HAL open science

Production de radioisotopes : de la mesure de la section efficace à la production

Eric Garrido

To cite this version:

Eric Garrido. Production de radioisotopes : de la mesure de la section efficace à la production. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Nantes, 2011. Français. NNT : . tel-00662649v2

HAL Id: tel-00662649

https://theses.hal.science/tel-00662649v2

Submitted on 24 Oct 2012

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.

UNIVERSITÉ DE NANTES
UFR SCIENCES ET TECHNIQUES

ÉCOLE DOCTORALE
MATIÈRE, MOLÉCULE, MATÉRIAUX EN PAYS DE LA LOIRE

Année 2011

N° attribué par la bibliothèque

Production de radio-isotopes : de la mesure de la section efficace à la production

THÈSE DE DOCTORAT
Discipline : Matière et Matériaux
Spécialité : Physique nucléaire

Présentée
et soutenue publiquement par

Éric GARRIDO

Le 10 novembre 2011, devant le jury composé de

Président	Jacques	MARTINO,	DR	–	IN_2P_3
Rapporteurs	Jean	COLIN,	Professeur	–	LPC Caen
	Gérard	MONTAROUX,	DR CNRS	–	LPC Clermont
Examinateurs	David	BRASSE,	CR CNRS	–	IPHC Strasbourg
	Lilian	MARTIN,	CR CNRS	–	SUBATECH
Directeur de thèse	Philippe	EUDES,	Professeur	–	SUBATECH
Co-encadrant de thèse	Ferid	HADDAD,	MC	–	SUBATECH

Remerciements

"J'ai inventé une lampe de poche qui fonctionne à l'énergie solaire,
elle n'a qu'un dernier défaut, elle ne marche qu'en plein soleil."
Gaston Lagaffe, source d'inspiration.

J'ai la sensation, qu'après le titre et le résumé, la page des remerciements est la plus lue d'un manuscrit de thèse. Afin donc de ne pas décevoir mes lecteurs, je me soumets à cet exercice de style, d'autant que ces 3 années de travail n'ont jamais été traversées en solitaire.

Ainsi je commencerai simplement par remercier grandement Ferid, qui fut l'un des principaux artisans de la réussite de cette thèse. Il a toujours su me motiver et remotiver, notamment lorsque certaines de mes courbes m'apparaissaient plus comme de vulgaires montagnes russes que des résultats de physique probants. Sa bonne humeur et son entrain perpétuel ont toujours favorisé les discussions et le développement de cette thèse au delà du plan initial. Des remerciements sincères, aux membres du jury que ce soit Jacques Martino, le président, Jean Colin et Gérard Montarou, ayant accepté et remplis leur rôle de rapporteurs, ainsi qu'à David Brasse et Lilian Martin.

J'ajoute également en première ligne ma famille, que ce soit mon père, physicien en herbe, ma mère, mon frère et même mes chiens. Ils m'ont épaulé dans mon travail et ma vie, sont présents depuis le début, et pas uniquement celui de cette thèse...bon peut-être pas les chiens certes. Merci aux amis : Alexia, Sylvain, Émilie, Julien, Ronan et tous les amoureux de Crevette.

Même si nous ne retrouvons qu'un seul nom en première page, une thèse ne se réalise jamais seul. Aussi aimerai-je associer à la concrétisation de la mienne certains de mes collègues, m'ayant, de près ou de loin, soutenu au cours de ces 3 années. Notamment le sémillant Dr. Arnaud Guertin dont l'aide, plus présente jour après jour, m'a toujours été d'un grand apport. Nous pouvons ajouter le Dr. Jérôme Donnard avec qui, et toujours assistés de notre précédent collègue, nous avons réalisé des exploits d'une portée scientifique peut-être restreinte mais dont Julien Lepers et Nagui se souviendront longtemps [a].

Je n'oublierai pas de saluer la mémoire des anciens thésards et nouveaux docteurs, ceux qui sont restés : Samuel et de nouveau Jérôme. Ou alors Thibault, Thomas, Sarah, Nicolas, Guénolé et Sébastien du coté des fuyards. Et les transfuges ou anciens fuyards comme Baptiste et Arnaud. Je n'oublie pas mes collègues de pénitence : Vincent, Van Minh, Tug-

a. Michelito's rules

dual, Ludivine, Rudy, Hamza. Les deux premiers ayant partagé mon bureau ainsi que mon enrichissante compagnie. Saluons également ceux arrivés en cours de route comme Diana, Jean-Baptiste, Ahmed, Abdul Fattah, Francis, puis les Anthony, Antoine et autres Alexis et Diego. Et enfin, Jennifer, Maxime, Benjamin, Aurélien dit Bobby, Anaïs et Zakari fraîchement débarqués, mais que je n'ai déjà que trop supportés pour certain(e)s.
Pour compléter les hommages à ce couloir du premier étage, je remercierai tous ces collègues dont la porte fut toujours ouverte, au propre comme au figuré : Philippe mon directeur de thèse, François, Lilian un des deux meilleurs membres de mon comité de suivi de thèse, Vincent, Benoît grand fan de Walter White, Nicolas, Olivier, Noël qui m'a lancé dans le bain de mes premiers enseignements, Jacob, Dominique même si j'ai pas toujours compris ce qu'il me racontait, Taklit, Ahmed qui m'aura encadré durant mon premier stage à SUBATECH et donné envie d'y poursuivre mon apprentissage, Frédéric, Pascal, Virginia, Xavier, Élisabeth, l'autre Éric, désolé pour les mails qui m'étaient destinés et ont fini dans ta boîte, Jean-Pierre et son aide précieuse sur GEANT$_4$, Muriel, Lydie, Richard qui se débrouillait pas trop mal en badminton et enfin toute la fine équipe des secrétaires.

Le laboratoire ARRONAX n'est pas non plus étranger au très bon déroulement de cette thèse. Que ce soit l'enthousiaste Dr. Charbel Koumeir qui m'a fait participer à ses expériences et avec qui il est toujours agréable de discuter. Cyrille, Johann et Thomas, dont les noms sont cités plus loin dans ce manuscrit et qui m'ont apporté leurs aides et connaissances en chimie. Ces remerciements concernent également Nathalie, Valérie, Nadia, Anne-Cécile, Cécile et Marcel.
Un petit merci particulier aux deux SPR, Caroline et Laurent, en souhaitant que mes tirs et la gestion des déchets générés ne leur aient pas donné trop de sueurs froides ou de paperasse [b].
Saluons également Freddy et les opérateurs, Christophe, Erwan et Sébastien ainsi que Jean-Baptiste pour leur maîtrise de la bête et/ou les réparations effectuées afin d'assurer mes tirs. Toujours à ARRONAX un dernier merci au Pr. Jean-François Chatal, à Renaud, Céline, Stéphane et Nicolas.

Enfin, et pour être sûr au final de n'oublier personne, je tiens à saluer l'ensemble du personnel des laboratoires SUBATECH, comme les services administratif, mécanique et informatique [c], et ARRONAX ainsi que de l'École des Mines de Nantes, la cafétéria, le self ou encore la salle de sport, pour leurs accueils.

Bref ce sont un peu chacune de ces personnes qui m'ont permis de passer 3 années vraiment agréables et couronnées par l'accomplissement de cette thèse.

« Je vous remerciements. »

Dr. Michel

PS : Sous oublier un hommage à Omar & Fred et Mozinor.

b. Mais si c'était le cas je ne pense pas que ça m'empêcherai de dormir.
c. Jean tu peux récupérer mon ordinateur

Table des matières

1 Présentation du cadre de la thèse **1**
1.1 La médecine nucléaire . . . 1
1.1.1 Utilisation en imagerie . . . 1
1.1.2 Utilisation en thérapie . . . 2
1.1.3 Principe de la vectorisation . . . 5
1.1.4 Nécessité d'un large choix de radio-isotopes . . . 6
1.2 ARRONAX . . . 6
1.3 Axes de recherche de cette thèse . . . 9
1.3.1 Calcul des prévisions de production . . . 10
1.3.2 Mise en place d'une méthode de mesure de sections efficaces . . . 10
1.3.3 Approche théorique du calcul de sections efficaces . . . 11

2 Calcul de productions d'un radio-isotope **13**
2.1 Estimation des pertes d'énergies . . . 14
2.1.1 Approximation de Bethe-Bloch . . . 14
2.1.2 Le code de calcul des pertes d'énergies : SRIM . . . 15
2.2 Intégration des sections efficaces . . . 15
2.2.1 Utilisation des valeurs tabulées par l'IAEA . . . 15
2.2.2 Comparaison des prédictions . . . 15
2.3 Ajustement des sections efficaces . . . 18
2.3.1 Ajustement polynomial . . . 18
2.3.2 Utilisation des *Splines* . . . 19
2.3.3 Calcul de production . . . 19
2.4 Mesure expérimentale de sections efficaces . . . 22
2.4.1 Passage en cible mince . . . 22
2.4.2 Multiplication du nombre de points . . . 23
2.4.3 Dispositif expérimental . . . 23

3 Validation par simulation GEANT$_4$ **27**
3.1 Simulations GEANT$_4$ . . . 27
3.1.1 Présentation GEANT$_4$ . . . 27
3.1.2 Modèles des listes physiques . . . 28
3.1.3 Définition de la géométrie . . . 29
3.1.4 Définition du faisceau initial . . . 29
3.2 Résultats des simulations . . . 30
3.2.1 Caractérisation des pertes de flux . . . 30
3.2.2 Étude des particules secondaires générées . . . 32
3.2.3 Prise en compte des aspects liés à la radioprotection . . . 34

3.3 Moniteur . . . 37
3.3.1 Réécriture de l'équation . . . 37
3.3.2 Choix du matériau pour le moniteur . . . 37
3.3.3 Calcul de l'erreur associée . . . 38

4 Mesure de sections efficaces du Scandium 47 41
4.1 Introduction . . . 41
4.2 Mise en place . . . 42
4.3 Détecteur et logiciel GÉNIE$_{2000}$ . . . 43
4.3.1 Étalonnage en énergie . . . 44
4.3.2 Étalonnage en efficacité . . . 45
4.3.3 Courbes d'étalonnage en efficacité . . . 47
4.3.4 Vérification de l'étalonnage . . . 47
4.3.5 Bibliothèque . . . 48
4.4 Analyse . . . 50
4.4.1 Recherche de pics . . . 50
4.4.2 Calcul de surface . . . 50
4.4.3 Extraction du bruit de fond . . . 50
4.4.4 Correction de l'efficacité . . . 51
4.4.5 Identification des pics . . . 51
4.4.6 Intérêt de plusieurs comptages . . . 51
4.5 Résultats des analyses tests . . . 53
4.6 Utilisation de la Faraday . . . 55
4.6.1 Choix de l'intégrateur de courant . . . 55
4.6.2 Problème du refroidissement . . . 55
4.6.3 *Beam-profiler* . . . 55
4.6.4 Exemple de centrage de faisceau . . . 57
4.7 Passage aux *Stacked-foils* . . . 58
4.7.1 Énergies d'irradiations des différentes feuilles . . . 59
4.7.2 Zones de recouvrements . . . 59
4.8 Problème lié à la première irradiation 35 MeV . . . 59
4.8.1 Pics sommes . . . 60
4.8.2 Surévaluation des valeurs du ^{47}Sc . . . 61
4.9 Données de sections efficaces . . . 62
4.9.1 ^{47}Sc . . . 62
4.9.2 ^{41}Ar . . . 64
4.9.3 ^{42}K . . . 64
4.9.4 ^{43}K et ^{43}Sc . . . 65
4.9.5 ^{44m,44g}Sc . . . 67
4.9.6 ^{46}Sc . . . 68
4.9.7 ^{48}Sc et ^{48}V . . . 69
4.9.8 ^{45}Ti . . . 71
4.10 Bilan et prévisions de production . . . 71
4.10.1 Analyse . . . 71
4.10.2 Calcul de production . . . 71

5 Mesure de sections efficaces du Cuivre 67 75
5.1 Introduction . . . 75
5.2 Préparation des cibles . . . 76
5.2.1 Principe de l'électrodéposition . . . 77
5.2.2 Dissolution et préparation de l'électrolyte . . . 78
5.2.3 Choix du support . . . 79

5.2.4 Forme du dépôt . . . 79
5.2.5 Réalisation des électrodépositions . . . 79
5.3 Séparation chimique . . . 81
5.3.1 Influence du ^{67}Ga . . . 81
5.3.2 Séparation par résine . . . 82
5.3.3 Protocole de séparation . . . 82
5.3.4 Rôle du traceur . . . 83
5.4 Utilisation du protocole en condition d'irradiation *Stacked-foils* . . . 84
5.4.1 Phénomène d'adsorption . . . 85
5.4.2 Nouveau protocole de séparation . . . 85
5.4.3 Création spécifique d'un traceur . . . 87
5.5 Irradiations et séparations suivant le second protocole . . . 87
5.5.1 Absorption dans la résine . . . 88
5.5.2 Calcul des passages du Cuivre et Gallium . . . 89
5.6 Données de sections efficaces . . . 89
5.6.1 Calcul d'erreur . . . 89
5.6.2 ^{64}Cu . . . 90
5.6.3 ^{67}Cu . . . 91
5.6.4 ^{66,67}Ga . . . 91
5.6.5 Sources possibles d'erreurs . . . 94

6 Étude des sections efficaces issues des moniteurs 95
6.1 Introduction . . . 95
6.2 Complétion à basse énergie . . . 96
6.2.1 Utilisation du faisceau HH^+ . . . 96
6.2.2 Récapitulation des énergies couvertes . . . 97
6.3 Données de section efficace extraites des moniteurs de Nickel . . . 97
6.3.1 ^{61}Cu . . . 97
6.3.2 ^{60}Cu . . . 102
6.3.3 ^{57}Ni . . . 103
6.3.4 ^{52m}Mn/^{52g}Mn et ^{52}Fe . . . 103
6.3.5 ^{49}Cr . . . 105
6.3.6 ^{61}Co . . . 106
6.3.7 ^{55}Co . . . 106
6.3.8 Filiation ^{58m}Co/^{58g}Co . . . 108
6.3.9 ^{56}Ni . . . 108
6.4 Données extraites des moniteurs de Cuivre . . . 109
6.4.1 ^{62}Zn . . . 109
6.4.2 ^{56}Mn . . . 109
6.4.3 ^{57}Ni . . . 111
6.4.4 ^{61}Co/^{61}Cu . . . 111
6.4.5 ^{60}Cu et ^{64}Cu . . . 113
6.4.6 ^{63}Zn . . . 113
6.5 Bilan sur les données obtenues et comparaisons réalisées. . . . 114

7 Comparaisons avec les modèles théoriques 117
7.1 Introduction . . . 117
7.2 Présentation du code TALYS . . . 117
7.3 Mise en place de la méthode . . . 119
7.3.1 Phénomène de filiation . . . 119
7.3.2 Premières comparaisons . . . 119
7.3.3 Ajustement des prévisions de TALYS . . . 122

7.3.4 Optimisation par la méthode des moindres carrés 122
7.3.5 Évolution des paramètres 122
7.4 Premiers résultats 124
7.5 Nouveaux paramètres 126
7.6 Bilan des comparaisons dans le cas du Titane 127
7.7 Étude des réactions issues des moniteurs et du ^{68}Zn 128
7.7.1 Comparaison suivant la cohérence globale du Titane 128
7.8 Perspectives pour ce travail d'ajustement de paramètres 132

Conclusion **135**

A Équation de production d'un radio-isotope **138**

B Valeurs de sections efficaces de production **141**
B.1 Sections efficaces issues du Titane 141
B.2 Sections efficaces issues du Zinc 68 143
B.3 Sections efficaces issues des moniteurs 144
B.3.1 Moniteurs de Nickel 144
B.3.2 Moniteurs de Cuivre 146

C Influence de la distance sur l'efficacité **147**

Références **153**

Chapitre 1

Présentation du cadre de la thèse

1.1 La médecine nucléaire

Au début des années 50, grâce à une meilleure compréhension des mécanismes d'interaction entre les cellules et les rayonnements, il a été possible de mettre en place une forme de médecine s'appuyant sur ces nouvelles connaissances et faisant appel à des éléments radioactifs. Cette médecine, appelée médecine nucléaire, repose essentiellement sur l'utilisation de sources radioactives, scellées ou non, dans le cadre de l'imagerie et de la thérapie internes. Elle intervient dans le diagnostic ou le traitement de diverses maladies telles que certaines affections d'origine cardiaque ou certains types de cancers.

1.1.1 Utilisation en imagerie

Le principe consiste à injecter dans le corps du patient un radio-isotope dont la décroissance va conduire à l'émission d'un ou de plusieurs photons. Ceux-ci sont détectés et analysés par un appareillage extérieur qui permet de déterminer la zone où a eu lieu la décroissance. Cela présente un grand intérêt si nous sommes capables de cibler des types de cellules particuliers. Les différentes techniques mises en œuvre dépendent de la nature de la décroissance.

Décroissance avec émission d'un photon

La technique la plus courante fait appel à une émission γ simple, c'est la scintigraphie ou SPECT [a]. L'isotope le plus souvent utilisé pour ce type d'imagerie est le ^{99m}Tc. Sa décroissance unique par transition isomérique vers l'état fondamental ^{99}Tc conduit à l'émission d'un γ de 140.51 keV dans 89.6 % des cas [b]. Sa période de 6.01 h, bien adaptée à une utilisation médicale, nécessite d'avoir recours à un générateur. Un générateur est constitué d'un support sur lequel est adsorbé le noyau père de l'isotope d'intérêt, ici le ^{99}Mo. Une élution de ce support permet d'en récupérer les noyaux fils une fois la décroissance du père réalisée. La période plus importante du ^{99}Mo, 65.94 h, permet de disposer d'une source de ^{99m}Tc durant une semaine. Le ^{99}Mo est un produit de fission de l'Uranium 235, il est créé en réacteur.

a. Single-photon emission computed tomography.

b. Le ^{99}Tc est également un radio-isotope, mais dont la période de plus de 200 000 ans prémunie d'une éventuelle contamination.

Décroissance avec émission d'un positron

La décroissance β^+ conduit à l'émission d'un positron qui, après ralentissement et annihilation avec un électron du milieu, amène à la création d'une paire de γ à 511 keV. Comme pour une scintigraphie, ces γ sont détectés et analysés par un appareillage placé autour du patient. Les propriétés de l'annihilation électron-positron font que les γ sont émis à 180 deg l'un de l'autre. La détection en coïncidence de ces photons rend possible la reconstruction de leur trajectoire. Nous obtenons ainsi une plus grande précision pour identifier la zone où a eu lieu la décroissance. De plus, les photons issus d'une annihilation positron-électron, sont plus énergétiques que ceux émis par la décroissance du ^{99m}Tc, 511 keV contre 140.51 keV. Ainsi ils sont moins sensibles au phénomène d'atténuation lors de la traversée des tissus du corps humain. Les doses à utiliser sont moins importantes que dans le cas d'une scintigraphie.

Cette utilisation de radio-isotopes β^+ intervient dans le fonctionnement de la tomographie par émission de positrons, TEP, qui consiste en une couronne de détecteurs placée autour du patient. À l'heure actuelle, le principal isotope utilisé pour cette technique demeure le ^{18}F qui, lié à une molécule analogue du glucose, forme le fluorodeoxyglucose ou ^{18}F-FDG. La grande affinité des cellules tumorales pour le glucose permet ainsi leur diagnostic. Ce sont en effet de grandes consommatrices d'énergie ce qui nécessite un apport important de glucose. Il se fixe naturellement sur le cerveau et le cœur et est éliminé par voie urinaire. En plus de la détection des tumeurs, il peut également révéler des sites inflammatoires ou infectieux.

La courte période du ^{18}F de 110 min contraint fortement son utilisation. Elle n'est possible que dans des centres situés à proximité de cyclotrons réalisant sa production. Ceux situés en France sont représentés sur la carte FIG. 1.1.

Il existe donc des zones en France non-couvertes pour l'utilisation du ^{18}F-FDG, entre Bordeaux et Clermont-Ferrand notamment.

1.1.2 Utilisation en thérapie

Il est également possible d'utiliser ces radio-isotopes pour détruire directement les cellules ciblées. Dans ce but le mode de décroissance est différent de ceux intervenant en imagerie. Les particules émises doivent avoir des effets ionisants sur la matière plus importants que ceux générés par les photons. C'est le cas pour les électrons et les particules α provenant respectivement de décroissances β^- et α.

Curiethérapie

Lorsqu'une zone à traiter est correctement identifiée, notamment grâce à l'imagerie nucléaire, il est possible d'y déposer directement les radio-isotopes. C'est le principe du traitement par curiethérapie. Des grains radioactifs, FIG. 1.2, sont placés au contact de cette zone d'intérêt. Les temps de pose, ainsi que les activités en jeu dépendent du type de traitement souhaité.

Cette méthode est couramment utilisée pour le traitement des cancers du col de l'utérus, de la prostate, du sein et de la peau.

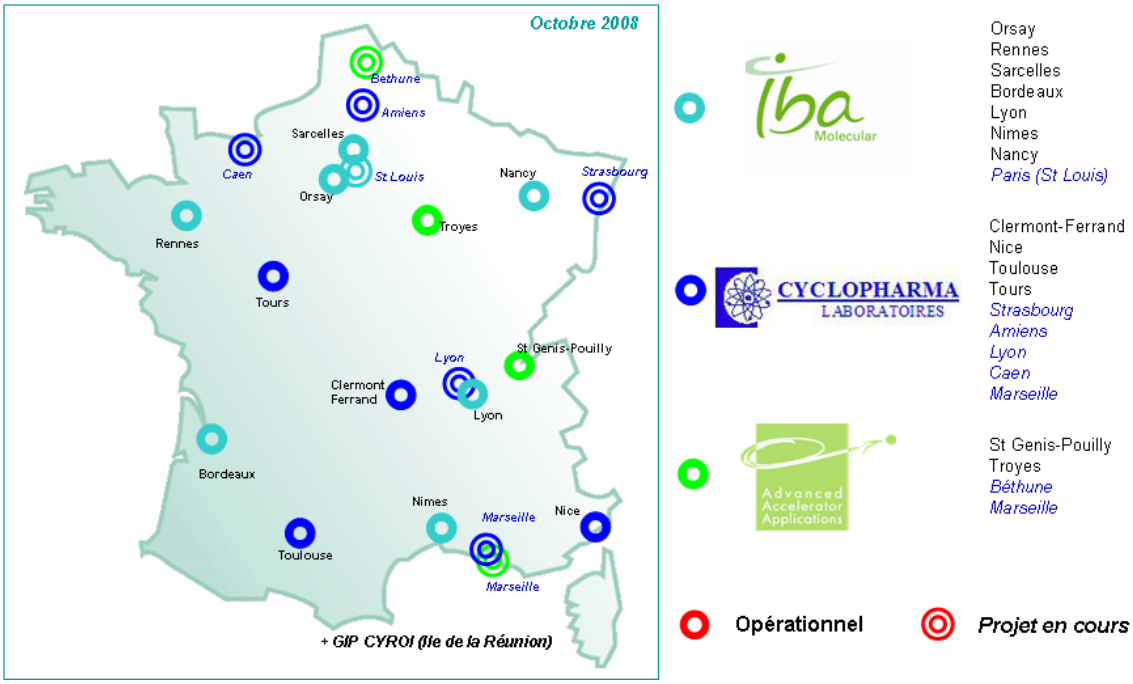

FIGURE 1.1 - Emplacement en France et en 2008 des différents cyclotrons réalisant la production de ^{18}F. Sont indiqués sur la droite les exploitants de ces accélérateurs [1].

FIGURE 1.2 - Grains radioactifs d'^{192}Ir utilisés en curiethérapie.

Thérapie interne vectorisée

Une autre méthode de traitement en médecine nucléaire consiste en l'injection des radioisotopes dans le corps du patient. Nous l'avons vu, les deux modes de décroissance intervenant en thérapie sont les décroissances β^- et α. Les particules émisses lors de ces désintégrations, un électron et une particule α, n'agissent pas de la même façon dans le corps. Comme le montre le schéma de la figure 1.3, le parcours des particules α dans la matière est

faible, inférieur à la centaine de microns.

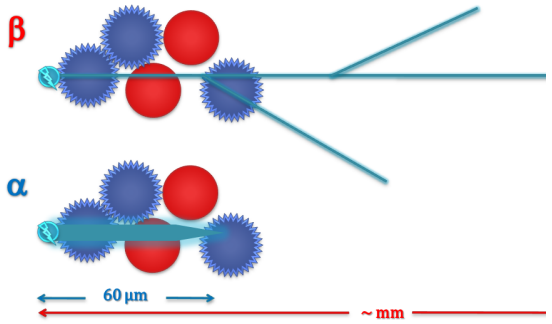

FIGURE 1.3 - Représentation des parcours moyens, à l'échelle cellulaire, des deux modes de décroissance utilisés en traitement. La taille moyenne d'une cellule saine, en rouge, ou infectée, en violet, est d'une vingtaine de microns.

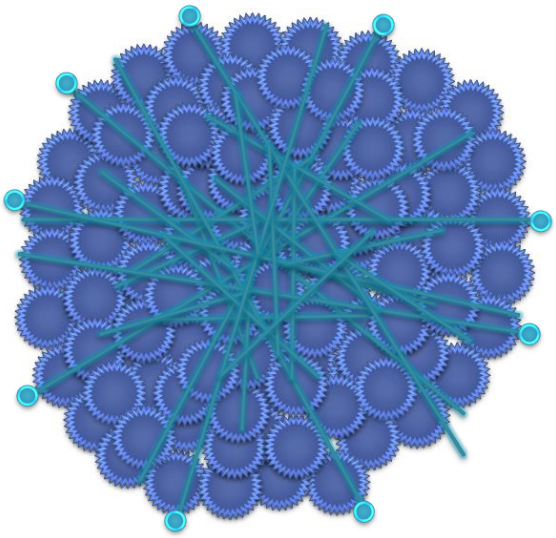

FIGURE 1.4 - Représentation du principe de tirs croisés sur les regroupements cellulaires dans le cas de la décroissance β^-. Par souci de clarté, seuls des isotopes faisant la décroissance vers le centre de la tumeur ont été représentés.

Sur cette courte distance, une énergie de quelques MeV, typiquement 5 MeV, est déposée. Ces particules sont donc caractérisées par un transfert d'énergie linéique, TEL, important. Au contraire des électrons dont le parcours long, de l'ordre du millimètre suivant leur énergie, et les énergies transférées moins importantes donnent un TEL faible.

L'utilisation de radio-isotopes ayant l'un ou l'autre des modes de décroissance dépend de la nature du traitement. Dans le cas où les cellules cibles sont disséminées, le grand TEL des particules α permet une meilleure efficacité de destruction tout en préservant les tissus sains environnants [c].

Face à des regroupements cellulaires comme une tumeur, la longue portée des électrons est un atout. Une action combinée de l'ensemble des rayonnement émis vers l'intérieur de la tumeur permet sa destruction. C'est le principe des tirs croisés schématisé figure 1.4.

Nous voyons donc que n'ayant pas les mêmes indications, les deux types de traitements sont complémentaires. Ajoutons qu'ils peuvent également être utilisés en complément des autres modalités que sont la chimiothérapie ou la radiothérapie externe. Un exemple de traitement réalisé en β-immunothérapie, faisant appel à l'^{90}Y, est présenté figure 1.5.

L'image de gauche montre le résultat d'une imagerie TEP au ^{18}F-FDG qui permet la visualisation de la tumeur, au centre du cercle. Les quatre images de droite présente le suivi morphologique par Scanner X, avant et après traitement. Une seule injection d'^{90}Y est effectuée, image centrale en haut. Sa période étant de 64.0 h, nous pouvons supposer qu'un mois après, seconde image en haut à droite, tous les radio-isotopes ont fait leur décroissance. Ce que nous observons donc sur les deux dernières images est la nécrose et la résorption de la tumeur.

c. La taille moyenne d'une cellule est d'une vingtaine de microns.

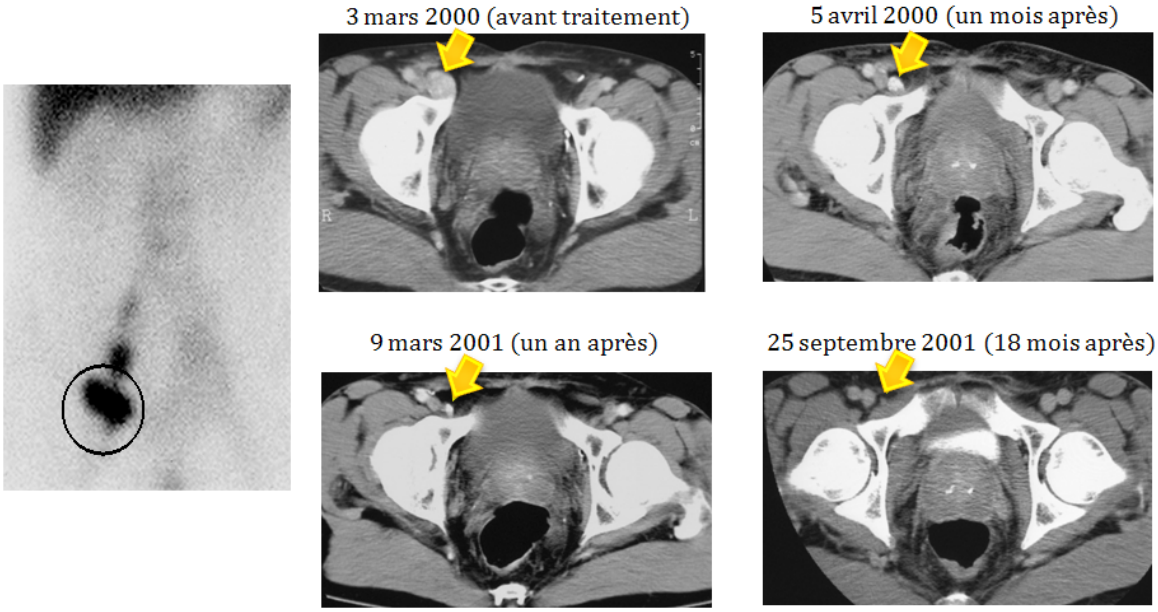

FIGURE 1.5 - Évolution d'une tumeur traitée par β-immunothérapie en fonction du temps après l'injection du radio-isotope [2].

1.1.3 Principe de la vectorisation

Que ce soit pour l'imagerie ou la thérapie, il faut faire en sorte que le radio-isotope se fixe sur des types de cellules bien précis. Seuls quelques-uns peuvent être injectés directement aux patients. Comme par exemple des isotopes de l'Iode qui naturellement vont se fixer dans la thyroïde et agir directement sur elle. Nous avons également le ^{82}Rb qui est un analogue du Potassium et donc vient se fixer sur le cœur. Cela permet son utilisation en cardiologie.

Pour les autres, il faut pouvoir les guider vers les cellules d'intérêt. Dans ce but, les radio-isotopes sont liés à une molécule vectrice dont le rôle est de cibler les cellules visées. C'est le cas de l'analogue du glucose dans l'exemple précédent du ^{18}F-FDG. Cette liaison peut nécessiter l'utilisation d'une molécule "ligand" entre le vecteur et l'isotope.

Il y a un souhait évident d'utiliser des vecteurs de plus en plus spécifiques aux cellules cibles, comme des anticorps ou des peptides. La figure 1.6 présente l'intérêt d'une meilleure spécification des cellules à traiter.

Le comportement du ^{18}F-FDG, analogue à un glucose, fait qu'il est naturellement assimilé par les cellules grandes consommatrices d'énergie, comme les tumeurs, mais également par les organes tels que le cerveau, le cœur ou le foie. Tous ces organes sont donc parfaitement visibles sur l'image (B) FIG. 1.6, ainsi que les deux tumeurs sur lequel le ^{18}F-FDG s'est fixé.

Utiliser un anticorps spécifique permet un ciblage plus précis et ainsi d'éviter une fixation sur d'autres organes. C'est le cas sur l'image (C) FIG. 1.6 où la tumeur LS était celle ciblée par le biais de l'antigène CEA qui lui est propre [3]. Nous retrouvons une grande concentration de radio-isotopes uniquement sur cette tumeur. Aucune fixation ne s'est faite sur la seconde tumeur C6 ni même sur le cœur, le cerveau ou le foie.

L'exemple précédent traduit bien le grand intérêt que présente l'utilisation d'anticorps en tant que molécules vectrices. Leur taille plus importante implique des vitesses de dé-

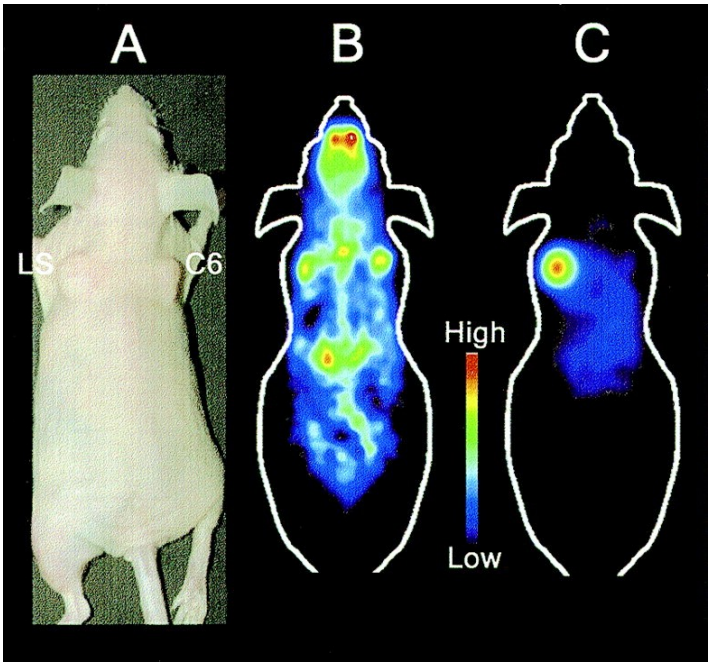

FIGURE 1.6 - Tumeurs de types LS et C6 placées sur une souris (A). Image TEP obtenue en utilisant le ^{18}FDG (B). Image TEP obtenue en utilisant un anticorps, immuno-TEP, spécifique à la tumeur LS (C) [3].

placement dans le corps plus lentes. Le temps nécessaire pour leur permettre de se fixer, appelé temps d'équilibration, est plus long. À titre de comparaison, le temps d'équilibration pour un anticorps est de l'ordre de 3 à 4 jours, celui d'une molécule plus légère, comme les peptides ou le FDG, de quelques heures [2]. Aussi, il convient d'adapter, en fonction de sa période, le choix du radio-isotope avec ce temps de trajet biologique. Le ^{18}F et sa demi-vie de 110 min ne convient pas pour une utilisation en immuno-TEP.

1.1.4 Nécessité d'un large choix de radio-isotopes

Ces différentes utilisations, thérapie ou imagerie, requièrent la disponibilité d'une grande variété de radio-isotopes. Elle doit couvrir les différents modes de décroissances, mais également un panel de périodes pour s'adapter au mieux aux temps d'équilibration du vecteur. De nouveaux isotopes sont à l'étude pour répondre aux besoins de cette médecine nucléaire. Leur production se fait par l'intermédiaire d'accélérateurs de particules, dont notamment les cyclotrons. C'est dans ce but que s'est développé le projet ARRONAX.

1.2 ARRONAX

ARRONAX ou **A**ccélérateur pour la **R**echerche en **R**adiochimie et **O**ncologie de **N**antes-**A**tlantique [d], est un accélérateur de particules de la classe des cyclotrons FIG. 1.7. Opérationnel depuis février 2011, il est installé sur le site de St Herblain sous la direction d'un groupement d'intérêt public, GIP, comprenant huit partenaires : l'Université de Nantes, l'É-

d. Aronnax étant aussi le nom du spécialiste de la faune sous marine dans « 20 000 lieues sous les mers », œuvre du nantais Jules Verne.

tat, la région des Pays de la Loire, le CNRS, l'INSERM, le CRLCC, l'EMN et le CHU de Nantes [e]. Ses caractéristiques TAB. 1.1 associant hautes énergies et hautes intensités en font un outil scientifique idéal pour l'investigation dans le domaine de la médecine nucléaire. Il

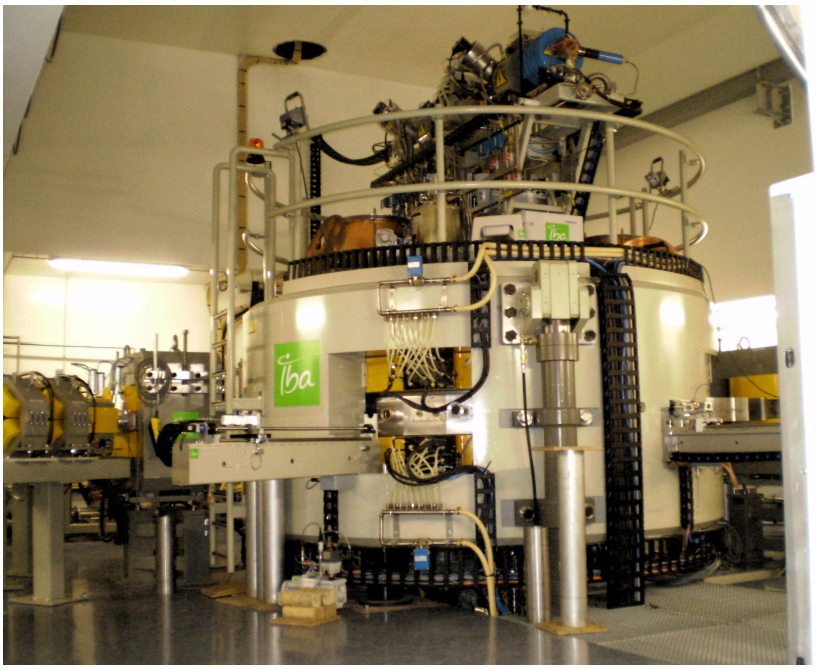

FIGURE 1.7 - Photo du cyclotron ARRONAX après installation. Ses dimensions sont de 3.6 mètres de haut sur un diamètre de 4 mètres pour un poids total avoisinant les 140 tonnes.

autorise également la recherche dans d'autres domaines tels que la radiolyse [4] et la radiobiologie. Il répond également à des besoins de développement technologique, ainsi qu'à l'enseignement et la formation.

Il permet l'accélération de particules chargées négativement – H^-, D^- – ou positivement – α, ions HH^+. Les caractéristiques [5] de ces faisceaux sont répertoriées tableau 1.1. Le cy-

Faisceau	Particules	Énergie(MeV)	Intensité(μA)	Nombre de voies
Proton	H^-	30 - 68	$\leq$350	2
	HH^+	17	$\leq$50	1
Deutons	D^-	15 - 34	$\leq$50	2
α	He^{2+}	68	$\leq$70	1

TABLEAU 1.1 - Principales caractéristiques des faisceaux disponibles auprès d'ARRONAX.

clotron possède deux voies de sorties différentes et qui peuvent fonctionner simultanément pour les H^- et les D^-. Ainsi nous sommes capables d'obtenir un flux de protons à 68 MeV et 100 nA en voie 1 et à 50 MeV et 100 µA en voie 2. Il n'est toutefois pas possible d'accélérer dans le même temps deux particules de natures différentes. Cette double extraction est rendue possible par le principe d'éjection des protons ou des deutons. Les particules accélérées de charges négatives – H^- et D^- – ont un surplus d'électrons. Aussi placer une feuille de

e. Le coût d'investissement de ce programme est de 34.5 millions d'euros, avec un budget de fonctionnement d'un million d'euros par an, hors personnel.

Carbone sur leurs trajectoires va arracher ces électrons au moment de la traversée des particules. Celles-ci se retrouvent avec une charge positive, H^+ et D^+, ce qui provoque leur éjection du cyclotron. En contrôlant la profondeur d'insertion de la feuille de Carbone, appelée éplucheur, nous pouvons choisir l'énergie du faisceau. Pour les cas des α et ions HH^+, les particules accélérées sont démunies de cortège électronique. La seule possibilité pour les extraire consiste à les dévier à l'aide d'un déflecteur électrostatique – septum. Ce système est fixe et placé en périphérie du cyclotron ce qui n'autorise qu'une seule énergie d'extraction pour ces particules.

L'énergie finale E_f des particules est fonction de leur masse m, de leur charge q, ainsi que du rayon d'extraction r et du champ magnétique B du cyclotron :

$$E_f = \frac{q^2 \cdot r^2 \cdot B^2}{m}$$

Les particules D^- ont une charge similaire aux H^- pour une masse deux fois plus élevée, ce qui explique que les gammes couvertes en énergies soient différentes, respectivement 15 MeV - 34 MeV et 30 MeV - 70 MeV. Pour les α et HH^+, r est fixe et vaut le rayon total d'accélération.

Le cyclotron est placé au centre d'un ensemble de six casemates FIG. 1.8 : A1, A2, AX, P1, P2 et P3. Chaque sortie de la machine est connectée à trois casemates, soit A1 A2 et AX, soit P1, P2 et P3. Les protons et deutons disponibles sur les deux sorties peuvent ainsi être délivrés dans chacune des casemates. Les faisceaux d'α et de protons obtenus par accélération de HH^+ ne concerne que les casemates A1, A2 et AX.

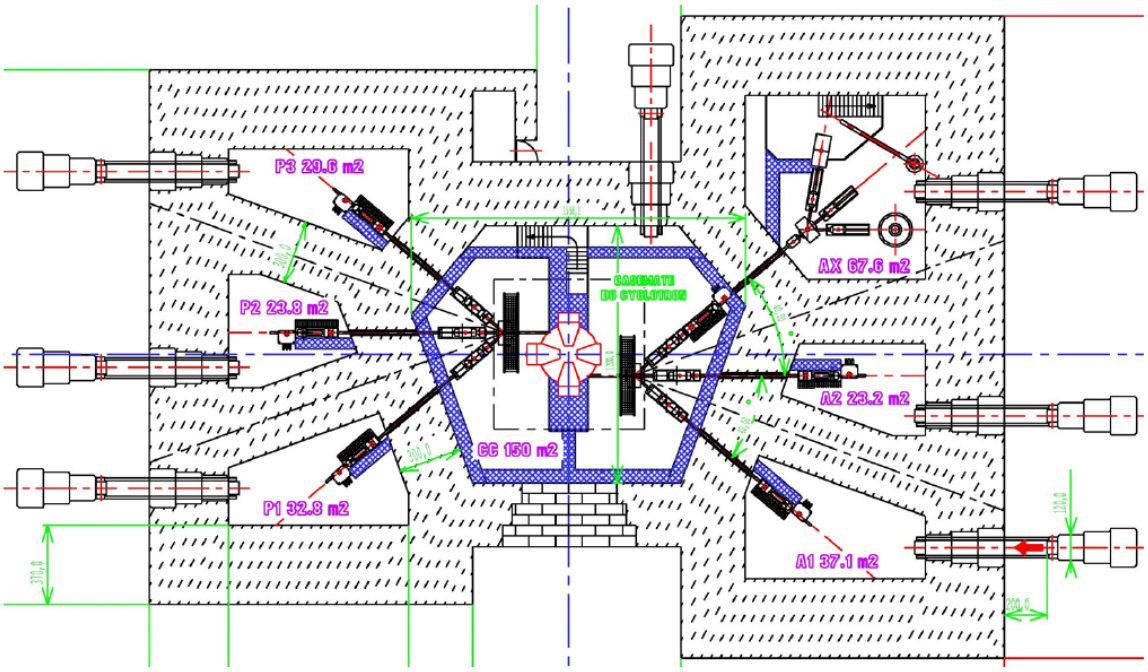

FIGURE 1.8 - Représentation du bâtiment accueillant ARRONAX.

Les quatre casemates A1 A2 P2 P3, qui permettent des irradiations en toute sécurité, sont reliées par un système pneumatique aux cellules blindées. C'est dans celles-ci que se font les

traitements chimiques d'extraction et de purification des éléments radioactifs.

Les programmes de recherche en relation avec la médecine nucléaire prévus sur ARRONAX concernent :

- les nouveaux traitements de radiothérapie vectorisée utilisant des rayonnements β^- – ^{47}Sc et ^{67}Cu – et α – ^{211}At ;
- les diagnostics en TEP reposant sur des émetteurs β^+ – le ^{64}Cu, le ^{82}Rb et ^{68}Ga – ou triple-γ – ^{44}Sc.

