la présence des autres éléments dans la cavité.

Par rapport au cas académique ci-dessus, la dissociation est affectée par les autres matériaux présents dans l'enceinte, lesquels vont modifier les températures de dissociation valables en système chimique isolé (présence uniquement de SF_6).

La probabilité de formation des molécules dépend de :

- La température moyenne dans la cavité :
- La concentration du gaz ajouté ;
- La stabilité thermique de la molécule ;
- La compétition des deux possibilités du Zr de quitter la surface : comme atome, par la désorption en un temps moyen τ_a, ou comme molécule formée en un temps moyen τ_f (et suivit par une désorption instantanée). Le facteur déterminant est représenté ici par le rapport du temps de désorption de l'atome et le temps de formation de molécule τ_a /τ_f. La réaction entre Zr et F a lieu notamment sur les surfaces.





La stabilité thermique des molécules formées et, éventuellement, celle des ions moléculaires est aussi un paramètre important à prendre en compte. Si on est intéressé par l'augmentation de la vitesse d'effusion, uniquement les molécules doivent avoir une stabilité thermique suffisante, mais si on veut aussi utiliser les molécules pour séparer le résidu des polluants, on doit aussi avoir une bonne stabilité (thermique et temporelle) des ions moléculaires pour que cette molécule ne soit pas cassée dans la source d'ions. Ce qui permettra de sélectionner le résidu sous forme moléculaire par un aimant à une masse différente de ses isobares.

Il est à remarquer concernant l'effusion que l'optimisation en nombre de collision ne doit pas forcément être la même sous forme atomique que sous forme moléculaire. Le temps d'effusion est donné dans le cas d'un atome par :

$$T = t_v + n_{coll} * t_{coll}$$
(7.3)

 T_{ν} étant le temps de vol moyen dû à la vitesse thermique sur la trajectoire totale de l'atome ;

n_{coll} étant le nombre de collisions ;

 t_{coll} étant la durée moyenne d'une collision ;

Dans le cas d'un gaz noble, t_{coll} est négligeable et le temps total est régit par le temps de vol thermique.

Dans le cas d'un élément condensable ou réfractaire, t_{coll} n'est pas négligeable pour l'atome (Zr) et le temps d'effusion T est régi essentiellement par $n_{coll}^* t_{coll}$

Par contre s'il est possible de former rapidement une molécule par l'ajout d'un gaz (par example SF_6 pour transformer Zr en ZrF₃), alors t _{coll} sera négligeable pour la molécule (ZrF3)

 $T = t_v + n_{\text{coll-atome}} * t_{\text{coll-atome}} + n_{\text{coll-molecule}} * t_{\text{coll-molecule}}$ (7.4)

où on a dissocié le temps et le nombre de collision de l'élément selon qu'il est encore atome ou qu'il s'est transformé en molécule.

Il s'agit donc de transformer le plus rapidement possible l'atome en molécule pour que même si le nombre de collision est grand, le temps d'effusion soit régit principalement par le temps de vol et par le temps de collage de la molécule et non plus par le temps de collage de l'atome.

Il faudra donc trouver une géométrie qui favorise le plus rapidement possible la formation de molécules (présence du gaz pour la molécule à proximité voir dans la structure du stoppeur).

7.5.4. Rappel des résultats des tests à GSI et Oakridge

La technique a été déjà utilisée à GSI, par le groupe de R. Kirchner [Ki03]. Ils ont utilisé du CF_4 et du SF_6 (les deux devraient convenir) avec des flux de l'ordre de 10^{-5} mbarltr/s, aux températures de 2200-2300K dans une source d'ionisation FEBIAD-H. La technique n'a pas été optimisée et les résultats ont été négatifs [Ki05].

À Oak Ridge, des essais systématiques ont été réalisés en utilisant du SF_6 à une pression de 10⁻⁶bar [Kro05], mais sans succès quant à l'extraction du Zr en utilisant SF_6 .

Il se dégage de ces premières réflexions que d'extraire des faisceaux de Zr par la méthode ISOL nécessitera de la R&D systématique et des notions de chimie plus avancées que celles qui sont disponibles actuellement au GANIL.

7.6. Autres réactions possibles :

Pour éliminer les problèmes imposées par la cible de Cr qui est d'une part très mince, d'autre part certainement très fragile, et sans essais plus poussés sur cette cible, il nous paraît important de regarder aussi la possibilité d'utiliser d'autres réactions pour la production du ⁸⁰Zr. Des réactions potentielles, utilisant des faisceaux qui devraient être produit à LINAG avec une intensité de plusieurs dizaines d'ampères et des cibles utilisables quant à leur propriétés thermiques, sont les réactions suivantes :

- ${}^{36}\text{Ar} + {}^{46}\text{Ti} \rightarrow 2n + {}^{80}\text{Zr}$
- ${}^{24}Mg + {}^{58}Ni \rightarrow 2n + {}^{80}Zr$
- ${}^{40}\text{Ca} + {}^{46}\text{Ti} \rightarrow \alpha 2n + {}^{80}\text{Zr}$

Bien que les températures de fusion du titane (1933K) et du nickel (1738K) soient plus basses que celle du chrome (2130K), si les résidus ⁸⁰Zr sont produits avec une énergie plus élevée, la cible pourra aussi être placé à l'extérieur de la cavité et pourra ainsi être refroidit plus facilement que dans une cavité chaude. Si leur tenue au faisceau est supérieure (soit parce qu'elles sont plus épaisses et solides, ou que leur réalisation permet une meilleure solidité par rapport à leur usure ou à leur capacité à accepter les chocs thermiques, à l'érosion due au faisceau,etc.), alors ces cibles seront aussi intéressantes même si le taux de production est moindre en raison d'une intensité de faisceau LINAG ou une section efficace moindres, une géométrie ou d'autres conditions moins favorables. D'autre part, l'épaisseur demandée par la fonction d'excitation peut correspondre à un dépôt de puissance plus faible du faisceau incident, permettant de moins limiter l'intensité du faisceau incident. Un autre paramètre, pouvant faire la différence, est la voie de sortie pour la production du ⁸⁰Zr. Plus le ⁸⁰Zr est obtenu par l'évaporation d'un plus grand nombre de particules, plus la distribution angulaire sera large et donc mieux on pourra séparer le résidu du faisceau en utilisant un stoppeur troué.

Les résultats du code PACE pour les trois réactions mentionnées sont présentés dans les figures 7.8-7.16 :

- Les fonctions d'excitation du ⁸⁰Zr dans les figures 7.8-7.10 ;
- Les distributions angulaires du ⁸⁰Zr dans les figures 7.11-7.13 ;
- Les distributions énergétiques du ⁸⁰Zr dans les figures 7.14-7.16.







Dans le tableau 7.2 sont résumées les principales caractéristiques des réactions analysées pour la production du ⁸⁰Zr.

Les puissances déposées correspondent à un faisceau de 1mAe, avec un rapport Q/M=1/3.

Les puissances rayonnées sont calculées avec la formule 7.1 pour une cible ayant un diamètre de 30 mm, à la température « optimale » de fonctionnement (85%•T_{fusion}).

Le rapport entre le nombre des particules du faisceau et le nombre des résidus produits dans toute la cible est calculé avec le code décrit dans le paragraphe 6.3. Ici, il s'agit te de ce qui peut être perdu par une éventuelle

uniquement de la production sans tenir compte de ce qui peut être perdu par une éventuelle géométrie cible-stoppeur ou autres.

Le tableau 7.2 compare les différentes réactions possibles. L'intensité maximale du faisceau indiquée est l'intensité pour laquelle le faisceau dépose dans la cible la puissance maximale que la cible peut dissiper par rayonnement. Le taux maximal de production du ⁸⁰Zr correspond à cette intensité maximale du faisceau dans la cible.

Une observation importante est qu'on ne gagne pas dans la production du ⁸⁰Zr en choisissant une cible plus épaisse (2FWHM contre 1FWHM); même si on augmente ainsi le rapport entre le nombre des résidus par rapport aux nombres de particules du faisceau, on doit en même temps diminuer l'intensité du faisceau car la perte d'énergie du faisceau dans la cible est plus importante.

La température de fusion de la cible est très importante pour pouvoir utiliser des hautes intensités du faisceau. Même avec la cible à l'extérieur, l'effet d'un refroidissement de la cible sur les côtés sera quasiment nul, à cause de la faible épaisseur. Pour mieux dissiper la puissance, il faudra faire tourner la cible. Pour la refroidir plus, on a besoin d'une méthode de refroidissement sur toute la surface, éventuellement en utilisant un matériel support avec une bonne conductivité thermique.

<u>Réaction</u>		³⁶ Ar+ ⁵⁰ Cr	⁴⁰ Ca + ⁴⁶ Ti	³⁶ Ar + ⁴⁶ Ti	$^{24}Mg + ^{58}Ni$
<u>Canal évapora</u> t	tion	α2n	α2n	2n	2n
Énergie faisceau	1FWHM	148	160	115	85
[MeV]	2FWHM	165	175	125	95
Épaisseur cible	1FWHM	2,72	3,4	2,78	2,48
[µm]	2FWHM	5,44	7,81	4,68	5,02
Température fusion	cible [K]	2130	1933	1933	1738
Puissance maximale [W]	rayonnée	600	400	400	270
Intensité maximale	1FWHM	327	233	267	144
du faisceau (µAe)	2FWHM	144	102	160	72
Distribution angulaire Teta[°]		0÷11	0÷9	0÷6	0÷7

Section efficace maximale du résidu [mb]		1,6	1,3	0,65	2,6
Rapport atomes faisceau/résidus	1FWHM	$3,53 \cdot 10^{7}$	4,85·10 ⁷	$1,22.10^{8}$	$2,14 \cdot 10^{7}$
produits	2FWHM	2,59·10 ⁷	3,25·10 ⁷	$1,02.10^{8}$	$1,67 \cdot 10^7$
Taux maximal de production ⁸⁰ Zr	1FWHM	4,8·10 ⁶	$2,14 \cdot 10^{6}$	1,14·10 ⁶	$5,23 \cdot 10^{6}$
(pps)	2FWHM	2,89.10 ⁶	$1,4.10^{6}$	8,16·10 ⁵	3,36·10 ⁶
Taux limité par	1FWHM	-	4,6·10 ⁵	-	1,12·10 ⁵
disponible LINAG	2FWHM	-	7·10⁵	-	1,44·10 ⁵
Résidus arrêtés da	ns la cible	0	0	0	0
(%)		3,7	1,8	0	7,0
Épaisseur de tantale		1,1	2,4	2,2	0,3
traversée par tous les résidus (µm) (pour une cible extérieure)		0	0	1,1	0

Tableau 7.2. Comparaison des différentes réactions pour la production du ⁸⁰Zr

On peut observer que la réaction ${}^{24}Mg + {}^{58}Ni$ n'est pas utilisable avec la cible à l'extérieur de la cavité, parce que l'énergie des résidus est très faible. Le principal avantage de cette réaction est la section efficace de production. Cette réaction semble difficilement utilisable même en défocalisant le faisceau incident sur un damier de cibles dans la cavité ; Ceci en raison de la basse température de fusion (1730K) qui ne permet probablement pas la diffusion du ${}^{80}Zr$ hors de cette cible, ni probablement l'effusion sous forme moléculaire.

La réaction ⁴⁰Ca +⁴⁶Ti présente l'avantage que les résidus possèdent l'énergie la plus élevée, ce qui permet d'utiliser une fenêtre, en tantale plus épaisse que pour les autres réactions, de quelques microns, sans pertes des résidus). Le principal problème de cette réaction est qu'on sera limité par l'intensité maximale du faisceau de Ca (estimée pour LINAG à seulement 50µAe). L'ordre de grandeur (du point de vue thermique) de l'intensité qu'une cible de Ti de 30mm diamètre peut dissiper par rayonnement à la température optimale (85%•T_r=1643K) est de ~233W pour une épaisseur de 3,4µm. On perd au moins un facteur 4 dans la production sans considérer le refroidissement qui peut aussi augmenter la différence. Dans la tenue de la cible au n'a pas tenu compte de son usure : par sputtering et par évaporation. L'effet «sputtering» est présenté dans le paragraphe 7.7 et il reste à être chiffré ; l'évaporation de la cible doit aussi être analysé, en fonction de la pression des vapeurs dans le régime de travail.

Dans ces conditions, la première réaction analysée 36 Ar + 50 Cr semble la meilleure ; le problème majeur est la réalisation de la cible de 50 Cr de 2,7µm. Faute de quoi, la meilleure réaction devient 36 Ar + 46 Ti si on est capable de faire cette cible.

En plus, si on utilise une cible tournante et on pourra monter jusqu'à une intensité de 1mAp de ${}^{36}\text{Ar}$, on peut obtenir une taux de production dans la cible de $1,5\cdot10^7$ pour Zr.

7.7. L'effet de « sputtering » de la cible

L'effet de pulvérisation d'un faisceau d'ions sur un solide monoatomique est caractérisé par le rapport

$$Y(E) = \frac{Nombre \ d'atomes \ pulverises \ par \ sputtering}{Nombre \ d'ions \ incidents}$$
(7.5)

On peut calculer ce rapport à partir de la formule empirique suivante [Mat84]:

$$Y(E) = 0.42 \cdot \frac{\alpha * QKs_n(E)}{U_s[1+0.35U_ss_e(E)]} \cdot \left[1 - \left(\frac{E_{th}}{E}\right)^{1/2}\right]^{2.5}$$
(7.6)

Ou :

→ Z_f , Z_c = les nombres atomiques respectivement du faisceau et de la cible ; → E = l'énergie du faisceau incident ;

 \rightarrow U_s=l'énergie de sublimation en eV ; Q=paramètre [Mat84] ;

 $\rightarrow \in =$ l'énergie réduite :

$$\in = \frac{0,03255}{Z_f Z_c \left(Z_f^{2/3} + Z_c^{2/3}\right)^{1/2}} \cdot \frac{M_c}{M_f + M_c} \cdot E(eV)$$
(7.7)

→ $s_n(\in)$ et $s_e(\in)$ sont les sections efficaces d'arrêt élastique et inélastique de Lindhard : 3,441 · $\sqrt{\in} \ln(\in +2,718)$

$$s_n(\in) = \frac{5,111}{1+6,355 \cdot \sqrt{\in} + \in (-1,708+6,882 \cdot \sqrt{\in})}$$
(7.8)

$$s_e(\in) = k \cdot \in^{1/2}$$
, où $k = 0,079 \cdot \frac{\left(M_f + M_c\right)^{3/2}}{M_f^{3/2} \cdot M_c^{1/2}} \cdot \frac{Z_f^{2/3} \cdot Z_c^{1/2}}{\left(Z_f^{2/3} + Z_c^{2/3}\right)^{3/4}}$ (7.9)

 \rightarrow K = facteur de conversion donné par :

$$K = \frac{S_n}{s_n} = 8,478 \cdot \frac{Z_f Z_c}{\left(Z_f^{2/3} + Z_c^{2/3}\right)^{1/2}} \cdot \frac{M_f}{M_f + M_c}$$
(7.10)

 $\rightarrow \alpha^*$, E_{th} sont des paramètres définis par les équations suivantes:

$$\alpha^* = 0.08 + 0.164 \cdot \left(\frac{M_c}{M_f}\right)^{0.4} + 0.0145 \cdot \left(\frac{M_c}{M_f}\right)^{1.29}$$
(7.11)

$$E_{th} = U_s \cdot \left[1,9 + 3,8 \cdot \left(\frac{M_c}{M_f} \right)^{-1} + 0,134 \cdot \left(\frac{M_c}{M_f} \right)^{1,24} \right]$$
(7.12)

7.8. Les polluants pour la réaction ${}^{36}_{18}Ar + {}^{50}_{24}Cr \rightarrow \alpha 2n + {}^{80}_{40}Zr$

Pour la réaction de fusion-évaporation analysée, les noyaux avec des sections efficaces de production plus grandes que ⁸⁰Zr sont présentés dans le tableau 7.3. Les résultats sont obtenus avec le code PACE.