Les radio-isotopes cités précédemment sont peu conventionnels et leur utilisation encore limitée aux laboratoires de recherche. ARRONAX va donc permettre de contribuer à l'étude de chacun d'eux et à leur utilisation dans des études médicales pré-cliniques et cliniques. Une liste de priorités a été fixée [6]. Elle concerne les émetteurs β^- – ^{47}Sc et ^{67}Cu – β^+ – ^{44}Sc, ^{64}Cu, ^{68}Ge/^{68}Ga et ^{82}Sr/^{82}Rb et α – ^{211}At.

1.3 Axes de recherche de cette thèse

Au cours de cette thèse, nous nous sommes intéressés à l'étude des deux isotopes émetteurs β^- précédemment cités, le ^{47}Sc et le ^{67}Cu. Leurs caractéristiques, répertoriées dans la tableau 1.2, les rendent particulièrement intéressants dans le cas d'une utilisation en thérapie interne vectorisée.

	Isotope			
	^{47}Sc		^{67}Cu	
Période	3.35 j		2.58 j	
β^-	162.0 keV	100.0 %	141.0 keV	100.0 %
γ	159.4 keV	68.3 %	93.31 keV	16.1 %
			185.58 keV	48.7 %

TABLEAU 1.2 - Données de décroissances du Scandium 47 et du Cuivre 67. Pour les β ce sont les énergies moyennes qui sont indiquées [7].

L'énergie moyenne des β est un facteur de choix important. La figure 1.9 présente les parcours moyens dans l'eau, proche des tissus humains, pour les β issus des différents isotopes utilisés en radiothérapie. L'utilisation du ^{117m}Sn par rapport à l'^{90}Y est fonction de la taille des regroupements à traiter.

Il existe également d'autres isotopes du Scandium et du Cuivre, le ^{44}Sc et le ^{64}Cu, utilisés en imagerie. Les propriétés chimiques de deux isotopes étant identiques, le comportement du ^{44}Sc est donc similaire à celui du ^{47}Sc s'ils sont liés à la même molécule vectrice. Il est donc possible de réaliser une première étude de dosimétrie avec le ^{44}Sc. Elle permet d'établir les doses optimales de ^{47}Sc à injecter dans le cadre du traitement [9].

De plus, la décroissance β^- du ^{47}Sc s'accompagne de l'émission de γ permettant le suivi de ce traitement par scintigraphie et notamment de contrôler le ciblage du vecteur.

Le même raisonnement s'applique au couple ^{64}Cu/^{67}Cu.

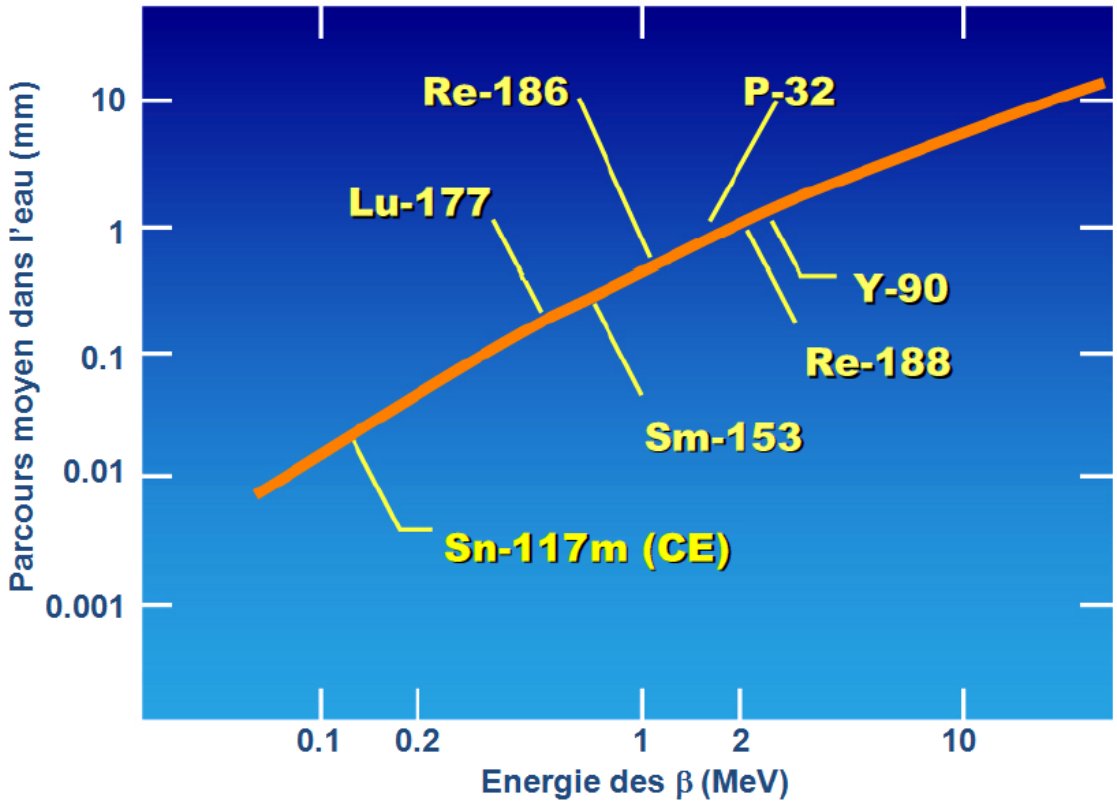

FIGURE 1.9 - Parcours moyen des β dans l'eau suivant leur énergie. Les exemples présentés sont les isotopes les plus couramment utilisés à l'heure actuelle en radiothérapie [8].

1.3.1 Calcul des prévisions de production

Un programme permettant la prédiction des productions de ces radio-isotopes d'intérêt a été mis en place. Il intègre tous les paramètres intervenant lors d'une irradiation, flux de particules, propriétés de la cible et du radio-isotope ... Des comparaisons avec les prédictions réalisées par l'**A**gence **I**nternationale de l'**É**nergie **A**tomique – IAEA – nous permettront de valider ce code de calcul. Il nous sera possible de définir les conditions assurant une production optimale des isotopes. Ce code nous a permis de mettre en évidence l'influence importante des sections efficaces de production [f].

1.3.2 Mise en place d'une méthode de mesure de sections efficaces

Un des buts de cette thèse est la définition, la mise en place et la validation d'une méthode permettant la mesure de sections efficaces sur ARRONAX. La section efficace est une grandeur, notamment dépendante des énergies en jeu, qui définit la probabilité qu'une réaction physique ait lieu. Son unité le barn, symbole b, est homogène à une surface, 1 barn valant 10^{-24}cm^{-2}. Comme nous le verrons, bien connaître la section efficace de création d'un isotope est indispensable à la mise en œuvre de protocoles de productions optimaux.

Avoir la possibilité de réaliser sur ARRONAX ce genre de mesure pour les isotopes d'in-

f. Par abus de langage, dans la suite du document, nous appellerons sections efficaces les sections efficaces de production de résidus.

térêt représente donc un atout dans le développement de leur étude. Cela ouvre également la voie à d'autres axes de recherches dans le domaine de la physique nucléaire, comme des prévisions sur les productions de résidus dans le cadre de l'aval du cycle.

1.3.3 Approche théorique du calcul de sections efficaces

Nous nous sommes aussi intéressés aux prédictions de valeurs de sections efficaces que peut fournir un code de calcul théorique. Apporter nos résultats pour contraindre ce code permet d'obtenir des prévisions plus justes. Cela peut devenir très intéressant lorsque la mise en place de mesures de sections efficaces n'est pas ou difficilement réalisable. Les prédictions fournies par un code fiable permettront d'évaluer quel isotope est créé et en quelle quantité lors d'une irradiation.

Chapitre 2

Calcul de productions d'un radio-isotope

Nous l'avons vu chapitre 1, un des buts d'ARRONAX est la production de radio-isotopes d'intérêt pour la médecine nucléaire. Elle se fait en irradiant une cible d'épaisseur et composition connues à l'aide d'un faisceau de particules délivré par ARRONAX. Pour définir, au mieux, les conditions expérimentales d'une telle production, il convient de maitriser les paramètres de création isotopique. L'évolution de l'activité d'un isotope en fonction des paramètres d'irradiation est décrite par l'équation 2.1 [a].

$$A_{ct} = \phi \frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho}{A} (1 - \exp^{-\lambda t_0}) \int_{E_{fin}}^{E_{in}} \frac{\sigma(E)}{\mathrm{dE}/\mathrm{dx}} dE \tag{2.1}$$

A_{ct}	:	activité du radio-isotope généré	$\mathrm{mCi.\mu A^{-1}.h^{-1}}$
ϕ	:	flux de particules incidentes	$\mathrm{particules.s^{-1}.m^{-2}}$
$\mathcal{N}_A$	:	constante d'Avogadro	$\mathrm{mol^{-1}}$
ρ	:	masse volumique de la cible	$\mathrm{g.m^{-3}}$
A	:	masse atomique de la cible	$\mathrm{g.mol^{-1}}$
λ	:	constante radioactive du radio-isotope	$\mathrm{s^{-1}}$
t_0	:	durée de l'irradiation	s
E_{in}	:	énergie du projectile en entrée de cible	MeV
E_{fin}	:	énergie du projectile en sortie de cible	MeV
$\sigma(E)$	:	section efficace de création du radio-isotope à l'énergie E	b
dE/dx	:	perte d'énergie linéique du projectile dans la cible	$\mathrm{MeV.m^{-1}}$

L'équation 2.1 nous montre l'ensemble des paramètres ayant une incidence sur la quantité de radio-isotope générée. Celle-ci est proportionnelle à la densité ρ de la cible, liée à sa forme chimique, et au flux incident disponible auprès de l'accélérateur. Un temps d'irradiation plus long permet également d'augmenter le taux de production, en n'oubliant pas de considérer les effets de décroissance. Le choix entre ces différents paramètres dépend de considérations économiques. Toutes choses égales par ailleurs, une irradiation réalisée à une

a. L'établissement de cette formule est détaillé en annexe A.

intensité de 100 µA permettra une production mille fois plus importante qu'à une intensité de 100 nA. Le coût du point de vue de l'utilisation du cyclotron étant identique dans les deux cas, il est donc plus judicieux d'utiliser les intensités les plus élevées disponibles.

Dans certains cas, comme la production de Cuivre 64 par l'intermédiaire de Nickel 64 suivant les réactions ^{64}Ni (p , n) ^{64}Cu ou ^{64}Ni (d , 2n) ^{64}Cu, nous avons recours à l'utilisation de cibles enrichies. L'isotope 64 n'entre qu'à hauteur de 0.926 % dans la composition du Nickel naturel, ce qui se traduit par un coût très élevé [b]. Il est donc indispensable de connaître l'évolution de la production de l'isotope souhaité en fonction de la quantité de matière irradiée, pour la minimiser tout en gardant une production importante. Les pertes d'énergies, et donc l'énergie finale, sont directement liées à l'épaisseur de la cible. Si nous pouvons estimer les pertes énergétiques et tenir compte de la variation des sections efficaces en fonction de l'énergie, alors l'équation 2.1 va nous guider pour le choix de l'épaisseur qui assure une production optimale.

Pour ce faire, nous avons développé un code [10] qui intègre l'équation 2.1 et calcule la production d'un radio-isotope. Il nous permet de faire évoluer les paramètres d'entrée de l'équation 2.1 et ainsi de déterminer leurs valeurs pour assurer une production optimale. Son fonctionnement nécessite l'évaluation des pertes d'énergies dans la matière et des sections efficaces de réaction. Leur intégration a demandé un travail spécifique dans chacun des cas.

2.1 Estimation des pertes d'énergies

En traversant la matière, les particules chargées énergétiques ionisent les atomes ou molécules sur leur parcours. Par conséquent, ces particules perdent peu à peu leur énergie. Il est possible de décrire ces pertes d'énergies à l'aide d'un certain nombre de modèles.

2.1.1 Approximation de Bethe-Bloch

Une première approche, pour estimer les pertes d'énergie, consiste en l'utilisation de la formule de Bethe-Bloch [11]

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{K \cdot Z_p^2 \cdot Z \cdot \rho}{\beta^2 \cdot A} \left[\ln\left(\frac{2 \cdot m_e \cdot \gamma^2 \cdot \beta^2}{I} \right) - \beta^2 \right] \tag{2.2}$$

K	:	constante de 0,307 $MeV.cm^2$	I	:	potentiel d'ionisation
m_e	:	masse de l'électron	Z	:	charge de la cible
ρ	:	densité de la cible	Z_p	:	charge du projectile
γ et β	:	coefficients relativistes du projectile			

Le potentiel d'ionisation I est donné par [11] :

- pour $Z < 13$: $I = 12 \cdot Z + 7$ eV
  et
- pour $Z \geq 13$: $I = 9,67 \cdot Z + 58,8 \cdot Z^{0,19}$ eV

Cette formule de Bethe-Bloch suppose que le projectile est complètement ionisé dans la matière. C'est le cas pour les pro-

b. Un milligramme de ^{64}Ni vaut quelques dizaines d'euros suivant le niveau d'enrichissement souhaité.

tons mais pas forcément pour les éléments plus lourds. De plus, elle ignore de nombreux phénomènes relatifs aux projectiles à basse énergie [12].

2.1.2 Le code de calcul des pertes d'énergies : SRIM

De manière à pouvoir mettre en évidence l'effet de ces phénomènes dans les calculs de production, nous nous sommes orientés vers l'utilisation d'un logiciel spécialisé dans l'établissement des pertes d'énergies dans la matière : "The **S**topping and **R**ange of **I**ons in **M**atter" – SRIM. Il offre de nombreuses sophistications [12] absentes du calcul par la formule de Bethe-Bloch présentée ci-dessus. De plus ce logiciel s'interface aisément avec un programme étranger développé en *C*, et ce aussi bien sous WINDOWS que sous LINUX. Cela nous a permis de l'intégrer à notre programme de calcul pour qu'il lui fournisse automatiquement les tables de pertes d'énergies dans la matière.

2.2 Intégration des sections efficaces

2.2.1 Utilisation des valeurs tabulées par l'IAEA

Comme nous le verrons plus tard, si les modèles théoriques reproduisent en général bien les variations des sections efficaces suivant l'énergie, l'amplitude est souvent mal estimée. Il nous est donc nécessaire d'utiliser les résultats expérimentaux. Cependant il existe parfois un grand nombre de séries de données obtenues sur un même intervalle d'énergie par différents auteurs. De plus, ce sont bien évidemment des valeurs discrètes. Aussi pour intégrer les sections efficaces dans le calcul de production, il faut procéder à un ajustement de ces valeurs expérimentales. Nous obtenons ainsi une fonction continue sur le domaine d'intérêt.

Dans certains cas, ce lissage est effectué par l'IAEA qui tient compte de l'évaluation de la qualité des données existantes. Cela lui permet d'en extraire celles d'intérêt et d'effectuer un ajustement pour obtenir les valeurs de sections efficaces tabulées en fonction de l'énergie FIG. 2.1. Elle effectue notamment ce travail pour des réactions de référence en physique nucléaire, cas des moniteurs [13], ou concernant des radio-isotopes innovants pour la médecine nucléaire, comme le ^{64}Cu [14].

2.2.2 Comparaison des prédictions

L'utilisation des valeurs de sections efficaces issues de l'ajustement réalisé par l'IAEA nous permet de comparer nos prédictions avec les leurs. Ces comparaisons ont été faites pour différents projectiles : protons, deutons et α, et différentes réactions. Les courbes présentées concernent la production intégrale d'un radio-isotope en fonction des énergies initiale E_{in} et finale E_{fin} du faisceau. Elle est exprimée en mCi.μA^{-1}.h^{-1}. Cette valeur de production représente en absolu le cas où toute l'énergie est cédée à la cible. Nous constatons que la courbe de production est gouvernée par la forme de la section efficace de la réaction FIG. 2.1, qui croît vers un maximum local à 12 MeV.

Avec les protons FIG. 2.2 et deutons FIG. 2.3 nous obtenons un très bon accord entre les valeurs de l'IAEA et notre simulation intégrant SRIM, l'écart relatif moyen sur tout le domaine en énergie étant respectivement de 1.6 % et 1.3 %. Dans le cas des α FIG. 2.4 cet

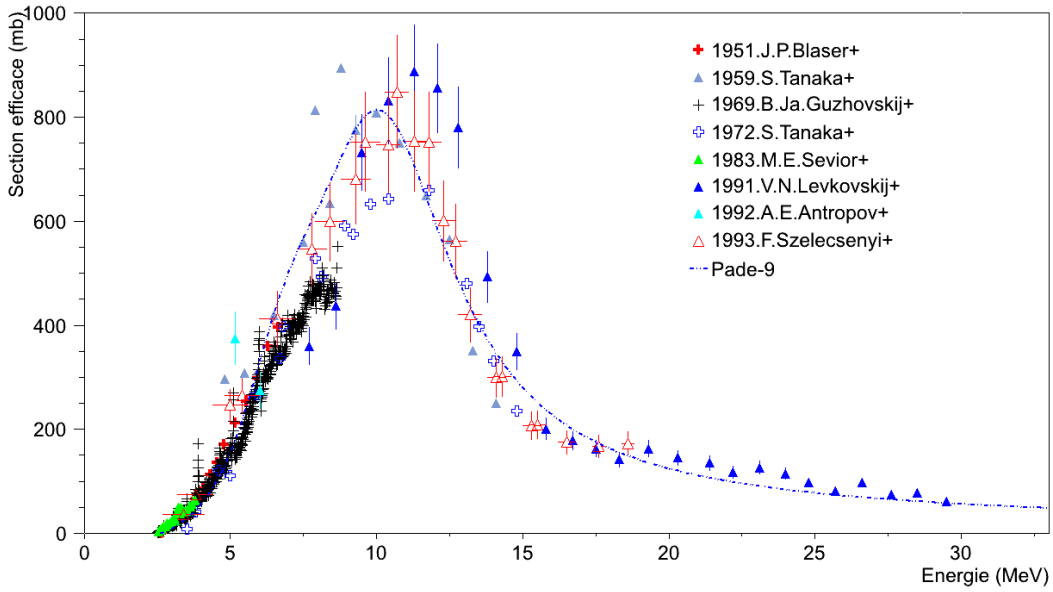

FIGURE 2.1 - Ajustement des sections efficaces de la réaction ^{64}Ni (p , n) ^{64}Cu effectué par l'IAEA en utilisant une fonction Padé-9.

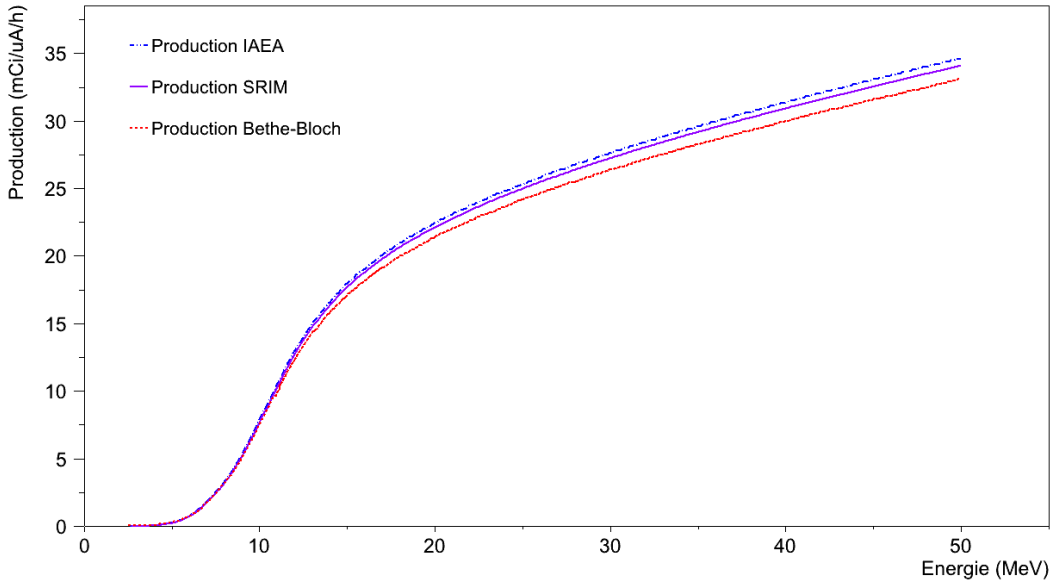

FIGURE 2.2 - Comparaison des prévisions de production intégrale pour la réaction ^{64}Ni (p , n) ^{64}Cu obtenues par l'IAEA avec les nôtres.

écart relatif passe à 5 %. Il est plus important – respectivement 4.9 %, 6.3 % et 11 % – lorsque nous utilisons la formule de Bethe-Bloch.

Au final, c'est un total de 21 réactions différentes pour lesquelles nous avons effectué des comparaisons entre nos prévisions et celles de l'IAEA. Avec la version intégrant SRIM nous remarquons à chaque fois un écart faible, $\leq$ 2% dans le cas des protons et deutons et plus important, jusqu'à 5 % pour les α. Nous arrivons à la même conclusion avec la version faisant appel à la formule de Bethe-Bloch, les écarts sont toutefois plus élevés, $\leq$ 4% pour les

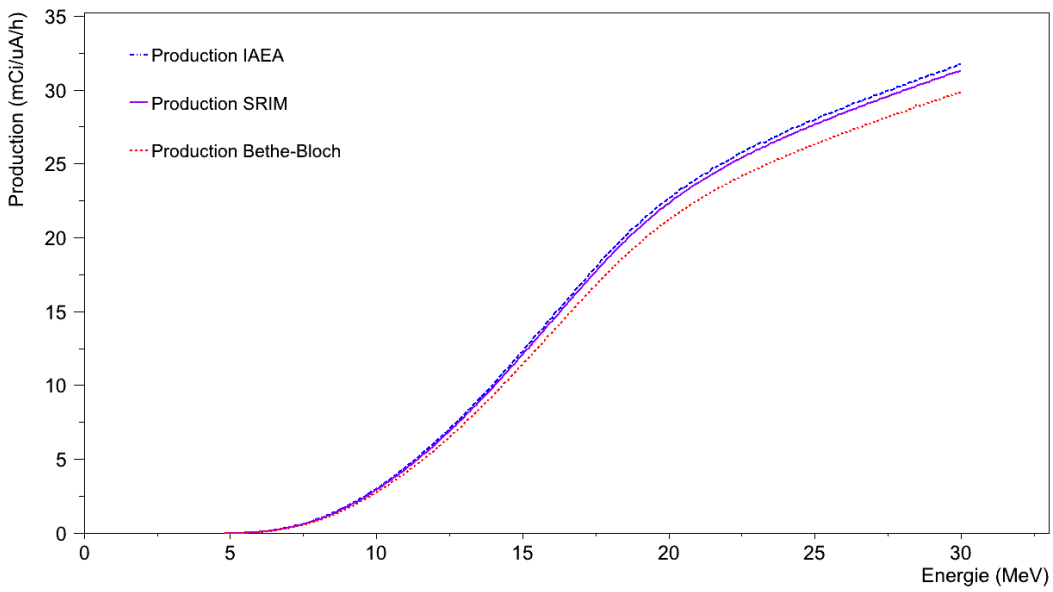

FIGURE 2.3 - Comparaison des prévisions de production intégrale pour la réaction ^{64}Ni (d,2n) ^{64}Cu obtenues par l'IAEA avec les nôtres.

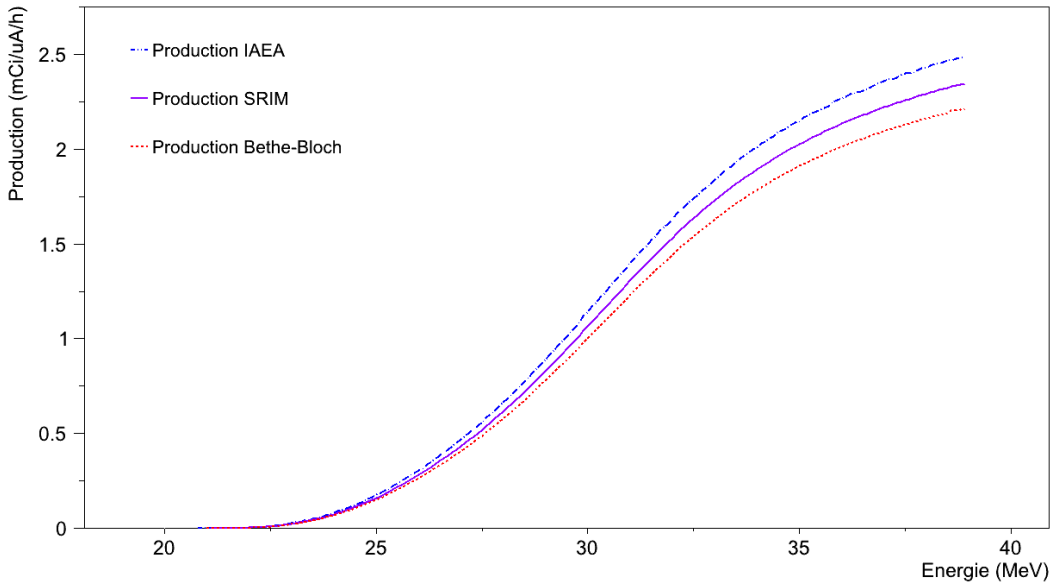

FIGURE 2.4 - Comparaison des prévisions de production intégrale pour la réaction ^{209}Bi (α,2n) ^{211}At obtenues par l'IAEA avec les nôtres.

protons et deutons et $\leq$ 11% pour les α. Nous sommes entrés en contact avec les personnes ayant réalisé ces prédictions au sein de l'IAEA afin de connaître leur méthode de calcul, et comprendre d'où pourrait provenir ces différences. Il ressort de cet échange qu'un écart de 5 % dans le cas de particules α est tout à fait acceptable. Les prévisions faites à l'aide de SRIM nous conduisent à des résultats proches de ceux obtenus par l'IAEA. Nous estimons ainsi avoir validé notre méthode faisant appel à l'intégration du module SRIM, plus complet que la formule de Bethe-Bloch. C'est cette méthode que nous utiliserons dans la suite de

notre travail.

2.3 Ajustement des sections efficaces

Pour les cas où l'IAEA n'a pas effectué d'ajustement, il convient de pouvoir le réaliser nous même à partir des données existantes. Elles sont répertoriées pour la plupart d'entre elles dans la base CSISRS [15] du Brookhaven National Laboratory – BNL. Nous devons alors faire le travail de validation pour s'assurer de leur fiabilité. Le lissage en lui même sera obtenu suivant deux méthodes différentes, un ajustement polynomial par la méthode des moindres carrés, et un ajustement par fonctions *Splines*.
Pour permettre une confrontation avec les valeurs calculées par l'IAEA, nous resterons sur le cas de la réaction ^{64}Ni (p , n) ^{64}Cu. Nous utiliserons les sections efficaces qu'elle recommande, à savoir Blaser *et al.* [16], Tanaka *et al.* [17, 18], Guzhovskij *et al.* [19], Sevior *et al.* [20], Levkovskij *et al.* [21] [c], Antropov *et al.* [22] et Szelecsényi *et al.* [23] [d] FIG. 2.1.

2.3.1 Ajustement polynomial

Dans un premier temps, nous avons utilisé des polynômes de différents degrés. Un ajustement polynomial de degré 6 a été réalisé par le logiciel ROOT FIG. 2.5. Il ressort de

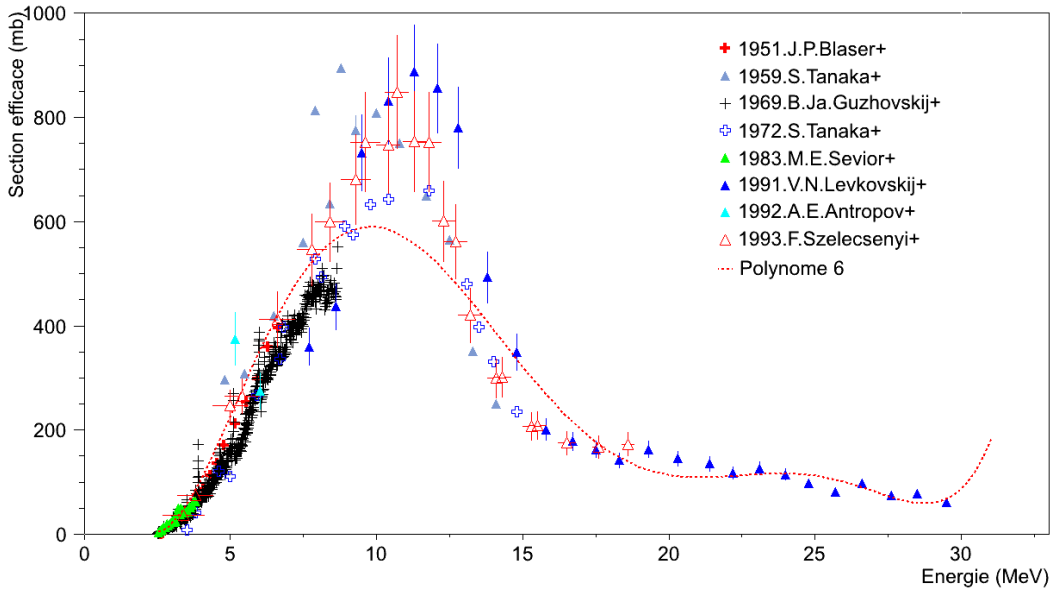

FIGURE 2.5 - Ajustement des sections efficaces de la réaction ^{64}Ni (p , n) ^{64}Cu par un polynôme de degré 6.

cet exemple qu'un lissage de ce type est perfectible. L'amplitude au niveau du maximum local à 12 MeV est largement minorée, et le polynôme ne décrit pas fidèlement le point d'inflexion à 15 MeV. Nous remarquons également un phénomène d'oscillation naissant au delà de 30 MeV.
Ajoutons que l'utilisation des polynômes peut s'avérer dangereuse si elle n'est pas maîtrisée.

c. L'IAEA conseille d'appliquer un coefficient de 0.80 à l'ensemble de ces données.
d. L'IAEA conseille d'appliquer un coefficient de 1.15 à l'ensemble de ces données.

En effet, il est tentant d'en augmenter le degré pour se rapprocher aux mieux des données dans l'intervalle d'intérêt. Une telle manœuvre risque d'entraîner de très fortes oscillations en dehors de cet intervalle, comme pour notre exemple FIG. 2.5 à haute énergie. Oscillations d'autant plus importantes que le degré est élevé. Pour remédier à ce type d'inconvénients, une possibilité consiste à utiliser de nombreux polynômes de faibles degrés pour ajuster par morceau notre courbe. C'est la technique que nous allons développer.

2.3.2 Utilisation des *Splines*

Nous souhaitons donc conserver les avantages d'un ajustement par polynômes – simplicité et rapidité de calcul – sans les inconvénients – oscillations. Pour cela nous nous orientons vers l'approche d'un lissage en "polynômes par morceaux". Son but est de conserver une forme polynomiale de faible degré mais sur des fragments de la courbe. La difficulté est de garder une continuité et une dérivabilité aux points de raccordements, *i.e* faire en sorte que la fonction soit continue sur son ensemble. Dans notre cas nous ferons appel à des fonctions de degré 3, d'où le nom de *Splines* cubiques naturelles [e] [24]. Cette forme cubique impose que la fonction soit doublement dérivable et que sa dérivée seconde soit nulle aux points de raccordement. C'est la condition qui permet la parfaite continuité tout du long de la fonction. Nous avons développé une routine d'ajustement basée sur cette méthode [24].

Un des avantages des *Splines* c'est que nous pouvons affecter, à chaque point à ajuster, un poids relatif ρ_i. La fonction d'ajustement est d'autant plus fidèle à une valeur que son poids associé est important. Il nous est possible de lier cette variable mathématique à l'incertitude d_x de la mesure physique. C'est le travail que nous avons réalisé avec D. Lemonnier [25]. Il ressort de cette étude que la relation reliant ρ_i et d_x est de la forme :

$$\rho_i = \rho_{global}(1 + k \cdot d_x)^n \tag{2.3}$$

Où ρ_{global}, k et n sont trois constantes. Nous démontrons alors que les lissages par *Splines* sont optimaux pour des valeurs de $\rho_{global} = 0.1$, $k = 1$ et $n = -3$. Avec ces valeurs nous obtenons l'ajustement par *Splines* FIG. 2.6. Cet ajustement est plus fidèle, tant pour l'amplitude au maximum local que pour la zone d'inflexion, que celui opéré avec le polynôme de degré 6. Les fonctions *Splines* permettent donc un ajustement de meilleure qualité et très proche de celui réalisé par l'IAEA FIG. 2.7. Nous notons comme principale différence un décalage des maximums qui est lié à une prise en compte différente des points de basses énergies [19]. Dorénavant nous ne ferons appel qu'à cette méthode.

2.3.3 Calcul de production

La technique d'ajustement des sections efficaces par *Splines* a été incorporée à notre code de calcul. Elle nous permet d'obtenir les prévisions de production de ^{64}Cu, comparées à celles de l'IAEA FIG. 2.8. Là encore l'accord est très bon, avec un écart relatif de 1.24 %. Nous retrouvons l'effet des différents ajustements. Le maximum local pour le lissage de l'IAEA étant situé plus bas en énergie que le notre, cela explique que leur production associée croît de façon plus rapide. Les intégrales des ajustements tendant à s'égaliser par la suite, les productions font de même.

e. Par la suite nous les identifierons toujours sous la seule dénomination de *Splines*.

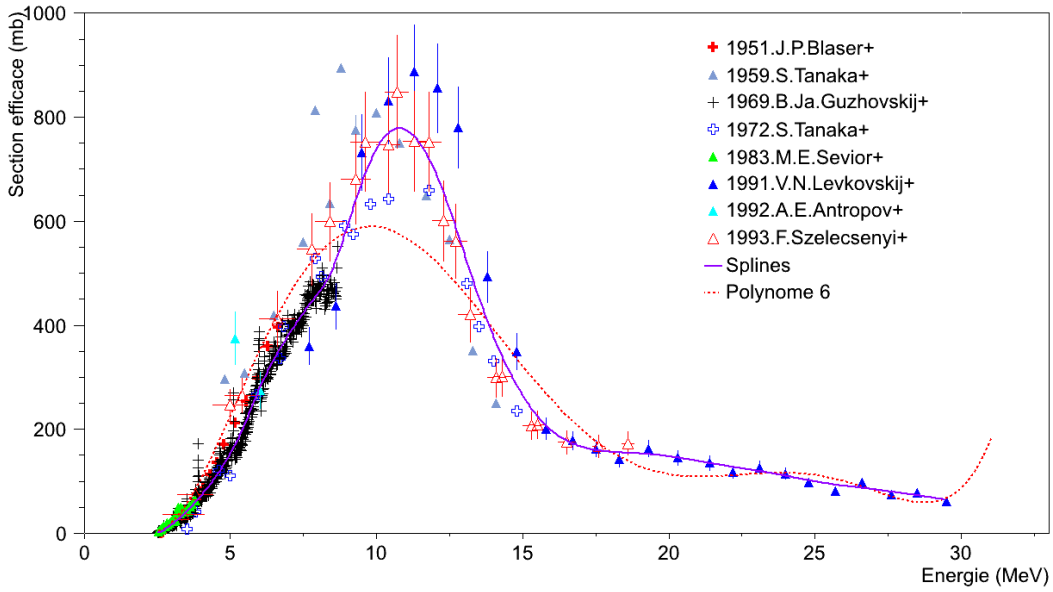

FIGURE 2.6 - Comparaison entre les ajustements des sections efficaces de la réaction ^{64}Ni (p,n) ^{64}Cu obtenus soit par les fonctions de *Splines* soit par un polynôme de degré 6.

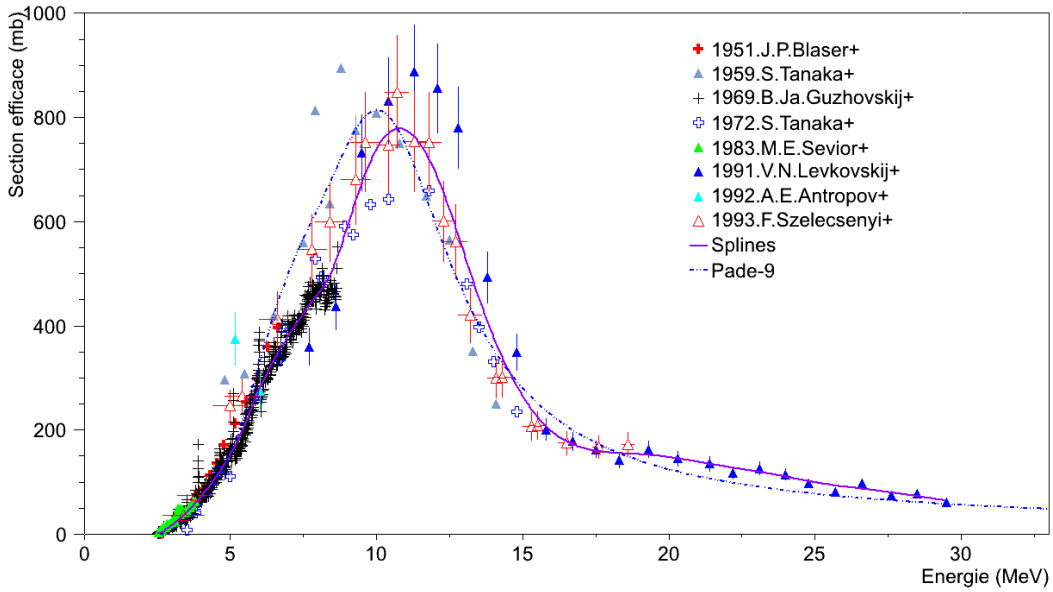

FIGURE 2.7 - Comparaison entre les ajustements des sections efficaces de la réaction ^{64}Ni (p,n) ^{64}Cu obtenus par l'IAEA et par les fonctions de *Splines*.

La comparaison n'a pu être effectuée au delà de 30 MeV car il n'y existe pas de données expérimentales. La fonction Padé-9 permet une extrapolation en dehors de la zone couverte par les valeurs à ajuster. Ce qui explique que les sections efficaces soient tabulées sur le domaine de 0 MeV à 50 MeV FIG. 2.2. L'intervalle critique étant celui contenant le maximum local, nous ne voyons pas d'intérêt à développer une méthode de calcul d'extrapolation.

Nous disposons donc d'un outil validé permettant de prédire les évolutions de production suivant différents paramètres d'irradiation. Le logiciel SRIM nous fournit une estima-

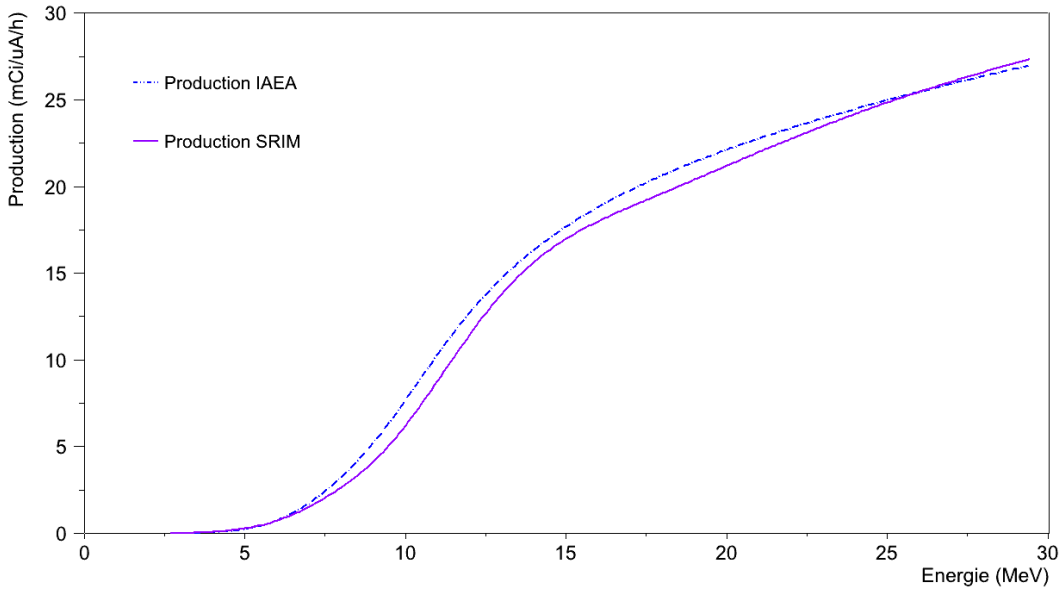

FIGURE 2.8 - Comparaison des prévisions de production intégrale pour la réaction ^{64}Ni (p,n) ^{64}Cu obtenues par l'IAEA avec les nôtres.

tion des pertes d'énergies pour l'ensemble des projectiles et cibles utilisables et utilisés sur ARRONAX. Nous sommes également capables de réaliser nos propres ajustements de sections efficaces ce qui nous affranchit de la nécessité d'avoir des données tabulées, comme celles de l'IAEA. Ainsi il nous devient possible d'étudier les isotopes ne bénéficiant d'aucun travail préalable, mais également d'intégrer de nouvelles mesures obtenues après la réalisation de l'ajustement par l'IAEA [f]. Les expériences menées récemment par Avila-Rodriguez *et al.* [26] et Rebeles *et al.* [27] viennent compléter les données pour la réaction ^{64}Ni (p,n) ^{64}Cu FIG. 2.9. Les deux ajustements sont très proches même si le maximum local est un peu plus sous évalué dans le deuxième cas. La principale divergence étant aux hautes énergies pour lesquelles les nouvelles valeurs de Rebeles *et al.* [27], inférieures à celles de Levkovskij *et al.* [21], diminuent la valeur de nos *Splines*.

Cette souplesse de travail va également nous donner la possibilité d'étudier la production des contaminants – autres noyaux créés lors des irradiations – pour lesquels aucun travail d'ajustement n'est disponible. Il reste cependant indispensable que des mesures de sections efficaces aient été réalisées pour permettre l'utilisation de ce code de prévision. Or, il s'avère que pour certains cas, ces données sont incomplètes voir inexistantes. Dans le cadre de ce travail de thèse, nous allons mettre en œuvre les techniques nous permettant de mesurer les sections efficaces d'un certain nombre de réactions liées à la production de radio-isotopes d'intérêt.

f. Ce travail à été réalisé courant 2008.

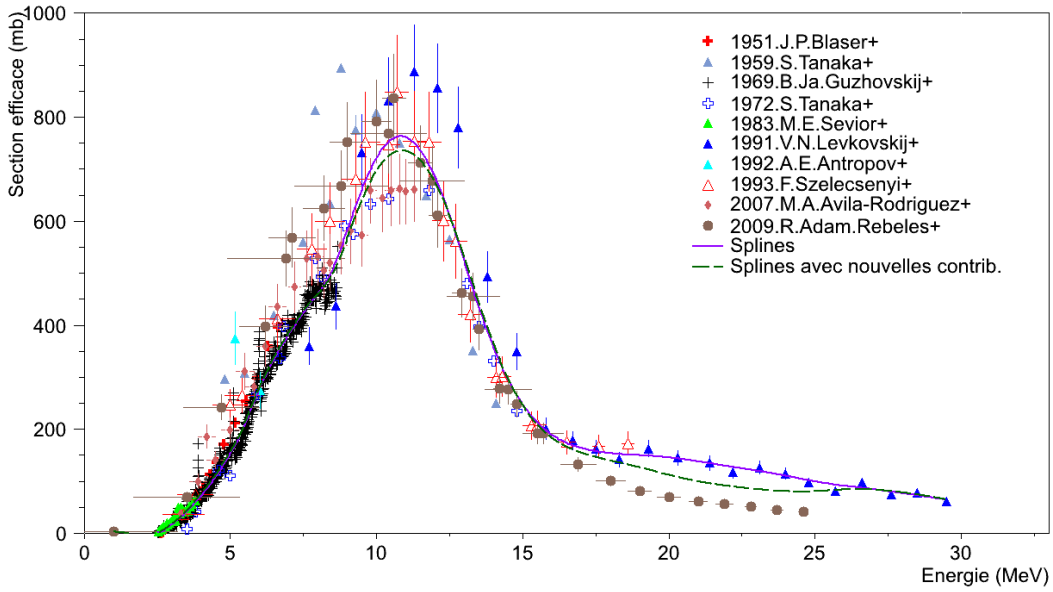

FIGURE 2.9 - Comparaison des ajustements par *Splines* réalisés pour les sections efficaces de la réaction ^{64}Ni (p,n) ^{64}Cu avec et sans l'intégration des données de Avila-Rodriguez *et al.* [26] et Rebeles *et al.* [27] obtenues respectivement en 2007 et 2009.