Α	Elément	Nombre événements	Pourcentage	Section efficace (mb)
80	Zr	165	0,17%	1,23
73	Br	287	0,29%	2,15
77	Sr	320	0,32%	2,39
74	Kr	387	0,39%	2,89
83	Nb	395	0,40%	2,95
79	Y	587	0,59%	4,39
81	Y	892	0,89%	6,67

78	Kr	916	0,92%	6,85
76	Rb	998	1,00%	7,46
83	Y	1126	1,13%	8,42
78	Rb	1180	1,18%	8,82
81	Rb	1276	1,28%	9,54
77	Rb	1869	1,87%	14
83	Zr	2098	2,10%	15,7
80	Y	2927	2,93%	21,9
80	Sr	3916	3,92%	29,3
82	Zr	5393	5,39%	40,3
76	Kr	5553	5,55%	41,5
81	Sr	7782	7,78%	58,2
79	Rb	9680	9,68%	72,4
82	Sr	11204	11,20%	83,8
79	Sr	12794	12,80%	95,7
82	Y	27831	27,80%	208

<u>Tableau 7.3</u> : Les polluants produits dans la cible de 50 Cr

Ces valeurs sont obtenues pour l'énergie du faisceau correspondante à la section efficace maximale pour la production du ⁸⁰Zr (140 MeV). Pour avoir tous les polluants, on doit considérer tout le domaine énergie du faisceau dans la cible.

On doit aussi regarder si l'énergie du faisceau dans la fenêtre d'entrée de la cavité chaude est suffisante pour produire des réactions. Dans le cas présent, l'énergie du faisceau est insuffisante pour produire la fusion dans la fenêtre.

7.9. Analyse de la géométrie cible extérieur - stoppeur troué pour la réaction ${}^{36}_{18}Ar + {}^{50}_{24}Cr \rightarrow \alpha 2n + {}^{80}_{40}Zr$:

Pour une cible de ⁵⁰Cr d'épaisseur 2,7µm, on analyse maintenant la distribution des résidus sur le stoppeur avec le code présenté dans le paragraphe 6.3. Cette analyse est faite dans le but de dimensionner la fenêtre d'entrée, le stoppeur et la cavité chaude ainsi que le taux de résidus arrêtés dans le stoppeur. On a pris comme première hypothèse que le four ohmique pour chauffer la cavité chaude ne devait pas excéder celui en cours d'étude pour la cible UCx de Spiral2 et qu'il devait si possible être le même.

Les paramètres qu'on fait varier dans la simulation sont présentés dans la figure 7.17. Ils sont :

- La largeur à mi-hauteur du faisceau (FWHM); on considère l'intervalle de variation : [0,5 cm; 1,5 cm]. Elle est limitée par le diamètre envisageable de fabrication d'une unité de cible;
- La distance entre la cible de production et la fenêtre d'entrée de la cavité (ZW) ; pour ce paramètre, on considère l'intervalle de variation : [5 cm; 20 cm] ;
- La distance entre la fenêtre et le stoppeur (ZS) ; l'intervalle de variation : [5 cm; 15 cm] (elle est limitée par les dimensions envisagées pour le four) ;
- L'épaisseur de la fenêtre d'entrée de la cavité chaude (Lw) ; l'intervalle de variation : [1 μm; 5 μm] (elle est limitée par la faible énergie des résidus).
- Le rayon (extérieur) du stoppeur (RS); l'intervalle de variation : [2cm ; 4cm].Il est limité par la taille du four. La rayon de la fenêtre d'entrée est fixé à 4 cm dans les calculs suivants.



Figure 7.17. La configuration analysée

Pour un ensemble quelconque de paramètres, on aura des pertes des résidus :

- dans la cible;
- dans la fenêtre d'entrée;
- par le trou du stoppeur ;
- à l'extérieur de la fenêtre d'entrée et du stoppeur.



La figure 7.18 présente la variation de ces pertes pour un ensemble de paramètres, en fonction de la distance ZW entre la cible et la fenêtre de production.

Pour choisir les paramètres de la configuration, on fait varier indépendamment chaque paramètre et l'on représente la perte totale des résidus en fonction du même paramètre qui est la distance cible-fenêtre ZW, pour lequel on n'a pas de contrainte.

La variation des pertes en fonction de la distance ZS fenêtre d'entrée - stoppeur (figure 7.19) est due au straggling introduit par la fenêtre d'entrée.



La figure 7.20 présente la dépendance des pertes totales en fonction de l'épaisseur de la fenêtre d'entrée, et la figure 7.21 montre les pertes dans la fenêtre, en fonction de son épaisseur.



Il est utile d'optimiser aussi la largeur à mi-hauteur du faisceau ; Ceci en fonction du diamètre réalisable de la cible, de la capacité de dissiper la puissance déposée par le faisceau et de la possibilité de séparer les résidus du faisceau. La dépendance des pertes du résidu est présentée dans la figure 7.22.



Pour choisir les dimensions de la cavité chaude, on doit trouver un compromis entre la possibilité de faire sortir les résidus par l'effusion et le pourcentage des résidus qui arrivent sur le stoppeur. Déjà, si on utilise un stoppeur troué, la dimension du trou doit être de l'ordre de la largeur à mi-hauteur FWHM du faisceau si on veut laisser passer 95% du faisceau par le trou. La dépendance des pertes du résidu en fonction du rayon extérieur du stoppeur est présentée dans la figure 7.23.



À partir des figures 7.23 et 7.19, on choisit les dimensions de la cavité chaude : longueur=2xZS=2cm et hauteur=2xRS=6cm, donc le stoppeur a un rayon de 3cm et est situé à 1 cm de la fenêtre d'entrée.

L'épaisseur de la fenêtre d'entrée LW est choisie : Lw=2µm. On prend la largeur à mihauteur FWHM=1cm et on refait le calcul pour obtenir la distance ZW pour laquelle on a le minimum de perte pour les résidus. (figure 7.24).





Pour choisir l'épaisseur du stoppeur, on utilise la distribution en énergie des résidus à l'entrée du stoppeur (figure 7.25)

Pour arrêter tous les résidus dans le stoppeur, on a besoin d'utiliser 3,9µm de Nb.

Si on utilisait un stoppeur sans trou, dans $3,9\mu$ m de Nb on aurait un dépôt de puissance d'environ 5kW, pour l'intensité maximale de 1mAp ³⁶Ar¹²⁺. Pour l'intensité maximale imposée d'une cible fixe de ⁵⁰Cr, on aurait un dépôt de puissance de 1,6kW.

Un stoppeur de 3cm diamètre peut dissiper jusqu'à 1,6kW; pour 5kW, on doit defocaliser le faisceau sur un stoppeur d'au moins 5,2cm diamètre, ou utiliser un stoppeur troué qui laissera passer une partie du faisceau (au moins 32%, pour un rayon extérieur de 3cm).

Une variante ultérieure du code présenté dans le chapitre 6 fera aussi l'analyse des dépôts de puissance dans les matériaux (cible, fenêtre et stoppeur) et les options pour la forme du stoppeur.

La configuration complète choisie pour la production du ⁸⁰Zr est présentée dans la figure 7.26. Elle serait encore à ajuster pour des raisons d'effusion hors de la cavité. Il est à remarquer que la fenêtre de tantale de 5cm de diamètre pour 2µm d'épaisseur est plus fragile et probablement plus poreuse que celle présentement utilisée à Spiral qui est aussi d'environ 5cm de diamètre mais de 5µm d'épaisseur et dont les prochaines seront de 7.5µm pour des questions de coût et de disponibilité.

Pour cette configuration, on aura 75% des ⁸⁰Zr produits, soit **4,8·10**⁶pps, qui seront arrêtés dans le stoppeur.



Figure 7.26 La configuration choisie pour la production du ⁸⁰Zr

7.9. En conclusion :

La réaction ${}^{36}_{18}Ar + {}^{50}_{24}Cr \rightarrow \alpha 2n + {}^{80}_{40}Zr$ semble le mieux du point de vue taux de production et point de fusion de la cible. Cependant de la R&D, avec des essais expérimentaux, est nécessaire pour ce faisceau avant de conclure qu'on pourra le faire par la méthode ISOL. En particulier :

Les cibles, leur tenue aux faisceaux et leur réalisation, sont des paramètres difficilement chiffrables aujourd'hui sans expériences à ce sujet. Prendre l'intensité maximale correspondant à la puissance rayonnée n'est pas un critère assez précis : Une cible présentant un point de fusion plus élevé peut cependant moins bien tenir à l'impact du faisceau et avoir une durée de vie trop limitative. Des essais de fabrication de cibles et d'essai sous faisceau sont absolument nécessaires.

Il est difficile de conclure qu'une réaction est franchement moins bonne qu'une autre car la différence dans les taux de production n'est que d'un facteur 5. Ce facteur peut facilement changer si on veut placer une fenêtre de tantale un peu plus épaisse, ou utiliser un faisceau de Linag un peu moins intense au démarrage.

Un autre point important est que les cibles retenues pour la production du 80Zr nécessitent d'être mises à l'extérieur de la cavité chaude en raison de leur point de fusion bas qui limite la température utilisable pour la diffusion dans le stoppeur de résidus dans la cavité.

La sortie des ⁸⁰Zr sous forme moléculaire est indispensable si on souhaite faire ce faisceau par la méthode ISOL. Actuellement le GANIL n'a pas d'expérience à ce sujet contrairement à d'autres laboratoires comme le GSI et Oakridge qui n'ont pas encore abouti sur ce noyau à notre connaissance. Des tests pourraient être fait sur SIRa avec les faisceaux issus du GANIL. La prolongation de la ligne SME directement dans D2 permettrait de disposer plus fréquemment de faisceau pour réaliser les nombreux tests nécessaires.

8. La production du ⁹²Pd

Ce chapitre présente l'estimation du taux de production du ⁹²Pd, la procédure utilisée est la même que celle pour le ⁸⁰Zr (chapitre 7).

Pour produire ce noyau, deux réactions potentielles sont:

- 1) ${}^{36}\text{Ar} + {}^{58}\text{Ni} \rightarrow 2n + {}^{92}\text{Pd}$
- 2) ${}^{40}Ca + {}^{54}Fe \rightarrow 2n + {}^{92}Pd$

8.1. Fonctions d'excitation du ⁹²Pd pour les réactions analysées

Comme pour le ⁸⁰Zr, les calculs de fusion-évaporation ont été fait avec le code PACE. Les fonctions d'excitation sont présentées dans les figures 8.1-8.2 :



À partir de ces résultats, pour la réaction (1) on déduit :

- L'énergie du faisceau incident d' ³⁶Ar: 125 MeV pour une cible «1•FWHM » ou 135 MeV pour une cible «2•FWHM » ;
- L'épaisseur de la cible de ⁵⁸Ni : 1,36μm (1,21mg/cm²) pour une cible «1•FWHM » ou 2,72μm (2,42mg/cm²) pour une cible «2•FWHM ».

Pour la réaction (2), on a :

- L'énergie du faisceau incident de ⁴⁰Ca : 135 MeV pour une cible «1•FWHM » ou 145 MeV pour une cible «2•FWHM » ;
- L'épaisseur de la cible de ⁵⁴Fe : 1,07μm (0,84mg/cm²) pour une cible «1•FWHM » ou 2,18μm (1,72mg/cm²) pour une cible «2•FWHM ».

8.2. Distributions angulaires d'émission du ⁹²Pd pour les réactions analysées

Les distributions angulaires d'émission du résidu ont été calculé pour différentes énergies du faisceau à différent lieu d'interaction dans la cible : à l'entrée, au milieu et à la



sortie d'une cible d'épaisseur correspondant 1•FWHM de la fonction d'excitation. Les résultats sont présentés dans les figures 8.3 et 8.4.

Pour comparer les distributions de probabilité d'émission pour différents angles (lesquelles seront utilisées dans le code Monte Carlo), on a normalisé les distributions angulaires au nombre total ⁹²Pd émis (figure 8.5-8.6).



8.3. Distributions énergétiques du ⁹²Pd au lieu de l'interaction



En fonction de l'énergie de la particule du faisceau au lieu de l'interaction, on a une variation sensible de la distribution énergétique du ⁹²Pd au moment de l'émission. Les figures 8.7 et 8.8 présentent ces distributions pour différentes énergies du faisceau (donc pour différentes positions d'interaction dans la cible).

Les distributions normalisées au nombre des particules sont présentées dans les figures 8.9 et8.10.



Un problème important pour obtenir les distributions angulaires et énergétiques est que les sections efficaces de production sont très faibles. Le nombre maximal d'événements dont le programme peut considerer étant limité, les **erreurs statistiques** sont donc importantes (comme il est vu dans la **figure 8.10**). La solution qu'on peut choisir dans ce cas-la est d'utiliser les distributions obtenues pour un autre résidu, équivalent du point de vue cinématique, mais ayant une section efficace plus importante. Par exemple, pour cette réaction, au lieu d'analyser les distributions du ⁹²Pd (qui correspond au canal d'évaporation **2n**), on peut choisir d'analyser les distributions du ⁹²Rh (canal **pn**) ou celles du ⁹²Ru (canal **2p**). Cette possibilité est analysée plus en détail dans le paragraphe 6.4.

En utilisant ces résultats, on peut voir qu'aucun résidus n'est arrêtés dans la cible de production, dans aucune situation (pour les deux réactions et pour la cible plus épaisse, « 2•FWHM »)

8.4. La diffusion du ⁹²Pd

Il y a peu des valeurs expérimentales pour la diffusion du ⁹²Pd. Il n'est donc pas possible d'analyser la qualité des stoppeurs possibles de ce point de vue. Les valeurs existantes dans la base de données TARGISOL sont présentées dans le tableau 8.1 et dans la figure 8.11 :

Matrice	Domaine des températures [K]	$D_0[m^2/s]$	E ₀ [kJ/mol]	D(T[K]) [m²/s]	Référence
Nb	1965-2341	2.4E-04	400		[Sat79]
Та				1.8E-15(2400)	[Kir92]

Tableau 8.1 La diffusion du 92Pd



10000/T [K] Figure 8.11. Les données de la base TARGISOL sur la diffusion du ⁹²Pd

8.5. L'effusion du ⁹²Pd

Le tableau 8.2 présente les données TARGISOL pour les meilleurs matériaux. La figure 8.12 montre la dépendance en fonction de la température des temps de collage pour ces matériaux. Il reste a vérifier dans la référence si il s'agit d'une extrapolation ou les mesures sont directes pour les matériaux d'intérêt.

Élément	Température fusion T _f [K]	Température optimale de travail T ₀ [K] (=85•T _f)	Temps de collage à T _o t[s]	Enthalpie d'adsorption [kJ/mol]	Enthalpie d'adsorption [kJ/mol]
Nb	2741	2330	2,62E+00	598,5	6,20
Мо	2890	2457	1,48E-03	478,3	4,96
Rh	2239	1903	1,90E-02	410,9	4,26
Та	3269	2779	5,80E-02	625,8	6,49
W	3680	3128	6,01E-06	465,8	4,83
Re	3453	2935	1,38E-06	401,1	4,16
Ir	2716	2309	1,25E-04	402,1	4,17

Tableau 8.2. Les temps de collage pour ⁹²Pd



Figure 8.12. Dépendance de température des temps de collage pour ⁹²Pd

La durée de vie $T_{1/2}$ du ⁹²Pd semble ne pas être connu et en tout cas doit être relativement faible vue l'exoticité de ce noyau. Il est donc difficile de dire si on peut le faire sortir de la cavité sous forme atomique (dans le cas où on n'a pas la cible à l'intérieur, pour limiter la température maximale). Une autre piste à regarder plus en détail serait de le faire sortir sous la forme moléculaire PdO.