2.4 Mesure expérimentale de sections efficaces

2.4.1 Passage en cible mince

Dans la formule 2.1, la section efficace est dépendante de l'énergie. Afin de nous affranchir de cette dépendance, nous allons travailler en cible mince pour considérer les pertes en énergies $^{dE}/_{dx}$ comme faibles. Nous pouvons alors faire l'hypothèse que la section efficace reste constante.

$$\sigma(E_{in}) = \sigma(E_{fin}) = \sigma$$

Nous obtenons la formule 2.4 où e_f est l'épaisseur de cible.

$$A_{ct} = \phi \cdot \sigma \frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho \cdot e_f}{A}(1 - \exp^{-\lambda t_0}) \tag{2.4}$$

L'expression de la section efficace devient alors :

$$\sigma = \frac{A_{ct} \cdot A}{\phi \cdot \mathcal{N}_A \cdot \rho \cdot e_f(1 - \exp^{-\lambda t_0})} \tag{2.5}$$

Nous sommes donc capables à partir de la formule 2.5, et en maîtrisant tous les paramètres de l'irradiation, d'établir la section efficace de production d'une réaction.
Expérimentalement, cela se traduit par l'irradiation de feuilles minces, d'une épaisseur de l'ordre de la dizaine de microns, qui seront portées au comptage pour déterminer les activités des radio-éléments créés.

2.4.2 Multiplication du nombre de points

Afin d'obtenir simultanément plusieurs points de mesure et ainsi avoir une distribution en énergie des sections efficaces, nous allons irradier un ensemble de plusieurs cibles. Elles seront séparées par un matériau dont le rôle est de dégrader l'énergie du projectile. Son épaisseur est choisie de manière à avoir le pas en énergie entre deux points consécutifs voulu. Des feuilles d'Aluminium [g] naturel de 500 microns [h] jouent ce rôle de dégradeur d'énergie. La disposition de l'ensemble de ces feuilles est schématisée sur la figure FIG. 2.10. Ce type de procédé est appelé *Stacked-foils* [i], son utilisation pour la mesure de sections effi-

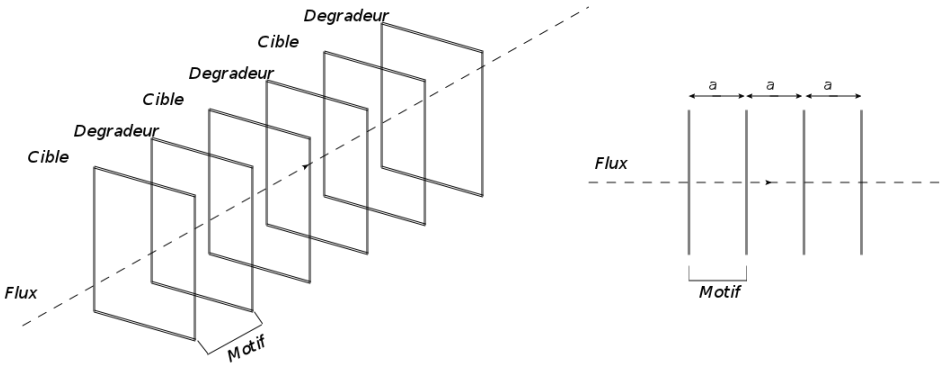

FIGURE 2.10 - Représentation des différentes pièces, et de leur emplacement, constituant une expérience de *Stacked-foils*.

caces a déjà fait l'objet de nombreuses publications [28, 29, 30, 31, 32, 33]. Les dimensions de 25 mm par 25 mm choisies pour les feuilles sont celles que nous propose *Goodfellow* [34], notre principal fournisseur. Elles sont de taille suffisante compte tenu de la présence de collimateurs de 10 mm placés avant notre dispositif sur les lignes d'ARRONAX FIG. 2.15.

2.4.3 Dispositif expérimental

En collaboration avec le service mécanique de SUBATECH, un dispositif permettant l'irradiation d'un grand nombre de feuilles a été développé FIG. 2.11. Il se compose d'un caisson hermétique, donc autorisant une mise sous vide, dans lequel différentes brides viennent s'insérer. L'une d'entre elles est équipée d'un système de porte-diapositives FIG. 2.12 dans lequel les feuilles, montées en diapositives FIG. 2.13, sont placées. Le diamètre interne des brides est de 100 mm et si l'on considère la présence du joint d'étanchéité et la hauteur du porte-diapositive, cela nous laisse une longueur exploitable de 65 mm dans la direction de propagation du faisceau. Le pas du motif est de 2 mm dont 0.6 mm de largeur d'encoche et autorise un nombre d'échantillons limité à 30. Les diapositives FIG. 2.13 sont des plaques de PMMA de 500 µm d'épaisseur et de dimensions 35 mm par 45 mm. Elles sont équipées d'une languette, facilitant leur extraction, et percées d'un trou de 20 mm de rayon. Les feuilles à irradier sont coincées entre deux diapositives soudées entre elles.

g. L'Aluminium est un élément facile à usiner et qui possède de bonnes caractéristiques thermiques, pour un coût faible. De plus il s'active très peu car est essentiellement entouré d'isotopes de périodes très courtes ou très longues. Seuls les ^{22,24}Na, respectivement 2.6 ans 14.99 h, peuvent poser problème, mais les temps courts d'irradiation limitent leurs productions et donc leur impact.

h. Épaisseur disponible auprès de notre fournisseur *Goodfellow*.

i. *Stacked-foils* voulant dire « feuilles empilées » en anglais.

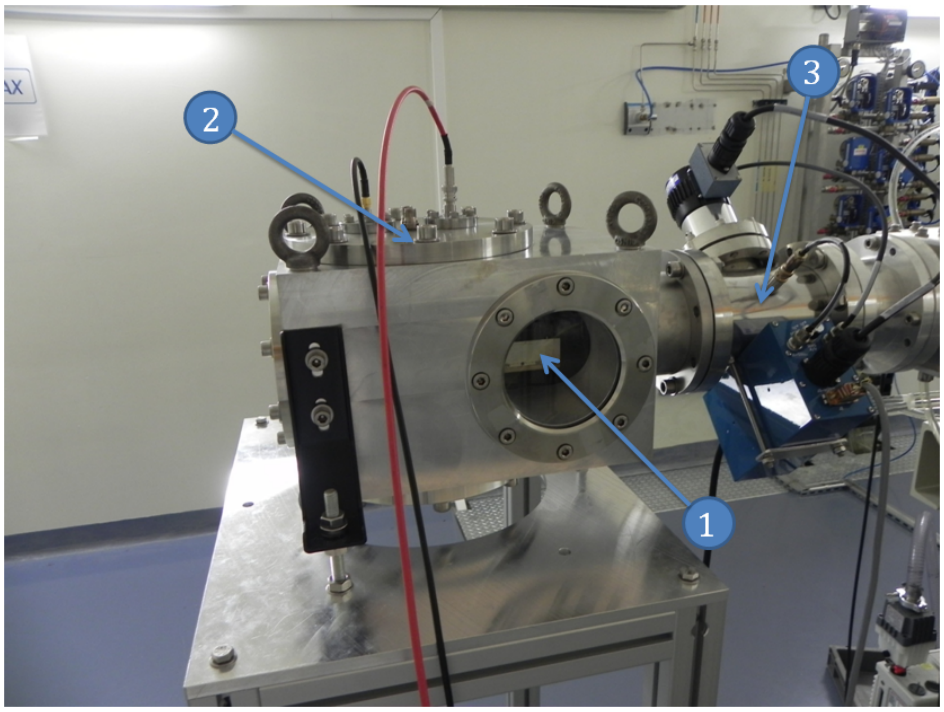

FIGURE 2.11 - Caisson hermétique dans lequel s'intègre la bride porte-échantillons, visible à travers le hublot ① et le bloc Faraday ②. Nous apercevons le système de *beam-profiler* ③*cf.* 4.6.3 du chapitre 4.

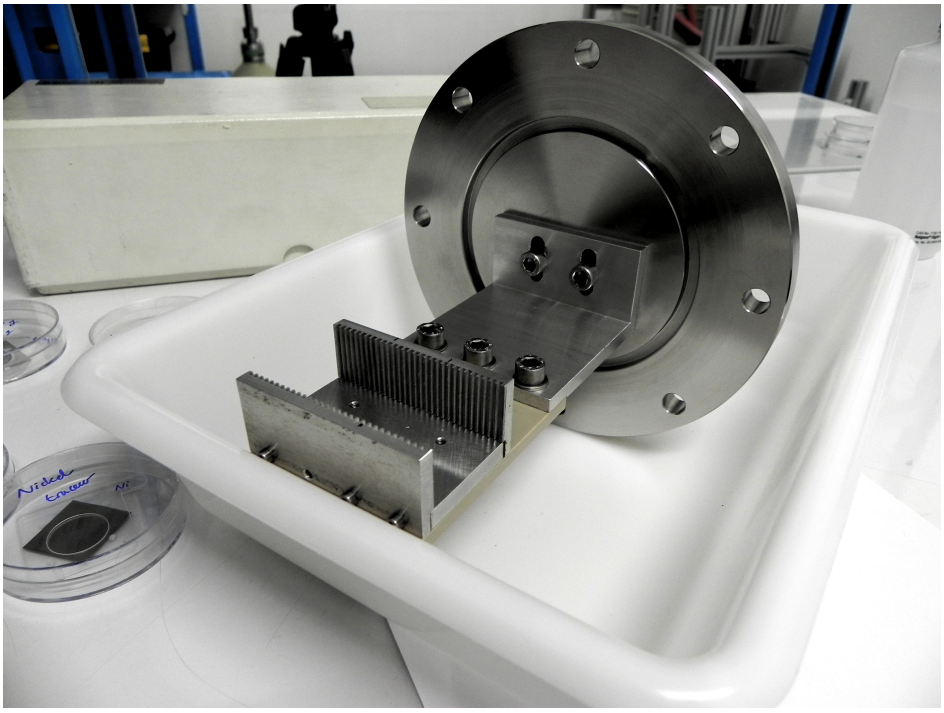

FIGURE 2.12 - Bride porte-échantillons s'insérant dans le caisson hermétique.

Une autre bride supportant un système de cage de Faraday FIG. 2.14 peut-être ajoutée en aval. Cette Faraday, composée d'un bloc de Cuivre naturel dans lequel est creusé un cône facilitant l'arrêt des particules, permet la mesure du courant en direct et plus particulière-

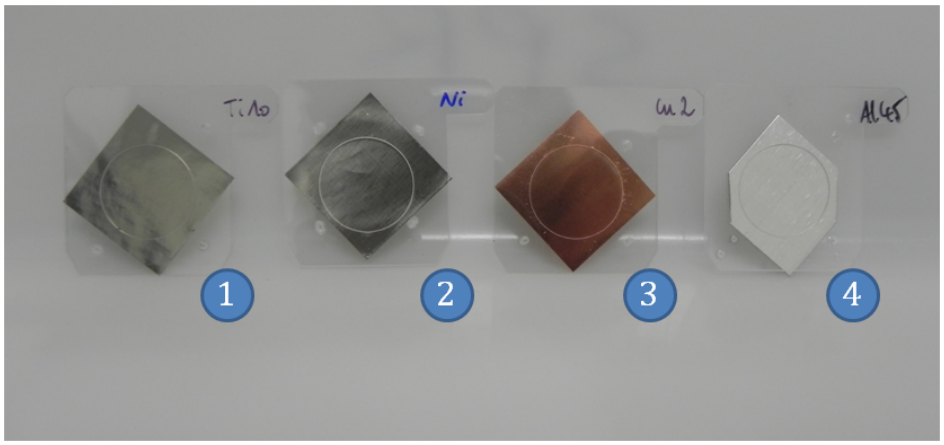

FIGURE 2.13 - Exemples d'échantillons montés sur diapositives, Titane naturel ①, Nickel naturel ②, Cuivre naturel ③ et dégradeur en Aluminium ④.

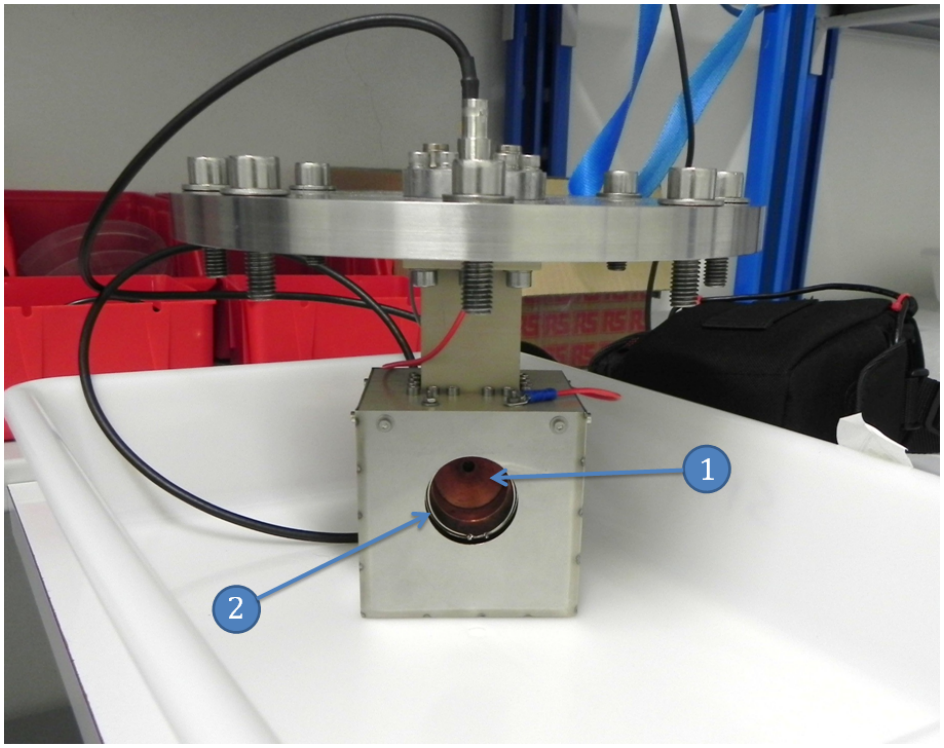

FIGURE 2.14 - Bloc Faraday en Cuivre ① et anneau de garde ②.

ment celle d'intensités faibles. Un anneau de garde empêche la sortie des électrons de cette Faraday. Elle peut être reliée à un système de refroidissement par eau ou air pour une utilisation jusqu'à quelques µA. L'ensemble de ce dispositif ainsi que la ligne d'ARRONAX sur laquelle il est monté, est visible sur la figure 2.15.

Pour valider la faisabilité d'un tel montage, nous avons réalisé des simulations sous GEANT4. Cette démarche est explicitée dans le chapitre 3 suivant.

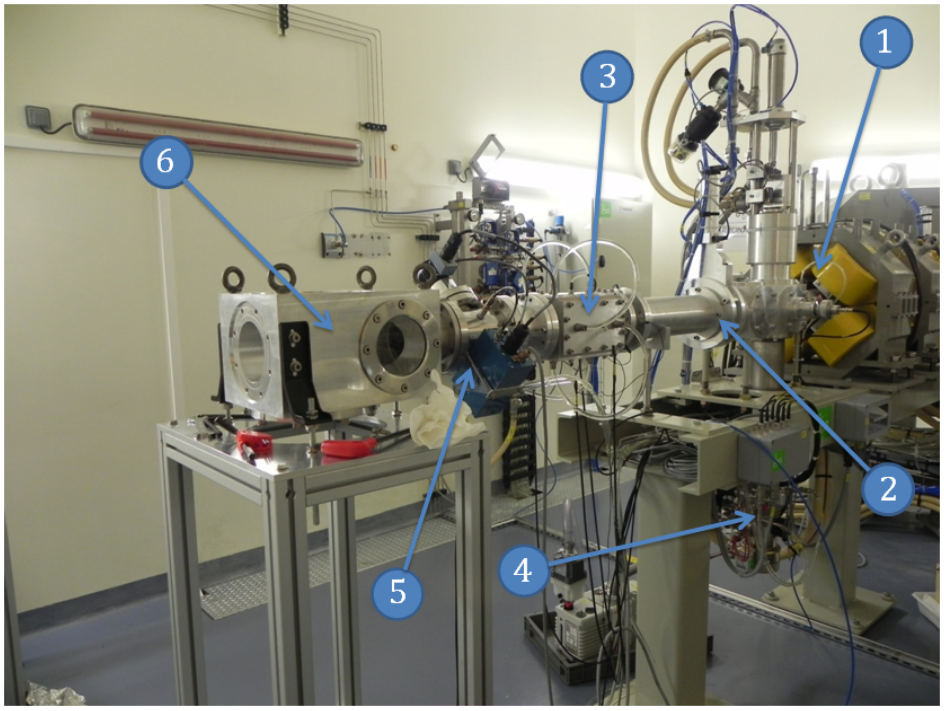

FIGURE 2.15 - Ligne d'ARRONAX sur laquelle est monté le caisson ⑥. Les quadripôles ① permettent des ajustements en position du faisceau, la Faraday cellule mobile ② livre une mesure d'intensité avant l'arrivée sur le collimateur de 10 mm ③. Le *beam-profiler* ⑤ placé juste avant le caisson permet une visualisation de la forme du faisceau au plus près des échantillons. L'ensemble est maintenu sous vide par l'unité de pompage ④.

Chapitre 3

Validation par simulation GEANT$_4$

3.1 Simulations GEANT$_4$

3.1.1 Présentation GEANT$_4$

GEANT$_4$ – **GE**ometry **AN**d **T**racking – est une plate-forme de simulation permettant l'étude de phénomènes relatifs à la physique des particules [35]. Elle est basée sur une méthode de MONTE-CARLO utilisant la programmation orientée-objet $C++$. Ses champs d'applications recouvrent la physique des hautes énergies et des accélérateurs, mais également l'astrophysique ou encore la médecine. Il est développé et mis à jour par une collaboration du CERN.

Son fonctionnement peut être synthétisé par le logigramme 3.1. L'utilisateur est amené

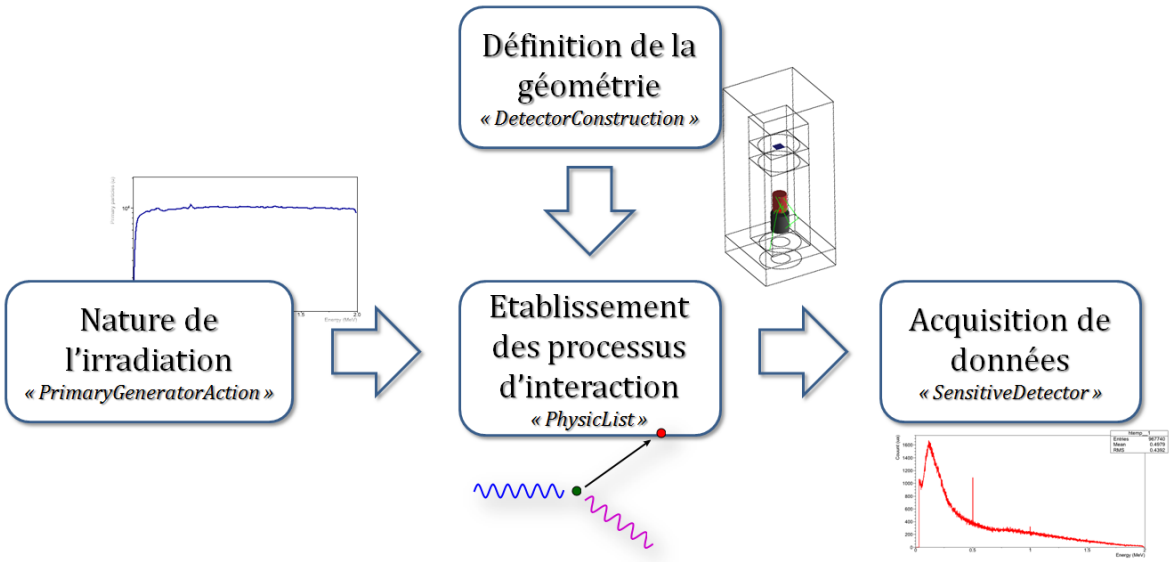

FIGURE 3.1 - Principaux systèmes intervenants lors d'une simulation GEANT$_4$ avec le nom générique des classes associées.

à construire une géométrie dans laquelle il définit l'ensemble des volumes physiques : ligne de faisceau, blindage, cibles ... , leur composition : Aluminium, Plomb, vide ... , ainsi que leur positionnement. Il doit également définir la nature des événements qu'il souhaite générer.

Par exemple un faisceau de particules α, la décroissance d'une source radioactive ou encore une particule cosmique ultra-énergétique.

Les phénomènes physiques résultant des interactions entre les événements définis et la géométrie sont aussi à établir par l'utilisateur. Répertoriés dans les *PhysicList*, ils permettent de se concentrer sur les processus désirés, sans s'alourdir de phénomènes complexes et peu probables qui augmenterait le temps de calcul sans apporter d'informations pertinentes.

Enfin, en configurant correctement des systèmes de détection, l'utilisateur est à même de suivre de nombreuses observables, comme la nature, l'énergie ou la position de particules, qui lui permettent d'effectuer une analyse complète de sa simulation.

GEANT$_4$ va nous permettre de déterminer et de contrôler différentes grandeurs et aspects de nos futures irradiations :

1. Les évolutions, spatiale et énergétique, du flux incident de particules au travers du *stack*.
2. Les particules secondaires créées pouvant contaminer nos mesures : protons, neutrons, deutons, α...
3. Avoir une idée de l'inventaire des noyaux créés, nature et quantité, et ainsi anticiper les mesures de radioprotection à prendre, établissement d'une fiche de poste.

Nous avons joué sur les géométries, natures d'irradiation et processus physiques, pour définir ces simulations.

Nous utiliserons deux autres programmes en couplage avec GEANT$_4$: ROOT et ORIHET$_3$.

ROOT

ROOT est, comme GEANT$_4$, un programme orienté-objet développé par une collaboration du CERN. Il permet l'analyse de données propres à la physique des particules et possède de nombreuses fonctions spécifiques à ce domaine [36]. Il va nous permettre de visualiser et d'analyser les observables que nous déciderons de suivre dans la simulation GEANT$_4$. Nous précédemment utilisé ROOT pour réaliser l'ajustement polynomial exposé au chapitre 2.

ORIHET$_3$

ORIHET$_3$ est une adaptation du **O**ak **R**idge **I**sotope **GEN**eration and depletion code – ORIGEN. En lui fournissant les taux de production isotopique d'un système lors d'une irradiation, le code ORIHET$_3$ permet l'étude de l'accumulation et de la décroissance de l'activité radioactive du système [37]. C'est lui qui opère le calcul des doses associées aux différents éléments simulés sous GEANT$_4$.

3.1.2 Modèles des listes physiques

La liste physique regroupe tous les phénomènes physiques à prendre en compte durant une simulation GEANT$_4$. Il est donc primordial qu'elle soit complète pour ne pas ignorer des processus ayant une influence sur nos résultats. Il faut également veiller à ne pas l'alourdir inutilement sous peine de ralentir considérablement le temps de calcul. Ainsi, une simple étude de perte d'énergie d'un proton d'une dizaine de *MeV* dans la matière ne requiert que l'implémentation des interactions électromagnétiques. L'impact des réactions nucléaires

étant négligeable, celles-ci n'auront pas à être intégrées à la *PhysicList*. En revanche elles sont nécessaires lors de l'établissement d'un inventaire de production.

Nous sommes partis d'une liste physique développée par D.H. Wright et T. Koi [38] dans le cadre de la collaboration du **S**tanford **L**inear **A**ccelerator **C**enter – SLAC. Nous l'avons épurée, retirant notamment tous les phénomènes ayant traits aux mésons, pour l'adapter aux domaines d'énergies et processus nous intéressant. Dans le cas d'études de physique hadronique, il est possible d'utiliser plusieurs modèles comme le *PreCompound Model* ou la cascade binaire [39]. La *PhysicList* de laquelle nous sommes partis fait appel par défaut au *PreCompound Model*. Ce modèle permet de générer l'état final des hadrons après diffusions inélastiques pour des énergies jusqu'à 170 MeV [39]. Après avoir également intégré la cascade binaire, nous avons mené des tests en utilisant l'un ou l'autre des modèles. Les comparaisons réalisées sur les pertes d'énergie ou sur les noyaux secondaires créés ne nous permettent pas de statuer sur le choix d'un modèle préférentiel. Aussi décidons nous de faire appel à la cascade binaire pour lequel le temps de simulation est légèrement plus court.

3.1.3 Définition de la géométrie

La géométrie sera la même pour l'ensemble de nos simulations, c'est typiquement celle présentée sur la figure FIG. 2.10. En utilisant un processus GEANT$_4$ de paramétrisation de volumes, nous pouvons multiplier un très grand nombre de fois chacune des feuilles – cible ou dégradeur – du montage. Nous nous sommes cependant fixé une valeur limite de 10 répétitions, bien que le dispositif en autorise 15. Nous avons jugé qu'au delà la mise en œuvre expérimentale deviendrait compliquée, ne serait-ce que du point de vue des temps d'acquisition de la spectrométrie-γ. En effet, il est indispensable de réaliser un comptage de chaque feuille au plus vite après la fin du tir pour espérer mesurer les activités des éléments de périodes courtes. En supposant une durée d'une heure pour chacune des cibles, il faut, compte tenu du délai nécessaire à la décroissance en fin de tir, tabler sur une douzaine d'heures pour compléter un premier passage.

La visualisation de notre géométrie simulée est présentée, avant et pendant une irradiation, sur la figure 3.2. La feuille fantôme ①, FIG. 3.2, est un volume, ici une feuille de 25 mm par 25 mm d'une épaisseur de 1 µm et vide. Ainsi il n'y a aucune interaction possible entre elle et les particules primaires ou secondaires. Nous l'utilisons comme d'un détecteur : tout événement la traversant est analysé, sa nature, son énergie et sa position relevées.

3.1.4 Définition du faisceau initial

La nature de l'irradiation correspond au faisceau incident de particules délivré par ARRONAX. Ses caractéristiques ont été fixées conformément aux valeurs fournies par IBA, le constructeur de la machine. Les dispersions spatiales et énergétiques sont les suivantes :

1. FWHM de 340.0 keV en énergie pour les protons ;
2. FWHM de 0.61 cm en position suivant les axes x et y ;
3. collimation à R =0.5 cm par collimateur, FIG. 2.15.

Nous avons pris soin de les reproduire le plus fidèlement possible. A titre d'exemple nous présentons sur les figures 3.3 les distributions en énergie et position d'un faisceau primaire de 68 MeV, relevées par la feuille fantôme. Nous retrouvons la forme gaussienne du faisceau en énergie. L'échelle logarithmique des ordonnées pour la courbe de position montre la

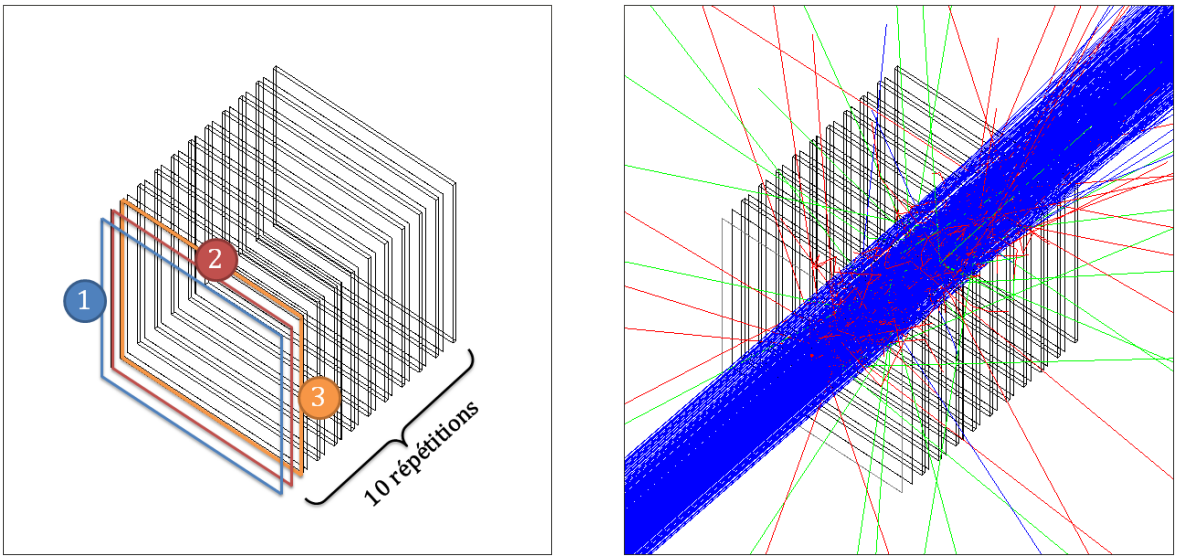

FIGURE 3.2 - Visualisation de la géométrie simulée sous GEANT4 avant une irradiation à gauche, et pendant une irradiation, à droite. Le volume ① est une feuille fantôme, les volumes ② et ③ sont respectivement la cible étudiée et le dégradeur répétés 10 fois. Les trajectoires bleues représentent celles des particules chargées positivement dont les protons incidents, les rouges celles chargées négativement et les vertes les particules neutres.

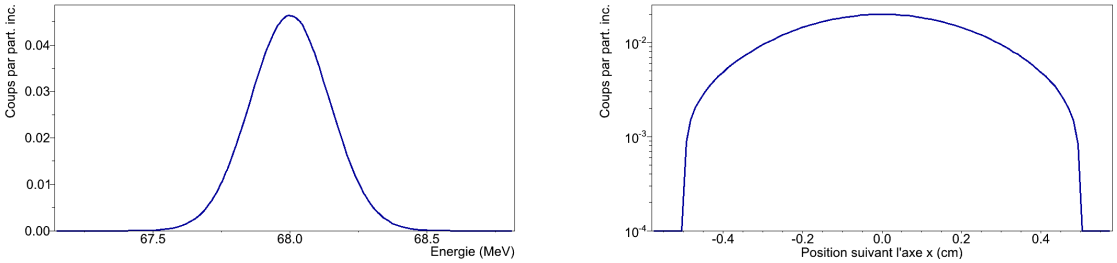

FIGURE 3.3 - Distributions énergétique et spatiale du faisceau initial de particules. La distribution spatiale représentée est celle suivant l'axe x, elle est similaire pour l'axe y.

coupure opérée par le collimateur. Ces caractéristiques resteront identiques dans toutes nos simulations, seule l'énergie initiale variera d'une irradiation à l'autre.

3.2 Résultats des simulations

3.2.1 Caractérisation des pertes de flux

Un point de contrôle précis concerne la dispersion du faisceau engendrée par la traversée de la matière, c'est à dire le nombre de feuilles utilisées. Elle est due à l'interaction Coulombienne ayant lieu entre les particules chargées du faisceau et le cortège électronique des noyaux de la cible. Ces interactions entraînent une déviation des primaires qui se traduit par un élargissement de la tache faisceau, ou *straggling* spatial.

Nous avons donc suivi le flux total de particules incidentes en condition d'irradiation à travers chacune des feuilles cibles d'un montage *Stacked-foils*. GEANT4 attribue pour chaque particule d'un événement un numéro d'identification *TrackID*, il est de 0 pour les primaires.

Le ratio du nombre de primaires détectés dans une feuille sur le nombre d'événements générés donne donc le pourcentage du flux reçu par la cible. En relevant les distributions énergétique et spatiale des particules 0, nous pouvons déterminer les dispersions angulaires. Plus l'énergie initiale est faible plus le *straggling* spatial est important, aussi nous avons choisi de présenter le cas le plus défavorable, pour nos mesures, avec un faisceau de protons d'une énergie initiale de 35 MeV TAB. 3.1. La dégradation de l'énergie et l'augmentation de

Rép.	Énergie (MeV)	σ_E (keV)	σ_{pos} (mm)	Flux (%)
1	34.9	173.4	0.86	99.90
2	33.08	206.8	1.13	99.74
3	31.17	239.7	1.21	99.55
4	29.16	274.0	1.29	99.35
5	27.03	310.0	1.39	99.13
6	24.76	348.9	1.52	98.88
7	22.32	393.3	1.67	98.60
8	19.64	450.3	1.85	98.28
9	16.65	518.8	2.06	97.92
10	13.17	650.7	2.30	97.53

TABLEAU 3.1 - Données extraites des feuilles cibles lors d'une simulation d'irradiation à 35 MeV sous GEANT4.

l'écart-type associé tout du long de ce *stack* TAB. 3.1, sont bien visibles sur la figure FIG. 3.4.

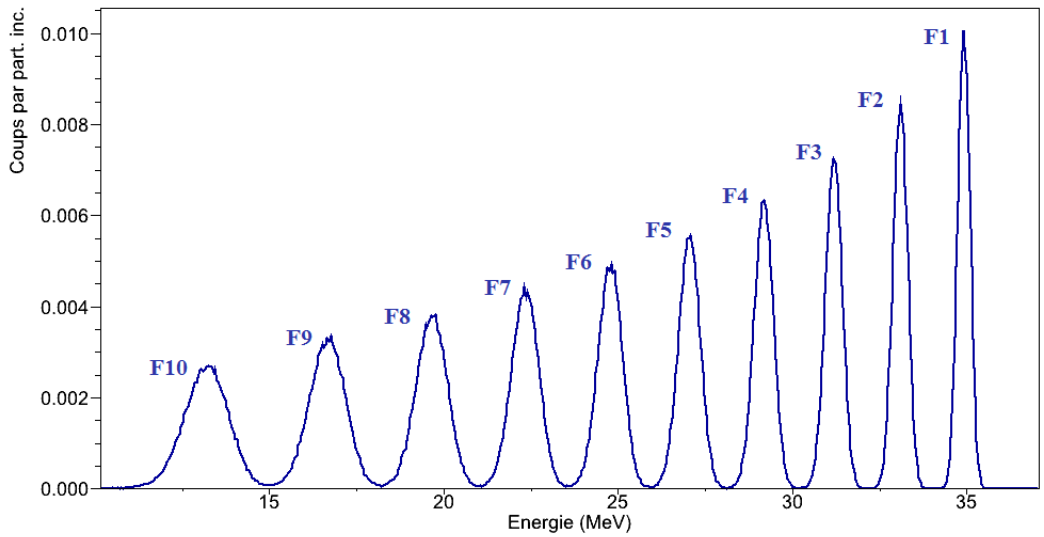

FIGURE 3.4 - Dispersion énergétique des primaires pour chacune des 10 feuilles cibles au cours d'une irradiation à 35 MeV.

Le tableau TAB. 3.1 montre que les pertes de flux au travers d'un *stack* complet de 10 répétitions sont faibles, $\leq$3 %. Les figures FIG. 3.5 décrivent l'évolution des densités de particules primaires sur différentes feuilles du *stack*. Nous constatons que la tache faisceau reste centrée même sur la dernière cible. Leurs dimensions de 25 mm par 25 mm permettant de récupérer la quasi-totalité du flux, en supposant que celui-ci soit parfaitement centré.

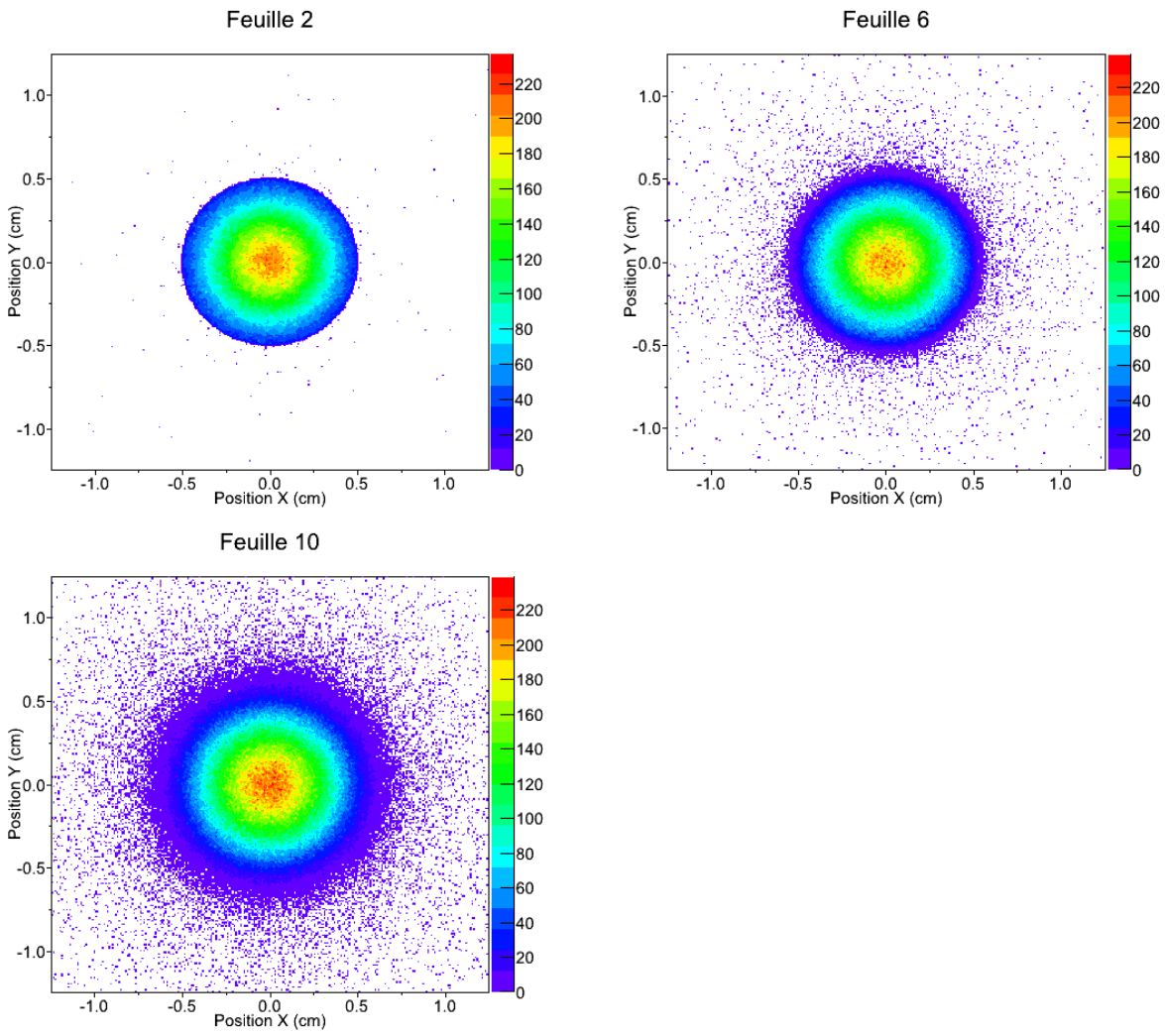

FIGURE 3.5 - Distribution spatiale des particules du faisceau initial sur les feuilles 2, 6 et 10 d'une irradiation à 35 MeV. Les bornes des axes sont conformes aux dimensions des feuilles, 25 mm par 25 mm.

3.2.2 Étude des particules secondaires générées

Lors de ces irradiations est créé, par l'intermédiaire des interactions nucléaires [a], un grand nombre de particules secondaires, que ce soient des neutrons, des protons, des deutons ou des α. Afin de vérifier que leurs quantités restent faibles par rapport au flux incident, et donc leur impact sur nos mesures négligeable, nous avons étudié les spectres énergétiques des particules secondaires susceptibles d'interagir avec les feuilles cibles, soit :

1. les protons secondaires ;
2. les neutrons ;
3. les deutons ;
4. les tritons ;
5. les noyaux d'Hélium 3 ;
6. les α.

a. Interactions gérées par le modèle de la cascade binaire.

Le *TrackID* nous donne la possibilité de différencier les protons secondaires des primaires.

Nous avons suivi l'ensemble de ces particules créées et touchant au moins une cible. Nous nous plaçons de nouveau dans le cas le plus défavorable avec un faisceau de protons d'une énergie initiale de 68 MeV qui favorise la création de particules secondaires en plus grande quantité. Les distributions énergétiques de ces particules légères chargées qui atteignent la dernière feuille du *stack* sont représentées FIG. 3.6 et leurs quantités inventoriées dans le tableau 3.2.

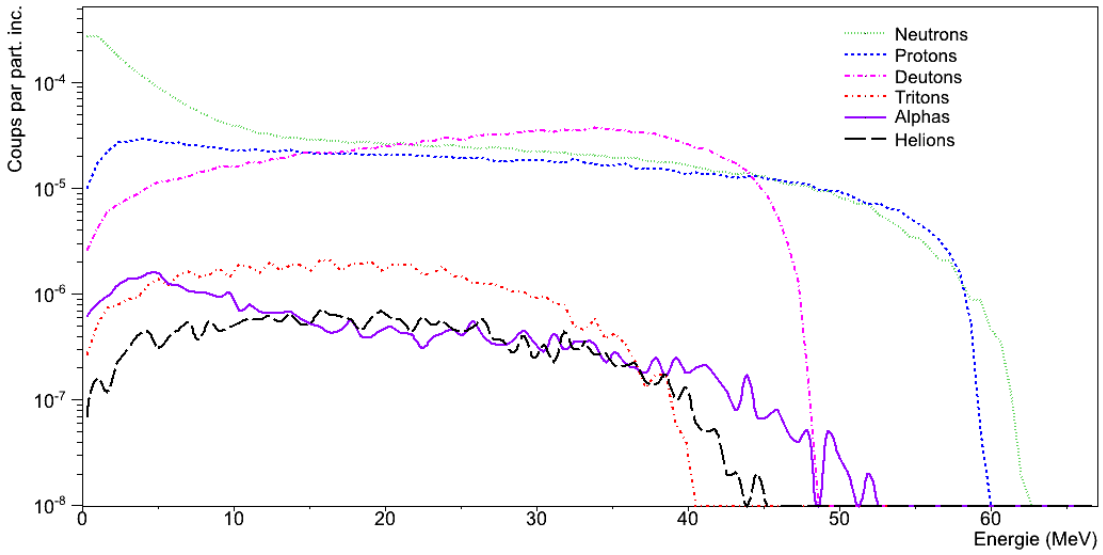

FIGURE 3.6 - Distributions énergétiques des particules secondaires légères générées au cours d'une irradiation de 68 MeV dans la dixième feuille du *stack*.

Particule	Quantité pour 10^6 part. inc.
Neutrons	3161
Protons	1475
Deutons	1576
Tritons	73
Hélions	25
α	37

TABLEAU 3.2 - Nombre de particules secondaires détectées par million de particules incidentes dans la dixième feuille du *stack*.

Le nombre de neutrons détecté est le plus important, devant les protons secondaires et les deutons, les tritons, les α, et enfin les noyaux d'Hélium 3. Nous retrouvons le même ordre de grandeur que ce qui a déjà pu être observé expérimentalement [40]. Les quantités très faibles de Tritons, Hélions et α, un pour 10^5 primaires, rendent leur impact négligeable. Les interactions entre les neutrons et nos cibles sont peu probables du fait des épaisseurs très fines, une dizaine de microns, leur création ne perturbe donc pas nos mesures.

L'évolution des sections efficaces liées aux réactions avec des protons sur notre domaine d'énergies, dont certains exemples sont visibles, FIG. 3.10, se fait typiquement sur deux or-

dres de grandeur pour tout le domaine. La réaction ^{nat}Ti (p , X) ^{48}V est celle pour laquelle cette évolution est la plus marquée. La section efficace y est 20 fois plus importante pour une bande de 5 MeV [b] – autour de 12 MeV – que sur les 60 MeV de tout le domaine couvert par les protons secondaires FIG. 3.6. À une énergie donnée, la quantité de ces protons secondaires pour un primaire est d'environ $2 \cdot 10^5$ FIG. 3.6. Aussi leur contribution totale σ_{sec} à la section efficace σ de cette réaction peut être estimée par une intégration sur tout le domaine en énergie :

$$\begin{aligned} \sigma_{sec} &= 2 \cdot 10^{-5} \times (5 \times 20 + 55 \times 1)\sigma \\ \sigma_{sec} &= 3.1 \cdot 10^{-3}\sigma \end{aligned}$$

Ce qui reste très faible.

Le comportement des sections efficaces pour les réactions en deutons est similaire au cas des protons, comme dans l'exemple concernant la production de ^{48}V FIG. 3.7. Aussi, en considérant le même raisonnement que précédemment, nous pouvons conclure que leur impact, ainsi que ceux des autres particules légères chargées, est faible. Donc aucune de ces particules secondaires ne sera créée en quantité suffisante pour altérer la qualité de nos mesures.

3.2.3 Prise en compte des aspects liés à la radioprotection

Le troisième point étudié avec GEANT4 concerne la radioprotection. Avant de réaliser expérimentalement nos irradiations, nous souhaitons nous assurer qu'elles ne présentent pas de risques ou que nous serons en mesure de mettre en place les mesures de protection adéquates. Nous vérifions également qu'il nous sera possible de manipuler rapidement nos feuilles afin de procéder à la mesure des éléments à durée de vie courte. Cela dépend uniquement de la nature et des quantités des éléments créés dans nos feuilles. Pour ce faire nous avons réutilisé la simulation définie précédemment et suivi les noyaux formés. Pour obtenir une statistique suffisante quant à la création de ces noyaux secondaires, nous devons simuler un très grand nombre d'événements [c]. Utiliser 10 répétitions alourdit considérablement notre temps de calcul, nous simulerons donc un *stack* de 6 répétitions, ce qui est en outre plus proche de la réalité expérimentale.

La figure FIG. 3.8 présente l'ensemble des éléments générés par notre simulation GEANT4. Nous observons deux zones distinctes correspondant chacune aux éléments créés par interactions soit avec la feuille cible en Titane, soit avec le dégradeur d'Aluminium. Ces distributions, exprimées en A et Z, rétrécissent à mesure que nous nous éloignons en masse des éléments cibles, le Titane et l'Aluminium ayant un numéro atomique respectivement de 22 et 13. Les noyaux secondaires sont créés en plus grande quantité autour de l'Aluminium du fait d'épaisseurs plus importantes dans le *stack*.

Une fois l'inventaire de ces éléments réalisé, nous utilisons le programme ORIHET3 qui effectue le calcul des doses, activités et décroissances au cours du temps. Il est ainsi possible de connaître, en Sievert par heure, la dose à 1 mètre d'une source. C'est ce que représente

b. Cette estimation grossière est volontairement majorée.

c. Pour les études des pertes de flux et de création de particules chargées légères, 10 à 100 millions de primaires permettaient d'obtenir une statistique suffisante. Dans le cas présent il faut pouvoir en générer au moins 100 milliards.

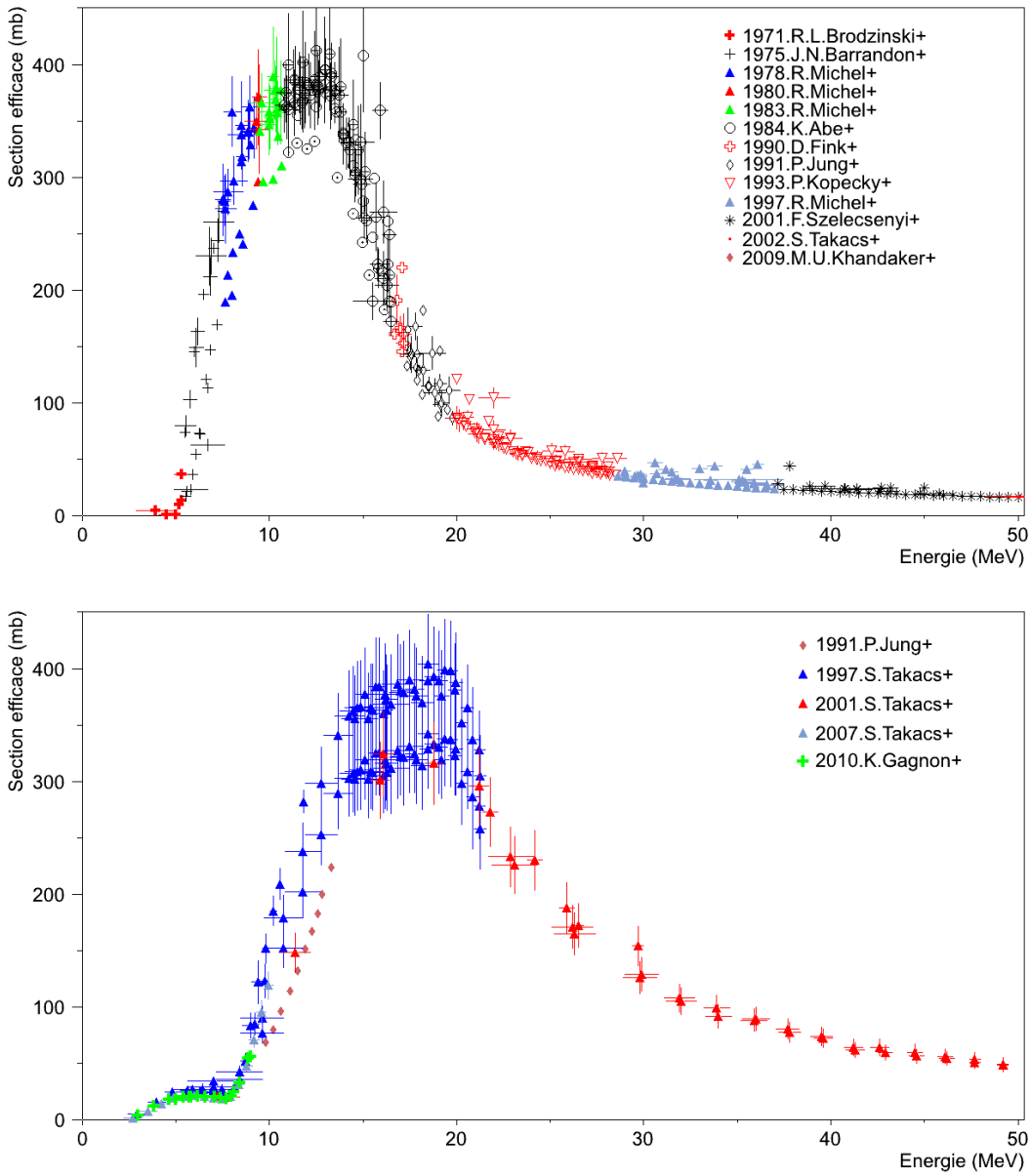

FIGURE 3.7 - Données expérimentales des sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{48}V partie haute et de la réaction ^{nat}Ti (d,X) ^{48}V partie basse [15].

la figure 3.9, en considérant une irradiation de 100 nA durant 1 h [d]. Comme précisé au moment du choix du matériau du dégradeur, l'Aluminium naturel, uniquement composé de son isotope 27, s'active très peu. Son irradiation ne génère principalement que des éléments à durée de vie très courtes inférieures à la minute, la dose décroit donc très rapidement. Il n'est généralement pas possible d'entrer durant la première demie-heure [e] aussi la forte

d. Les intensités utilisées lors d'irradiation *Stacked-foils* sont faibles, 100 nA est la plus basse qui soit aisément reproductible par le cyclotron. Le choix d'une durée d'une heure est simplement du à la volonté d'exprimer les résultats de nos simulations suivant une unité temporelle simple et du même ordre de grandeur que nos futurs temps d'irradiation expérimentaux.

e. L'accès aux casemates est interdit les 10 premières minutes après le tir pour permettre le renouvellement de l'air – évacuation des isotopes ^{11}C, ^{13}N, ^{15}O ... éventuellement produits – et tant que l'ambiance de la salle n'est pas inférieure à 90 µSv.h^{-1}.

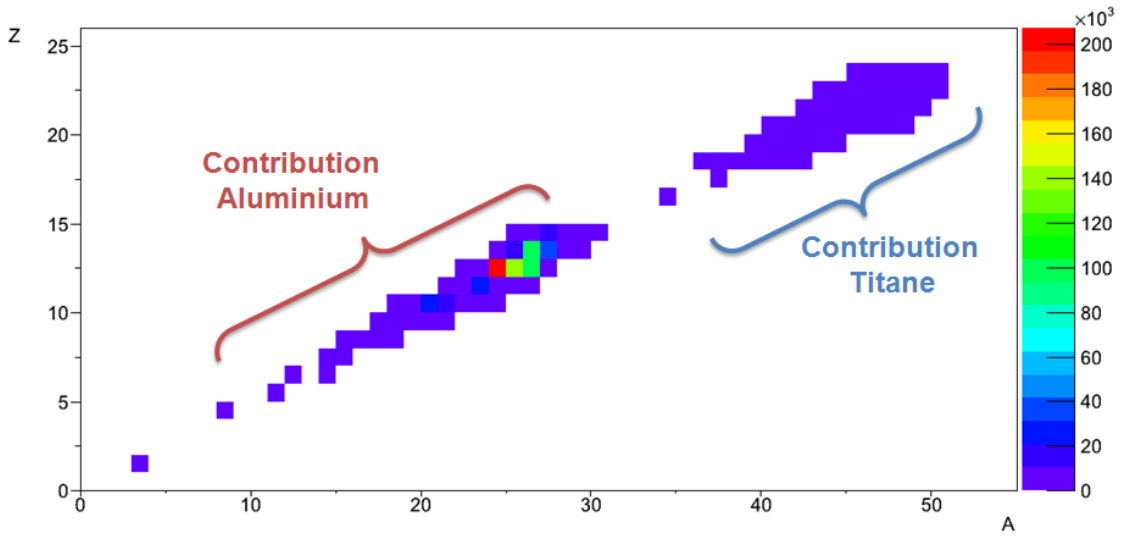

FIGURE 3.8 - Distributions des éléments secondaires générés au cours d'une irradiation de 68 MeV dans les six feuilles de Titane et cinq d'Aluminium du *stack*.

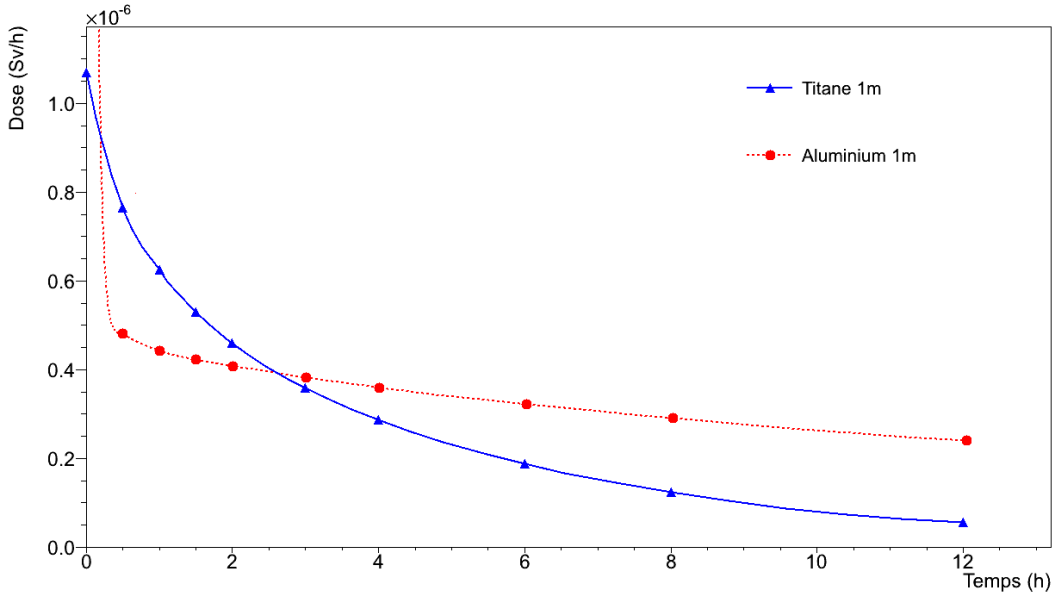

FIGURE 3.9 - Évolutions de la dose à 1 mètre pour l'ensemble des feuilles cibles de Titane et des dégradeurs en Aluminium dans un *stack* de 6 répétitions.

dose immédiate de 400 µSv.h^{-1} issue des dégradeurs d'Aluminium n'est pas à prendre en compte. Seuls les isotopes 22 et 24 du Sodium de période respective 2.6 ans et 14.99 h contribuent par la suite à ces valeurs de dose. Il apparaît bien que sur le long terme ce sont principalement ces dégradeurs qui pourront poser des problèmes de radioprotection. Or ceux-ci ne présentent aucun intérêt pour les mesures. Ils seront stockés à l'écart dans des zones prévues à cet effet.

En définitive, les doses totales sont très faibles, inférieures à 1 µSv.h^{-1} [f] qui constitue la limite de remise en circulation d'un élément irradié [41]. Ainsi, nous devrions pouvoir récupérer rapidement nos feuilles cibles afin de procéder aux premières mesures. Toutefois, un contrôle systématique, effectué par le Service de Prévention des Risques – SPR – aura lieu avant toute manipulation, notamment par l'intermédiaire de mesures de doses au contact.

3.3 Moniteur

3.3.1 Réécriture de l'équation

Nous venons de voir que les pertes du flux au travers du *stack* sont faibles. Cependant afin de nous affranchir de ce biais, nous allons utiliser un moniteur que nous intercalerons juste derrière chaque cible [42, 43]. Ce moniteur doit être choisi de façon à obéir à certaines règles. Tout d'abord, il est indispensable qu'une ou plusieurs réactions avec le projectile utilisé aient des sections efficaces de références parfaitement connues et validées. Elles suivent également la formule 2.5. En faisant le rapport entre la relation concernant la section efficace d'intérêt et celle de référence – notée, ainsi que ses composants, en prime – nous obtenons la relation 3.1

$$\sigma = \sigma' \frac{A_{ct} \cdot A \cdot \phi' \cdot \mathcal{N}_A \cdot \rho' \cdot e'_f (1 - \exp^{-\lambda' t_0})}{A'_{ct} \cdot A' \cdot \phi \cdot \mathcal{N}_A \cdot \rho \cdot e_f (1 - \exp^{-\lambda t_0})} \tag{3.1}$$

Les deux feuilles, cible et moniteur, étant d'épaisseurs minces et placées consécutivement dans un *stack*, il est justifié de faire l'hypothèse que $\phi = \phi'$.

$$\sigma = \sigma' \frac{A_{ct} \cdot A \cdot \rho' \cdot e'_f (1 - \exp^{-\lambda' t_0})}{A'_{ct} \cdot A' \cdot \rho \cdot e_f (1 - \exp^{-\lambda t_0})} \tag{3.1}$$

De fait, même si un mauvais réglage entraîne une perte ponctuelle du faisceau en cours de tir, l'utilisation du moniteur nous permettra de corriger cet effet.

3.3.2 Choix du matériau pour le moniteur

Sa composition en masse atomique doit être suffisamment différente de celle de l'élément étudié pour éviter tout risque de pollution par pulvérisation, du moniteur vers la cible [44], ou d'empêcher une différenciation des noyaux de recul, de la cible vers le moniteur [42]. L'IAEA a établi une liste d'éléments, ainsi que leurs réactions associées, utilisables en tant que moniteur. Tout comme pour le calcul de production, chapitre 2, l'IAEA donne les valeurs tabulées de sections efficaces [13].

Pour notre domaine d'énergie, les candidats possibles sont l'Aluminium, le Titane [g], le Nickel et le Cuivre. Nos dégradeurs étant en Aluminium, nous ne pouvons nous servir de ce matériau comme moniteur, les phénomènes de contamination par pulvérisation étant alors possibles entre les deux feuilles. Reste donc le Titane, le Nickel et le Cuivre. Les réactions de références ainsi que leur domaine d'application en énergie sont répertoriés dans le tableau 3.3.

f. Le bruit de fond sur ARRONAX est de 0.2 µSv.h^{-1}
g. Il existe en effet la possibilité de se servir de la même feuille comme cible et moniteur.

Élément	Réaction	Domaine d'énergie	Période de l'isotope
Titane	^{nat}Ti (p,X) ^{48}V	5 MeV - 50 MeV	15.97 j
Nickel	^{nat}Ni (p,X) ^{57}Ni	13 MeV - 50 MeV	35.6 h
Cuivre	^{nat}Cu (p,X) ^{62}Zn	13 MeV - 60 MeV	9.19 h
	^{nat}Cu (p,X) ^{56}Co	40 MeV - 100 MeV	77.23 j

TABLEAU 3.3 - Réactions de référence et domaine en énergies associé pour l'utilisation des moniteurs secondaires.

Concernant le domaine des énergies inférieures à 50 MeV, nous sommes face à trois choix possibles. Nous avons décidé d'utiliser le Nickel car la réaction ^{nat}Ni (p , X) ^{57}Ni est celle possédant les sections efficaces les plus importantes dans ce domaine FIG. 3.10. Ainsi nous assurerons une meilleure statistique de comptage, donc une erreur relative plus faible. En suivant le même raisonnement, nous privilégierions la réaction ^{nat}Cu (p , X) ^{62}Zn pour les énergies comprises entre 50 MeV et 60 MeV. Au delà de 60 MeV, la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{56}Co est la seule disponible.

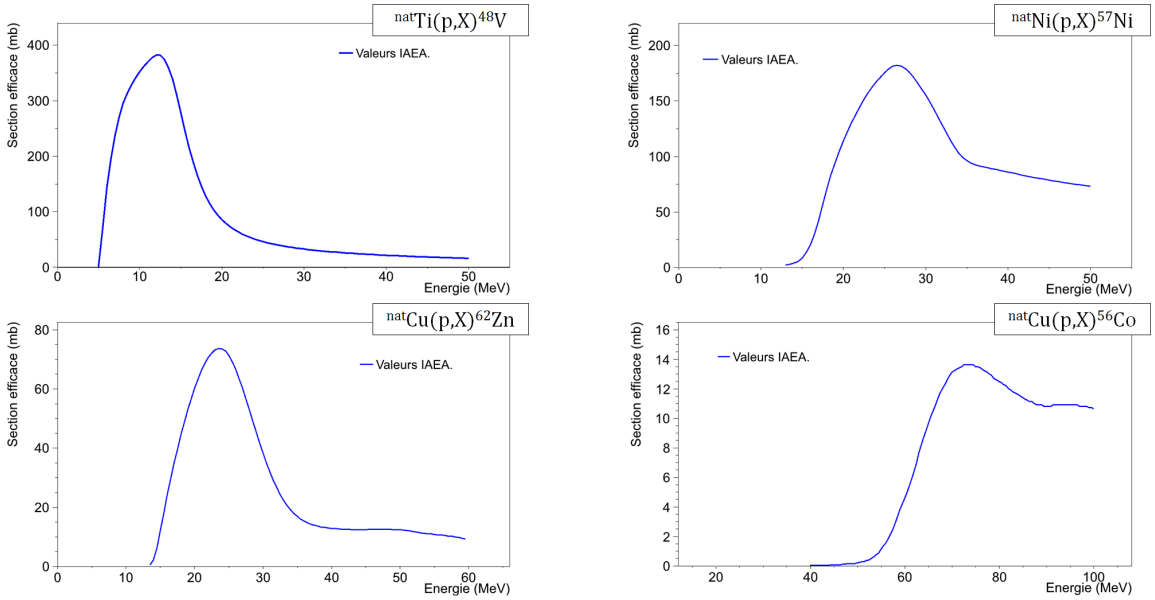

FIGURE 3.10 - Valeurs tabulées par l'IAEA [14] pour les réactions servant de référence.

3.3.3 Calcul de l'erreur associée

La relation 3.1 est donc celle qui nous permet de calculer les valeurs de sections efficaces. Toutes les composantes de l'équation 3.1 étant indépendantes, l'erreur s'exprime de façon quadratique par :

$$\left(\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right)^2 = \left(\frac{\Delta\sigma'}{\sigma'}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A_{ct}}{A_{ct}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A'_{ct}}{A'_{ct}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta e_f}{e_f}\right)^2 + \left(\frac{\Delta e'_f}{e'_f}\right)^2 + \left(\frac{\Delta t_0}{t_0}\right)^2 \tag{3.2}$$

La durée t_0 de l'irradiation est chronométrée à la seconde près, ce qui pour des tirs d'une demi-heure représente une erreur relative $\leq$1 ‰. Comme nous le verrons, *Goodfellow* nous certifiant les épaisseurs à 15 % nous serons amenés à les recalculer. Nous utilisons pour cela des balances de précisions à $\pm 10^{-6} g$ et une règle à $\pm$0.1 mm. L'incertitude sur la nouvelle valeur moyenne de cette épaisseur est toujours inférieure au pour-cent. L'erreur sur la section efficace de référence est établie par l'IAEA [13] lors de son ajustement, typiquement elle est de l'ordre de 8 %. Le logiciel d'analyse que nous utilisons pour nos mesures γ calcule l'erreur sur les activités mesurées, elle est généralement comprise entre 1 % et 5 % [45, 46, 47, 48]. La forme quadratique fait que seules les plus fortes contributions participent à l'erreur totale sur notre section efficace d'intérêt. Aussi nous pouvons négliger les erreurs relatives aux temps d'irradiation et aux épaisseurs des feuilles. La relation 3.1 s'écrit alors :

$$\left(\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right)^2 = \left(\frac{\Delta\sigma'}{\sigma'}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A_{ct}}{A_{ct}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A'_{ct}}{A'_{ct}}\right)^2 \tag{3.3}$$

Chapitre 4

Mesure de sections efficaces du Scandium 47

4.1 Introduction

Particulièrement intéressant pour des applications en thérapie vectorisée, le Scandium 47 est le premier élément vers lequel se sont tournées nos investigations. La voie de création retenue pour sa production est la suivante : ^{nat}Ti (p , X) ^{47}Sc. En observant les données disponibles FIG. 4.1 et provenant d'autres expériences, nous remarquons que si l'accord est très bon aux basses énergies, il existe une divergence à haute énergie. De plus nous constatons que, compte tenu des caractéristiques d'ARRONAX, il peut être judicieux de se placer dans la gamme allant de 50 MeV à 70 MeV pour assurer la production du Scandium 47. C'est à R. Michel que nous devons les valeurs de sections efficaces, publiées en 1983 [49]

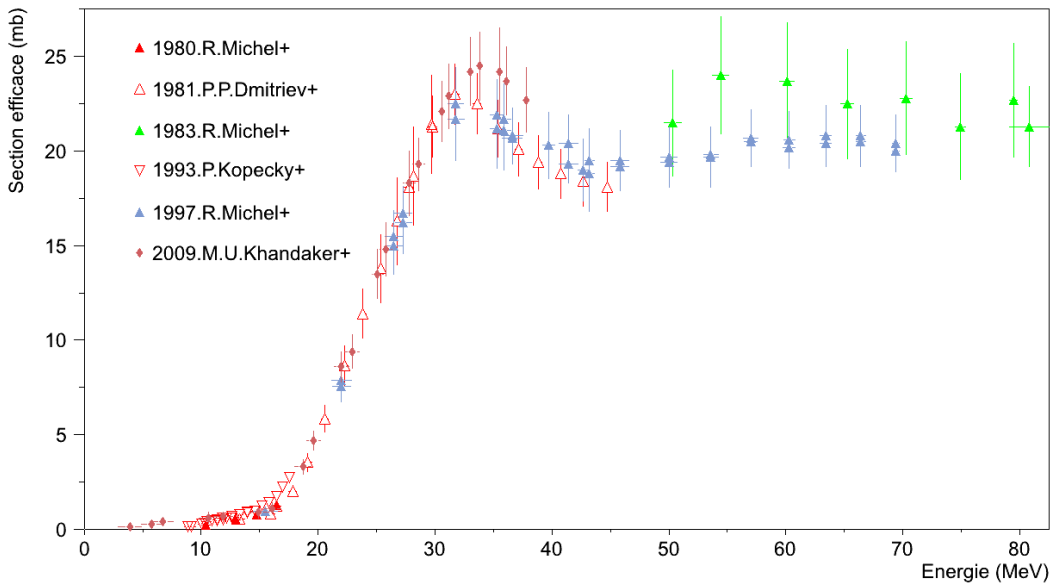

FIGURE 4.1 - Données expérimentales des sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p , X) ^{47}Sc déjà présentes dans la littérature [15].

et 1997 [42], au delà de 40 MeV. Les protocoles expérimentaux étaient différents, la campagne de 1983 [49] concernait des mesures de sections efficaces sur la gamme de 45 MeV à 200 MeV, tandis que celle de 1997 [42] se concentrait sur celle allant de 15.5 MeV à 70 MeV. Malgré les divergences, R. Michel n'a pas cherché à confronter ses deux séries de données ni en expliquer les différences. Il nous a semblé indispensable de réaliser nos propres mesures de sections efficaces afin d'améliorer la précision des valeurs à haute énergie.

4.2 Mise en place

Afin de nous assurer d'une plus grande efficacité pour nos mesures et nos analyses, réalisées avec le logiciel GÉNIE$_{2000}$ détaillé dans la partie 4.3, lors des tirs de *Stacked-foils*, nous avons procédé à des irradiations suivies d'analyses tests. Au nombre de trois, elles se composent le plus simplement possible d'une feuille de Titane de 10 microns suivie d'un moniteur secondaire en Nickel de 50 microns dans les deux premiers cas, puis 20 microns. Ces tests ont été menés aux énergies de 61 MeV, 35 MeV et 45 MeV de manière à couvrir la gamme en énergie d'intérêt. Cela nous a permis de nous familiariser avec ce type de mesures, de valider les temps et intensités d'irradiation, ainsi que les contraintes de radioprotection.

Les feuilles de Titane naturel – ^{46}Ti 8.0 %, ^{47}Ti 7.5 %, ^{48}Ti 73.7 %, ^{49}Ti 5.5 %, ^{50}Ti 5.3 % – sont achetées chez GOODFELLOW qui nous garantit une pureté de 99.6+ %. Ce sont également eux qui nous fournissent les feuilles de Nickel naturel – ^{58}Ni 68.27 %, ^{60}Ni 26.1 %, ^{61}Ni 1.13 %, ^{62}Ni 3.59 %, ^{64}Ni 0.91 % – pour un niveau de pureté de 99.9 %, nous servant de moniteurs. L'intensité de ces tirs a été de 0.05μA.h ce qui reste conforme aux ordres de grandeurs de nos simulations GEANT$_4$ du chapitre 3.

Le tableau TAB. 4.1 fournit le rappel des caractéristiques de ces tirs [a]. GOODFELLOW certifie les épaisseurs de ses feuilles – de 50 microns ou moins – avec une erreur de 15 %, ce qui est trop important. Aussi avons-nous pris soin de recalculer l'épaisseur moyenne en mesurant et pesant [b] nos feuilles. Lors de notre dernière irradiation, et pour celles à venir, nous avons utilisé une règle millimétrique plus précise, ±0.1 mm, ce qui explique la différence sur l'incertitude relative. Celle-ci en devient négligeable.

Éner.(MeV)	Int.(nA)	Dur. irr.(min)	Épais. Titane(μm)	Épais. Nickel(μm)
61	100	30	9.86±0.56	47.39±2.68
35	100	30	9.68±0.55	46.99±2.66
45	200	15	9.98±0.06	20.90±0.12

TABLEAU 4.1 - Inventaire des différents tirs de tests.

Ces irradiations tests avaient également pour but de permettre aux opérateurs de se familiariser avec la machine, notamment quant à l'utilisation d'intensités faibles. Ils ont ainsi pu procéder à des centrages du faisceau en irradiant une feuille d'Alumine [c] placée dans les mêmes conditions que les cibles FIG. 4.2.

a. L'utilisation d'un moniteur en Nickel dans le cas de l'irradiation à 61 MeV est simplement due au fait que nous ne possédions pas encore de feuilles de Cuivre.

b. La balance de grande précision utilisée autorise une incertitude de $\pm 10^{-6}$ g

c. L'Alumine possède la faculté de devenir luminescente lors de son irradiation [50], ce qui permet d'observer, par caméra interposée, le passage du faisceau.

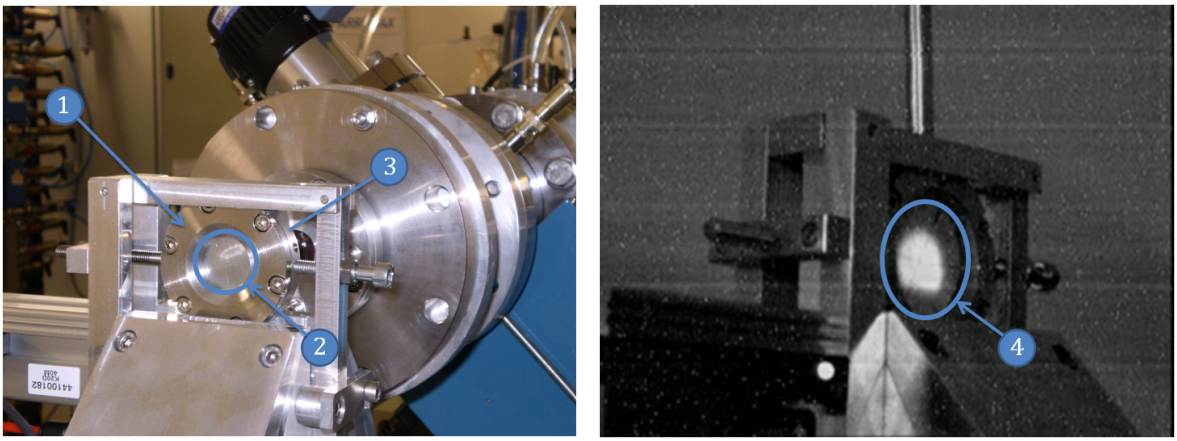

FIGURE 4.2 - Montage de la capsule ① en bout de ligne d'ARRONAX contenant le moniteur de Nickel ② et la feuille cible de Titane ③ pour les irradiations tests. Visualisation du faisceau sur feuille d'Alumine ④.

4.3 Détecteur et logiciel GÉNIE2000

Après les irradiations et un temps de décroissance permettant de réduire la dose, voir nos résultats de simulations en 3.2.3, des comptages en spectrométrie-γ de nos feuilles de Titane et de Nickel ont été réalisés. Ces mesures sont effectuées sur un détecteur Germanium de haute pureté – HPGe – de chez CANBERRA FIG. 4.3. Nous apercevons son blindage de

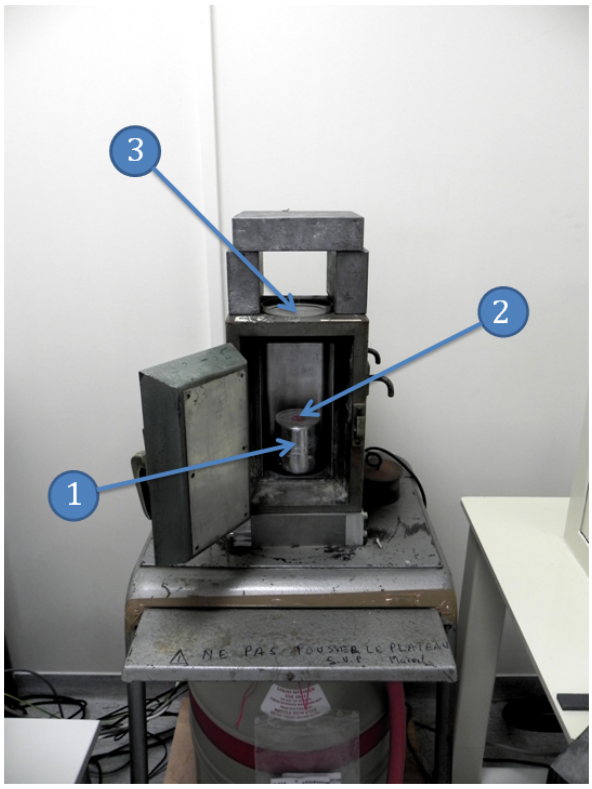

FIGURE 4.3 - Le cristal de Germanium à haute pureté ① dans son blindage de Plomb. Les points ② et ③ montrent les positions pour des comptages effectués, respectivement, au contact et à 19 cm.

5 cm de Plomb visant à réduire le bruit de fond. Il est recouvert sur sa face interne de 2 mm d'Aluminium pour diminuer l'influence des rayons X du Plomb générés par interactions entre les photons émis par les sources et le blindage.

Afin d'éviter des problèmes de temps morts au moment du comptage [d] nous allons être amenés à procéder à des mesures au cours desquelles les feuilles sont éloignées du détecteur. Dans ce cas là, l'échantillon sera placé à 19 cm, au dessus du blindage. De plus, pour fiabiliser la radioprotection, nous ajoutons une chape de briques de plomb.

Le détecteur est relié à la suite d'acquisition et de traitement de données fournie par CANBERRA – GÉNIE$_{2000}$. La chaîne d'analyse se décompose en plusieurs étapes dont certaines indispensables :

1. Acquisition du spectre
2. Recherche des pics
3. Calcul de la surface des pics
4. Correction du bruit de fond
5. Calcul de l'efficacité
6. Identification des pics
7. Correction de filiation

Des étapes facultatives mais assurant une meilleure analyse peuvent être ajoutées. Elles concernent notamment le contrôle de l'ajustement effectué sur le pic au moment du calcul de la surface.

Le principal travail effectué lors de ces irradiations tests a été de comprendre et d'établir les meilleures options pour nos cas d'études. Ces choix ont été largement basés sur le manuel de GÉNIE$_{2000}$ [51].

Avant toute analyse, il est indispensable de réaliser un étalonnage du détecteur. Celui se fait par comptage d'une source multi-γ fournie par LEA-CERCA [e]. Deux courbes d'étalonnage sont ainsi générées, l'une concernant l'énergie et la deuxième l'efficacité de détection.

4.3.1 Étalonnage en énergie

L'intérêt d'utiliser une source multi-γ réside dans la possibilité de couvrir tout un domaine en énergie. Elle est composée de plusieurs radio-éléments dont les raies énergétiques et les intensités sont parfaitement connues. Ceux que nous avons utilisés sont répertoriés dans le tableau TAB. 4.2. Nous avons choisi une source multi-γ de ce type car l'étalonnage sera optimal sur l'intervalle allant de 59.54 keV à 1836.05 keV. C'est dans ce domaine que se font l'ensemble des acquisitions γ concernant notre type de mesures.

Les activités de chaque élément de la source ont été fournies par LEA-CERCA à une date et heure de références, ici le 11/06/2010 à 12h00. Nous avons effectué notre étalonnage le 01/02/2011, ce qui explique l'absence du pic associé au ^{51}Cr, celui-ci ayant totalement décru. L'utilisation du pic à 391.69 keV de l'^{113}Sn nous permet de pallier à cette absence dans notre étalonnage.

d. Les temps morts proviennent d'une saturation de l'électronique du détecteur qui ne peut distinguer tous les événements.

e. **L**aboratoire **É**talons d'**A**ctivités-**C**ompagnie pour l'**É**tude et la **R**éalisation de **C**ombustibles **A**tomiques.

Élément	Période	E_γ(keV)	I_γ(%)	Activité(Bq)	Inc.(%)
^{51}Cr	27.70 j	320.08	9.87	352.0	5.2
^{57}Co	271.74 j	122.06	85.51	9.7	5.1
		136.47	10.71		
^{60}Co	5.27 ans	1173.22	99.85	59.4	5.1
		1332.49	99.98		
^{85}Sr	64.84 j	514.0	98.5	37.5	5.2
^{88}Y	106.63 j	898.03	93.9	57.7	5.1
		1836.05	99.32		
^{109}Cd	461.4 j	88.03	3.63	199.0	6.2
^{113}Sn	115.09 j	391.69	64.97	57.1	5.1
^{137}Cs	30.08 ans	661.65	84.99	61.0	5.1
^{139}Ce	137.64 j	165.85	79.9	9.5	5.1
^{241}Am	432.6 ans	59.54	35.78	39.2	6.2

TABLEAU 4.2 - Éléments composant la source multi-γ du LEA-CERCA, ainsi que leurs données de décroissance.

Une fois le spectre acquis, voir FIG. 4.4, son analyse va permettre d'associer à un canal de détection une valeur en énergie. Nous obtenons ainsi la droite d'étalonnage en énergie de la FIG. 4.5.

4.3.2 Étalonnage en efficacité

Le logiciel va maintenant comparer les activités obtenues pour chacun des éléments avec celles connues et fixées par LEA-CERCA. Ainsi le rapport des deux donne l'efficacité de détection à une énergie donnée et un ajustement permet de l'étendre sur toute la gamme d'énergies du détecteur.

Un revêtement en Cuivre peut être ajouté sur la face intérieure du blindage au Plomb afin de limiter la participation de ses rayons X – 74.82 keV, 77.11 keV, 87.5 keV et 89.78 keV – aux spectres obtenus. Dans notre cas, les 2 mm d'Aluminium ne sont pas suffisants pour empêcher cette contribution. C'est pour cette raison que le ^{109}Cd n'est pas utilisé pour le calcul de l'efficacité car son unique raie à 88.03 keV est polluée par les raies X du Plomb.

Définition de la géométrie

La géométrie de l'échantillon d'étalonnage est un facteur important dans la détermination de l'efficacité. Plus ces échantillons sont volumineux et/ou placés loin du détecteur

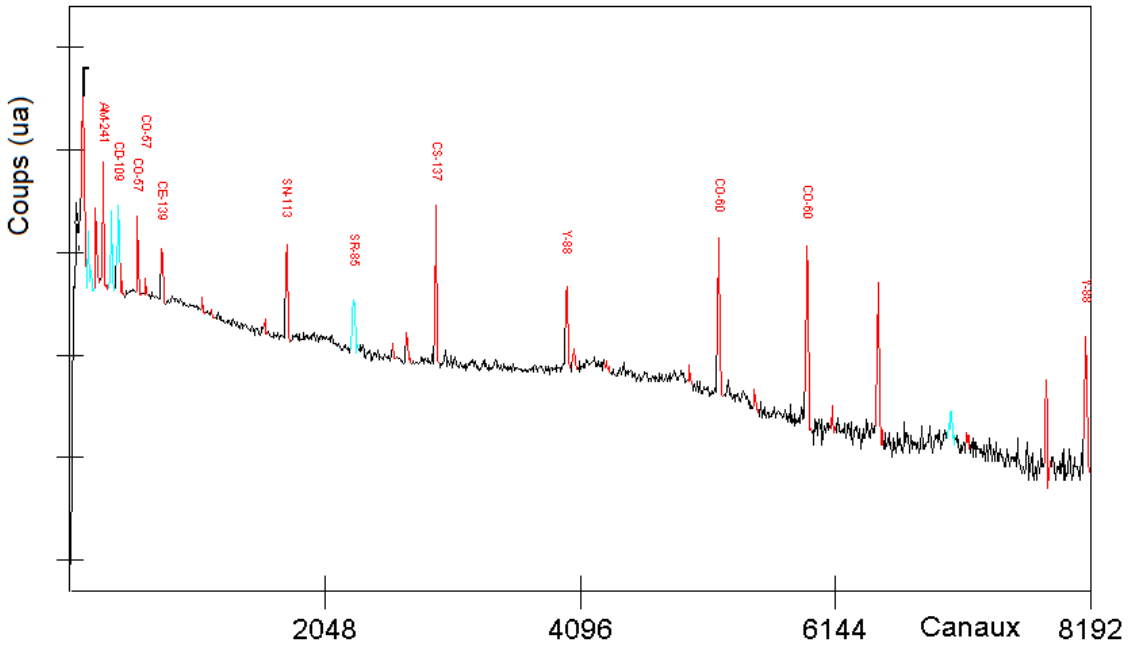

FIGURE 4.4 - Acquisition du spectre de la source étalon.

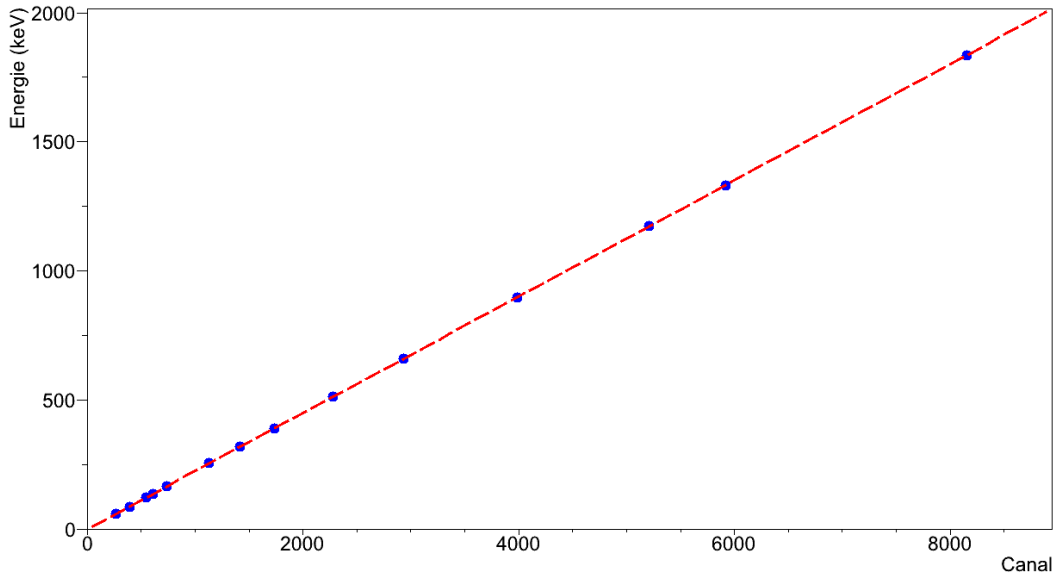

FIGURE 4.5 - Courbe d'étalonnage en énergie de notre détecteur.

plus l'angle solide de détection est faible. Dans notre étude, nous utiliserons soit des feuilles solides, type *A* FIG. 4.6, soit des flacons remplis de 50 mL, type *B* FIG. 4.6.

Rigoureusement, l'activité calculée en sortie de la chaîne d'analyse n'est correcte que pour des échantillons de même nature, solide, liquide ou gazeuse et forme que la source étalon. En utilisant deux géométries différentes, nous sommes contraints de procéder à un étalonnage en efficacité pour chacune d'elles. De même, la distance de mesure influe égale-

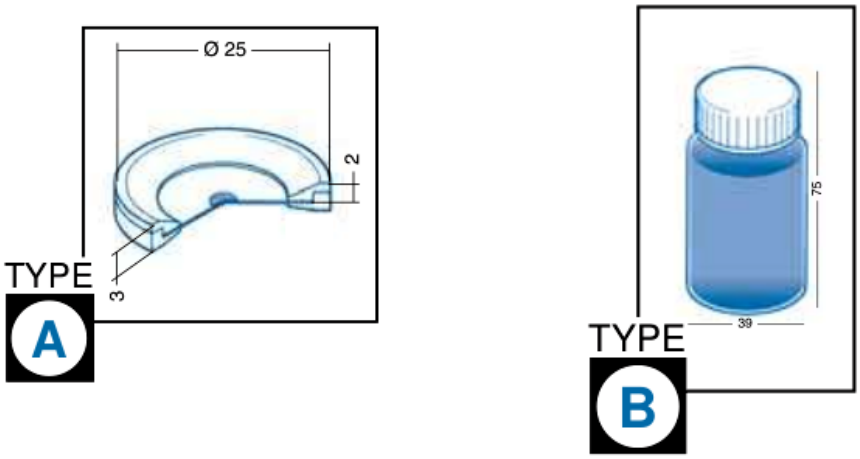

FIGURE 4.6 - Les deux types de géométries utilisées pour nos étalonnages, les dimensions sont exprimées en millimètres.

ment sur l'efficacité de détection. L'annexe C revient plus en détail sur ces différences d'efficacité. Ainsi nous devons effectuer quatre étalonnages différents, un pour chaque géométrie et distance de mesures.

Dans nos premières mesures, nous avons remarqué que procéder à un comptage au contact des feuilles augmentait le phénomène de pics sommes *cf.*4.8.1. Ajoutons que les protocoles expérimentaux, chapitre 5, sont tels que les activités contenues dans un flacon seront trop faibles pour permettre un comptage à 19 cm. Aussi, nous ne procéderons qu'à deux étalonnages différents, le premier concernant les flacons au contact et le second les feuilles à 19 cm.

Le deuxième étalonnage utilise des sources scellées du LEA-CERCA,type *A*, de ^{57}Co, ^{60}Co, ^{88}Y, ^{152}Eu et ^{241}Am. Chaque source ne contient qu'un seul des éléments cités. Leurs caractéristiques et données de décroissance sont inventoriées dans le tableau TAB. 4.3. L'^{241}Am et l'^{88}Y permettent une meilleure définition respectivement à basse et haute énergies. Les isotopes 57 et 60 du Cobalt, dont les énergies des raies recouvrent le domaine couvert par l'^{152}Eu, ont été utilisés pour vérifier cet étalonnage.

4.3.3 Courbes d'étalonnage en efficacité

Les courbes finalement obtenues par chacun des cas sont présentées sur la figure FIG. 4.7.

4.3.4 Vérification de l'étalonnage

Dans le cas des feuilles, nous considérons que la parfaite intégration des pics issus des ^{57,60}Co dans la courbe en efficacité FIG. 4.7, nous permet d'affirmer que notre étalonnage est correct.