Dans le cas où on essaierait de le faire sortir sous forme atomique, le matériel à choisir pour le stoppeur serait le rhénium.

8.6. Analyse des dépôts de puissance

a) Le tableau 8.3 montre les intensités maximales que les cibles de 30mm peuvent supporter pour ne pas dépasser la température limite de 85%•T_{fusion}, Les puissances rayonnees sont calculées en considérant uniquement le rayonnement thermique donné par la formule (7.1).

Cible		Température optimale (85%•T _{fusion}) [K]	Puissance maximale rayonnée [W]	Intensité limitée par une cible fixe (µAe)	Intensité maximale envisagée pour SPIRAL2 (µAe)
⁵⁸ NG	1•FWHM	1485	270	216	1000
111	2•FWHM	1403	270	108	1000
⁵⁴ Eo	1•FWHM	1527	210	269	50
ге	2•FWHM	1337	510	161	50

<u>Tableau 8.3</u> : Intensités maximales que les cibles peuvent supporter pour ne pas dépasser la température limite de 85%•T_f,

Les intensités maximales sont calculées pour une distribution uniforme du faisceau sur la cible ; pour une meilleure précision, on doit calculer les intensités en considérant une distribution gaussienne du faisceau. En réalité, le faisceau a une forme plus complexe. Pour la forme du faisceau de LINAG il y a des simulations en cours, dans le laboratoire d'Orsay [Ber05].

b) On doit aussi estimer la puissance déposée par le faisceau dans la fenêtre d'entrée de la cavité.

Pour une **cible extérieure**, on choisit l'épaisseur de la fenêtre en fonction de la distribution en énergie des résidus à l'entrée de la fenêtre (donnée par le code Monte Carlo) (figures 8.13-16).





À partir de ces figures, on déduit (pour tous les cas) les épaisseurs de la fenêtre de tantale pour lesquelles on n'a pas aucune perte de résidus dans la fenêtre.

Pour des fenêtres plus épaisses, le code de calcul présenté antérieurement (chapitre 6) donne le pourcentage des résidus arrêtés dans la fenêtre.

Une fois choisie l'épaisseur de la fenêtre, on peut calculer la puissance déposée par le faisceau dans le tantale, pour les intensités présentées dans le tableau 8.3.

Les résultats sont présentés dans le tableau 8.4.

Cible		Épaisseur fenêtre Ta [µm]	Perte énergie faisceau dans la fenêtre [MeV]	Puissance déposée par le faisceau avec intensité limité par la cible [W]	Puissance déposée par le faisceau avec l'intensité Maximale [W]
⁵⁸ NI;	1•FWHM	2,9	37	660	3055
111	2•FWHM	1,5	18.3	165	1530
⁵⁴ F o	1•FWHM	3,7	55.4	1145	210
ге	2•FWHM	2,4	35.5	440	55

<u>Tableau 8.4.</u> Perte d'énergie et puissance déposée dans la fenêtre de tantale pour une intensité faisceau primaire que peut supporter la cible de production (tableau 8.3)

En utilisant la formule (7.1) et la température limite de 2779K pour le tantale, on obtient la puissance maximale rayonnée par une surface de 30mm: 3350W. Donc, les dépôts de puissance du faisceau dans la fenêtre ne posent pas de problèmes pour les intensités limitées par les cibles et pour les épaisseurs dont on a besoin.

Pour le faisceau d'argon, si on pourra monter en intensité jusqu'à 1mAe (par exemple, en tournant la cible ou en defocalisant le faisceau sur la cible), les dépôts de puissance dans la fenêtre deviennent plus importantes. Si on utilise un faisceau avec une taille plus large, la fenêtre tiendra aux puissances plus grandes que 3350W, mais si on choisit de séparer les produits en utilisant leur distribution angulaire, la taille du faisceau sera limitée, donc on doit réduire la puissance déposée dans la fenêtre (en utilisant une fenêtre plus mince, si possible)

Pour une **cible intérieure**, l'épaisseur de la fenêtre de Ta est limitée seulement par le dépôt de puissance ; On devra toutefois augmenter l'énergie du faisceau incident de manière à avoir au début de la cible l'énergie optimale déterminée antérieurement. La puissance maximale de 3350W correspond, pour une intensité maximale de 270µAe, à une épaisseur de ~14,5 µm Ta (24,4mg/cm²). Habituellement on utilise une fenêtre de 5µm Ta, donc le dépôt de puissance ne pose pas des problèmes dans ce cas-la. Si on pourra monter à 1mAe (cas de la réaction ³⁶Ar + ⁵⁸Ni et en supposant qu'on ait une cible qui supporte cette intensité), on serait limité a une épaisseur de ~3,5µm pour la fenêtre de tantale.

c) Pour calculer la puissance déposée par le faisceau dans le stoppeur, on utilise la distribution des particules du faisceau au niveau du stoppeur (obtenue avec le code), une fois qu'on a choisi l'épaisseur du stoppeur en fonction de la distribution énergétique des résidus sur le stoppeur (donnée aussi par le code, figures 8.18-21).



À partir des figures 8.18 et 8.19, l'épaisseur du stoppeur pour la réaction 36 Ar + 58 Ni est de :

- 1,5μm (3,1mg/cm²) Re pour une cible de «1•FWHM » ;
- $2,7\mu m (5,5mg/cm^2)$ Re pour une cible de « 2•FWHM ».



Figure 8.21.

À partir des figures 8.20 et 8.21, l'épaisseur du stoppeur pour la réaction 36 Ar + 58 Ni est de :

on obtient que pour la réaction ${}^{36}Ar + {}^{58}Ni$ on a besoin d'un stoppeur d'une épaisseur de :

- 1,36μm (2,8 mg/cm²) Re pour une cible de «1•FWHM » ;

- $2.45\mu m (5,04 \text{ mg/cm}^2)$ Re pour une cible de « 2•FWHM ».

Les contraintes imposées par le dépôt de puissance du faisceau dans le stoppeur sont présentées dans le tableau 8.5.

La surface sur laquelle est distribué le faisceau sur le stoppeur est donnée par le code. Pour un diamètre du faisceau sur la cible de 30mm, il aura sur le stoppeur ~40mm.

Cible		Perte énergie faisceau dans le stoppeur [MeV]	Puissance déposée par le faisceau avec intensité limité par la cible [W]	Puissance déposée par le faisceau avec l'intensité maximale [W]
58NI;	1•FWHM	23,6	425	1970
111	2•FWHM	42,2	380	3515
⁵⁴ Eo	1•FWHM	21,5	445	85
ге	2•FWHM	38,4	475	150

Tableau 8.5 : Puissances déposées par le faisceau dans le stoppeur

Les valeurs pour la puissance du faisceau sont obtenues pour un stoppeur non-troué.

Pour un diamètre du faisceau de ~45mm, la puissance rayonnée thermiquement par Re à la température optimale (2935K) est ~7400W, donc on est loin de la limite de puissance imposée par le stoppeur. En conséquence, dans ce cas-la on n'a pas besoin d'utiliser un stoppeur troué. En général, on choisit le pourcentage du faisceau qu'on laisse passer par le trou en fonction de la puissance maximale dont le stoppeur peut tenir.

En plus, si on utilise un stoppeur constitué des plusieurs feuilles, on peut encore augmenter la puissance rayonnée.

Il reste pourtant à estimer les limites en intensité en considérant une forme plus exacte pour le faisceau.