Concernant les flacons, nous procédons à l'analyse d'une autre source étalon de type *B* provenant également du LEA-CERCA. Le tableau TAB. 4.4 présente les résultats de cette analyse. Nous obtenons un accord satisfaisant.

Élément	Période	$E_\gamma(keV)$	$I_\gamma(\%)$	Activité(kBq)	Inc.(%)	Date ref.
^{57}Co	271.74 j	122.06	85.51	43.3	1.7	12/12/2008
		136.47	10.71			
^{60}Co	5.27 ans	1173.22	99.85	41.4	1.5	12/12/2008
		1332.49	99.98			
^{88}Y	106.63 j	1836.05	99.32	35.77	1.5	12/12/2008
^{152}Eu	13.54 ans	121.78	28.67	3.437	1.5	26/11/2008
		244.7	7.61			
		344.28	26.6			
		367.79	0.86			
		411.12	2.24			
		443.97	2.83			
		778.9	12.96			
		867.37	4.26			
		964.08	14.65			
		1085.87	10.24			
		1112.07	13.69			
		1408.01	21.07			
^{241}Am	432.6 ans	59.54	35.78	36.0	3.5	12/12/2008

TABLEAU 4.3 - Les éléments des différentes sources multi-γ, ainsi que leurs données de décroissance, utilisés pour le seconde étalonnage. Dans le cas de l'^{88}Y, seule la raie à 1836.05 keV était exploitable.

Élément	$Act_{th}(Bq)$		$\Delta Act_{th}(Bq)$	$Act_{mes}(Bq)$		$\Delta Act_{mes}(Bq)$
^{57}Co	11.6	$\pm$	0.58	12.92	$\pm$	0.4
^{60}Co	64.0	$\pm$	3.2	64.99	$\pm$	1.43
^{85}Sr	43.9	$\pm$	2.2	48.19	$\pm$	2.84
^{88}Y	63.7	$\pm$	3.19	61.7	$\pm$	1.74
^{109}Cd	213.0	$\pm$	11.08	212.82	$\pm$	10.08
^{113}Sn	64.6	$\pm$	3.23	70.95	$\pm$	2.89
^{137}Cs	62.6	$\pm$	3.13	68.76	$\pm$	1.93
^{139}Ce	10.8	$\pm$	0.54	11.19	$\pm$	0.43
^{241}Am	46.1	$\pm$	2.31	46.04	$\pm$	2.87

TABLEAU 4.4 - Comparaison entre les activités théoriques et mesurées pour chaque élément de la source d'étalonnage.

4.3.5 Bibliothèque

Un outil indispensable à ces analyses est la bibliothèque de nucléides à partir de laquelle le logiciel réalise les identifications et corrections. Elle est composée de l'ensemble des isotopes dont la création est prévue lors de l'irradiation. A chacun d'eux est associé l'énergie de leurs γ ainsi que les rapports d'embranchement d'émission. C'est également dans cette bibliothèque que sont précisés les liens de filiation, comme celui du couple ^{57}Co/^{57}Ni. De

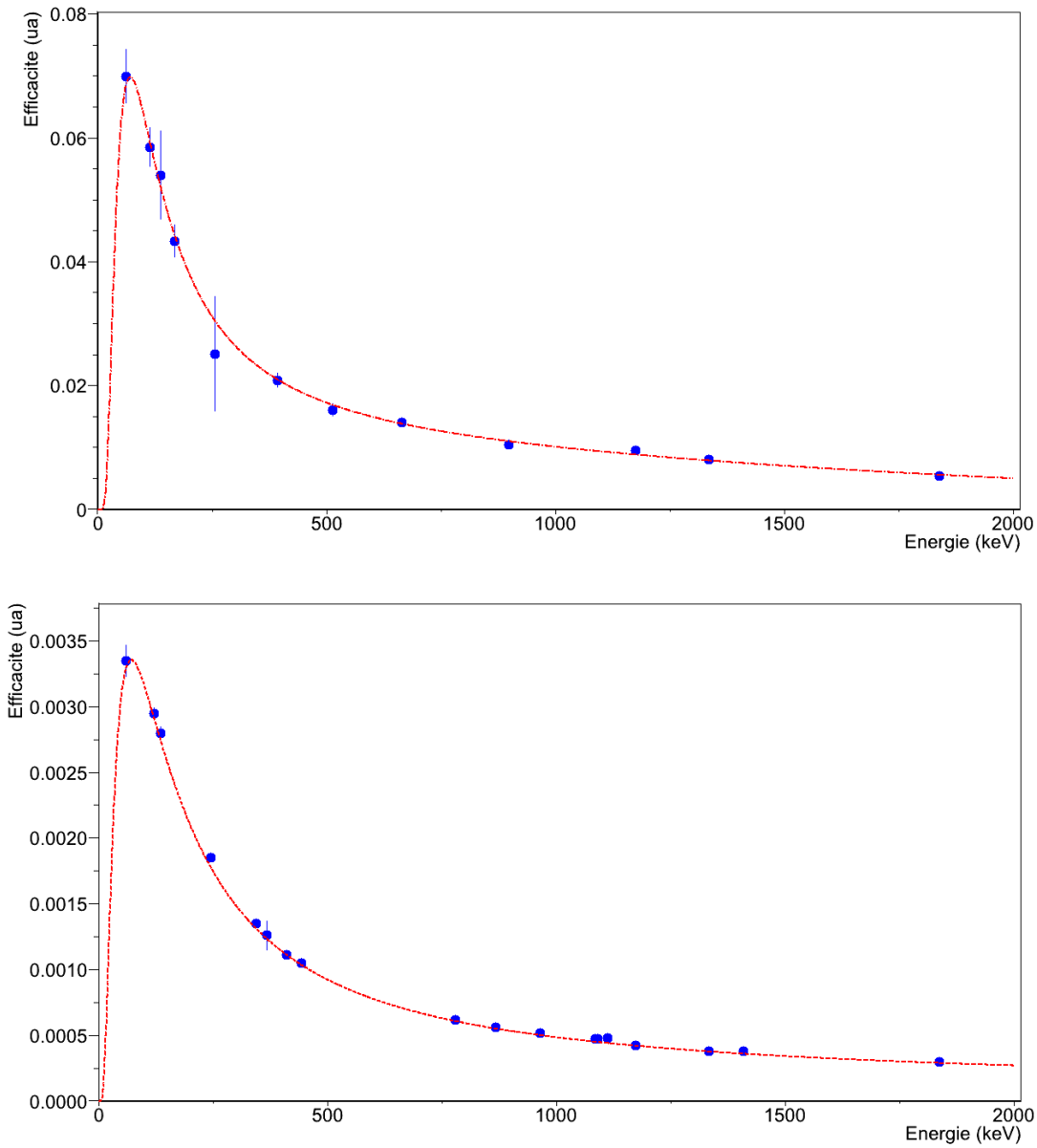

FIGURE 4.7 - Courbes d'étalonnage en efficacité pour les mesures au contact des flacons, en haut, et pour les mesures à 19 cm des feuilles, en bas.

l'établissement de cette bibliothèque dépendent les résultats de l'analyse, elle doit donc être la plus juste possible et est donc souvent ajustée.

En observant le tableau des radionucléides [52], nous pouvons anticiper quels éléments sont susceptibles d'être créés au cours de l'irradiation. Nous rejetons les éléments stables ou ayant des périodes trop courtes ainsi que ceux n'émettant pas de γ autres que ceux à 511.0 keV. Il est en effet impossible de déconvoluer les contributions de deux isotopes différents si ceux-ci n'émettent que des γ à 511.0 keV.

Nous avons décidé d'ignorer pour le calcul de l'activité d'un isotope les pics ayant des intensités d'émissions trop faibles, $\leq$3 %. Nous conservons leurs caractéristiques car une détection éventuelle confirme la présence de l'isotope, et permet ainsi une discrimination en cas d'interférences. Ce cas de figure ne concerne pas le ^{45}Ti ou le ^{64}Cu étudiés plus tard.

Il en est de même pour les raies γ d'énergie inférieure aux 59.54 keV de celle de l'^{241}Am. L'étalonnage en efficacité n'étant pas valide en deçà de cette valeur.

Toutes les données qui nous permettent de développer cette bibliothèque ont été choisies et extraites du NNDC [7].

4.4 Analyse

4.4.1 Recherche de pics

Une fois les spectres acquis, le logiciel procède à une recherche de pics. Plusieurs méthodes sont possibles. Nous avons privilégié la méthode par dérivée seconde, qui recherche sur tout le spectre, plutôt qu'une méthode par bibliothèque pour laquelle nous forçons le logiciel à chercher dans les zones correspondant aux énergies des γ attendus.

4.4.2 Calcul de surface

Le calcul de la surface des pics s'effectue par ajustement d'une gaussienne, voire une déconvolution dans le cas des multiplets [f]. Un contrôle peut être effectué afin de visualiser les aires calculées sur le spectre d'acquisition. Appelé *Show Interactive Peak* [g], il permet notamment d'éliminer manuellement les pics bénéficiant d'une mauvaise statistique et dont les ajustements seront erronés. Un exemple est présenté sur la figure FIG. 4.8.

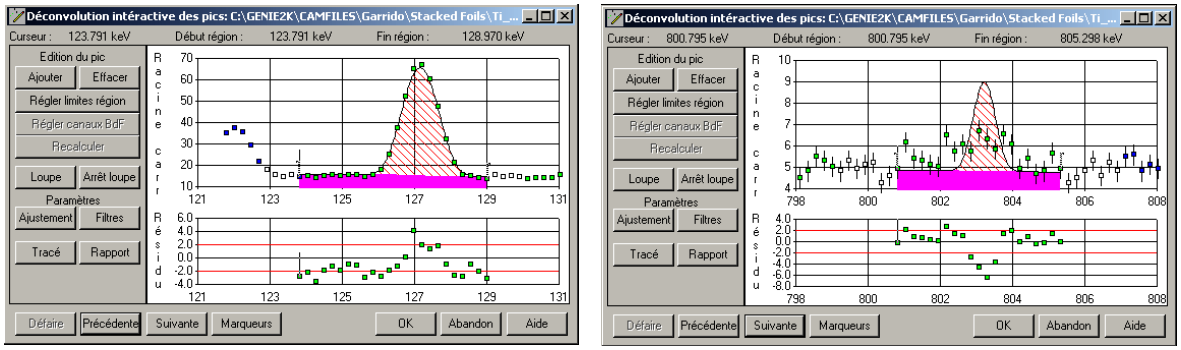

FIGURE 4.8 - Visualisation de l'ajustement gaussien réalisé par le logiciel. Le pic de gauche présente une statistique suffisante pour permettre un bon ajustement contrairement à celui de droite qui est rejeté manuellement.

4.4.3 Extraction du bruit de fond

Le bruit de fond est un facteur important dont il faut tenir compte dans l'analyse, il est traité de deux façons. La première permet la suppression de la partie continue située sous le spectre. La deuxième consiste à extraire d'un pic mesuré la contribution du même pic présent dans le bruit de fond. C'est notamment le cas pour le ^{40}K et de son pic à 1460.82 keV dont la contribution vient uniquement du bruit de fond. Les autres isotopes alimentant le bruit de fond et provenant de la radioactivité naturelle sont les ^{212,214}Pb, ^{212,214}Bi,l'^{228}Ac et

f. Un multiplet est un ensemble de plusieurs pics situés dans la même zone et dont les gaussiennes se recouvrent partiellement.

g. Cette option est uniquement présente dans la version *S501* de GÉNIE$_{2000}$.

l'^{235}U. Une mesure à blanc du détecteur a été réalisée, figure FIG. 4.9, pendant des temps suffisamment longs pour permettre une bonne extraction.

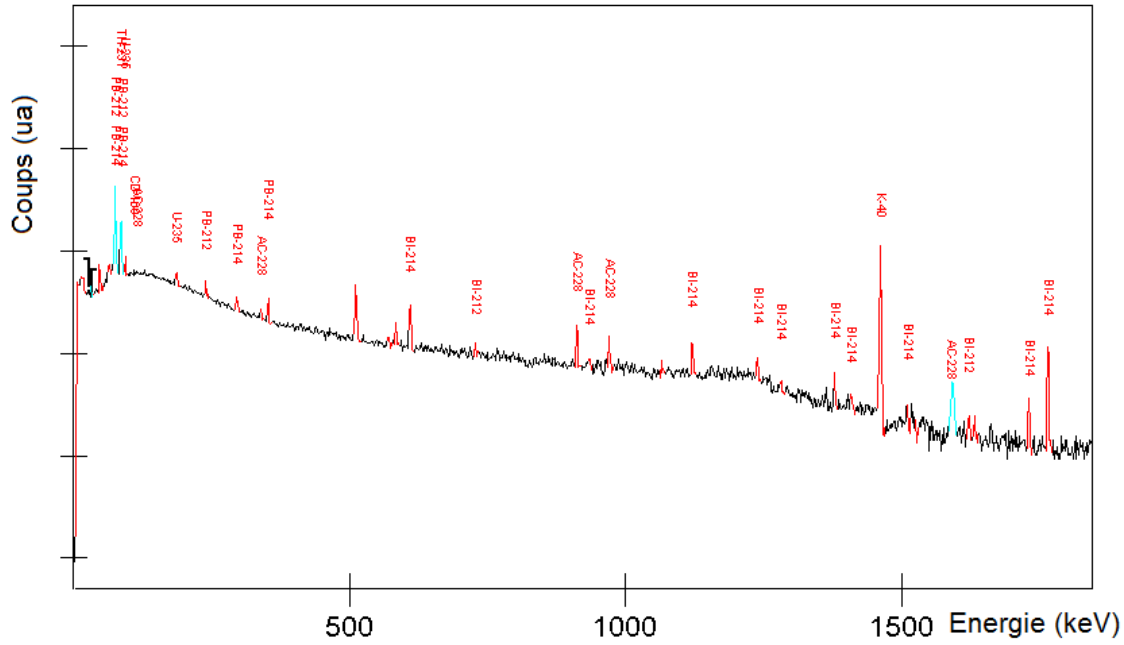

FIGURE 4.9 - Bruit de fond mesuré.

4.4.4 Correction de l'efficacité

La correction de l'efficacité se fait à partir de la courbe d'étalonnage FIG. 4.7 obtenue précédemment qui pour une énergie associe l'efficacité de détection.

4.4.5 Identification des pics

L'identification des pics se fait par l'intermédiaire de la bibliothèque, le logiciel cherche les correspondances entre les énergies répertoriées et celles extraites du spectre. Une incertitude en énergie est fixée au logiciel, 1.5 keV dans notre cas. Un calcul d'interférence est également effectué si plusieurs éléments ont des raies associées à un seul pic. Il est intéressant pour chaque élément d'avoir au moins un pic propre, ce qui permet un meilleur calcul de son activité.

4.4.6 Intérêt de plusieurs comptages

Il est indispensable de réaliser des comptages rapidement après la fin de l'irradiation pour espérer voir les éléments ayant une période courte. Mais il est tout aussi indispensable d'effectuer des comptages à des temps plus éloignés. Les éléments à vies courtes ayant fait leur décroissance, le bruit de fond est nettement plus faible ce qui permet d'obtenir des calculs d'activités plus précis pour les isotopes à vie longue. Cette différence s'observe bien sur les deux spectres suivants FIG. 4.10 issus de la même feuille mais comptée 2 heures et 1 mois après la fin du tir – *end of beam*.

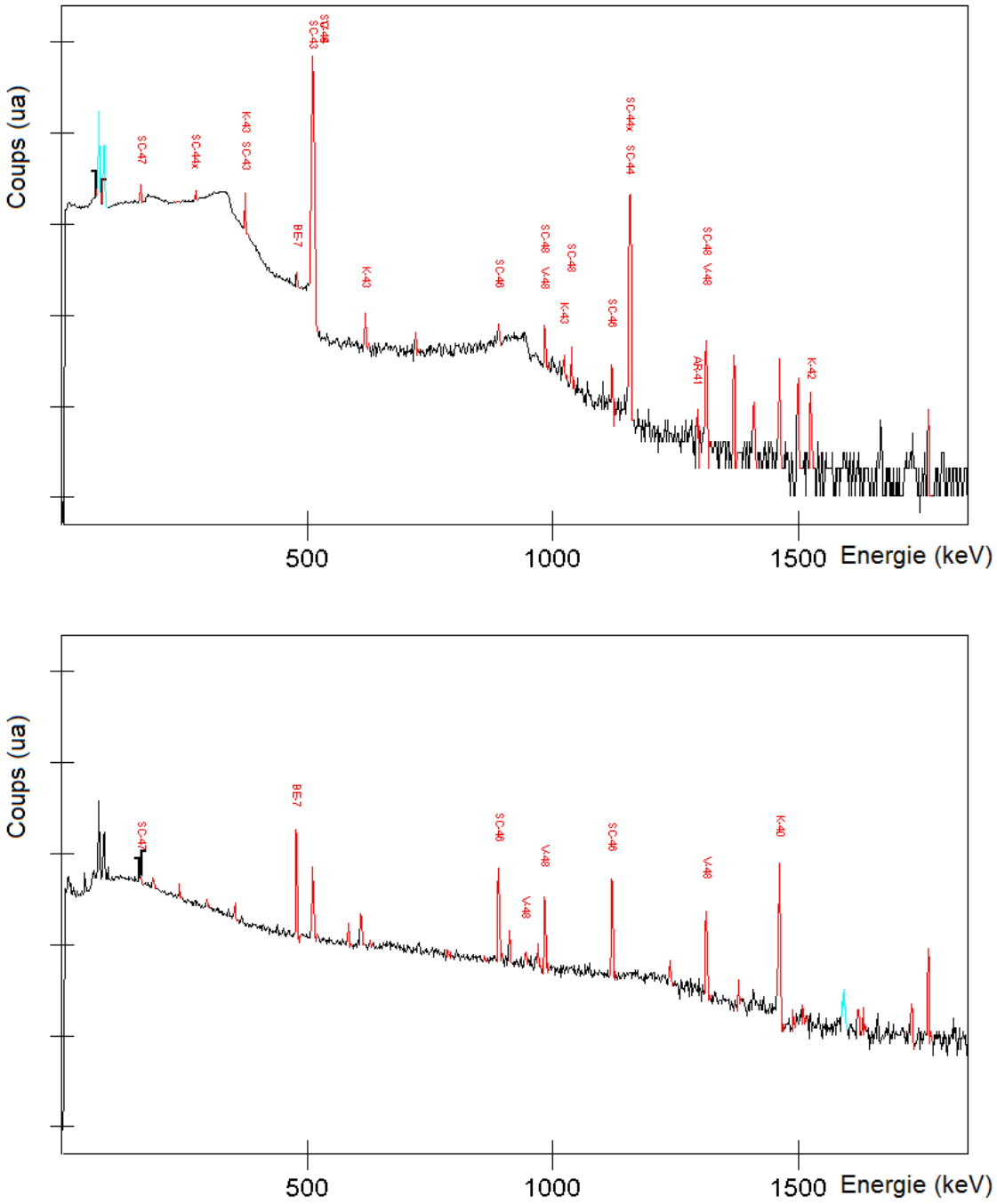

FIGURE 4.10 - Comptages de la feuille de Titane 2.2 *cf.* 4.7.1 effectués 2 heures *end of beam* pendant 1 heure, en haut, et 1 mois *end of beam* pendant 10 heures, en bas.

De plus pour certains couples comme le ^{48}Sc/^{48}V qui décroissent tous deux sur le ^{48}Ti, possèdent des raies γ similaires TAB. 4.5. La raie unique raie à 944.13 keV qui permet la mesure directe de l'activité du ^{48}V a une intensité de 7.87 %, ce qui est relativement faible comparé aux intensités des raies à 983.53 keV et 1312.12 keV proches des 100 %. Nous jouons donc sur la différence de périodes du ^{48}V et du ^{48}Sc, respectivement 15.97 j et 43.67 h, pour affiner nos mesures. Cela nous laisse également la possibilité de compter pendant des durées plus longues, ce qui augmente la statistique et réduit l'incertitude.

Énergie (keV)	^{48}Sc	^{48}V
175.36	7.48 %	/
944.13	/	7.87 %
983.53	100.1 %	98.98 %
1037.52	97.6 %	/
1312.12	100.1 %	98.2 %

TABLEAU 4.5 - Intensités des différentes raies d'émissions pour les isotopes 48 du Scandium et du Vanadium

4.5 Résultats des analyses tests

De ces analyses tests nous avons extrait les activités de 9 isotopes dans les feuilles de Titane, et 12 dans le Nickel. Ainsi nous avons pu déterminer les sections efficaces pour les réactions suivantes :

1. ^{nat}Ti (p,X) ^{42,43}K, ^{43,44m,44g,46,47,48}Sc, ^{45}Ti, ^{48}V
2. ^{nat}Ni (p,X) ^{51}Cr, ^{52,54}Mn, ^{52}Fe, ^{55,56,57,58}Co, ^{56}Ni, ^{61}Cu

Le tableau TAB. 4.6 [h] répertorie les données de décroissances sur lesquelles nous nous sommes appuyés pour créer la bibliothèque et procéder aux identifications. Il prend en compte les recommandations définies dans la partie **Bibliothèque**. Il constitue un bilan des irradiations tests dans le cas du Titane [i], dans le cas du Nickel le tableau se trouve au chapitre 6. Nous remarquons que la transition isomérique du ^{44m}Sc vers le ^{44g}Sc est la seule décroissance sur un élément d'intérêt. Nous avons tenu compte de ce paramètre de filiation lors de l'établissement de la bibliothèque de GÉNIE$_{2000}$.

Précision sur le rôle du *catcher*

Lors de ces irradiations, nous avons mesuré dans les feuilles de Nickel la présence du ^{44g}Sc. Aux énergies des tests, cet isotope ne peut être formé par interaction nucléaire sur le Nickel. Il est le résultat des noyaux formés dans la feuille de Titane et qui du fait de leur énergie de recul se retrouvent dans le moniteur. Il y a donc une sous-estimation de l'activité produite du ^{44g}Sc dans la cible. Cependant, une mesure de l'activité recueillie dans le moniteur montre qu'elle y est inférieure à 1 % de celle dans la cible. Compte tenu du faible nombre de noyaux de recul et donc de la faible incidence sur la valeur de section efficace qui en est déduite, nous avons décidé de ne pas ajouter une feuille *catcher* spécifique aux moniteurs. En effet, il est nécessaire de faire les comptages des différentes feuilles le plus rapidement possible. Il faut donc privilégier les cibles et les moniteurs.
L'utilisation des dégradeurs en Aluminium n'est pas possible car le ^{24}Na qui y est formé génère un bruit de fond élevé empêchant toutes mesures plus fines, comme celles des noyaux de recul. De plus, les pertes par recul sont du même ordre de grandeur dans un moniteur et dans une feuille cible. La relation 3.1 effectuant un rapport des deux activités, l'incertitude liée à ses pertes en devient négligeable.

Concernant les phénomènes de pulvérisation, ils peuvent entraîner une perte vers l'avant, mais également une contamination des cibles par les moniteurs. De très faibles quan-

h. Précisons que l'isotope 45 du Scandium est le seul stable du tableau périodique.
i. Nous y avons juste ajouté les données relatives à l'^{41}Ar qui ne fut pas observé durant les tirs tests.

Élmt	Période	Mode déc.(%)	Fils	$E_\gamma(keV)$	$I_\gamma(\%)$	Réactions	$E_S(MeV)$
^{41}Ar	1.83 h	$\beta^-(100)$	^{41}K	1293.64	99.16	^{48}Ti (p,α+3p+n)	41.35
						^{50}Ti (p,2α+p+n)	31.91
^{42}K	12.36 h	$\beta^-(100)$	^{42}Ca	1524.58	18.8	^{46}Ti (p,4p+n)	39.9
						^{47}Ti (p,α+2p)	20.05
						^{48}Ti (p,α+2p+n)	31.91
						^{49}Ti (p,α+2p+2n)	40.2
^{43}K	22.30 h	$\beta^-(100)$	^{43}Ca	372.81	87.0	^{48}Ti (p,α+2p)	22.06
				617.51	79.2	^{49}Ti (p,α+2p+n)	30.36
						^{50}Ti (p,2α)	12.64
						^{50}Ti (p,α+2p+2n)	41.51
^{43}Sc	3.89 h	$\epsilon(100)$	^{43}Ca	372.81	22.5	^{46}Ti (p,α)	3.14
						^{46}Ti (p,2p+2n)	32.05
						^{47}Ti (p,α+n)	12.21
						^{47}Ti (p,2p+3n)	41.11
						^{48}Ti (p,α+2n)	24.07
^{44m}Sc	2.44 j	$IT(98.8)$	^{44g}Sc	271.24	86.7	^{46}Ti (p,2p+n)	22.14
		$\epsilon(1.2)$	^{44}Ca	1126.07	1.2	^{47}Ti (p,α)	2.3
^{44g}Sc	3.93 h	$\epsilon(100)$	^{44}Ca	1157.0	99.9	^{47}Ti (p,2p+2n)	31.2
						^{48}Ti (p,α+n)	14.17
						^{48}Ti (p,2p+3n)	43.06
^{46}Sc	83.79 j	$\beta^-(100)$	^{46}Ti	889.27	99.98	^{48}Ti (p,2p+n)	22.56
				1120.54	99.99	^{49}Ti (p,2p+2n)	30.86
						^{50}Ti (p,α+n)	13.14
						^{50}Ti (p,2p+3n)	42.0
^{47}Sc	3.35 j	$\beta^-(100)$	^{47}Ti	159.38	68.3	^{48}Ti (p,2p)	11.69
						^{49}Ti (p,2p+n)	19.99
						^{50}Ti (p,2p+2n)	31.14
^{48}Sc	1.82 j	$\beta^-(100)$	^{48}Ti	175.36	7.48	^{49}Ti (p,2p)	11.59
				1037.52	97.6	^{50}Ti (p,2p+n)	22.74
^{45}Ti	3.08 h	$\epsilon(100)$	^{45}Sc	719.6	0.15	^{46}Ti (p,p+n)	13.48
				1408.1	0.09	^{47}Ti (p,p+2n)	22.54
						^{48}Ti (p,p+3n)	34.4
^{48}V	15.97 j	$\epsilon(100)$	^{48}Ti	944.13	7.76	^{48}Ti (p,n)	4.9
				983.52	99.98	^{49}Ti (p,2n)	13.2
				1312.09	98.2	^{50}Ti (p,3n)	24.36

TABLEAU 4.6 - Données de décroissance et principales raies γ des différents éléments étudiés lors des irradiations du Titane [7].

tités de ^{57}Ni, inférieures au pour-mille de l'activité totale, ont été détectées dans le Titane. Les pertes ainsi que la contamination par cette voie sont donc considérées comme négligeables.

4.6 Utilisation de la Faraday

Comme précisé au chapitre 2, notre montage dispose à son extrémité d'une Faraday permettant la mesure en direct de l'intensité du faisceau. L'utilisation de moniteurs secondaires nous affranchit de la nécessité de connaître cette intensité[j]. Aussi cette Faraday sert principalement à assurer un meilleur centrage du faisceau.

4.6.1 Choix de l'intégrateur de courant

Dans un premier temps nous l'avons connecté aux intégrateurs de courant – IC – de la ligne d'ARRONAX. Or ceux-ci ne permettent pas des mesures d'intensités aussi faibles, leur précision est de l'ordre de la vingtaine de nano-ampères. Par la suite nous avons eu recours à l'utilisation d'un amplificateur avec un gain de 100. Branché sur les IC d'ARRONAX, leur précision théorique devenait de l'ordre de la centaine de pico-ampères. Seulement le bruit généré par l'électronique est tel que les valeurs observées oscillaient entre $\pm 50\,\%$.

Nous nous sommes finalement tourné vers l'utilisation d'un intégrateur de charges couplé à une échelle de visualisation FIG. 4.11. L'échelle permet de visualiser la quantité de charges reçues par l'intégrateur sur une période prédéfinie, en choisissant la seconde comme unité, nous obtenons directement l'intensité dans la Faraday. Elle est exprimée en centaine de pico-ampères. La calibration de ce dispositif a été réalisée par un générateur d'impulsions.

4.6.2 Problème du refroidissement

Il est possible de connecter cette Faraday à un système de refroidissement par gaz ou liquides. Nous avons opté pour un refroidissement par eau en utilisant un refroidisseur indépendant de ceux des lignes d'ARRONAX. L'utilisation de l'intégrateur nous a permis de nous rendre compte que l'eau, et surtout ses ions, circulant dans la Faraday induisait un courant parasite de l'ordre de 50 nA, ce qui est trop important pour une utilisation correcte de la mesure d'intensité. Pour prévenir ce genre de problème il faudrait pouvoir dé-ioniser l'eau de refroidissement pendant le tir. Bien que cela soit possible, nous l'avons jugé trop contraignant et préféré ne pas utiliser de système de refroidissement sur notre Faraday. Les intensités utilisées sont faibles et il n'y a donc pas de risques de fusion du Cuivre.

Nous disposons maintenant d'un système permettant une mesure précise de l'intensité du faisceau en sortie de *stack*. Ceci va essentiellement nous permettre de pouvoir centrer au mieux notre faisceau, et ainsi éviter l'irradiation des diapositives de PMMA qui perturberait et la stabilité du vide et donc de nos mesures.

4.6.3 *Beam-profiler*

Le *Beam-profiler* – BPM – présent sur notre ligne FIG. 2.15 nous permet d'observer en direct la forme du faisceau. Il est composé d'une fine tige métallique courbée tournant à

j. Le flux est calculé comme le quotient de l'intensité sur la charge des particules.

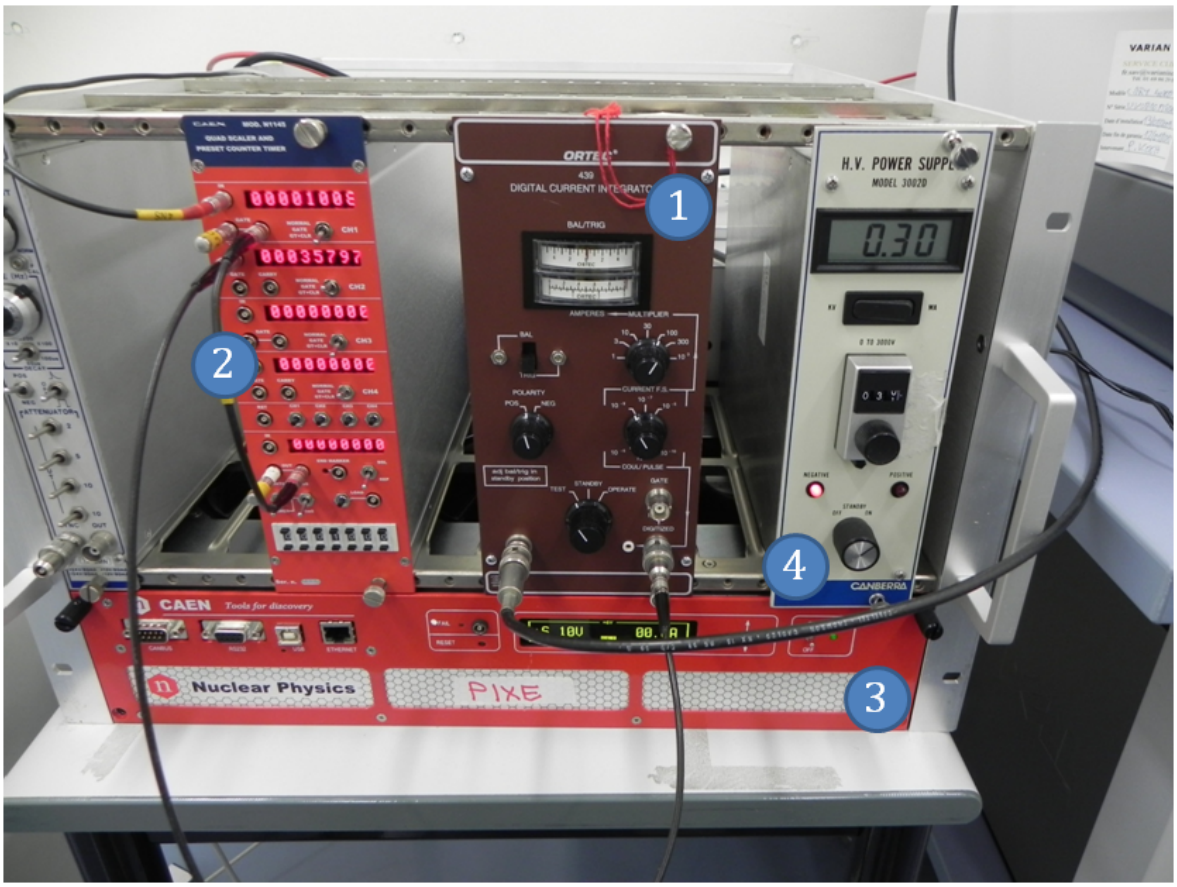

FIGURE 4.11 - Module d'acquisition lié au cube Faraday, composé de l'intégrateur de charges ①, l'échelle de visualisation ② et leur châssis d'alimentation ③. Nous apercevons le générateur de tension ④ relié à l'anneau de garde de la Faraday.

grande vitesse suivant un axe de rotation perpendiculaire à celui du faisceau. Elle recueille les charges issues du faisceau et permet la reconstruction spatiale en x et y, z étant par défaut l'axe de propagation des particules. Nous obtenons ainsi les distributions typiques présentées figure 4.12.

Allié à la mesure de courant de la Faraday, ce BPM permet aux opérateurs de contrôler le centrage et la forme, qui doit être la plus symétrique possible, du faisceau.

4.6.4 Exemple de centrage de faisceau

La figure FIG. 4.13 présente les intensités instantanée et cumulée que nous livre l'intégrateur de charges. Sur cette figure est noté le moment où ont été recueillies les valeurs du BPM présentées sur la figure FIG. 4.12. Elles correspondent à une irradiation relative au ^{67}Cu que nous présenterons dans le chapitre 5. Ne maîtrisant pas encore l'interface avec la borne d'alimentation, ces valeurs ont été recueillies manuellement, c'est à dire qu'elles ont été relevées toutes les 3 secondes puis sommées et tracées. C'est donc un travail fastidieux et peu rigoureux, ce qui explique qu'il n'ai pas été mené à chaque fois. Le temps d'irradiation de 900 s correspond aux irradiations de 15 minutes que nous traiterons dans le chapitre 5.

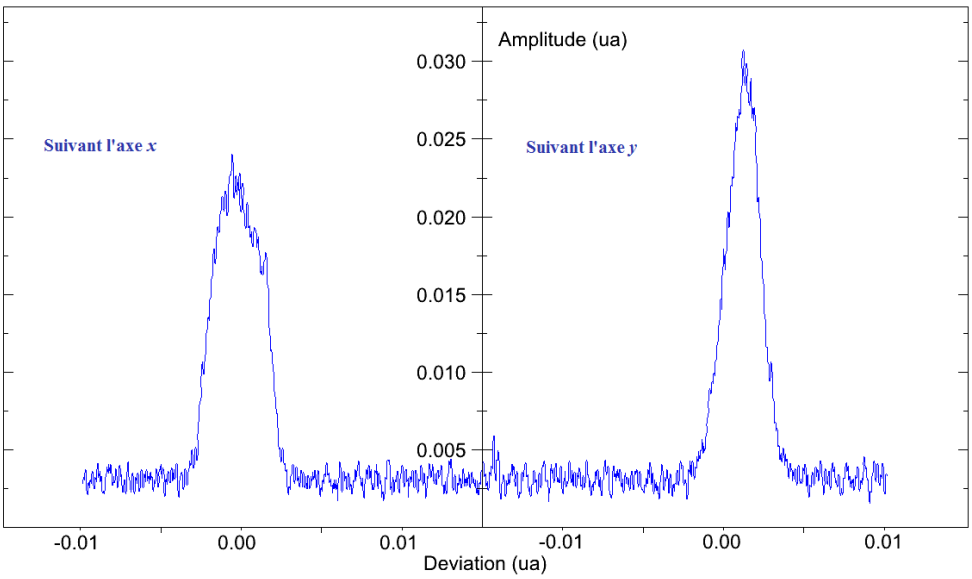

FIGURE 4.12 - Profils obtenus par le BPM suivant les axes x et y du faisceau incident de particules au moment d'une irradiation.

La forme de la courbe qui représente l'intensité instantanée s'explique très bien. Dans un premier temps nous avons joué sur l'intensité de la source primaire, celle avant injection dans le cyclotron, afin de faire baisser l'intensité mesurée sur la Faraday. Cette période correspond à la première chute visible sur la figure FIG. 4.13. La phase de montée qui suit est due à des recentrages et optimisation du faisceau. Nous souhaitons limiter les pertes sur les collimateurs et obtenir une symétrie de révolution sur le BPM. Par la suite les évolutions seront uniquement le fait de variations d'intensités de la source primaire qui tendront vers une valeur stable d'une quarantaine de nano-ampères.

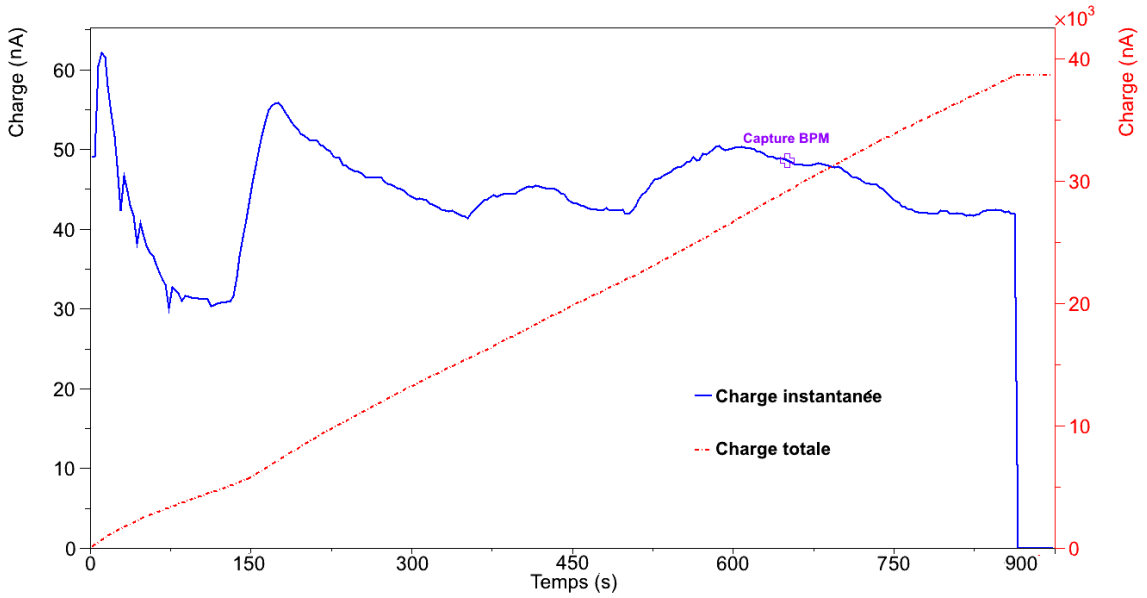

FIGURE 4.13 - Courbes d'intensités instantanée et cumulée mesurées sur l'intégrateur de charges lors d'une irradiation.

4.7 Passage aux *Stacked-foils*

Les nouveaux paramètres à prendre en compte lors d'une irradiation sur *Stacked-foils*, par rapport aux tests précédents, concernent les épaisseurs de dégradeurs et le choix du nombre de répétitions. Nous utilisons des feuilles d'Aluminium de 500 microns comme dégradeurs, la perte d'énergie dépend de l'énergie incidente. Ainsi pour les hautes énergies, il est nécessaire de mettre 3 dégradeurs successifs pour avoir des points espacés d'au moins 2 MeV. Pour couvrir la bande d'intérêt, de 70 MeV à 17 MeV, nous avons procédé à 5 irradiations répertoriées dans le tableau TAB. 4.7 Les temps d'irradiation anormalement courts des deux

Irr.	Nbr. motifs	Durée	Intensité	Énergie init.	Moniteur
1	5	30 min	100 nA	35 MeV	Nickel
2	5	30 min	100 nA	61 MeV	Cuivre
3	8	30 min	100 nA	53 MeV	Cuivre puis Nickel
4	4	9 min	100 nA	69 MeV	Cuivre
5	5	6 min	100 nA	35 MeV	Nickel

TABLEAU 4.7 - Inventaire des différents tirs de *Stacked-foils* dans le cas des irradiations de Titane.

derniers tirs sont dus à des problèmes de vide de la ligne faisceau. Un joint du dernier collimateur était défectueux ce qui n'autorisait pas un vide très poussé, de l'ordre de 1.10^{-5} bar. Ajouté à ce vide défectueux des problèmes de RF[k] qui ont entraîné des décentrages importants du faisceau donc une irradiation des diapositives avec un dégazage de celles-ci. Le vide s'est alors dégradé, or si celui-ci remonte à une valeur supérieure à 5.10^{-5} bar, le tir s'arrête automatiquement. Ces temps de tirs restreints ont cependant permis l'obtention de résultats corrects.

k. La RF désigne le module de hautes-fréquences qui permet l'accélération des particules dans le cyclotron.

4.7.1 Énergies d'irradiations des différentes feuilles

Le tableau 4.8 présente les énergies au sein des différentes cibles de nos irradiations[1]. Elles ont été obtenues par l'intermédiaire de la simulation GEANT$_4$ exposée au chapitre 3.

Feuille	Irradiation									
	1		2		3		4		5	
	E	σ_E	E	σ_E	E	σ_E	E	σ_E	E	σ_E
1	34.95	0.15	60.97	0.15	52.96	0.15	68.67	0.15	34.95	0.15
2	33.04	0.19	58.66	0.22	50.36	0.23	66.21	0.23	31.32	0.22
3	31.04	0.23	56.28	0.28	47.71	0.27	63.68	0.32	27.32	0.29
4	27.01	0.31	53.82	0.33	44.89	0.32	61.07	0.44	22.81	0.37
5	22.45	0.4	51.28	0.4	43.32	0.36			20.08	0.42
6					40.29	0.4			17.0	0.49
7					37.09	0.46				
8					33.64	0.56				

TABLEAU 4.8 - Bilan des énergies en *MeV* couvertes lors des irradiations *Stacked-foils* dans le cas du Titane. Les écarts-types σ_E également en *MeV* ont été obtenus par un ajustement gaussien des distributions énergétiques, obtenues par simulation GEANT$_4$, dans chacune des feuilles.

L'incertitude sur les valeurs obtenues lors de cette simulation est fournie par la documentation de GEANT$_4$ [53] et est de 3%.

4.7.2 Zones de recouvrements

Pour nous assurer une bonne continuité entre nos différentes irradiations, nous avons fait en sorte d'obtenir des zones de recouvrements entre deux tirs "consécutifs". En considérant que les points dont les énergies sont suffisamment proches, typiquement quand les largeurs à mi-hauteur se recouvrent, ne présentent pas d'intérêt à être dissociés, nous avons opéré une moyenne des énergies et sections efficaces associées. La formule utilisée à la fois pour les énergies et sections efficaces, variable x_i, ainsi que celle appliquée aux erreurs associées, variable dx_i, sont les suivantes :

$$\bar{x} = \frac{\sum_i x_i / dx_i^2}{\sum_i 1/dx_i^2} \quad (4.1) \qquad d\bar{x} = \frac{\sqrt{2}\Pi_i dx_i}{\sum_i dx_i} \quad (4.2)$$

Sauf contre indication, ce seront toujours ces valeurs recalculées qui seront présentées.

4.8 Problème lié à la première irradiation 35 MeV

Dans un premier temps, nous allons exposer un problème rencontré lors de l'analyse de l'irradiation 1 à 35 MeV.

Pour faire face au nombre plus important de feuilles à compter et afin d'obtenir une statistique suffisante en un temps réduit, nous avions fait le choix de mettre les échantillons au contact du détecteur. Or si cela a bien augmenté notre statistique et permis d'effectuer toutes les mesures dans un temps raisonnable, cela a également augmenté notre taux de pics sommes.

1. Si nous souhaitons, par la suite, parler d'une valeur d'activité associée à une feuille en particulier, nous utiliserons la dénomination $x.y$, avec x le numéro d'irradiation et y celui de la feuille

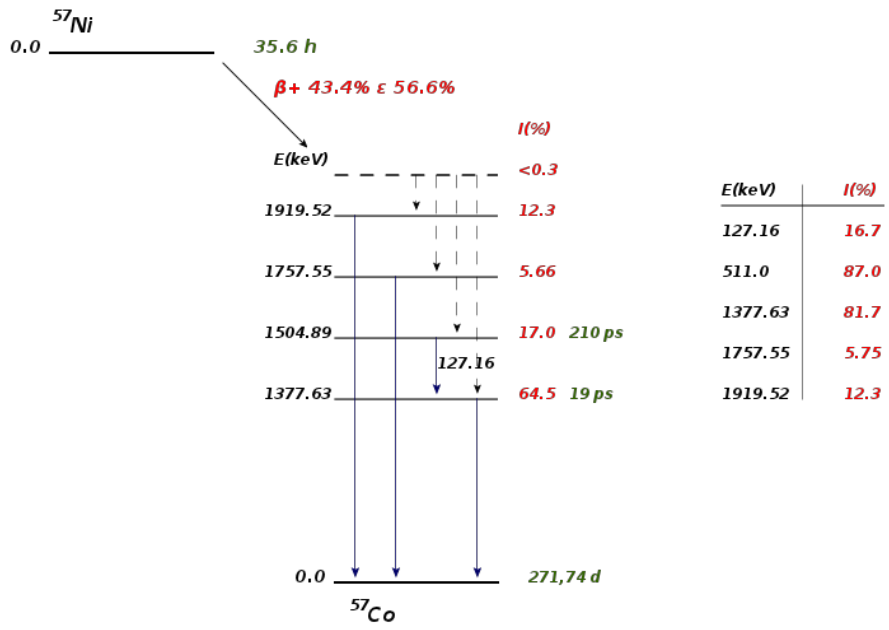

FIGURE 4.14 - Décroissance du ^{57}Ni et désexcitation vers le niveau fondamental et les principales raies observables. Les niveaux ayant une probabilité de population négligeable ne sont pas représentés.

4.8.1 Pics sommes

Le principe des pics sommes résulte dans le fait que le détecteur, ou plutôt son électronique, n'a pas une résolution temporelle suffisante pour différencier deux γ différents détectés dans un intervalle de temps très court.

Pour illustrer ce phénomène, examinons plus en détail la décroissance du ^{57}Ni vers le ^{57}Co représentée sur la figure FIG. 4.14. Nous voyons que l'émission d'un γ de 1504.8 keV n'est pas permise, donc dans l'absolu nous ne devrions pas avoir de signal à cette énergie là [m]. Si nous comparons les spectres obtenus, figure FIG. 4.15, avec le même échantillon placé à 19 cm et au contact, nous remarquons bien dans le deuxième cas la présence d'une raie à 1504.8 keV.

Elle est due à la combinaison d'une émission de 127.2 keV et 1377.7 keV dont les γ respectifs ont été détectés simultanément. La probabilité d'une telle double détection diminue avec la distance à laquelle nous plaçons la source du détecteur, ce qui explique l'absence de signal à 1504.8 keV dans le premier cas.

S'il est toutefois possible d'associer pour chaque coup à 1504.8 keV un coup à 127.2 keV et 1377.7 keV, cela ne l'est pas pour les associations des raies 511.0 keV et 1377.7 keV. Ce sont les plus probables et leur pic somme se situe à 1919.52 keV, c'est à dire en dehors de la zone de détection. De plus les éventuelles corrections doivent se faire manuellement et nous perdons toute la chaîne d'analyse du logiciel. C'est pour cela que seule la première série de mesures effectuée *end of beam* et à 19 cm est exploitable dans le cas de la première irradiation.

Il est à noter que ce phénomène ne concerne pas uniquement le ^{57}Ni.

m. En prenant bien soin de vérifier qu'aucun autre élément n'a de raie à cette énergie.

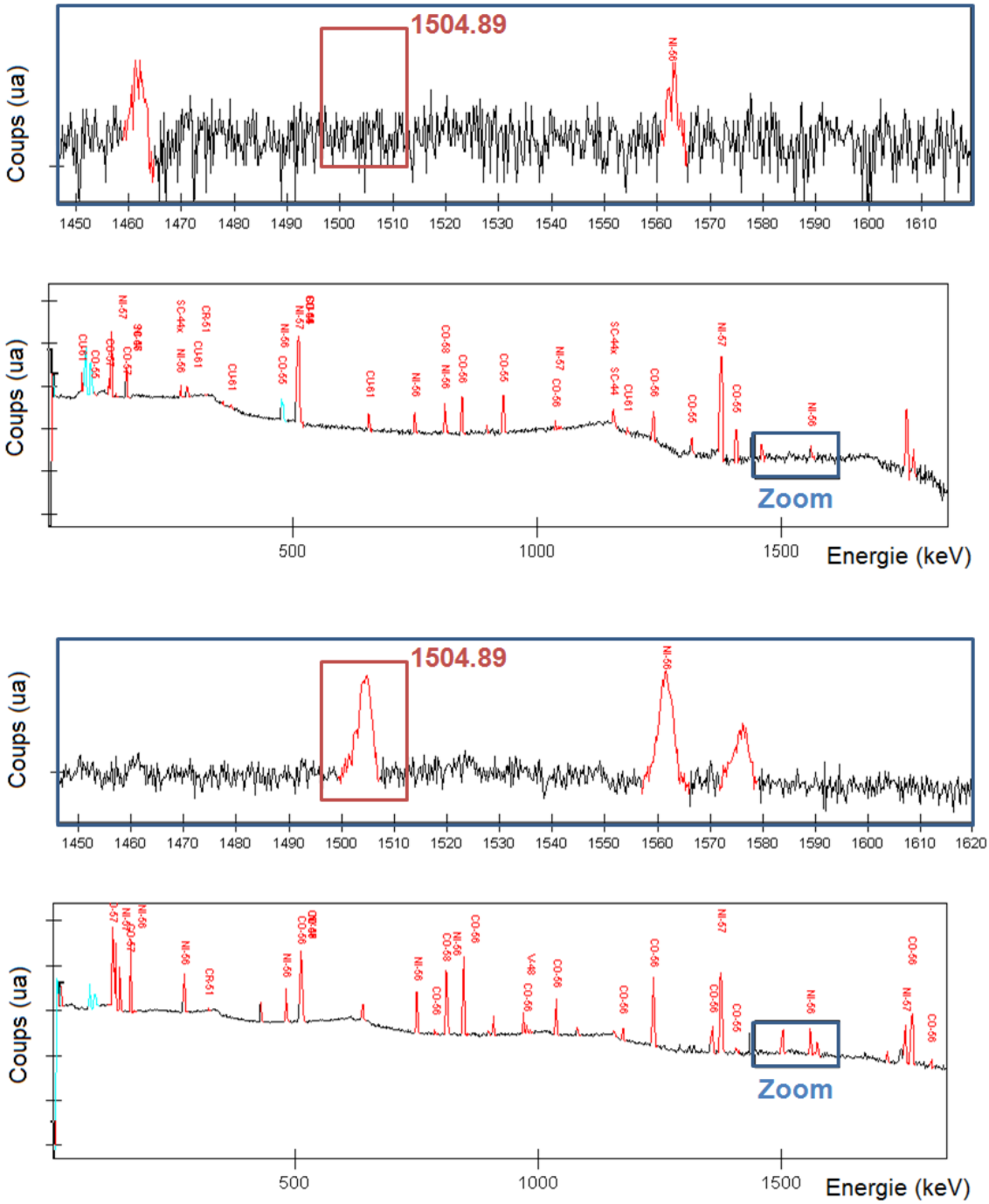

FIGURE 4.15 - Comptages et zoom sur la zone autour de 1500 keV du spectre de la feuille de Nickel n° 1 de la première irradiation effectués tous les deux durant $^1/_2$ heure à 19 cm du détecteur, en haut, et à son contact, en bas.

4.8.2 Surévaluation des valeurs du ^{47}Sc

La désintégration du ^{47}Sc conduit à l'émission unique d'un γ de 159.4 keV à hauteur de 68.3 %. Ce pic se trouve donc dans la partie haute du plateau Compton, là où l'erreur due au fond continu est la plus importante. Ceci a pour conséquence de surévaluer, lors des mesures réalisées juste *end of beam*, les activités des pics se situant dans cette zone. C'est

pour cette raison qu'une deuxième mesure effectuée suffisamment longtemps après la fin de l'irradiation est nécessaire afin d'obtenir des valeurs d'activités cohérentes. Cette deuxième série de mesures n'ayant pu être effectuée dans les conditions adéquates, nous nous retrouvons avec uniquement les données de la première série.

En effectuant les calculs de sections efficaces, nous obtenons des valeurs majorées par rapport à celles d'expériences précédentes, FIG. 4.16, reproduisant toutefois la forme de la fonction. Ce phénomène ne semble concerner que les 3 derniers points, de plus basse énergie. Il s'avère qu'ils correspondent aux feuilles ayant été mises à compter en premier, et pour lesquelles le temps mort était le plus élevé TAB. 4.9. Les temps morts plus impor-

Point	Temps mort	Temps après *eob*
1	1.38%	3h15
2	1.68%	2h45
3	2.10%	2h15
4	3.02%	1h45
5	4.25%	1h15

TABLEAU 4.9 - Temps morts associés aux comptages pour chaque point de la première irradiation à 35 MeV, ainsi que le temps écoulé après *end of beam* avant la mise à compter.

tants traduisent une augmentation significative du bruit de fond, ce qui explique l'écart observé. Après l'avoir remarqué et compris son origine, nous avons décidé d'exclure les points obtenus pour le ^{47}Sc [n] lors de cette première irradiation. Une nouvelle irradiation à 35 MeV a été réalisée. Il est évident que nous avons effectué dorénavant toutes nos mesures à 19 cm.

4.9 Données de sections efficaces

Comme dans les cas des irradiations tests, nous avons pu extraire du Titane [o] les sections efficaces des réactions suivantes : ^{nat}Ti (p ,X) ^{41}Ar, ^{42,43}K, ^{43,44,44m,46,47,48}Sc, ^{45}Ti, ^{48}V. Ils existent déjà dans la littérature, hormis pour l'^{41}Ar et le ^{45}Ti, des données issues de précédentes expériences [15]. Ainsi nous allons pouvoir confronter nos résultats à ceux obtenus par d'autres équipes de recherche.

4.9.1 ^{47}Sc

L'ensemble des points obtenus est donc représenté sur la figure 4.17.

Nous remarquons que nos valeurs sont tout à fait en accord avec les expériences antérieures. Pour les énergies basses elles concordent avec les données de Dmitriev *et al.* [54] et Khandaker *et al.* [43] en reproduisant bien la montée et son maximum local. Notre problématique de base concernait surtout les valeurs à hautes énergies et notamment la divergence entres les séries de Michel de 1983 [49] et de 1997 [42]. Il s'avère que nos données coïncident parfaitement avec celles de 1997 [42].

Le parfait accord aux basses énergies, et le fait que deux expériences différentes établissent des valeurs semblables, nous portent à croire que les données de 1983 [49] sont biaisées.

n. Ce phénomène touchant principalement les basses énergies, il concerne surtout le ^{47}Sc, seul élément à avoir une raie uniquement dans ce domaine. Les autres isotopes étudiés n'y seront pas sensibles.

o. Les données extraites des moniteurs sont présentées dans un chapitre suivant.

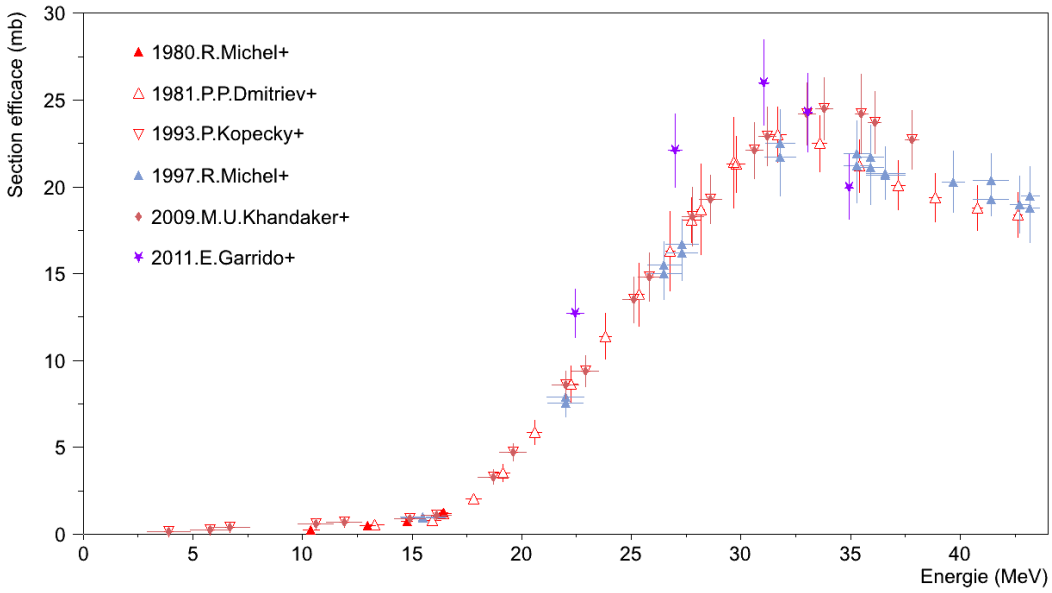

FIGURE 4.16 - Comparaison des sections efficaces pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc pour chacun des tirs à 35 MeV.

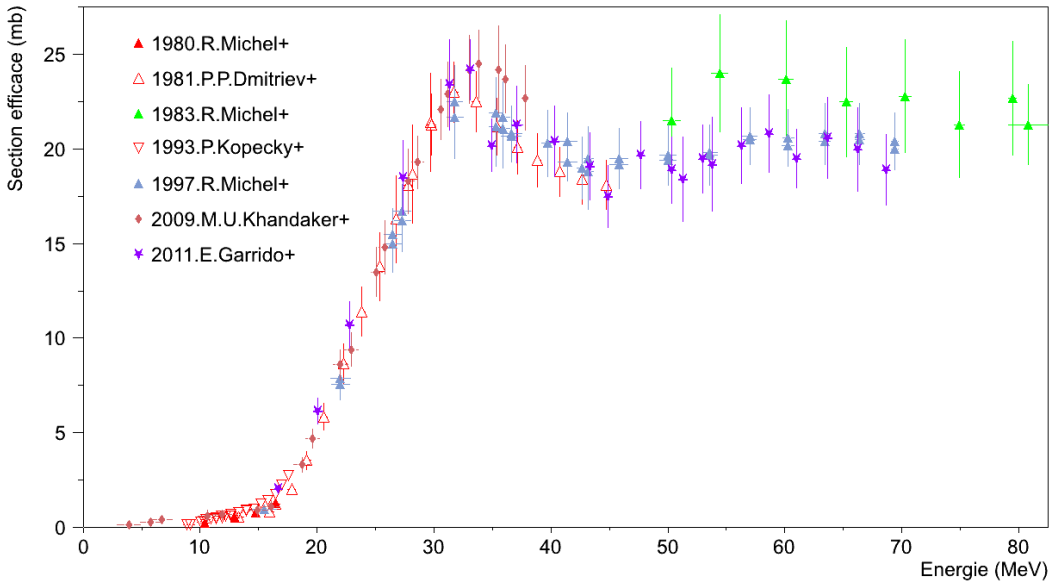

FIGURE 4.17 - Sections efficaces pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc.

En conséquence, nous décidons de ne pas les prendre en compte dans notre étude de production du ^{47}Sc.

4.9.2 ^{41}Ar

Si l'unique raie à 1293.64 keV possède une intensité d'émission de 99.16 % la rendant exploitable, c'est bien la voie de création de l'^{41}Ar qui pose problème. En effet, la complexité de la réaction ^{48}Ti (p,α+3p+n) ^{41}Ar est telle que cela va se traduire par des sections efficaces très faibles. De plus sa période de 1.86 h est trop courte pour permettre sa détection lors des comptages plus longs effectués quelques jours *end of beam*. C'est également cette courte période qui explique l'absence de sa détection durant les tirs tests [p], les mesures ayant été effectuées plus longtemps après la fin du tir que lors de nos irradiations de *Stacked-foils*. Cependant la raie à 1293.64 keV est propre à l'^{41}Ar ce qui veut dire que sa détection lui est uniquement imputable.

Il n'existe aucune donnée dans la littérature, les nôtres, FIG. 4.18, constituent donc une première en la matière. Nous pouvons observer une croissance des sections efficaces avec

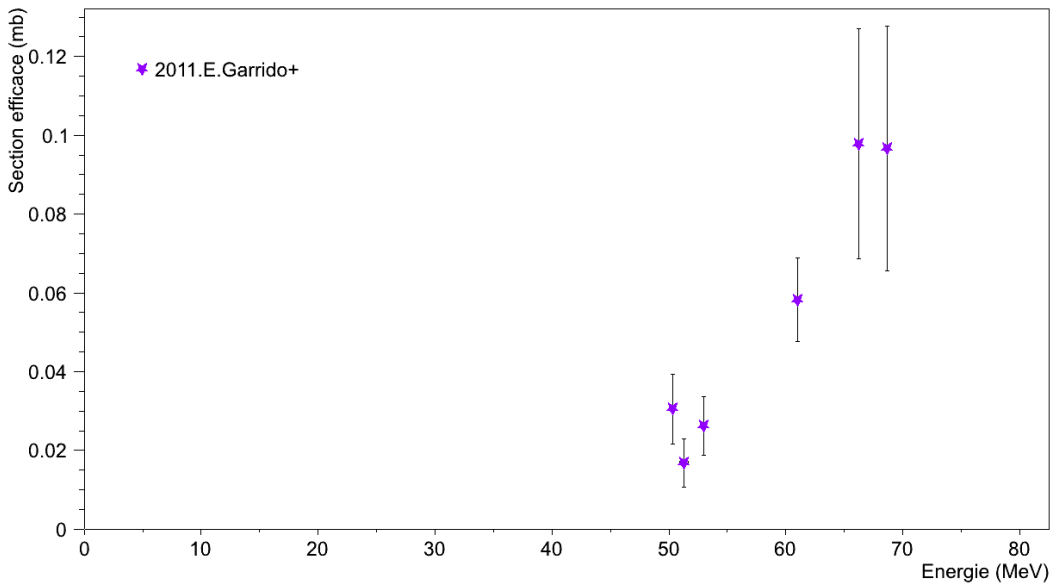

FIGURE 4.18 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{41}Ar.

l'énergie. Cela traduit bien l'ouverture de différentes voies de création d'^{41}Ar et l'augmentation de leurs probabilités.

4.9.3 ^{42}K

L'étude du Potassium 42 n'a pas posé de problème, son unique raie à 1524.58 keV lui est propre et possède une intensité d'émission de 18.8 % la rendant facilement détectable. Nous obtenons les résultats, présentés sur la figure 4.19, en accord avec les mesures de Michel *et al.* [49], mais légèrement inférieurs, tout comme pour le ^{47}Sc.

p. Ainsi que l'absence de points de données dans la littérature.

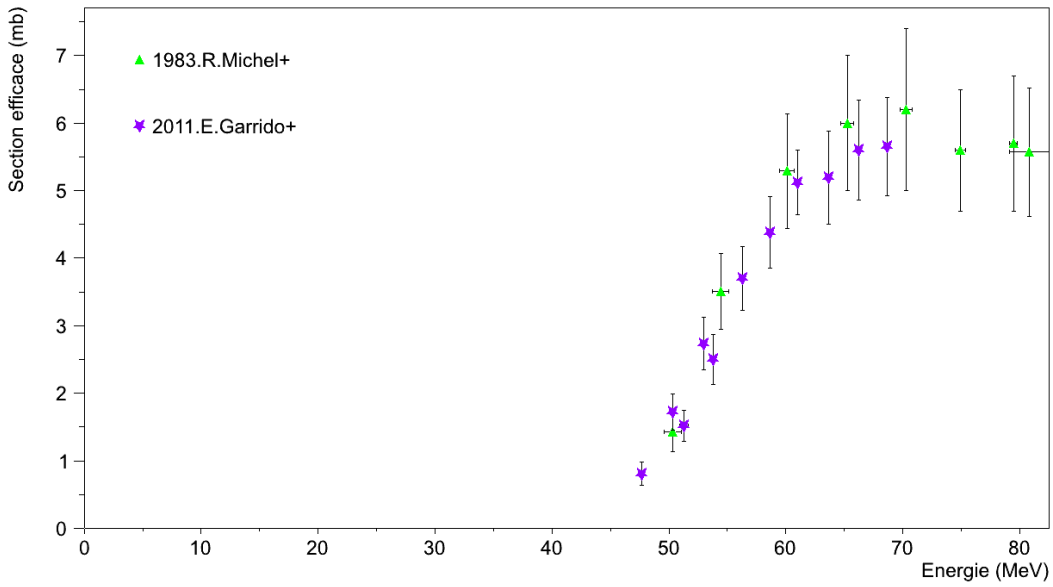

FIGURE 4.19 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{42}K.

4.9.4 ^{43}K et ^{43}Sc

Le problème du couple ^{43}K/^{43}Sc est quelque peu différent de celui du couple ^{48}Sc/^{48}V. Comme signalé dans le tableau TAB. 4.6, l'unique raie détectable du ^{43}Sc à 372.9 keV est commune au ^{43}K. Mais sa période étant plus faible, respectivement 3.89 h et 22.3 h, procéder à des mesures plus éloignées dans le temps permet d'affiner uniquement l'activité du ^{43}K. Aussi il faut veiller à ce que la correction opérée par GÉNIE$_{2000}$ sur l'activité du ^{43}K soit correcte car d'elle seule dépend la valeur obtenue pour le ^{43}Sc. Le logiciel nous fournit les activités calculées associées à chaque raie d'un élément avant d'effectuer la correction d'interférences. Ainsi, l'activité calculée pour la raie à 372.81 keV du ^{43}K est plus importante que celle associée à la raie à 617.51 keV car elle comprend la contribution du ^{43}Sc. C'est à partir de cette deuxième raie que va s'effectuer la correction sur l'activité du ^{43}Sc. Un exemple est présenté dans le tableau TAB. 4.10, il correspond à l'analyse de la feuille 4.2. Si

Élément	Période	$E_\gamma(keV)$	$I_\gamma(\%)$	Eff_{rel}	Activité	Activité corrigée
^{43}K	22.3 h	372.81	87.0	0.37	1103.54± 52.11	112.68± 19.32
		617.51	79.2	0.23	112.68± 19.34	
^{43}Sc	3.89 h	372.9	22.5	0.37	7313.53±236.25	6566.73±268.65

TABLEAU 4.10 - Correction effectuée sur la feuille 4.2 par GÉNIE$_{2000}$ pour l'activité du ^{43}Sc par calcul d'interférence à partir de l'activité du ^{43}K.

nous soustrayons l'activité du ^{43}K établie à partir de la raie à 617.51 keV à celle de la raie à 372.9 keV, en tenant compte des rapports d'embranchements et des efficacités relatives de

détection [q], nous obtenons :

$$7313.53 - 112.68 \times \frac{79.2}{22.5} \times \frac{0.37}{0.23} = 6675.47$$

Le calcul réalisé par GÉNIE$_{2000}$ est plus complexe car il intègre les erreurs associées à chaque valeur. En prenant en compte cette différence, notre résultat est identique à celui fourni par le logiciel.

^{43}K Nous obtenons dans le cas du ^{43}K les valeurs présentées sur la figure 4.20. Nos points

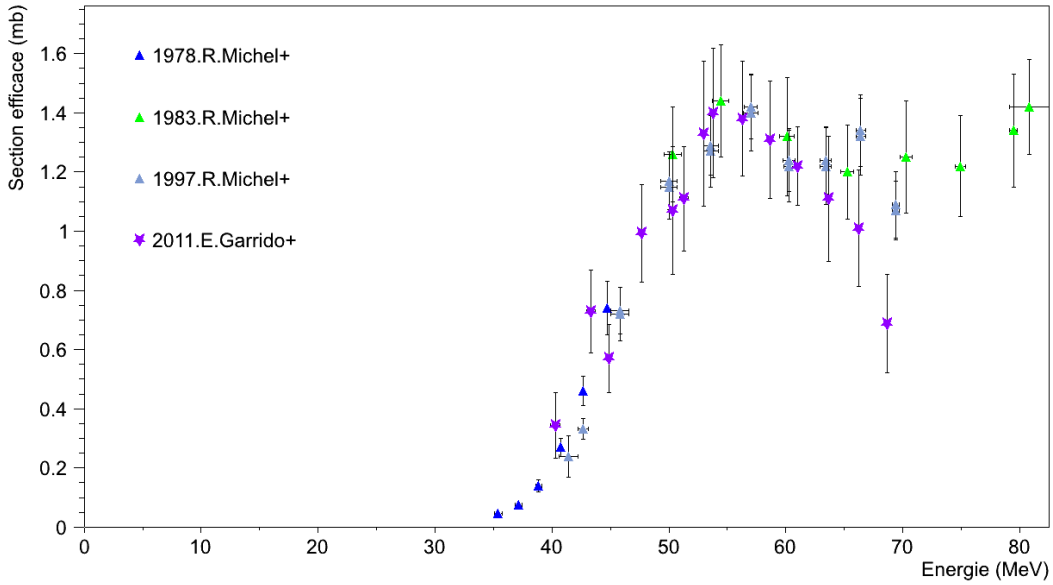

FIGURE 4.20 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{43}K.

sont en accord avec ceux de Michel *et al.* [55, 49, 42], hormis pour celui de plus haute énergie. Les données de Michel *et al.* décrivent également une diminution des sections efficaces dans cette gamme d'énergies. Elle correspond à la transition entre deux voies de réactions. En étudiant les énergies seuils, TAB. 4.6, nous pouvons supposer qu'il s'agit de la baisse de probabilité de la réaction ^{49}Ti (p , α+2p+n) ^{43}K avant la remontée issue de la réaction ^{50}Ti (p ,α+2p+2n) ^{43}K. L'absence dans nos données de points à plus haute énergie nous empêche d'observer cette remontée, visible pour Michel *et al.* [49]. Rien ne nous permettant d'exclure ou expliquer cette différence, nous laissons ce point en l'état dans nos données.

^{43}Sc Concernant la réaction ^{nat}Ti (p ,X) ^{43}Sc, notre série ,FIG. 4.21, est tout à fait en accord avec Michel *et al.* [55], Kopecky *et al.* [56] et Khandaker *et al.* [43]. De plus nous présentons des données à hautes énergies. Les bosses que nous observons – de 10 MeV à 22 MeV puis de 22 MeV à 33 MeV et enfin à partir de 33 MeV – sont caractéristiques de voies de réactions s'ouvrant. Nous pouvons supposer que la troisième bosse décrite est due à une réaction mettant en jeu le ^{48}Ti. Étant l'isotope le plus présent, à 73.7 %, dans le Titane naturel, cela traduit bien le fait que cette réaction soit statistiquement plus significative.

q. Ces efficacités relatives ont été obtenues à partir de la courbe 4.7

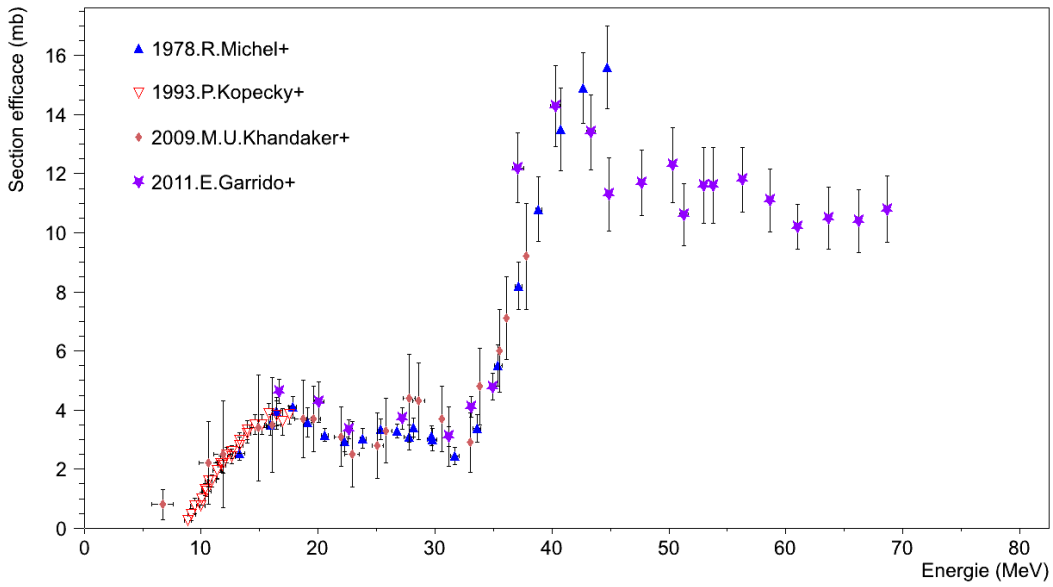

FIGURE 4.21 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{43}Sc.

4.9.5 ^{44m,44g}Sc

Le couple ^{44m}Sc/^{44g}Sc est le seul pour lequel nous sommes face à un problème de filiation, le métastable faisant sa décroissance sur l'état fondamental. GÉNIE$_{2000}$ possède un système de correction pour ces cas de filiation, il soustrait à l'activité calculée pour le ^{44g}Sc celle issue de la décroissance du ^{44m}Sc.

^{44m}Sc La confrontation de nos données avec celles déjà établies, FIG. 4.22, montre que nous sommes en parfait accord avec Michel *et al.* [42]. Comme dans les cas du ^{47}Sc et du ^{44}K, nos sections efficaces sont inférieures à celles de Michel *et al.* [49] à plus hautes énergies. Celles obtenues par Fink *et al.* [57] sont elles bien au dessus.

L'accord reste bon aux basses énergies avec Michel *et al.* [55, 58, 42] et Kopecky *et al.* [56]. Nous observons un écart avec les valeurs de Khandaker *et al.* [43] à partir de 32.5 MeV, après le maximum local. Leurs résultats sont supérieurs aux nôtres.

^{44g}Sc La période du ^{44g}Sc de 3.93 h rend son analyse plus contraignante, contrairement au cas du ^{44m}Sc avec ses 2.44 j. Ainsi, il existe moins de données dans la littérature à comparer aux nôtres, FIG. 4.23. Les accords aux basses énergies sont une nouvelle fois bons avec Kopecky *et al.* [56] et Khandaker *et al.* [43]. Comme dans le cas du ^{44m}Sc, nous retrouvons un écart vers le maximum local – 30 MeV à 35 MeV – avec les résultats de Khandaker *et al.* [43], mais également avec Michel *et al.* [55]. Aux plus hautes énergies, nos données rejoignent celles de Michel *et al.* [55] avant de compléter les sections efficaces pour des énergies supérieures à 45 MeV.

Rien ne nous permet d'affirmer que les écarts observés à chaque maximum local pour les ^{44m,44g}Sc sont liés.

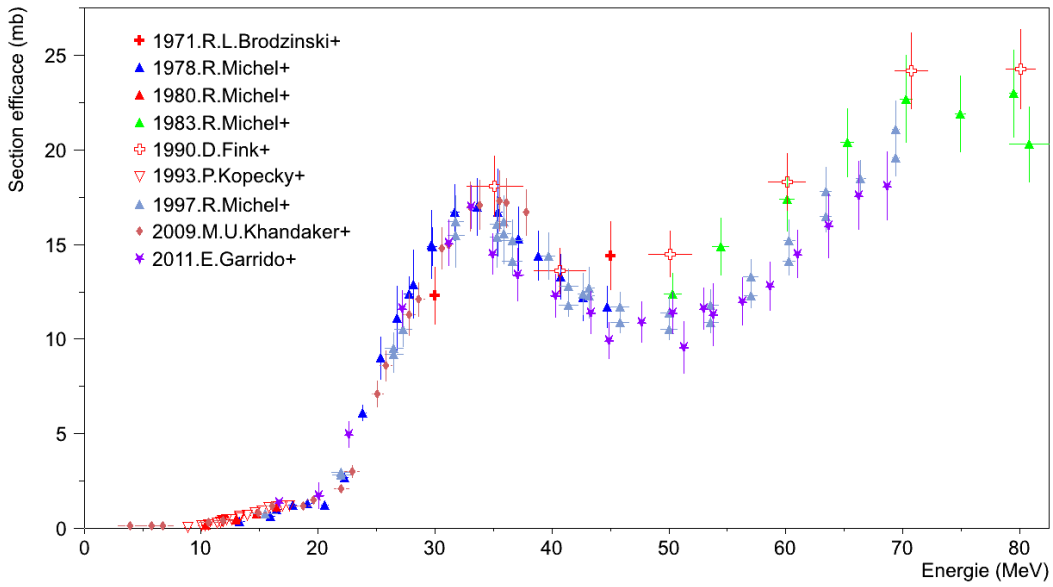

FIGURE 4.22 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{44m}Sc.

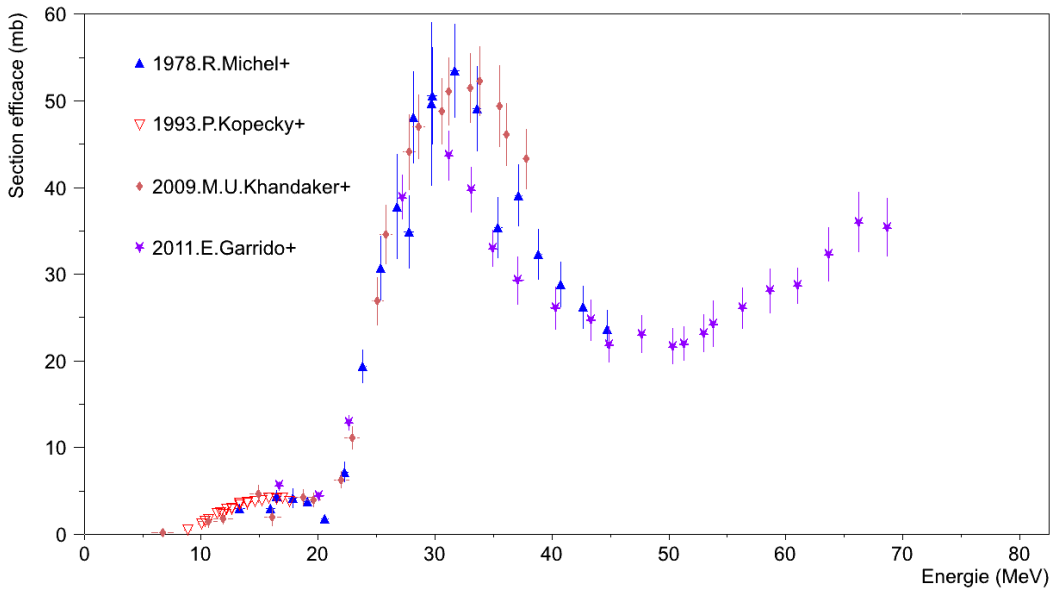

FIGURE 4.23 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{44g}Sc.

4.9.6 ^{46}Sc

Le ^{46}Sc possède un état métastable mais dont la période de 18.75 s ne permet pas son identification. Son seul mode de décroissance étant une transition isomérique vers l'état fondamental, nous considérerons uniquement la réaction ^{nat}Ti (p,X) $^{46m+g}$Sc, FIG. 4.24. Dans le domaine de 15 MeV à 30 MeV les données de Khandaker *et al.* [43] semblent supérieures à celles de Michel *et al.* [55, 58, 42]. Nous nous trouvons en parfait accord avec ces dernières. De 30 MeV à 40 MeV nos données et celles de Khandaker *et al.* [43] deviennent compatibles.

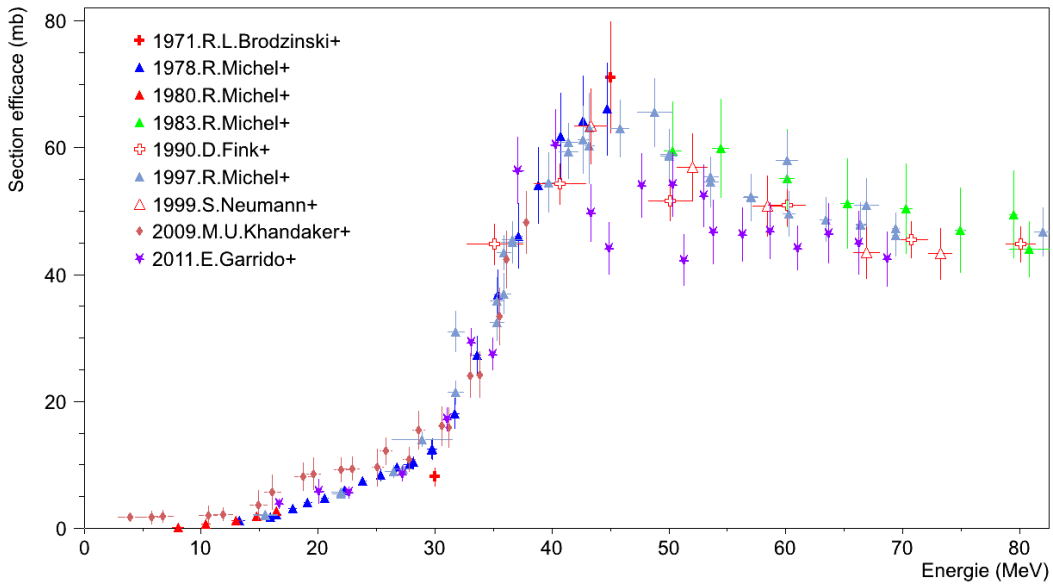

FIGURE 4.24 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{46}Sc.

Les positions de trois de nos points – 43.32 MeV, 44.89 MeV et 51.28 MeV – semblent incohérentes. Que ce soit en comparaison avec des résultats d'autres expériences, mais également pour leur intégration dans notre série complète. Le désaccord peut provenir d'une mauvaise statistique liée à la période longue de 83.79 j du ^{46}Sc. Notons cependant qu'à partir de 55 MeV et au delà, nous rejoignons les données de Michel *et al.* [42] et de Neumann *et al.* [59]. Là aussi les valeurs obtenues par Michel *et al.* [49] sont supérieures aux autres résultats.

Le temps court de l'irradiation 5 à 35 MeV allié aux sections efficaces faibles aux basses énergies font que nous n'avons pas pu extraire de données pour ce tir. Le ^{46}Sc n'a pas été produit en quantité suffisante pour permettre sa détection.

4.9.7 ^{48}Sc et ^{48}V

^{48}Sc De l'ensemble des isotopes du Scandium étudiés dans ce chapitre, la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{48}Sc est celle possédant les plus faibles sections efficaces. Ceci s'explique par l'impossibilité d'une voie de réaction avec le ^{48}Ti présent à 73.7 % dans la composition naturelle. Seuls les ^{49,50}Ti permettent sa création, soit un peu moins de 11 % de la masse du Titane des cibles. Cela explique, en plus des interférences avec le ^{48}V, les difficultés rencontrées lors de son analyse, FIG. 4.25. Nos résultats sont inférieurs à ceux obtenus par Michel *et al.* [49, 42] aux hautes énergies. Les sections efficaces trop faibles des basses énergies ne nous ont pas permis d'en extraire les données.

^{48}V Dans le cas du ^{48}V, des mesures éloignées *end of beam* ont permis de régler le problème d'interférence avec le ^{48}Sc. De nouveau le temps court de l'irradiation 5 a perturbé la qualité de nos mesures, aussi avons nous pris la décision d'en exclure les points obtenus, FIG. 4.26. Nous remarquons que pour le point à 22.45 MeV nous sommes en dessous des valeurs de Kopecky *et al.* [56]. De même, dans la gamme de 38 MeV à 43 MeV, nos trois valeurs sont

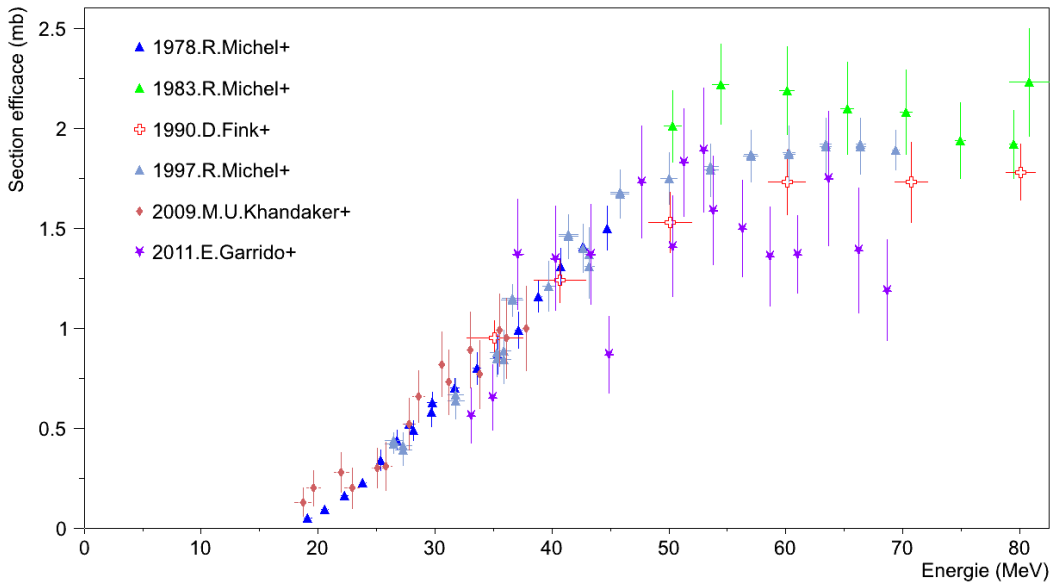

FIGURE 4.25 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{48}Sc.

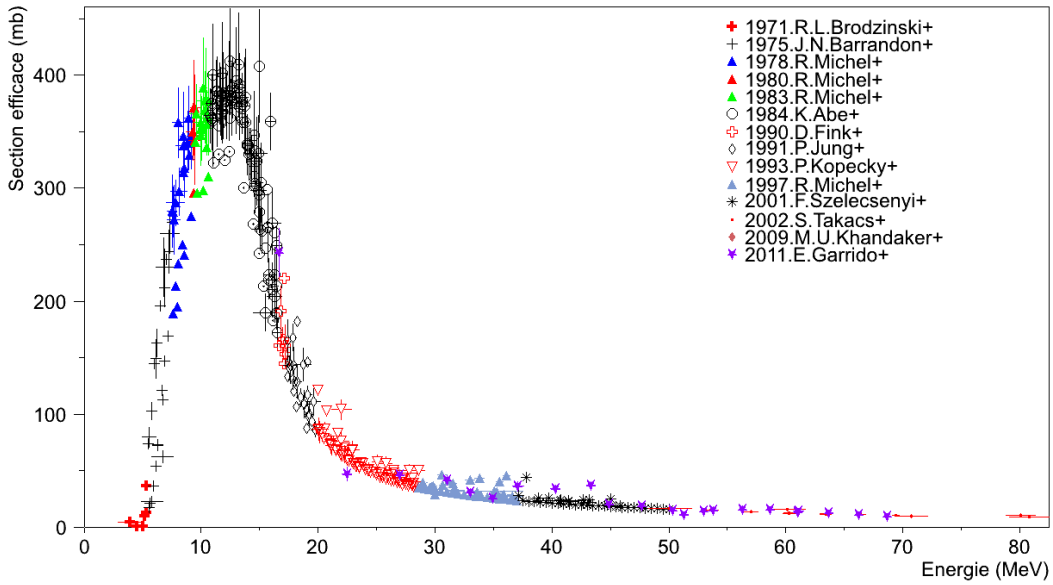

FIGURE 4.26 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{48}V.

supérieures à celles de Szelecsenyi *et al.* [60]. Pour le reste, nos données s'intègrent parfaitement à celles de Abe *et al.* [61] à basse énergie et Kopecky *et al.* [56] à 27 MeV. Nos points de 30 MeV à 35 MeV sont en accord avec Michel *et al.* [42], ainsi que ceux situés aux énergies supérieures à 45 MeV le sont avec les résultats de Szelecsenyi *et al.* [60] et Takacs *et al.* [62].

4.9.8 ^{45}Ti

Le ^{45}Ti, comme le rappelle le tableau TAB. 4.6, possède deux raies γ ayant chacune des intensités d'émission très faibles, 0.15 % pour la plus intense des deux. Tout comme dans le cas de l'^{41}Ar, les deux raies associées au ^{45}Ti lui sont propres, leurs détections traduisent donc sa présence. Tout comme pour l'^{41}Ar il n'existe aucune donnée présente à ce jour dans la littérature, les nôtres sont donc les premières : FIG. 4.27. L'absence de points aux plus hautes énergies pour le ^{45}Ti est due au temps de tir trop faible de la 4eme irradiation. L'isotope n'a pu être créé en quantité suffisante pour permettre sa détection. Aux plus basses énergies, nous pouvons faire l'hypothèse que les sections efficaces étaient trop faibles pour être mesurées.