8.7. Le choix de la réaction

Réacti	on	³⁶ Ar+ ⁵⁸ Ni	⁴⁰ Ca + ⁵⁴ Fe
Canal évapora	ition	2n	2n
Énergie faisceau	1FWHM	125	135
[MeV]	2FWHM	135	145
Épaisseur cible	1FWHM	1,36	1,07
[µm]	2FWHM	2,72	2,18
Température fusior	cible [K]	1738	1808
Puissance maximale [W]	e rayonnée	270	310
Intensité maximale	1FWHM	216	269
du faisceau (µAe)	2FWHM	108	161
Distribution angula	ire Teta[º]	0÷4	0÷4
Section efficace ma résidu [µb	ximale du]	160	60
Rapport atomes faisceau/résidus	1FWHM	7,0·10 ⁸	2.3·10 ⁹
produits	2FWHM	$5,4.10^{8}$	1,6·10 ⁹

Les propriétés des deux réactions analysées jusqu'ici sont résumées dans le tableau 8.4.

Réaction		³⁶ Ar+ ⁵⁸ Ni	⁴⁰ Ca + ⁵⁴ Fe
Taux maximal de production ⁸⁰ Zr	1FWHM	1,6·10 ⁵	5,6·10 ⁴
(pps)	2FWHM	1,04·10⁵	4,8·10 ⁴
Taux limité par	1FWHM	-	1,04·10 ⁴
LINAG	2FWHM	-	1,5·10 ⁴
		0	0
Résidus arrêtés dans la cible (%)		0	0
7		1,5	1.4
Epaisseur de tantale traversée par tous les résidus (µm) (pour une cible extérieure)		2,7	2.4

Tableau 8.4 : Comparaison des réactions

On peut observer que, pour les deux réactions, on peut mettre la cible hors de la cavité chaude. Le meilleur taux de production pour ⁹²Pd est pour la réaction ³⁶Ar + ⁵⁸Ni, avec une cible de 1,36 μ m (« 1·FWHM »).

Si on tient compte de la limite d'intensité maximale estimée pour SPIRAL2 pour le 40 Ca (50µAe), on a une différence d'un facteur 10 dans la production du 92 Pd.

La limite d'intensité pour ³⁶Ar est donnée par la puissance déposée dans la cible de production. Au cas où on pourrait utiliser l'intensité maximale estimée pour ³⁶Ar (1mAe), on aurait un taux de production du ⁹²Pd, arrêté dans le stoppeur, de **7,4·10⁵pps**.

Le résidu a des faibles angles de recul. Cependant, comme un stoppeur non-troué peut être utilisé, ceci n'est pas un problème et est même un avantage car on pourra arrêter tous les produits dans le stoppeur et même éventuellement réduire le volume de la cavité chaude en réduisant le rayon du stoppeur.

De plus, on peut augmenter la taille du faisceau sur la cible pour augmenter l'intensité. La limite sera imposée par la possibilité de réaliser la cible en grande taille (éventuellement sur une roue) et par l'effusion du produit dans la cavité chaude (si on n'utilise pas un stoppeur troue et donc on n'utilise pas la distribution angulaire du résidu, la hauteur de la cavité sera comparable avec le diamètre de la cible).

9. La production du ¹¹⁴Ba

Pour la production du ¹¹⁴ Ba, on a analysé la réaction ⁵⁸Ni + ⁵⁸Ni \rightarrow 2n + ¹¹⁴Ba. Cette réaction a déjà été utilisée pour la production du ¹¹⁴ Ba, à GSI ([Gug95], [Gug97], [Jan97], [Maz02]).

9.1. La fonction d'excitation du ¹¹⁴Ba pour la réaction ⁵⁸Ni+⁵⁸Ni



9.2. La distribution angulaire du ¹¹⁴Ba à l'émission



Dans la figure 9.2 on a représenté les distributions angulaires d'évaporation du ¹¹⁴Ba obtenues avec le code PACE pour différentes positions de l'interaction dans la cible. La figure 9.3 présente les probabilités d'émission du ¹¹⁴Ba a différents angles (figure 9.2 normalisée au nombre des résidus)

La distribution angulaire est utilisée comme donnée d'entrée pour le code Monte Carlo (chapitre 6).





La distribution en énergie du ¹¹⁴Ba, juste après l'évaporation des particules légères (sans ralentissement dans la cible) est présentée dans la figure 9.4 ; dans la figure 9,5, les valeurs sont renormalisées au nombre des résidus. La position du maximum en énergie des 114Ba dépends du lieu d'interaction dans la cible.



Figure 9.6: La diffusion du ¹¹⁴Ba dans différentes matrices

9.4. La diffusion du ¹¹⁴Ba

Les données accessibles dans la base de données TARGISOL sont présentées dans la figure 9.6 et le tableau 9.1.

Matrice	Domaine de Températur e	D ₀ [m ² /s]	E ₀ [KJ/mol]	Référence
Mg	1273-1997	3,2E-05	326	[Har67]
Mg	1273-1997	1,5E-06	179	[Har68]
Mg	2073-2673	2,1E-05	338	[Har72]
Hf	1700-2020	7,4E-05	297	[Bey76]
Та	1700-3100	2,1E-05	334	[Bey77]
Та	2450-3150	5,1E-05	94	[Bey77]
Та	1700-3100	5,1E-05	395	[Bey77]
W	2400-3100	1,1E-05	619	[Bey76]
W	2400-3100	2,8E-05	620	[Bey76]

Tableau 9.1 : Les coefficients d'Arrhenius mesurés pour ¹¹⁴Ba

9.5. L'effusion du ¹¹⁴Ba

Les données accessibles dans la base de données TARGISOL sont présentées dans la figure 9.7 et le tableau 9.2.

Elément	Température Fusion [K]	Température Maximale,T (par défaut) [K]	Enthalpie d'adsorption [kJ/mol]	Enthalpie d'adsorption [eV]	Temps de collage à T _m [s]
Nb	2741	2330	258	2,67	6,08E-08
Та	3269	2779	388,6	4,03	2,02E-06
W	3680	3128	439,9	4,56	2,22E-06
Мо	2890	2457	349,1	3,62	2,64E-06
Zr	2125	1806	275,4	2,85	9,24E-06
Ir	2716	2309	358,6	3,72	1,30E-05
Ti	1933	1643	281,1	2,91	8,65E-05
Ni	1726	1467	272,1	2,82	4,88E-04
Re	3453	2935	545.9	5.66	5.20E-04

 Tableau 9.2: Les temps de collage du ¹¹⁴Ba sur la surface des différents matériaux, à leur température optimale

 Ba Effusion



Figure 9.7 : La dépendance de température des temps de collage pour ¹¹⁴Ba

On peut voir qu'on a la meilleure effusion pour le niobium, mais il reste à vérifier s'il a aussi un bon coefficient de diffusion pour Ba. Sinon, on peut choisir un stoppeur en tungstène ou en tantale.

9.6. Analyse des dépôts de puissance

a) *Dépôts de puissance dans la cible.*

Le tableau 9.3 présente :

- La puissance rayonnée possible pour une cible de diamètre 30mm en supposant une température maximale de 85% de la température de fusion de la cible de Nickel et l'intensité maximale qui en résulte,

- La puissance déposée par un faisceau d'intensite maximale estimee pour SPIRAL2 $(50 \mu Ae)$ et le diamètre minimal pour une cible qui peut accepter cette puissance.

Cible ⁵⁸ Ni	Puissance rayonnée par une cible de 30mm diamètre [W]	Intensité maximale pour cible de 30mm diamètre [μAe]	Puissance déposée par 50µAe de faisceau [W]	Diamètre minimal de la cible pour supporter 1mAe [mm]	
1•FWHM	620	684	46	12,5	
2•FWHM	030	342	92	18	
Tableau 9.3					

Comme pour ⁵⁸Ni, l'intensité maximale estimée pour SPIRAL2 est estimée a 50µAe, on n'a pas des contraintes de puissance pour cette intensité. On peut meme reduire la taille de la cible (si on n'a pas des contraintes imposées par les autres materiaux), pour pouvoir reduire les dimensions de la cavite chaude (et donc ameliorer l'effusion).