4.10 Bilan et prévisions de production

4.10.1 Analyse

La confrontation de nos données avec celles déjà publiées, nous a permis de remarquer que, bien souvent, nos résultats sont en accord avec ceux des autres équipes. Nous avons pu constater que l'écart avec les données de Michel *et al.* [49] légèrement supérieures était également présent pour d'autres réactions. L'ensemble de nos résultats est répertorié dans les tableaux de l'annexe B.

4.10.2 Calcul de production

Nous avons donc fait le choix de retirer la série de données de Michel *et al.* [49] pour effectuer notre ajustement par *Splines* FIG. 4.28. Nous sommes ainsi capables de prédire la production intégrale du Scandium 47 sur ARRONAX FIG. 4.29. Sont aussi présentées les productions intégrales associées aux isotopes 44*m* et 46 du Scandium. Un travail de purification chimique des cibles est effectué après l'irradiation, il permet une séparation des différents éléments la constituant. Toutefois, une séparation chimique entre deux isotopes n'est pas possible. Aussi les ^{44m,46}Sc, de périodes respectives de 2.44 j et 83.79 j, se retrouvent dans la solution finale contenant le ^{47}Sc. Ils interviennent donc dans le calcul de l'activité spécifique [r] du ^{47}Sc, au même titre que l'isotope stable ^{45}Sc. Aussi, la détermination des paramètres assurant une production optimale du ^{47}Sc devront également tenir compte de ces contaminants créés lors de l'irradiation. Des pistes quant à une utilisation conjointe des ^{44m,47}Sc en médecine nucléaire sont à l'étude [63].

r. L'activité spécifique d'un radio-isotope contenu dans un échantillon s'exprime comme le quotient de l'activité de cet isotope sur la masse totale de l'échantillon.

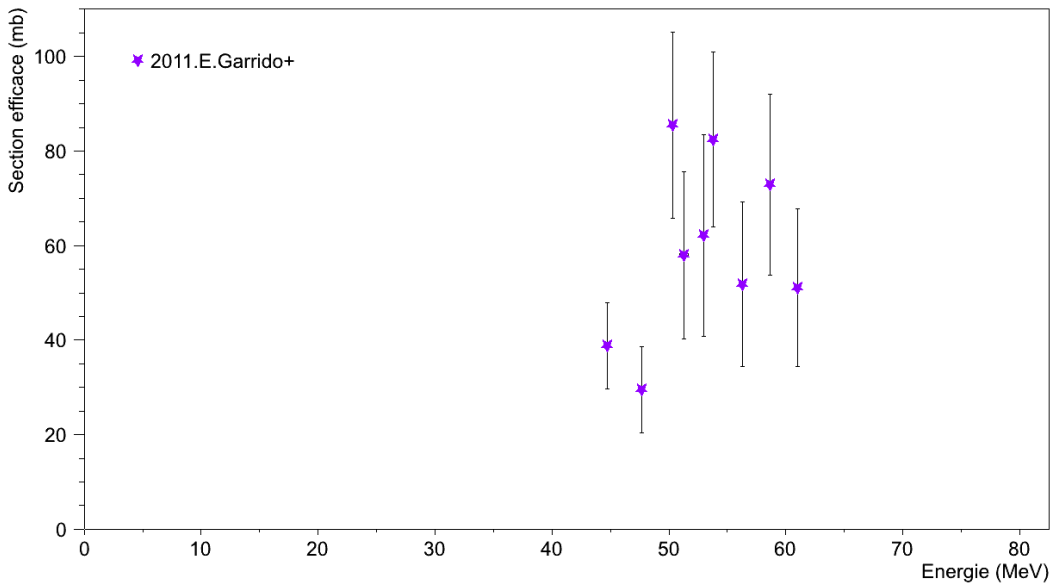

FIGURE 4.27 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{45}Ti.

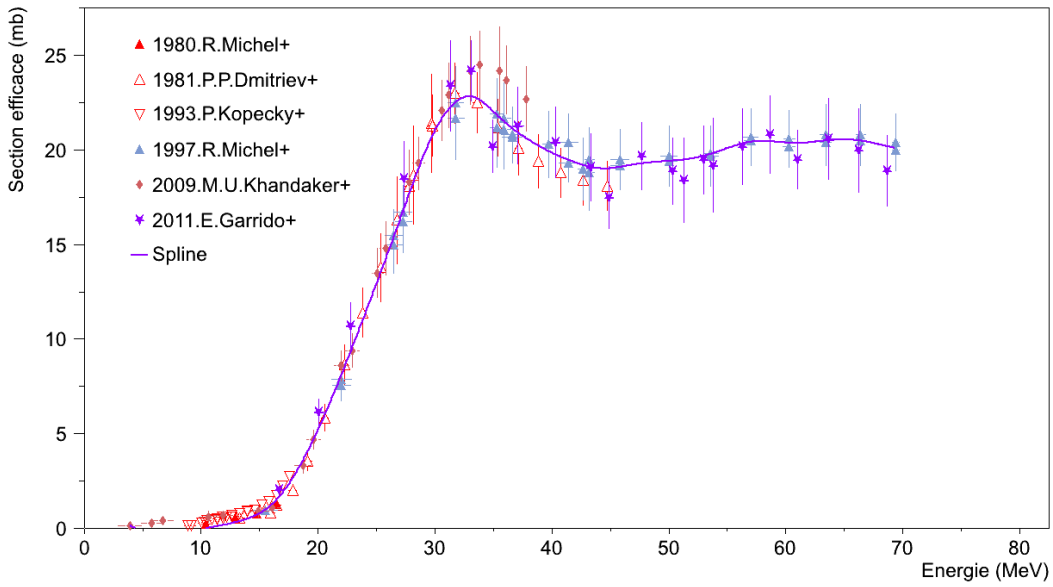

FIGURE 4.28 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc avec l'ajustement par *Splines*.

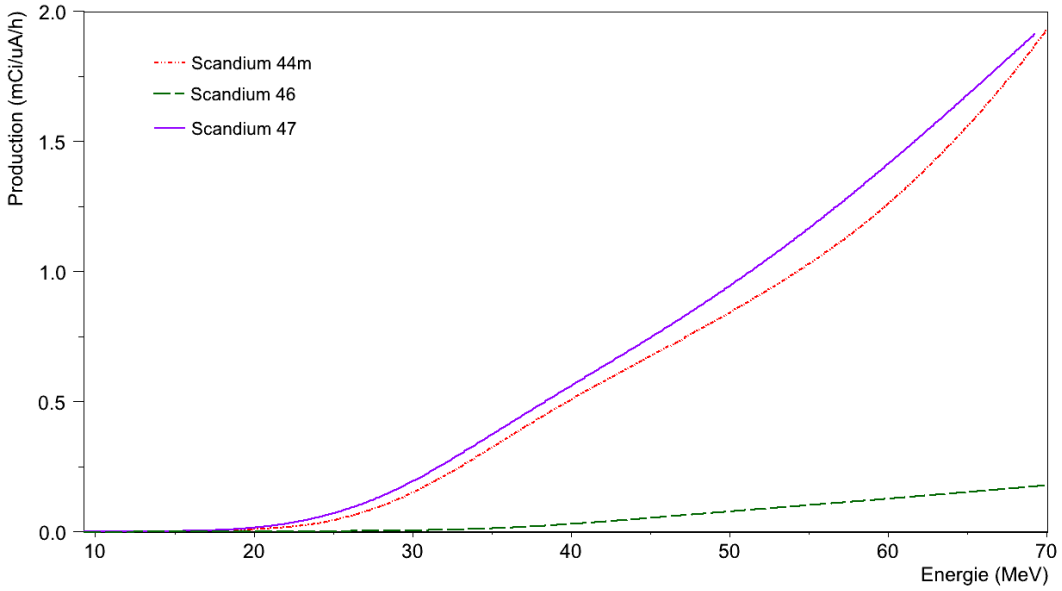

FIGURE 4.29 - Productions intégrales des ^{44m,46,47}Sc obtenu par les réactions ^{nat}Ti (p,X) ^{44m,46,47}Sc.

Chapitre 5

Mesure de sections efficaces du Cuivre 67

5.1 Introduction

Tout comme le Scandium 47, le Cuivre 67 est un émetteur β^- innovant pour la médecine nucléaire. Son utilisation est notamment prévue en thérapie vectorisée β. L'un des intérêts du ^{67}Cu réside dans le fait que la chimie du Cuivre est connue, cela facilite sa mise en œuvre.

Pour favoriser sa production, nous allons procéder à l'irradiation de cibles enrichies de ^{68}Zn, élément stable le plus proche du ^{67}Cu, FIG. 5.1. Irradier du Zinc naturel – ^{64}Zn à

Z	32	33	34	35	36	37	38	39	N
	63Ga 32.4 S ϵ: 100.00%	64Ga 2.627 M ϵ: 100.00%	65Ga 15.2 M ϵ: 100.00%	66Ga 9.49 H ϵ: 100.00%	67Ga 3.2617 D ϵ: 100.00%	68Ga 67.71 M ϵ: 100.00%	69Ga STABLE 60.108%	70Ga 21.14 M β-: 99.59% ϵ: 0.41%	71Ga STABLE 39.892%
30	62Zn 9.186 H ϵ: 100.00%	63Zn 38.47 M ϵ: 100.00%	64Zn STABLE 48.63%	65Zn 243.66 D ϵ: 100.00%	66Zn STABLE 27.90%	67Zn STABLE 4.10%	68Zn STABLE 18.75%	69Zn 56.4 M β-: 100.00%	70Zn >1.3E+16 Y 0.62% 2β-
29	61Cu 3.333 H ϵ: 100.00%	62Cu 9.673 M ϵ: 100.00%	63Cu STABLE 69.17%	64Cu 12.701 H ϵ: 61.50% β-: 38.50%	65Cu STABLE 30.83%	66Cu 5.120 M β-: 100.00%	67Cu 61.83 H β-: 100.00%	68Cu 31.1 S β-: 100.00%	69Cu 2.85 M β-: 100.00%
28	60Ni STABLE 26.223%	61Ni STABLE 1.140%	62Ni STABLE 3.634%	63Ni 100.1 Y β-: 100.00%	64Ni STABLE 0.926%	65Ni 2.5172 H β-: 100.00%	66Ni 54.6 H β-: 100.00%	67Ni 21 S β-: 100.00%	68Ni 29 S β-: 100.00%
27	59Co STABLE 100%	60Co 1925.28 D β-: 100.00%	61Co 1.650 H β-: 100.00%	62Co 1.50 M β-: 100.00%	63Co 27.4 S β-: 100.00%	64Co 0.30 S β-: 100.00%	65Co 1.20 S β-: 100.00%	66Co 0.18 s β-: 100.00%	67Co 0.425 S β-: 100.00%

FIGURE 5.1 - Isotopes présent dans la zone en A et Z autour du Zinc naturel.

48.63 %, ^{66}Zn à 27.9 %, ^{67}Zn à 4.1 %, ^{68}Zn à 18.75 % et ^{70}Zn à 0.62 % – entraîne la production de plus grandes quantités de Cuivre : des isotopes stables ^{63,65}Cu mais également du ^{64}Cu de période 12.7 h, qui contaminent l'activité spécifique en ^{67}Cu. La réaction retenue pour la production du ^{67}Cu est ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu.

Des campagnes de mesures des sections efficaces de production pour cette réaction ont déjà été menées : FIG. 5.2. Les expériences de McGee *et al.* [64] et Stoll *et al.* [65] couvrent

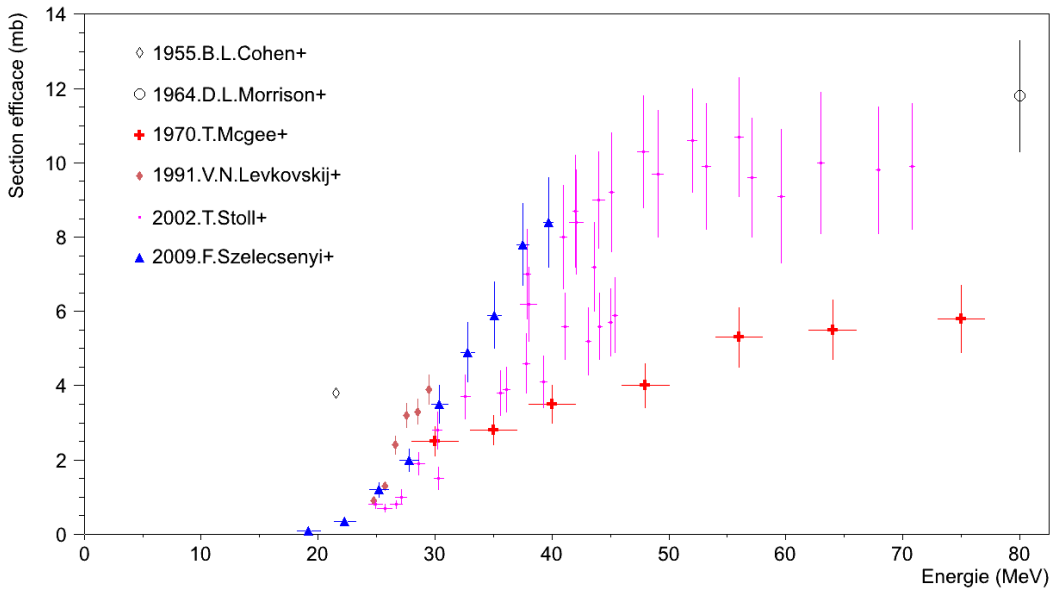

FIGURE 5.2 - Données expérimentales des sections efficaces de la réaction ^{68}Zn (p , 2p) ^{67}Cu déjà présentes dans la littérature [15].

toute notre gamme d'intérêt en énergie, [25 MeV; 70 MeV]. Leurs résultats sont cependant en désaccord sur cette zone. Les données présentées par Stoll *et al.* étant deux fois supérieures à celles de McGee *et al.* Nous remarquons également des variations importantes parmi les valeurs de Stoll *et al.* Un problème d'erreurs systématiques a conduit les auteurs à préconiser la suppression de leur résultats entre 35 MeV et 45 MeV [65]. Les mesures réalisées aux énergies inférieures à 40 MeV par Szelecsenyi *et al.* [66] sont en accord avec les données restantes de Stoll *et al.*. De plus, les données de Stoll *et al.* semblent converger vers la valeur obtenue à 80 MeV par Morrison *et al.* [67]. Cette constatation nous conduit à penser que, dans la gamme 40 MeV - 70 MeV, les résultats de Stoll *et al.* [65] sont les plus fiables, mais qu'ils présentent des barres d'erreur importantes, de l'ordre de 20 %.

Nous avons uniquement utilisé des feuilles de Cuivre comme moniteur. Le choix de la réaction de référence est fonction des énergies d'entrée dans les cibles, ^{nat}Cu (p,X) ^{62}Zn pour l'intervalle [20 MeV; 60 MeV], et ^{nat}Cu (p , X) ^{56}Co pour [60 MeV; 70 MeV]. Nous pourrons ainsi obtenir, sur une plus large gamme, les données de sections efficaces issues des réactions dans le Cuivre.

5.2 Préparation des cibles

Il n'existe pas de sous-traitant proposant des feuilles minces de ^{68}Zn, nous devons donc les réaliser nous-mêmes. La technique retenue pour y parvenir est celle de l'électrodéposition.

Pour établir le protocole de déposition nous avons travaillé avec le groupe **R**echerche et **D**éveloppement d'ARRONAX, ainsi qu'avec T. Sounalet, doctorant. Le prix du ^{68}Zn étant relativement élevé, environ 2.5 € le milligramme, nous avons eu recours à l'utilisation de

Zinc naturel[a] pour la phase de mise au point et de validation du protocole de fabrication des cibles.

5.2.1 Principe de l'électrodéposition

L'électrodéposition repose sur un principe d'oxydo-réduction entre les ions Zn^{2+}, oxydant, et l'eau, réducteur, contenus dans une solution appelée électrolyte. Elle est réalisée dans la cellule visible sur la figure 5.3. Sont également présentés les différents éléments permettant d'effectuer une électrodéposition.

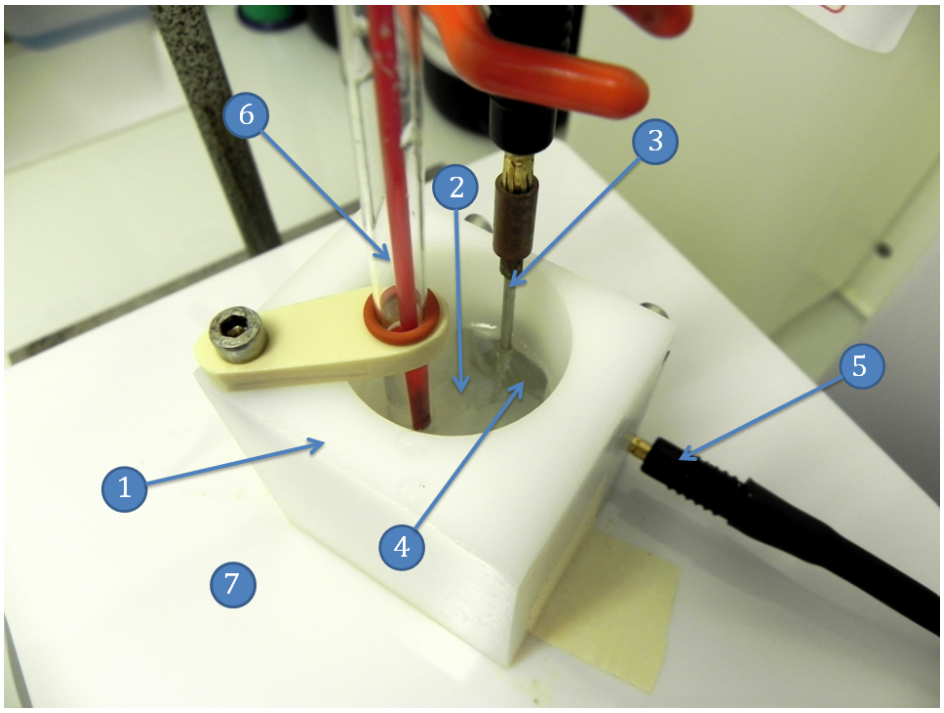

FIGURE 5.3 - Cellule d'électrodéposition en téflon ①, utilisée pour nos préparations de cibles, contenant l'électrolyte ②. Baignent dans cette solution l'anode ③ et la cathode ④, la connexion pour la cathode se fait par le câble ⑤. Une électrode de référence ⑥ est également plongée dans l'électrolyte pour permettre la mesure du potentiel. Le tout est maintenu à la température souhaitée par la plaque chauffante ⑦.

Un potentiel E, mesuré par l'intermédiaire d'une électrode de référence, est appliqué entre une cathode et une anode plongées dans l'électrolyte. Si ce potentiel E est inférieur à celui du couple red/ox étudié, alors s'opère une réduction à la cathode. Dans notre cas, son équation s'exprime comme suivant :

$$\mathrm{Zn}^{2+} + 2e^- \rightarrow \mathrm{Zn}$$

Un dépôt de Zinc métallique s'effectue au niveau de la cathode qui devient donc le support de nos dépôts. Dans le même temps, une oxydation de l'eau a lieu au niveau de l'anode selon la réaction :

$$\mathrm{H_2O} \rightarrow 2\mathrm{H}^+ + 2e^- + {}^1/_2\mathrm{O_2}$$

a. Les propriétés chimiques sont semblables pour tous les isotopes d'un même élément.

Le potentiel normal du couple red/ox Zn^{2+}/Zn est de -0.76 V.
Le processus d'électrodéposition est influencé par plusieurs paramètres, tel que :

1. le potentiel E appliqué entre l'anode et la cathode ;
2. la concentration en ions Zn^{2+} de la solution ;
3. la température de la solution ;
4. le pH de la solution ;

5.2.2 Dissolution et préparation de l'électrolyte

Le ^{68}Zn enrichi nous est livré par l'entreprise CHEMGAS sous forme de poudre métallique. Des protocoles d'électrodéposition déjà établis par les équipes d'ARRONAX [b] [47, 68] et sur lesquels nous nous appuyons font appel à des électrolytes de sulfate de Zinc, $ZnSO_4$. La dissolution du Zinc métallique s'opère mal dans de l'acide sulfurique – H_2SO_4 – elle est en revanche très rapide dans de l'acide nitrique – HNO_3. Aussi avons nous recours à l'utilisation d'une solution HNO_3 ultra pur de concentration 15.67 mol.L^{-1}.

Une fois la poudre de Zinc entièrement dissoute dans le HNO_3, nous y ajoutons du H_2SO_4 de concentration équivalente mais en plus grande quantité, cinq volumes de H_2SO_4 pour un volume de HNO_3. Cette différence de volumes nous garantit la présence d'un excès d'acide sulfurique.

Durant une phase d'évaporation, la solution est portée à une température comprise entre celles des ébullitions de l'acide nitrique à 121 °C et de l'acide sulfurique à 340 °C. L'acide nitrique s'évapore alors permettant à l'acide sulfurique de former avec le ^{68}Zn le sel $^{68}ZnSO_4$ qui est à la base de l'électrolyte.

En milieu sulfurique, la présence des ions sulfates entraîne la complexation du Zinc ce qui décale le potentiel red/ox vers des valeurs plus basses Nous avons observé qu'en fixant E à -1.6 V, la cinétique de la réaction était suffisante pour une bonne qualité de dépôt.

Maîtriser la valeur initiale du pH est essentiel pour assurer la reproductibilité des électrodépositions. L'ajout à l'électrolyte d'acide sulfurique ou de soude, respectivement pour faire baisser ou augmenter le pH, nous permet de l'ajuster. Des tests sur différentes valeurs de pH ont été réalisés par T. Sounalet. Il est arrivé à la conclusion que les électrodépositions étaient optimales pour un pH initial de 2. La concentration en ions $^{68}Zn^{2+}$ dans l'électrolyte est également un paramètre important. Dépendante de la quantité de ^{68}Zn, elle ne peut donc être trop élevée du fait de coûts plus importants. Nous partons sur une valeur fixe de 3 g.L^{-1} déjà testée auparavant [68, 47]. Ces valeurs de pH et de concentration sont celles avant réalisation du dépôt. Elles évoluent durant la phase d'électrodéposition. Le Zinc se déposant sur le support, la concentration diminue. De même l'oxydation de l'eau entraîne la production d'ions H^+ donc une baisse du pH. Une étape de re-préparation de l'électrolyte est nécessaire entre chaque électrodéposition. Une évaporation partielle permet de la ramener à 3 g.L^{-1}, et un ajout de soude ou H_2SO_4 à pH2.

La température de cet électrolyte doit être identique pour toutes les électrodépositions. La plaque chauffante et des contrôles réguliers nous l'assurent. Sa valeur est établie à 30 °C pour toutes nos manipulations [68, 47].

b. Ils concernent l'électrodéposition de couches plus épaisses de Zinc, environ 1 mm sur des plaques d'Or en vu d'irradiation à haute intensité, jusqu'à 350 µA.

5.2.3 Choix du support

Le choix du support se fait en tenant compte des impératifs propres à nos irradiations mais également aux conditions d'électrodéposition ainsi qu'au traitement des cibles réalisé ultérieurement *cf.* 5.3. Le matériau doit être inerte chimiquement lors de l'électrodéposition, etre peu soluble dans le HNO_3 et ne pas créer de contaminants lors des tirs. La liste des éléments disponibles comprend l'Aluminium, l'Argent, l'Or et le Platine. Des tests effectués sur l'Aluminium ont révélé l'impossibilité de son utilisation comme support. Une couche d'alumine se forme rapidement à sa surface empêchant toute tenue d'un dépôt.

Les tests suivants ont concerné l'Argent. Ils ont été effectués sans problème et de manière reproductible. Compte-tenu de l'évident surcoût qu'entraînerait l'utilisation de l'Or ou du Platine, nous n'effectuerons pas de tests sur ces deux éléments. Nous retenons donc l'utilisation de l'Argent comme feuilles de cathodes-supports. Elles sont commandées chez *Goodfellows* et leurs épaisseurs fixées à 25 µm. Elles offrent le meilleur compromis entre la rigidité nécessaire pour leur manipulation [c] et la minimisation de leur impact lors de l'irradiation.

5.2.4 Forme du dépôt

Un joint de silicone placé entre le support et l'électrolyte assure l'étanchéité du montage. Sa découpe permet de donner à notre dépôt la forme souhaitée. Les collimateurs placés en bout de ligne ont des diamètres interne de 10 mm. En considérant d'éventuels problèmes de centrage et les phénomènes de *straggling* angulaire, nous optons pour des dépôts circulaires d'un diamètre de 18 mm. Pour avoir une surface d'irradiation identique, sur les moniteurs, nous avons fait le choix de les découper au même diamètre de 18 mm, FIG. 5.6.

Pour qu'ils puissent tenir dans une diapositive, nous les avons rivetés, par perçage avec une aiguille [d], à une feuille d'Aluminium naturel de 12.5 µm. Cette dernière joue uniquement le rôle de feuille "porteuse", si elle est prise en compte dans le calcul des pertes d'énergie, aucun comptage en spectro-γ ne sera effectué sur elle. Pour les irradiations aux énergies supérieures à 50 MeV, une feuille de Nickel, semblable à celles utilisées comme moniteur chapitre 4, est également rivetée au Cuivre et Aluminium. Cela nous permet de compléter à haute énergie nos points de sections efficaces pour les réactions issues du Nickel naturel.

5.2.5 Réalisation des électrodépositions

La phase de test nous a permis d'établir les différents paramètres comme le potentiel E à -1.6 V, la concentration en ions métalliques Zn^{2+} – 3 g.L^{-1} – le pH de l'électrolyte et sa température – pH 2 et 30 °C. Cette phase nous a également permis d'établir que, dans ces conditions, un temps d'électrodéposition de 35 min amenait à la réalisation d'un dépôt d'une dizaine de microns. Le plus important pour nos mesures est de connaître précisément l'épaisseur de la cible. Pour l'obtenir nous la calculons par l'intermédiaire d'une pesée des supports avant et après électrodéposition. Ce calcul n'est valable qu'en faisant l'hypothèse d'un dépôt uniforme. Nous pouvons nous satisfaire d'épaisseurs de 8 µm à 12 µm, tant que nous la connaissons précisément. Aussi le temps d'électrodéposition est-il fixé à 35 min.

c. Une feuille trop mince et plus souple risquerait de faire craquer le dépôt.
d. Merci à Patrick Le Ray pour cette idée.

Tous ces paramètres ont été validés ainsi que la répétabilité des phases de dissolution et d'électrodéposition. Nous avons ainsi pu réaliser, dans la cellule, FIG. 5.3, tous les dépôts qui vont nous servir de cibles. L'un d'eux est présenté figure 5.4. Le support en Argent permet

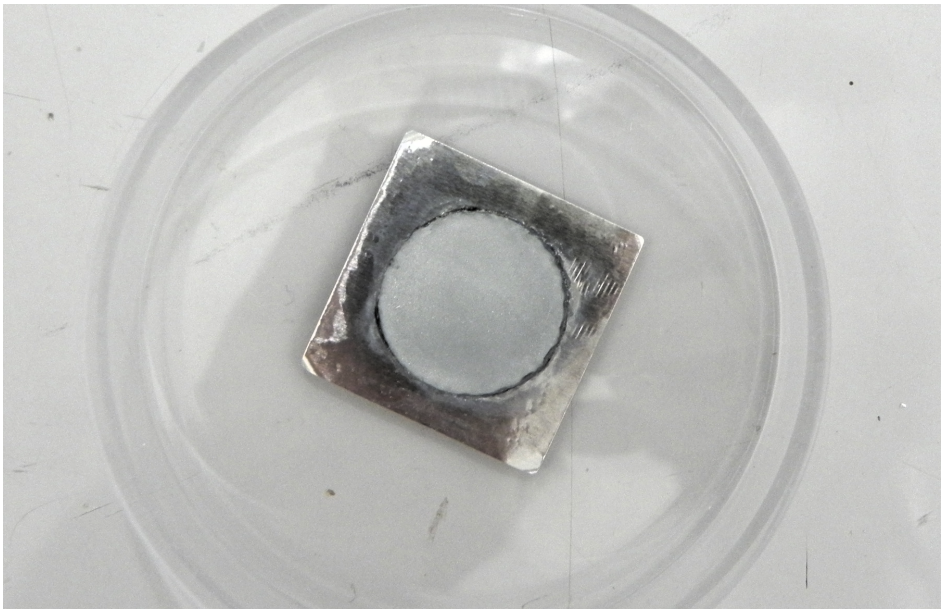

FIGURE 5.4 - Dépôt de 18 mm de rayon et 8.04 µm d'épaisseur de ^{68}Zn réalisé sur un support en Argent.

aussi le montage en diapositive de la cible : FIG. 5.6.

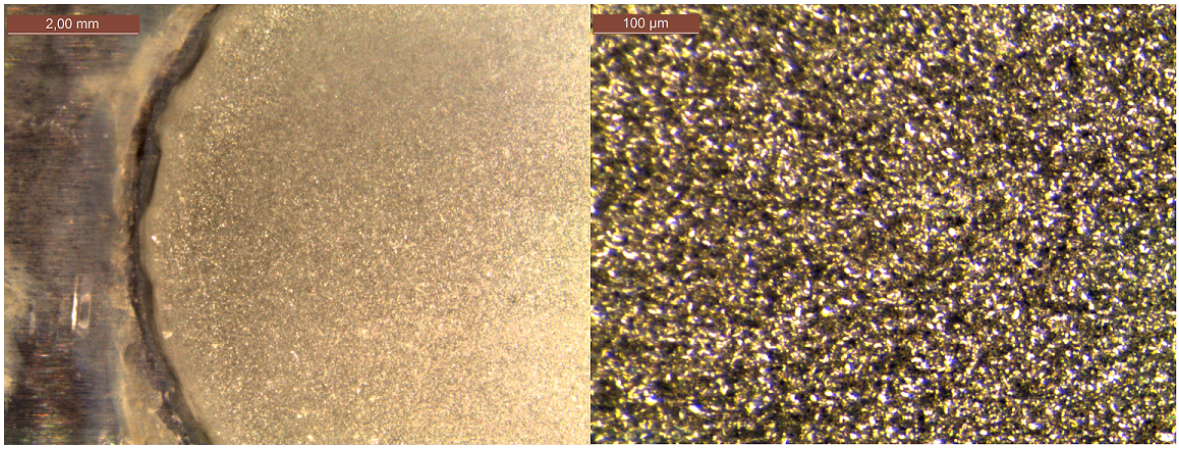

FIGURE 5.5 - Passage d'un dépôt, celui présenté figure 5.4, sous microscope optique afin de s'assurer de son homogénéité, deux grossissements sont présentés, 12 fois à gauche et 200 fois à droite.

Pour vérifier l'uniformité du dépôt, qui est un facteur important de l'irradiation, nous observons les échantillons en utilisant un microscope optique à différents grossissements, de $\times 12$ jusqu'à $\times 200$, FIG. 5.5. La granularité est homogène et ce aux deux échelles considérées, ce qui traduit une distribution homogène des centres diffuseurs sur la surface de la cible.

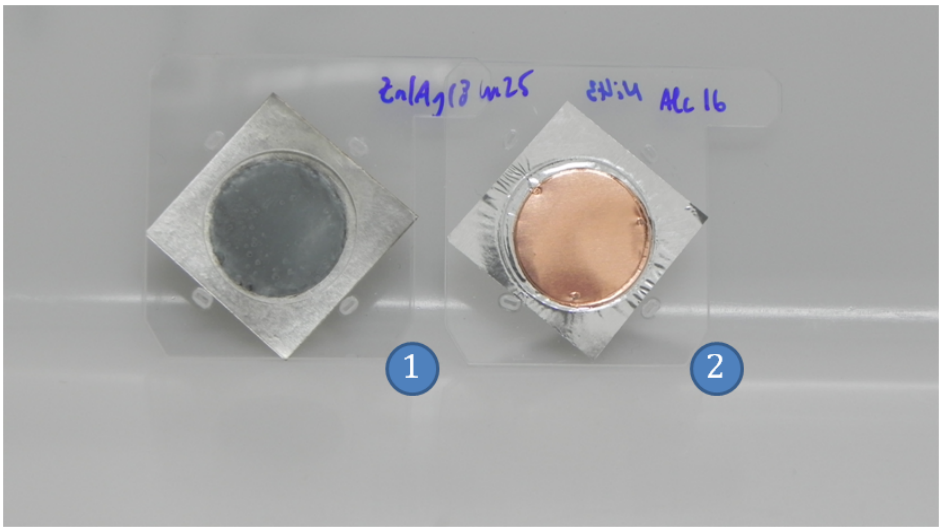

FIGURE 5.6 - Dépôt de ^{68}Zn sur son support en Argent monté en diapositive ①, moniteur de Cuivre découpé au diamètre de 18 mm et riveté sur une feuille d'Aluminium de 12.5 µm.

5.3 Séparation chimique

5.3.1 Influence du ^{67}Ga

Un problème auquel nous allons également du face concerne la pollution de nos mesures par le ^{67}Ga. En effet, celui-ci effectue, tout comme le ^{67}Cu, une décroissance vers le ^{67}Zn et ainsi possède des raies d'énergies similaires, répertoriées dans le tableau 5.1. Il faut re-

Énergie(keV)	^{67}Cu	^{67}Ga
91.26	7.0 %	3.11 %
93.31	16.1 %	38.81 %
184.58	48.7 %	24.41 %
300.22	0.80 %	16.64 %
393.53	0.22 %	4.56 %

TABLEAU 5.1 - Intensités des différentes raies d'émissions pour les isotopes 67 du Cuivre et du Gallium

marquer, comme le montre la figure 5.7, que pour les deux réactions, ^{68}Zn (p , 2p) ^{67}Cu et ^{68}Zn (p , 2n) ^{67}Ga, celle concernant le ^{67}Ga possède des sections efficaces plus importantes. Sur notre gamme d'intérêt en énergie, le rapport est de 3 à haute énergie et de plus de 100 à 30 MeV. Pour ces raies communes, la contribution du ^{67}Cu se retrouve donc dans les barres d'erreur du ^{67}Ga. Nous ne pouvons pas jouer sur la décroissance de l'un ou l'autre des isotopes car ils possèdent sensiblement la même période, 78.28 h pour le ^{67}Ga contre 61.83 h pour le ^{67}Cu.

Pour pouvoir nous affranchir de ce problème, il est indispensable de passer par une étape de séparation chimique des éléments.

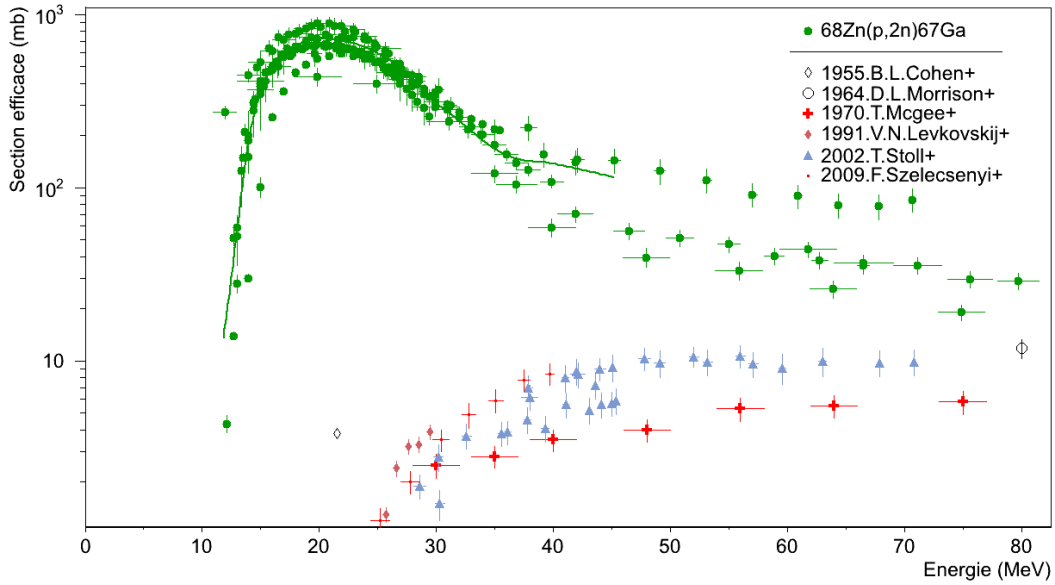

FIGURE 5.7 - Sections efficaces pour les réactions ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu et ^{68}Zn (p,2n) ^{67}Ga.

5.3.2 Séparation par résine

Pour ce faire nous utilisons une résine échangeuse d'ions de chez *Triskem*, ayant la particularité de retenir les isotopes du Cuivre dans des conditions d'acidité définies [69]. Le

pH< 2	pH> 2
Décrochage du Cuivre	Capture du Cuivre

TABLEAU 5.2 - Spécificité de la résine en fonction du pH de la solution.

pH de la solution doit être maîtrisé pour mener à bien ce type de séparation. Une solution trop acide entraînera un décrochage systématique des éléments, Cuivre ou non, rendant nulle toute séparation. De plus il s'avère que l'Argent [e] possède la particularité de précipiter pour un pH supérieur à 4. Un phénomène de co-précipitation pouvant entraîner la capture dans le précipité d'autres éléments que l'Argent, comme le Gallium, fausserait la séparation. La zone de bon fonctionnement de la résine correspond donc à un pH compris entre 2 et 3.

5.3.3 Protocole de séparation

Un protocole de séparation a été développé au sein d'ARRONAX par C. Alliot et J. Laizé. Il a été établi pour permettre la purification du ^{64}Cu, obtenu lors d'irradiations de ^{64}Ni, et utilisé en tests de radiomarquage [f]. Son déroulement est le suivant :

1. Conditionnement de la résine avec une solution d'acide chlorhydrique HCl à 10^{-3} mol.L^{-1}, pH3. Cette étape préliminaire assure que la résine se trouve dans les mêmes conditions d'acidité que la solution à séparer. La quantité de résine utilisée est de $0,65g$ [69] ;

e. Une dissolution partielle du support est inévitable.
f. Les tests de radiomarquage consistent à étudier les liaisons possibles entre le radio-isotope et les molécules pouvant servir de vecteurs.

2. Dissolution du dépôt de ^{68}Zn dans 2 mL d'acide nitrique HNO_3 ultra-concentré à 15.67 mol.L^{-1}. La dissolution doit être la plus rapide possible pour éviter que le support ne se dissolve trop ;
3. Évaporation de l'acide nitrique de la solution à une température de 160 °C. Il faut bien veiller à ce que tout le HNO_3 se soit évaporé pour ne pas influer sur le pH de la solution, et l'amener à une valeur trop acide ;
4. Récupération du résidu obtenu dans de l'acide chlorhydrique à 10^{-3} mol.L^{-1}. En supposant que tout le HNO_3 a été évaporé à l'étape précédente, le pH de cette solution mère est maintenant de 3 ;
5. Récupération d'une fraction de la solution, 10 %, en guise de témoin – 1er échantillon – indispensable pour réaliser les calculs de rendements de séparation ;
6. Passage de la solution en tête de colonne de séparation. Nous récupérons en sortie de résine le 2ème échantillon contenant tous les éléments non accrochés par la résine, Gallium compris ;
7. Rinçage des béchers et de la colonne au HCl à 10^{-3} mol.L^{-1} afin de pouvoir tout récupérer ;
8. Une fois que toute la solution mère ainsi que les rinçages des béchers et colonne sont passés au travers de la résine, nous éluons 15 mL de HCl à 8 mol.L^{-1} [g]. Il permet le décrochage et la récupération – 3ème échantillon – de tous les éléments accrochés par la résine, les isotopes de Cuivre dans notre cas.

Cette séparation est réalisée sur une paillasse dédiée présentée figure 5.8. Au final nous nous retrouvons avec 3 échantillons liquides pour chaque séparation. Les dénominations données sont, pour le dépôt irradié x, xT l'échantillon témoin, étape 4, xCu celui contenant les isotopes du Cuivre, étape 8, et xGa pour celui contenant le reste de la solution, étapes 6 et 7. Par ajout d'eau pure, les volumes de tous les échantillons sont amenés à 50 mL. Leur géométrie correspond à celle du flacon de 50 mL utilisé lors de l'étalonnage en efficacité décrit au chapitre 4. Les comptages sont effectués au contact du détecteur. Cela implique d'utiliser également une géométrie semblable pour les moniteurs. Aussi, nous procédons à leur dissolution dans 50 mL d'acide nitrique [h], après avoir pris le temps d'effectuer une mesure à 19 cm sous leur forme de feuille. Ce premier comptage nous permet d'analyser et d'exploiter les données issues des moniteurs, présentées chapitre 6.

5.3.4 Rôle du traceur

Afin de contrôler le bon déroulement de la séparation, il est intéressant de pouvoir utiliser d'autres isotopes de Cuivre et Gallium que le 67. Obtenir leur quantité dans les échantillons xT, xCu et xGa nous permet de calculer le taux de passage des différents isotopes. En effet, deux isotopes d'un même élément étant chimiquement identiques, connaître le taux de passage de l'un revient à connaître celui de l'autre. Nous pourrons ainsi, le cas échéant, effectuer un calcul de correction en considérant les proportions de ^{67}Cu passées

g. L'acide chlorhydrique à 8 mol.L^{-1} possède une concentration en ions H^+ trop élevée pour qu'on puisse exprimer son acidité avec l'échelle du pH. Elle se situe toutefois bien en deçà de pH2 et assure donc le décrochage dans la résine.

h. 2 mL de HNO_3 à 15.67 mol.L^{-1} servent à dissoudre les moniteurs, le volume est ensuite par ajout d'eau porté à 50 mL.

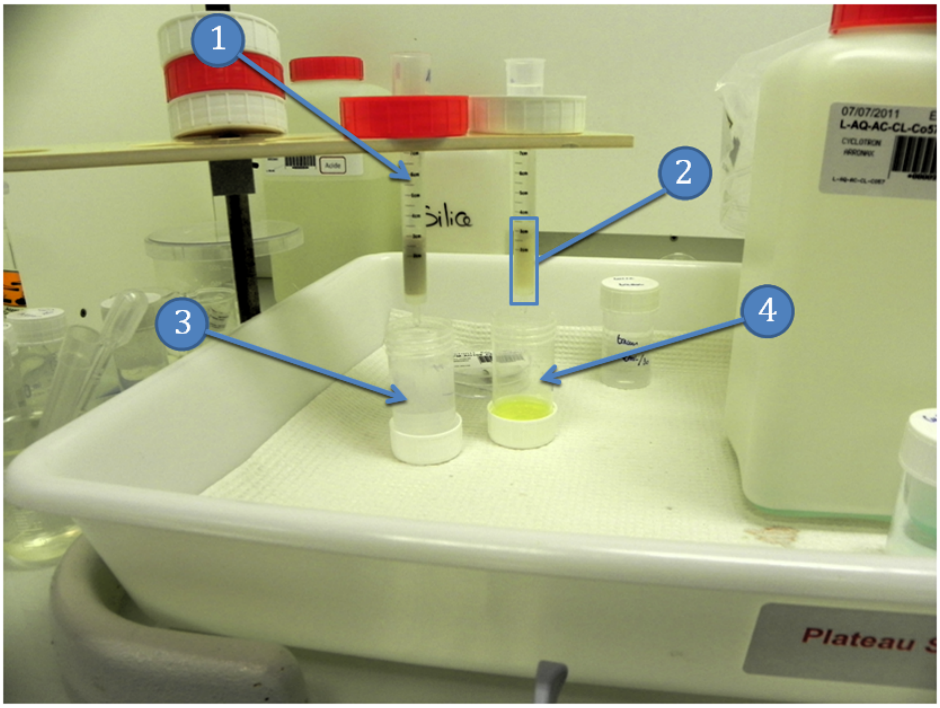

FIGURE 5.8 - Deux colonnes de séparation ① accueillant les résines de séparations ②. Le flacon ③ contient un échantillon xGa tandis que le flacon ④ un échantillon xCu.

dans la solution xGa ou restées dans la résine. Il est aussi bon de vérifier qu'une trop grande quantité de Gallium ne contamine pas la solution xCu. La liste des traceurs possibles est donnée dans le tableau 5.3.

Élément	^{61}Cu		^{64}Cu		^{66}Ga		^{68}Ga	
Période	3.33 h		12.7 h		9.49 h		67.71 min	
Énergie(keV) et intensité	282.96	12.2 %	1345.77	0.47 %	1039.22	37.0 %	1077.34	3.22 %
	656.01	10.8 %						
	1185.23	3.7 %						

TABLEAU 5.3 - Caractéristiques des isotopes de Cuivre et Gallium d'intérêt comme traceur.