Dans le tableau 9.4 on a les rapports entre le nombre d'atomes de ¹¹⁴Ba produits dans la cible et le nombre d'atomes du faisceau (calculés avec le code Monte Carlo) et les taux résultants du ¹¹⁴Ba pour l'intensité maximale de 50 μ Ae .

Cible ⁵⁸ Ni	Raport residu /faisceau	Taux production ¹¹⁴ Ba		
1•FWHM	$1,3x10^{-10}$	$2,13x10^{3}$		
2•FWHM	$1,7x10^{-10}$	$2,79 \times 10^3$		
Tableau 9.4				

b) *Dépôts de puissance dans la fenêtre.*

Cible extérieure.

Pour choisir l'épaisseur de la fenêtre, on utilise la distribution en énergie du Ba après la cible (figures 9.8-9.9), obtenues avec le code Monte Carlo (décrit dans le chapitre 6).



La distribution energetique du 114Ba sur la fenetre pour une cible de 58Ni "2•FWHM"



À partir de ces figures, on peut estimer les épaisseurs de la fenêtre de tantale pour lesquelles on n'a aucune perte de résidus dans la fenêtre.

Pour des fenêtres plus épaisses, le code de calcul donne le pourcentage des résidus arrêtés dans la fenêtre.

Les résultats sont présentés dans le tableau 9.5. La puissance déposée est calculée à partir des intensités maximales du tableau 9.3 qui suppose un état de charge 19+ pour le faisceau de Ni. Les épaisseurs présentées pour la fenêtre sont les valeurs maximales pour lesquelles on ne perd pas de résidus dans la fenêtre.

Cible ⁵⁸ Ni	Épaisseur maximale fenêtre Ta [µm]	Perte énergie d'un ion de Ni dans la fenêtre [MeV]	Puissance déposée par un faisceau de 50µAe [W]	Diametre minimal du faisceau sur la fenetre pour supporter la puissance [mm]
1•FWHM	5,8	132	240	8
2•FWHM	5	115	105	6

Tableau 9.5.

La puissance maximale rayonnée par une surface de 30mm de Ta est de 3350W (à la température de 2779K), donc on est limité par la puissance déposée dans la fenêtre par un faisceau de 50μ Ae.

En cas d'intensité plus élevée (ce qui semble actuellement improbable), pour ne pas avoir des problèmes avec le dépôt de puissance, on pourra augmenter la taille du faisceau sur la fenêtre ou utiliser une fenêtre de tantale plus mince.

On peut voir que la taille minimale du faisceau necesaire pour dissiper la puissance deposee est plus petite que celle obtenue pour la taille sur la cible, donc on peut utiliser les tailles du faisceau presentées dans le tableau 9.3.

Pour une **cible intérieure,** la seule contrainte est la puissance déposée par le faisceau, donc les mêmes restrictions son valables. Cependant la température de la cible sera la contrainte principale.

c) *Dépôts de puissance dans le stoppeur*.

10000

0

0

2

Les figures 9.10 et 9.11 présentent les distributions en énergie du résidu après la fenêtre d'entrée de la cavité.



Ces distributions permettent de choisir les épaisseurs nécessaires au stoppeur en Nb. Une estimation des puissances déposées dans le stoppeur et les contraintes résultantes sont présentées dans le tableau 9.6

6

Energie [MeV] Figure 9.11 8

10

12

4

Cible ⁵⁸ Ni	Epaisseur stoppeur Nb	Perte énergie faisceau dans le stoppeur [MeV]	Puissance par le f [V	e déposée 'aisceau V]	Diametre minimal du faisceau sur le stoppeur [mm]
1.EWUM	3.5	62	50µAe	165	10
	5,5		684µAe	2220	35
2•FWHM 2,4	2.4	41	50µAe	110	8
	2,4		342µAe	740	20
Tableau 9.6					

Pour l'intensité de 50μ Ae, on n'a pas des contraintes à cause du dépôt de puissance. On peut donc utiliser un stoppeur non troué, avec un diametre minimal presenté dans le tableau 9.6.

La contrainte principale reste le depot de puissance dans la cible, donc les diametres de la fenetre et du stoppeur seront choisis a partir du diametre du faisceau sur la cible et en considerant les distributions angulaires et le straggling dans les materiaux.

9.7. Les polluants de la reaction

Dans le tableau 9.7 on a les polluants de la reaction de fusion-evaporation ⁵⁸Ni+⁵⁸Ni, au milieu de la cible (215MeV).

Les energies du faisceau dans la fenetre et dans le stoppeur sont en-dessous de la bariere, donc on n'as pas d'autres polluants.

Α	Element	Pourcent	Section efficace [mb]
114	Ва	0.01%	0.0339
111	Sb	0.01%	0.0157
108	Sn	0.01%	0.0287
107	Те	0.01%	0.0261
109	Те	0.02%	0.0574
113	Cs	0.02%	0.0496
103	In	0.03%	0.0835
111	Xe	0.11%	0.295
112	I	0.49%	1.27
114	Cs	0.50%	1.3
110	I	0.82%	2.13
108	Те	0.94%	2.46
104	Sn	1.29%	3.38
111	I	1.42%	3.69
106	Sn	1.43%	3.72
114	Xe	1.59%	4.14
113	Xe	4.45%	11.6
107	Sb	6.80%	17.7
112	Те	7.21%	18.8
109	Sb	8.99%	23.4
113	I	23.60%	61.7
110	Те	40.20%	105
	Т	ableau 9.7.	
9.8. Conclusion

Le résumé des paramètres choisis pour le faisceau et les matériaux sont présentés dans la figure 9.12.

Comme les cibles de Nickel ont des points de fusion relativement bas (T=1728K), il semble raisonnable de privilégier la cible hors de la cavité comme à GSI.

Dans la mesure où on n'a pas besoin d'utiliser un stoppeur troué, le stoppeur, la cavité et la fenêtre de tantale peuvent être du même ordre de grandeur que la taille de la cible (presentees dans le tableau 9.3).

Les calcules concernant les intensites maximales du faisceau sont a refaire en utilisant une forme plus correcte pour le faisceau.

L'ordre de grandeur des intensités des faisceaux métalliques qu'on espère atteindre à LINAG est de 50 μ Ae. Cependant le Nickel étant relativement lourd (Z=28) et Linag étant limité dans un premier temps à A/Q=3, ceci veut dire une charge de l'ordre de 19+ ce qui est relativement élevé pour un Nickel.



<u>Figure 9.12</u> : Les paramètres choisis pour la réaction ${}^{58}Ni + {}^{58}Ni \rightarrow 2n + {}^{114}Ba$

Il serait intéressant de connaître les caractéristiques du faisceau GSI (état de charge, taille du faisceau sur la cible....) pour estimer à quel paramètre est dû la limitation en intensité de leur expérience.

Dans tous ces calculs, l'usure de la cible et à moindre degré des fenêtres et stoppeurs n'est pas prises en compte et serait à évaluer.

10. Conclusion

Le but de ce travail était de regarder la faisabilité de faisceaux radioactifs riches en protons par la méthode ISOL, et ce à partir de fusion –évaporation induites par les faisceaux d'ions lourds de LINAG.

Une étude bibliographique a été effectuée concernant :

- Les dispositifs ISOL à l'UNILAC, à Oakridge et à Louvain-la-Neuve
- Les sections efficaces de productions expérimentales et simulés.

Les avantages et inconvénients des géométries possibles ont été présentés. Un code a été écrit pour optimiser la géométrie et chiffrer les pertes de production concernant l'arrêt des résidus dans un stoppeur situé dans une cavité chaude.

Différentes réactions ont été analysés en détail quand à la réaction, la géométrie et aux pertes pour la production de ⁸⁰Zr, ⁹²Pd et ¹¹⁴Ba.

Plusieurs points critiques, demandant de la R&D et des tests, concernent :

- La réalisation de cible et de stoppeur de l'ordre du µm devant supporter des intensités importantes, et une tenue à l'usure permettant de fonctionner dans la durée
- La sortie sous forme moléculaire de ces éléments par ajout de gaz à la température adéquate pour former des molécules stables

Au vue de la réactivité de ces éléments qui va nécessiter des compétences en chimie à haute température et induire des pertes d'efficacité de production pour la méthode ISOL, la méthode en vol mériterait aussi une pré-étude.

Dans la mesure où les cibles risquent de ne pas supporter l'intensité, ou risque de se détériorer rapidement (sputering), les possibilités de fusion - évaporation induite par des faisceaux radioactifs lourds peuvent présenter un intérêt certain même si l'intensité de ce faisceau est faible. Un faisceau de ⁵⁶Ni (T_{1/2}=6j), réalisé en batch mode [Reh00], sera-t-il suffisamment intense pour étudier la radioactivité cluster des ^{112,114}Ba ?

Du côté riche en neutron, il serait aussi intéressant comme l'a proposé D. Verney de regarder le Deep Inelastique associé à la méthode ISOL.

Remerciements : Ce travail a bénéficié de nombreuses discussions avec le groupe GPI du GANIL et de physiciens du GANIL.

11. Références :

[Audi93] G.Audi, A.H.Wapstra, Nucl.Phys.A565, 1 (1993)

[Alt96] : G.D. Alton et al, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. A382 (1996) 207

[Alt96-2] : G.D. Alton et al, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. A382 (1996) 225

[Alt96-3] : G.D. Alton et al, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. A382 (1996) 232

[Alt96-4] : G.D. Alton et al, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. A382 (1996) 237

[Alt99] : G.D. Alton et al, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. A438 (1999) 190

[Alt99-2] : G.D. Alton et al, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. A438 (1999) 210

[Anne88] R.Anne et al., NIM B34 (1988) 295-308;

[Bass77] R. Bass, Phys. Rev. Lett. 39, 265 (1977)

[Bey76] Beyer; ZFK-320 317 (1976) 2.

[Bey76] Beyer, Novgorodov; Radiochem. Radioanal. Letters 27 (1976) 341.

[Ber05] Patrick Bertrand, communication privée.

[Bil03] : J.C. BILHEUX, PHD Thesis, Uninersité de Versailles-Saint-Quentin, France, Mai 2003

[But91] R.Butsch et al., Phys.Rev.C 44,1515 (1991);

[Cha96] M.Chartier et al, Phys.Rev.Lett.77, vol.12, 2400 (1996)

[Com00] M.La Commara et al, Nucl.Phys.A669,43(2000)

[Das93] C.H.Dasso, S.Landowne and A.Winther, Nucl.Phys A 405, 381 (1993)

[Ein78] Einzinger, Mundy; Phys. Rev. B 17 (1978) 449.

[Fri77] H.U.Friebel et al., Proc.6th World Conf. of the INTDS, Berkeley, CA 1977, p105

[Gae97] M. Gaelens et al., Nucl. Instr. and Meth. B126 (1997) 125

[Gae99] Gaelens M. et al., High Efficiency Release Targets for Radioactive Ion Beams : A Different Approach. Conference on Applications of Accelerators in Research and Industry (CAARI98), Denton, Texas, USA, 1998, AIP CP475, p302, 1999

[Gav80] Gavron, A., Phys. Rev. C 21, 230 (1980);

[Gom84] J.Gomez del Campo et al., Phys.Rev. C 29, (1984) 1722

[Gom91] J.Gomez del Campo et al, Phys.Rev.C 43 (1991)2689

[Gug95] : A. Guglielmetti et al., Nucl. Phys. A583 (1995)867

[Gug95] : A. Guglielmetti et al., Phys. Rev. C52 (1995)740

[Gug97] : A. Guglielmetti et al., Phys. Rev. C. 56 (1997)R2912

[Gug01] : A. Guglielmetti et al., Eur. Phys. J. A. 12 (2001)383

[Gre05] John P.Greene, communication privée (greene@phy.anl.gov)

[Hag99] K.Hagino, N.Rowley and A.T.Kruppa, Comput.Phys.Commun.123, 143 (1999)

[Jan97] Z.Janas et al., Nucl.Phys.A 627 (1997) 119-136

[Jan05] Z. Janas et al., Eur. Phys. J. A 23, 197 (2005)

[Kir92] Kirchner; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 70 (1992) 186.

[Kir90] : R. Kirchner, Nucl. Inst. Methods in Phys. Res. A292 (1990)203

[Kir97] : R. Kirchner, Nucl. Inst. Methods in Phys. Res. B126 (1997)135

[Ki03] R. Kirchner, NIM B 204 (2003) 179

[Ki05] R. Kirchner, communication privée

[Kro05] A.Kronenberg, communication privée (<u>kronenberga@ornl.gov</u>)

[Kue72] P.R.Kuehn et al., NIM 102 (1972) 403

[Kuk05] : S.N. Kuklin et al., Phys. Rev. C71, 014301 (2005)

[Kra79] A.J.Krappe, J.R.Nix, A.Sierk, Phys.Rev.C 20, 992 (1979)

[LLN] : http://www.cyc.ucl.ac.be/

[Loi96] : M. Loiselet et al. draft version of the article presented as an invited paper at the Cyclotron Conference in Cape Town South Africa. LOISELET@CYC.UCL.AC.BE.M. Loiselet et al., Production and Acceleration of Radioactive Beams at Louvain-la-Neuve 14th International Conference on Cyclotrons and their Application, Cape Town, South Africa, 1995, World Scientific, p629,1996

[Les86] K.T.Lesko et al., Phys.Rev.C 34, 2155 (1986)

[Lis87] C.J.Lister et al, Phys.Rev.Lett.59, vol.12, 1270 (1987)

[Maz02] C.Mazzochi, Z.Janas et al, Phys.Lett.B 532 (2002) 29-36

[Mar05] A. Marchix et D. Boilley, private communication

[Man95] G.Manente, D.Blunt, NIM A 362(1995) 94-97

[Mai91] H.J.Maier, NIM A 303(1991) 172

[Mye77] W.D.Myers, "Droplet Model of the Atomic Nucleus (IFI/Plenum, New York, 1977)

[Neg05] : F. Negoita, communication privée

[Oga94] : Y. T. Oganessian et al. Z. Phys. A349 (1994) 341

[Ogl] A. Oglobin et al., WWW.KIAE.RU/RUS/INF/NEW/russia.doc

[ORNL] : http://www.phy.ornl.gov/hribf/

[Pie76] S.Pieper, M.H.Macfarlane and M.Rhoades-Brown, Argonne Report ANL-76-11, 1976, revised

[Pru82] Pruthi, Agarwala ; Philos. Mag. 46 (1982) 841.

[Reh00] : K. E. Reh et al., 1Ncl. Inst. Methods in Phys. Res. A449 (2000)208

[Reis81] W.Reisdorf, Z.Phys. A 300 (1981) 227

[Rou70] Roux, Vignes; Rev. Phys. Appl. 5 (1970) 393.

[Ros84] Rossbach, Eichler; Report Zentralinstitut fuer Kernforschung Rossendorf bei Dresden Zfk-527 (1984) 1.

[Res00] J.J. Ressler et al., Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 2104

[Sat79] Sathyraj, Ablitzer, Demangeat; Philos. Mag. 40 (1979) 541.

[Schu95] R.Schubart et al, Z.Phys.A 352, 373 (1995)

[Sto01] A. Stolz et al., International Nuclear Physics Conference, INPC 2001, edited by E.Norman et al., 2001

[Sto02] J.O.Stoner Jr., NIM A 480 (2002) 44-49

[Tre97] : S. P. Tretyakova et al., Il Nuovo Cimento vol.110 A (1997) 1043

[Zieg85] Ziegler, Biersack et Littmark, Stopping and Ranges of Ions in Matter, vol.1, Pergamon Press, New York, 1985;