Le ^{64}Cu possède un embranchement trop faible pour permettre un contrôle précis de sa quantité en présence dans une solution. La période du ^{68}Ga contraint le temps de séparation, la pratique nous a montré que 5 h en moyenne s'écoulaient entre la fin du tir et l'étape 8. Nous privilégions donc l'utilisation des ^{61}Cu et ^{66}Ga pour assurer la traçabilité de nos échantillons. Les raies γ leur sont propres ce qui nous garantit que nous n'aurons pas de soucis d'identification et d'interférence.

5.4 Utilisation du protocole en condition d'irradiation *Stacked-foils*

Ce protocole a été utilisé lors de deux irradiations. Les énergies couvertes par ces irradiations sont détaillées tableau 5.4. Comme précisé précédemment, nous utilisons uniquement

Feuille	Irradiation			
	1		2	
	E	σ_E	E	σ_E
1	52.64	0.15	60.68	0.14
2	49.92	0.20	58.27	0.19
3	47.09	0.24	55.76	0.23
4	44.14	0.28	53.17	0.27
5	42.2	0.33	50.46	0.31

TABLEAU 5.4 - Bilan des énergies en *MeV* couvertes lors des deux premières irradiations *Stacked-foils* dédiées à l'étude du ^{67}Cu. Les écarts-types σ_E exprimés également en *MeV* ont été obtenus par un ajustement gaussien des distributions énergétiques obtenues par simulation GEANT$_4$, dans chacune des feuilles.

des moniteurs en Cuivre. Cependant une feuille de Nickel a été ajoutée à chaque motif pour permettre l'étude des réactions dans les moniteurs *cf.* chapitre 6.

5.4.1 Phénomène d'adsorption

L'étape d'évaporation est la plus critique et difficilement maîtrisable pour une personne peu expérimentée. Le résidu obtenu, sous l'effet d'une chaleur trop importante, subit un phénomène d'adsorption sur le verre du bécher. Sa récupération par le HCl à 10^{-3} mol.L^{-1}, étape 4, en devient compliquée. Des quantités non négligeables et difficilement évaluables sont laissées au fond du bécher.

Ajoutons que dans le cas de l'irradiation des cibles enrichies en ^{68}Zn, la création du ^{61}Cu est fortement réduite voire nulle. La voie de réaction ^{68}Zn (p , α+4n) ^{61}Cu ayant des sections efficaces très faibles dans la gamme d'énergie étudiée, les quantités de ^{61}Cu produites ne sont pas assez importantes pour permettre une traçabilité correcte. Les incertitudes élevées liées à ce problème d'adsorption ne nous permettent pas de réaliser des mesures satisfaisantes. Aucune analyse concernant l'étude des sections efficaces de production du ^{67}Cu n'est effectuée pour ces deux irradiations. Notons qu'elles vont tout de même permettre l'obtention de points de sections efficaces des réactions liées aux moniteurs.

L'adsorption dans le bécher est un phénomène quasi-systématique. Pour les purifications du ^{64}Cu en vue des tests de radiomarquages, les quantités créées sont beaucoup plus importantes, ce qui rend les pertes par adsorption négligeables.

Le seul moyen de s'affranchir du problème d'adsorption, est de ne pas passer par l'étape d'évaporation. Il convient donc de remanier le précédent protocole.

5.4.2 Nouveau protocole de séparation

Nous avons vu que les caractéristiques d'accroche de la résine sont fonction du pH de la solution. Plutôt que de chercher à évaporer le HNO_3 nous allons, par l'ajout d'une solution basique forte, remonter ce pH vers la zone $2 \leq pH \leq 3$. Cette technique est plus délicate que la précédente, car nous n'utiliserons pas de pH-mètre électronique. Le caractère actif de nos solutions impose des impératifs de décontamination trop contraignants. Nous avons donc recours à des bandes-test dont la couleur varie en fonction du pH de la solution. La

variation se faisant suivant un dégradé, elles ne permettent qu'une estimation relativement imprécise du pH.

La base forte utilisée est de la soude NaOH à 10 mol.L^{-1}, pH12.8. Le nouveau protocole, très semblable au précédent, est le suivant :

1. Conditionnement de la résine avec une solution d'acide chlorhydrique HCl à 10^{-3} mol.L^{-1}, pH3. La quantité de résine utilisée est également de $0,65g$;
2. Dissolution du dépôt de ^{68}Zn dans 2 mL d'acide nitrique HNO_3 ultra-concentré à 15.67 mol.L^{-1}. La dissolution doit être la plus rapide possible pour éviter que le support ne se dissolve trop ;
3. Titrage de la solution par ajout de NaOH à 10 mol.L^{-1} pour obtenir un pH compris entre 2 et 3. Des contrôles du pH sont régulièrement effectués par utilisation de bandes-test. Nous obtenons l'échantillon mère ;
4. Récupération d'une fraction de la solution, 10 %, en guise de témoin ;
5. Passage de la solution en tête de colonne de séparation. Nous récupérons en sortie de résine l'échantillon contenant tous les éléments non accrochés par la résine, Gallium compris ;
6. Rinçage des béchers et de la colonne au HCl à 10^{-3} mol.L^{-1} afin de pouvoir tout récupérer ;
7. Une fois que toute la solution mère ainsi que les rinçages des béchers et colonne sont passés au travers de la résine, nous éluons la résine avec 15 mL de HCl à 8 mol.L^{-1}. Cette élution assure le décrochage et la récupération de tous les éléments accrochés par la résine, les isotopes de Cuivre dans notre cas.

Les trois échantillons obtenus, ainsi que les moniteurs, sont conditionnés suivant la géométrie du flacon de 50 mL. Les séparations sont réalisées par deux sur la même paillasse que présentée précédemment, FIG. 5.8.

Nous avons validé ce protocole en réalisant à blanc, sans irradiation, une séparation de ce type. Du Zinc, du Cuivre et du Gallium ont été dissous avec une feuille d'Argent pour reproduire au mieux les conditions réelles. Le contrôle a été effectué par un spectromètre à torche plasma – ICP-AES – qui nous donne les concentrations des éléments suivant leur numéro atomique. Nous y avons passé les échantillons xGa et xCu. Les résultats nous ont confirmé que pour un pH compris entre 2 et 3, pH2.55 pour le test, les quantités de Gallium se retrouvant dans la solution xCu étaient très faibles, inférieures au pour-mille de la quantité initiale. Il en est de même pour celles de Cuivre dans la solution xGa.

L'ajout de NaOH à 10 mol.L^{-1} provoque un précipité marron, visible sur la figure 5.9. Son étude ICP-AES nous a révélé qu'il est principalement constitué d'Argent et qu'un phénomène de co-précipitation entraîne une capture du Cuivre, mais pas du Gallium. Lors du passage de la solution en tête de colonne, étape 5, le précipité ne peut pas, du fait de son état solide, traverser la résine. Il se retrouve ainsi bloqué jusqu'au stade de l'élution. Lors de la phase de décrochage, étape 7, l'ajout de HCl à 8 mol.L^{-1} le dissout instantanément, lui et le Cuivre qu'il contient. Ils traversent ainsi la résine et se retrouvent dans la solution xCu.

Lors de l'analyse par spectro-γ, les seuls contaminants sont les isotopes de l'Argent créés lors de l'irradiation, ^{104m,104}Ag. Nous retrouvons également d'autres éléments produits dans le support, comme le ^{101m}Rh ou le ^{101}Pd, ayant eux aussi subi un phénomène de co-précipitation. Cependant, aucun ne possède de raies γ interférant avec celles des isotopes d'intérêt.

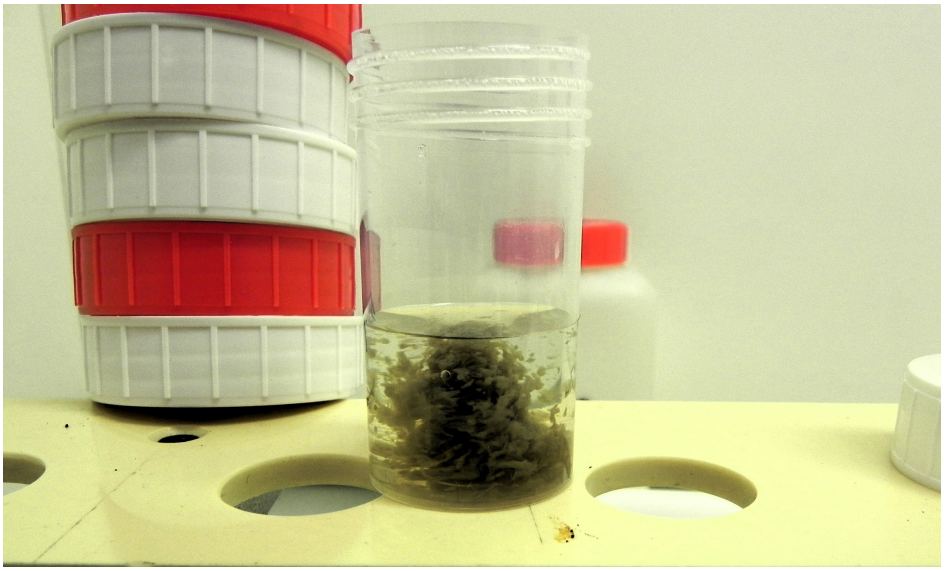

FIGURE 5.9 - Précipité obtenu dans la solution mère lors de l'ajout de NaOH à 10 mol.L^{-1}.

5.4.3 Création spécifique d'un traceur

Afin de nous assurer de la présence en quantité suffisante comme traceur de ^{61}Cu, nous plaçons en fin de *stack* une feuille de Cuivre naturel. Elle est dissoute après le tir et une fraction de la solution obtenue est ajoutée à chaque échantillon mère. Le Cuivre naturel étant composé des isotopes 63 à 69.15 % et 65 à 30.85 %, la production de ^{67}Cu par irradiation de protons n'est pas possible. En revanche, si nous cherchons à mesurer les sections efficaces de création du ^{64}Cu, il sera nécessaire de corriger l'activité ajoutée par l'intermédiaire du traceur.

Le ^{66}Ga, servant de traceur pour le Gallium, est créé en quantité suffisante dans le dépôt de ^{68}Zn.

5.5 Irradiations et séparations suivant le second protocole

Un autre enseignement tiré des premières irradiations, est que le triplement des échantillons, xCu, xT et xGa, pour chaque dépôt de ^{68}Zn nécessite plus de temps de comptage. Aussi nous limitons désormais le nombre de répétitions à 2 par *stack*.

Nous n'avons pas jugé nécessaire de multiplier le nombre de points aux hautes énergies, supérieures à 53 MeV. Nous préférons nous concentrer sur la gamme de 40 MeV à 53 MeV pour décrire au mieux la variation dans cette zone. Nous avons procédé à l'ensemble des irradiations répertoriées, ainsi que les énergies couvertes, dans le tableau 5.5.

Une meilleure prise en main d'ARRONAX de la part des opérateurs a permis des tirs mieux centrés. Nous nous sommes rendus compte que les activités *end of beam* de la première irradiation étaient trop importantes pour autoriser un comptage rapide. Le temps mort observé étant supérieur à 10 %. La durée et l'intensité initiales des irradiations, respectivement 30 min et 100 µA, ont été chacune divisées par deux lors des tirs suivants. L'ensemble des énergies étudiées, toujours calculées par GEANT$_4$, est répertorié dans le tableau 5.5.

Feuille	Irradiation							
	3		4		5		6	
	E	σ_E	E	σ_E	E	σ_E	E	σ_E
1	42.76	0.15	68.66	0.14	60.95	0.14	52.94	0.15
2	39.4	0.19	64.32	0.18	57.24	0.20	48.76	0.21
	7		8		9			
	E	σ_E	E	σ_E	E	σ_E		
1	50.97	0.15	/		/			
2	46.92	0.21	/		/			

TABLEAU 5.5 - Inventaire des différents tirs de *Stacked-foils* et énergies couvertes dans le cas des irradiations de ^{68}Zn. Les énergies E et écarts-types σ_E en MeV ont été obtenus par un ajustement gaussien des distributions énergétiques obtenues par simulation GEANT$_4$, dans chacune des feuilles.

5.5.1 Absorption dans la résine

Le suivi des éléments traceurs ^{61}Cu et ^{66}Ga nous permet donc de contrôler la présence des isotopes de Cuivre et de Gallium dans les échantillons xGa et xCu. Nous pouvons, par comparaison avec les activités présentes dans les solutions xT, évaluer d'éventuelles pertes dans la résine.

Nous avons également réalisé ponctuellement des comptages γ de ces résines une fois les séparations effectuées.

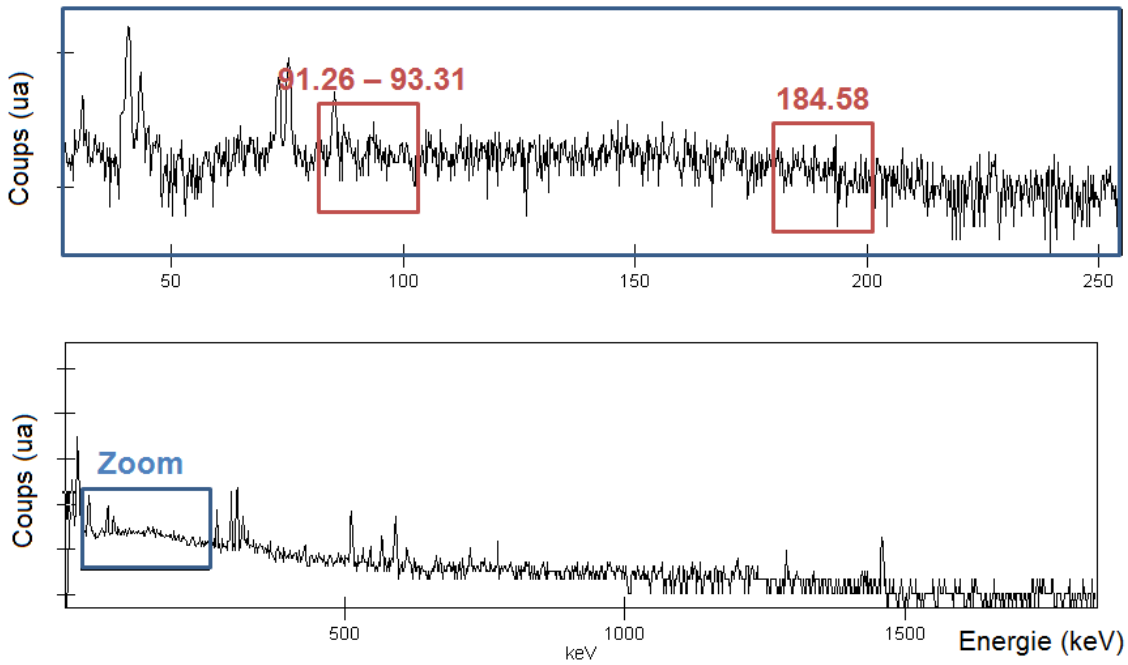

FIGURE 5.10 - Spectre γ obtenu pour la résine ayant servi lors de la séparation 12Cu. L'absence des pics caractéristiques des ^{67}Cu et ^{67}Ga témoigne de leur élution complète. Les pics visibles correspondent aux ^{101}Pd et ^{101}Rh ayant précipité.

La figure 5.10 présente l'une de ces mesures, elles ne sont toutefois pas systématique-

ment réalisées. Les temps d'acquisition sur le spectro-γ sont préférentiellement attribués à la mesure des échantillons xCu et xGa. Cette vérification ne peut s'effectuer que lorsque le deuxième détecteur *HPGe* présent sur ARRONAX est disponible. Toutes les mesures de résines ont montré l'absence du pic caractéristique à 184.58 keV TAB. 5.1. Nous en concluons qu'elles ne conservent aucun isotope du Cuivre et du Gallium et que les 15 mL de HCl à 8 mol.L^{-1} sont suffisants pour l'élution complète des éléments présents dans la résine.

5.5.2 Calcul des passages du Cuivre et Gallium

En connaissant les activités des Cuivre et Gallium dans les solutions xT, xGa et xCu, nous pouvons établir les pourcentages de séparation. Répertoriés dans le tableau 5.6, ils représentent les fractions de Cuivre et Gallium présentes dans la solution xCu.

Irradiation	3		4		5		6	
Échantillon	11Cu	12Cu	13Cu	14Cu	15Cu	16Cu	17Cu	18Cu
Frac. Cu	/	/	44.76 %	63.37 %	93.48 %	93.96 %	98.0 %	92.76 %
Frac. Ga	0.84 %	0.18 %	0.0 %	0.3 %	0.3 %	0.23 %	0.26 %	0.14 %

Irradiation	7	
Échantillon	19Cu	20Cu
Frac. Cu	80.89 %	83.91 %
Frac. Ga	0.46 %	0.44 %

TABLEAU 5.6 - Fractions de passage des isotopes de Cuivre et Gallium dans les solutions xCu.

Les fractions de Gallium présentes dans les échantillons xCu sont faibles. Aussi nous considérons les contributions du ^{67}Ga sur les raies communes avec le ^{67}Cu comme négligeables. L'absence de pics d'amplitudes significatives à 300.22 keV et 393.53 keV le confirme.

Une feuille de Nickel naturel avait été utilisée pour obtenir le traceur lors de l'irradiation 3 [i]. Les quantités de ^{61}Cu créées ayant été trop faibles, nous n'avons pu évaluer les taux de passages du Cuivre.

5.6 Données de sections efficaces

Nous avons souhaité extraire les sections efficaces concernant la réaction ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu. Comme dans le cas du Scandium 47, pouvoir confronter nos résultats avec les données expérimentales pour d'autres réactions, permet de valider notre méthodologie. Les éléments dont nous pouvons suivre les productions dans une cible de ^{68}Zn ne sont pas nombreux.

5.6.1 Calcul d'erreur

Le calcul du taux de passage de Cuivre se fait par l'intermédiaire des activités de ^{61}Cu. Bien que faible, de l'ordre de 2 %, l'erreur associée à ces activités doit être prise en compte dans l'établissement de l'erreur totale. La relation 3.3 établie au chapitre 3 est modifiée pour

i. Le but de l'utilisation du Nickel était de rendre négligeables les quantités de ^{64}Cu produites avec ce traceur afin de ne pas avoir à faire de correction d'activité.

Élmt	Période	Mode déc.(%)	Fils	$E_\gamma(keV)$	$I_\gamma(\%)$	Réactions	$E_S(MeV)$
^{64}Cu	12.70 h	ϵ(61.5)	^{64}Ni	1345.77	0.47	^{68}Zn (p,α+n)	7.91
		β^-(38.5)	^{64}Zn			^{68}Zn (p,2p+3)	36.62
^{67}Cu	61.83 h	β^-(100)	^{67}Zn	91.26	7.0	^{68}Zn (p,2p)	10.13
				93.31	16.1		
				184.58	48.7		
^{66}Ga	9.49 h	ϵ(100)	^{66}Zn	833.53	5.9	^{68}Zn (p,3n)	23.55
				1039.22	37.0		
^{67}Ga	3.26 j	ϵ(100)	^{67}Zn	93.31	38.81	^{68}Zn (p,2n)	12.16
				184.58	24.41		
				300.22	16.64		

TABLEAU 5.7 - Données de décroissance et principales raies γ des différents éléments étudiés lors des irradiations du ^{68}Zn.

intégrer cette nouvelle composante. L'erreur totale reste quadratique et s'exprime suivant l'équation 5.1.

$$\left(\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right)^2 = \left(\frac{\Delta\sigma'}{\sigma'}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A_{ct}}{A_{ct}}\right)^2_{^{67}Cu} + \left(\frac{\Delta A'_{ct}}{A'_{ct}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A_{ct}}{A_{ct}}\right)^2_{^{61}Cu} \tag{5.1}$$

où l'erreur sur l'activité pour le ^{61}Cu s'exprime comme la somme quadratique des erreurs sur les activités dans les échantillons xCu et xGa, équation 5.2.

$$\left(\frac{\Delta A_{ct}}{A_{ct}}\right)^2_{^{61}Cu} = \left(\frac{\Delta A_{ct}}{A_{ct}}\right)^2_{xCu} + \left(\frac{\Delta A_{ct}}{A_{ct}}\right)^2_{xGa} \tag{5.2}$$

Utiliser des activités importantes de ^{61}Cu permet non seulement d'améliorer le calcul du taux de passage, mais également de minimiser l'erreur associée.

Ce nouveau calcul d'erreur s'applique pour les cas des ^{64,67}Cu. En ce qui concerne les sections efficaces des isotopes 66 et 67 du Gallium, leurs fractions étant inférieures au pourcent dans les échantillons xCu, TAB. 5.6, l'erreur associée à ce taux de passage est négligeable.

5.6.2 ^{64}Cu

Comme précisé, irradier une feuille de Cuivre naturel pour générer le traceur de ^{61}Cu va également conduire à la création de ^{64}Cu. Si nous souhaitons établir les sections efficaces de la réaction ^{68}Zn (p,X) ^{64}Cu, il est indispensable de connaître l'activité en ^{64}Cu provenant de cette feuille de Cuivre, et ajoutée à la solution mère. L'intensité d'émission faible, 0.47 %, de l'unique raie γ du ^{64}Cu contraint à effectuer des mesures longues pour obtenir précisément son activité. Ces temps de comptages ont été préférentiellement attribués aux mesures des échantillons xCu et xGa. De ce fait, nous n'avons pu réaliser de comptages suffisamment longs des sources de traceurs pour en extraire l'activité de ^{64}Cu. C'est pour cette raison que

nous ne présentons pas de résultat pour la production de ^{64}Cu dans le ^{68}Zn.

5.6.3 ^{67}Cu

Les points obtenus pour la réaction ^{68}Zn (p , 2p) ^{67}Cu sont quant à eux présentés figure 5.11.

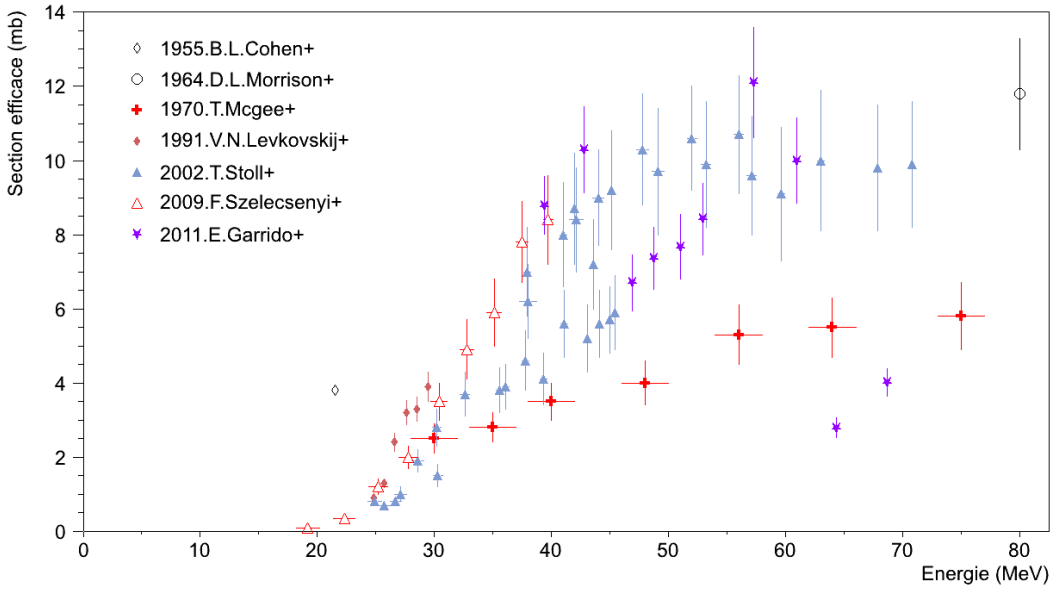

FIGURE 5.11 - Sections efficaces de la réaction ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu.

Les deux points de plus basses énergies, 39.4 MeV et 42.76 MeV, ont été établis sans que nous puissions réaliser le calcul du taux de passage. Ils correspondent à l'irradiation 3 pour laquelle une feuille de Nickel naturelle fut utilisée pour générer le traceur. Aussi, sauf à supposer que la séparation était optimale, avec un taux de passage du ^{67}Cu proche de 100 %, nous ne pouvons pas garantir ces valeurs.

Les deux points à plus haute énergie, 64.32 MeV et 68.66 MeV, issues de l'irradiation 4 sont très en dessous des valeurs attendues.

Les données issues de l'irradiation 5, 57.24 MeV et 60.95 MeV sont en accord avec les résultats obtenus par Stoll *et al.* [65] à ces énergies.

Les quatre points des irradiations 6 et 7, situés sur la gamme allant de 45 MeV à 53 MeV, présentent une cohérence entre eux. Nous notons cependant que leur valeur respective est plus faible que celle attendue.

5.6.4 ^{66,67}Ga

Nous avons donc remarqué des divergences entre nos points de sections efficaces de production du ^{67}Cu. Il convient d'étudier les sections efficaces obtenues pour les réactions ^{68}Zn (p , 2n) ^{67}Ga et ^{68}Zn (p , 3n) ^{66}Ga afin de voir si nous y retrouvons les mêmes incohérences. Les résultats sont présentés sur la figure 5.12 pour le ^{66}Ga et sur la figure 5.13 pour le ^{67}Ga.

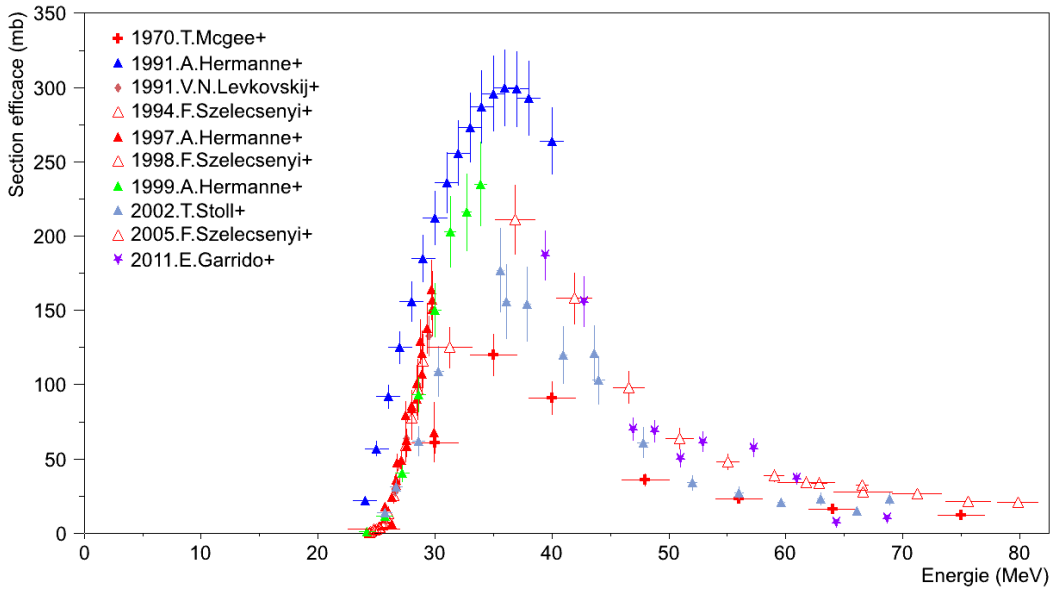

FIGURE 5.12 - Sections efficaces de la réaction ^{68}Zn (p,3n) ^{66}Ga.

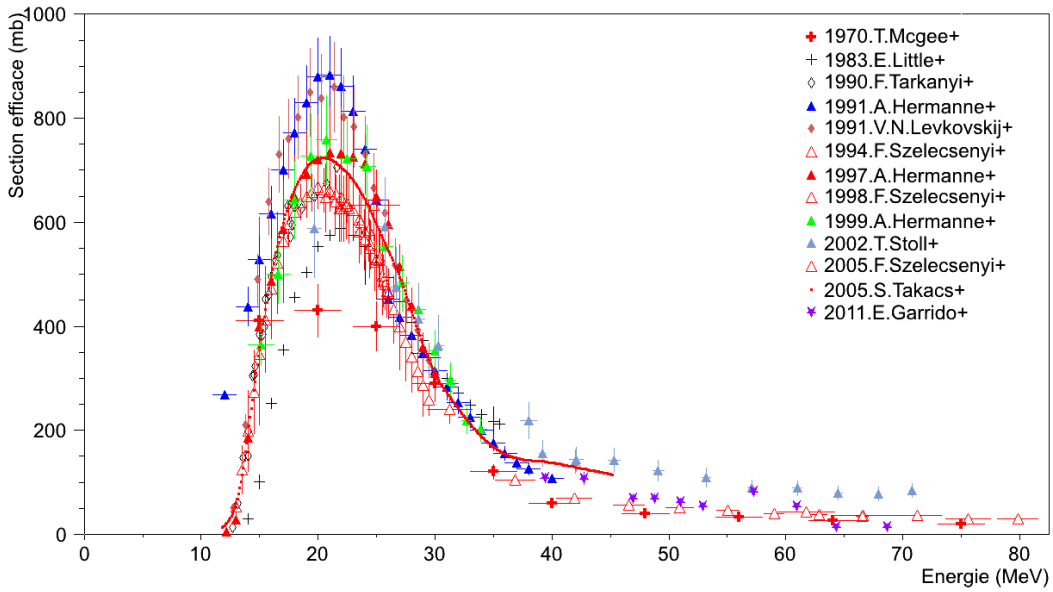

FIGURE 5.13 - Sections efficaces de la réaction ^{68}Zn (p,2n) ^{67}Ga.

L'échelle de ces figures est adaptée aux maximums locaux, ce qui rend difficile l'étude de nos points à plus haute énergie. Un resserrement sur la zone d'intérêt, figures 5.14 et 5.15, nous permet de mieux visualiser nos contributions.

5.11.

Pour les deux réactions, nous retrouvons le fait que nos deux points à plus haute énergie ont des valeurs plus faibles que celles attendues. La cohérence entre les quatre points de la gamme 45 MeV à 53 MeV se retrouve également dans le cas du ^{67}Ga, FIG. 5.15. Dans les trois cas, la section efficace obtenue à 57.24 MeV est supérieure à celle des deux autres points

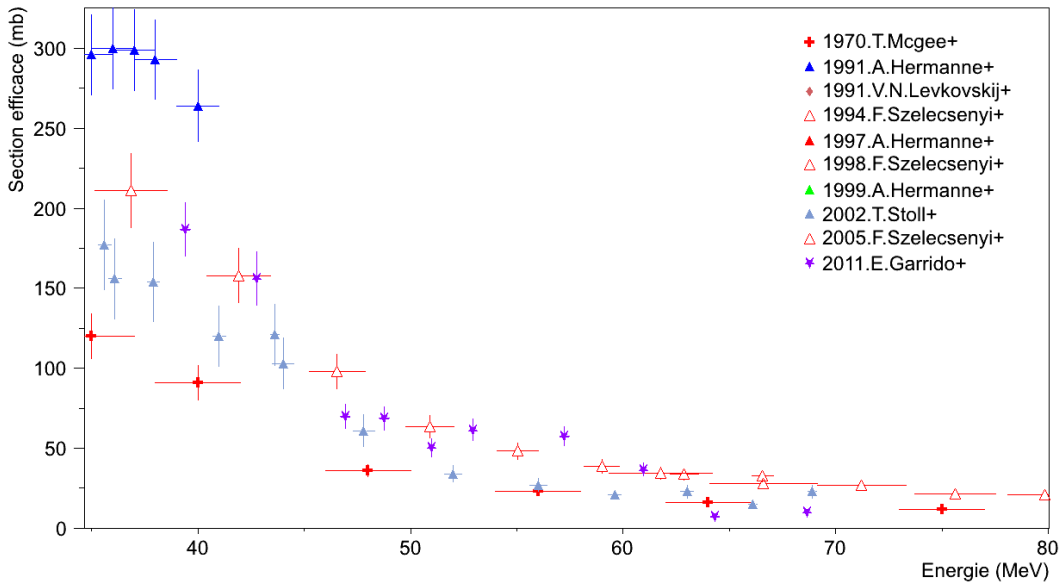

FIGURE 5.14 - Sections efficaces de la réaction ^{68}Zn (p,3n) ^{66}Ga.

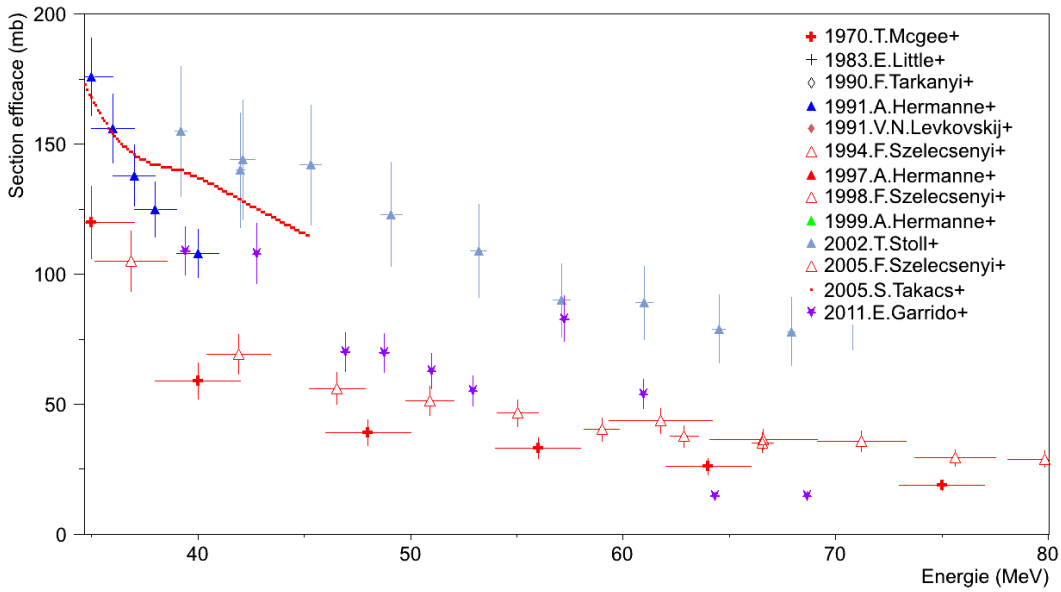

FIGURE 5.15 - Sections efficaces de la réaction ^{68}Zn (p,2n) ^{67}Ga.

l'entourant.

Dans l'ensemble, c'est le même comportement observé pour nos points relatifs au ^{67}Cu qui se répète avec les ^{66,67}Ga. La différence étant que pour ces isotopes de Gallium, les sections efficaces sont plus importantes, 50 mb contre 10 mb, aussi une fluctuation de quelques barns est-elle moins visible que dans le cas du ^{67}Cu.

Les résultats présentés sont répertoriés dans les tableaux de l'annexe B.

5.6.5 Sources possibles d'erreurs

Pour les deux points de plus haute énergie, nous avons obtenu, sur les trois réactions, des valeurs de sections efficaces plus faibles que les données présentes dans la littérature. Aucun comportement semblable n'a été observé dans les feuilles de moniteurs de cette irradiation. Une explication possible réside dans notre mode de réalisation des dépôts. Deux électrolytes différents ont été utilisés pour nos électrodépositions. Les concentration et pH étaient identiques et aux valeurs voulues, respectivement $3\,\mathrm{g.L^{-1}}$ et pH2. Les dépôts utilisés lors des irradiations 1 à 4 provenaient du premier électrolyte, les autres, du second. Les derniers dépôts obtenus à partir de ce premier électrolyte sont ceux correspondant aux points de plus haute énergie. Aussi il est possible qu'un appauvrissement mal évalué de l'électrolyte ait pu fausser nos électrodépositions. Nous avons pu obtenir des dépôts in-homogènes ce qui peut être à l'origine des divergences observées. Nous avions vérifié chacun de nos dépôts au microscope, figure 5.5, sans y remarquer de singularité. Une mesure par profilométrie, plus contraignante[j], est indispensable pour s'assurer d'une qualité plus précise de dépôt.

Concernant les quatre points de la gamme allant de 45 MeV à 53 MeV, aucun élément ne nous apparaît pour expliquer leur comportement. Les protocoles d'électrodéposition et de séparation ainsi que l'électrolyte sont identiques à ceux utilisés pour les points à 57.24 MeV et 60.95 MeV.

Les activités en ^{61}Cu et ^{66}Ga mesurées dans les flacons xCu et xGa correspondent bien à ce qui était présent dans le xTémoin. Ce qui indique que les quantités de Gallium et de Cuivre laissées dans la résine ou les flacons servant à la préparation des solutions mères, sont très faibles voir nulles. Cela nous permet de considérer que, si problème il y a, celui intervient avant la réalisation de la séparation. Nous envisageons une possible capture du Cuivre et du Gallium sur la feuille d'Argent au moment de la dissolution du dépôt. Nous n'avons jamais mis à compter de feuilles d'Argent après la dissolution, les temps de comptages étant utilisés pour les échantillons. Rincer cette feuille à l'acide plutôt qu'à l'eau devrait permettre le cas échéant de minimiser cette capture.

j. Nous ne possédons pas de profilomètre et devons faire des demandes auprès de l'Institut des Matériaux de Nantes pour avoir accès au leur.

Chapitre 6

Étude des sections efficaces issues des moniteurs

6.1 Introduction

En plus des sections efficaces du ^{47}Sc, du ^{67}Cu et des autres éléments créés dans les cibles, nous avons extrait celles concernant les réactions dans les moniteurs. Elles proviennent de l'analyse des irradiations présentées aux chapitres 4 et 5. Cela permet en outre de valider notre méthodologie sur un plus grand nombre de noyaux résiduels, ainsi que d'ajouter du poids à notre travail.
De plus, cela amène de nouveaux éléments pour nos confrontations avec les modèles théoriques.

Ajoutons que, tout comme pour le ^{47}Sc et le ^{67}Cu, il existe, pour une même réaction, des divergences entre les résultats de différentes expériences. C'est notamment le cas aux basses énergies pour la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{61}Cu FIG. 6.1. Le désaccord porte sur les valeurs

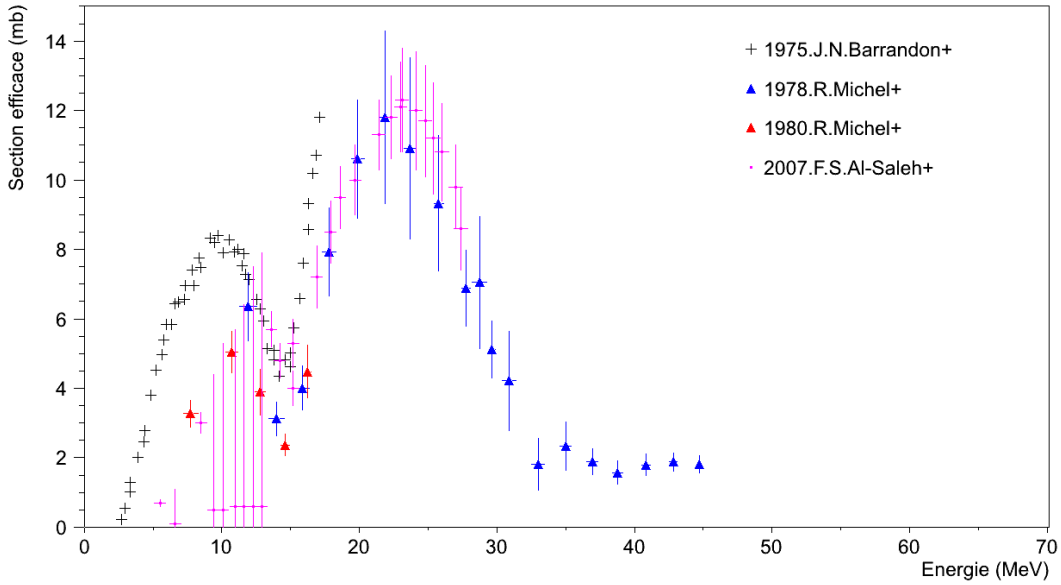

FIGURE 6.1 - Données expérimentales des sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{61}Cu présentes dans la littérature [15].

de sections efficaces de la première voie de réaction, de 2.5 MeV à 15 MeV. Les données de Barrandon *et al.* [70] sont d'une amplitude bien supérieure à celles de Michel *et al.* [58]. Michel *et al.* [55] et Al-Saleh *et al.* [71] bien qu'en accord à plus haute énergie, n'apportent aucune réponse à basse énergie. Il est intéressant pour nous de tenter d'y répondre.

6.2 Complétion à basse énergie

6.2.1 Utilisation du faisceau HH^+

Les irradiations précédemment menées l'ont été pour des énergies sur la gamme de 17 MeV à 69 MeV. La zone d'intérêt pour la réaction ^{nat}Ni (p , X) ^{61}Cu se situe à des énergies inférieures à 15 MeV. Comme nous l'avons présenté dans le chapitre 1, ARRONAX peut nous fournir un faisceau de protons de deux manières. La première est celle utilisée jusqu'à présent et consiste en l'accélération d'ions H^- extraits du cyclotron par l'éplucheur. L'énergie minimale possible par cette voie est de 30 MeV. Dégrader le faisceau jusqu'à une énergie de 17 MeV provoquerait des *straggling* angulaire et en énergie importants. Aussi dans le cas d'une irradiation dédiée à ces basses énergies, nous nous orientons vers l'utilisation d'une voie d'accélération alternative.

La deuxième technique pour obtenir un faisceau de protons repose sur l'accélération d'ions HH^+. De charge positive, leur extraction se fait par septum électromagnétique en périphérie de cyclotron à l'énergie fixe de 34 MeV. Ces 34 MeV correspondent à l'énergie de l'ion HH^+, aussi, dès que celui-ci rencontre de la matière, les deux hydrogènes se séparent, chacun emportant une énergie de 17 MeV. Un faisceau d'ions HH^+ à 34 MeV est donc équivalent à un faisceau de protons de 17 MeV.

À ces énergies, l'épaisseur de 500 µm d'Aluminium, dont nous disposons pour nos dégradeurs, entraîne des pertes d'énergie trop importantes, de l'ordre de 5 MeV. Nous avons donc utilisé des feuilles de Titane naturel de 125 µm. Les pertes d'énergies sont de l'ordre de 2 MeV. Leur rôle est semblable à celui de l'Aluminium et elles peuvent également être doublées. Nous réalisons l'irradiation détaillée dans le tableau 6.1.

Feuille		Épaisseur(µm)	$E_{moy}(MeV)$	$\sigma_E(MeV)$
Titane		11.99±0.35	16.64	0.15
Nickel	1	14.48±0.18	16.38	0.16
Titane		254.0 ±0.73	/	/
Nickel	2	15.47±0.2	13.62	0.22
Titane		252.51±0.68	/	/
Nickel	3	15.19±0.19	10.35	0.28
Titane		253.82±0.71	/	/
Nickel	4	14.32±0.18	6.01	0.45

TABLEAU 6.1 - Inventaire des feuilles et épaisseurs associées utilisées lors de l'irradiation par des ions HH^+. Les énergies et écarts-types ont été obtenus par l'intermédiaire d'une simulation GEANT$_4$.

Nous avons ajouté une feuille cible de Titane naturel en début du *stack* de manière à obtenir un autre point de sections efficaces à basse énergie. Les résultats issus de cette feuille ont été présentés chapitre 4. La réaction ^{nat}Ni (p , X) ^{57}Ni est tabulée par l'IAEA pour servir de référence sur la gamme [13 MeV; 50 MeV]. Aussi pour les feuilles 3 et 4, dont les énergies

sont en dehors de cette gamme, nous nous servons de la feuille 2 comme moniteur. Une simulation GEANT4 nous permet d'évaluer les pertes de flux entre les feuilles 2 et 3 à 2 ‰, et entre les feuilles 2 et 4 à 5 ‰, ce qui est très faible.

6.2.2 Récapitulation des énergies couvertes

L'irradiation par ions HH^+ est la seule spécifique aux moniteurs de Nickel, toutes les autres données ont été obtenues lors des tirs effectués pour les mesures du ^{47}Sc ou du ^{67}Cu. Les énergies couvertes pour le Nickel et le Cuivre sont respectivement données dans les tableaux 6.2 et 6.3. Un calcul de moyenne semblable à celui présenté chapitre 4 est réalisé pour les points dont les énergies se recouvrent à $\pm\sigma_E$.

Lors des deux premières irradiations, 1 et 2, pour le ^{67}Cu, les moniteurs étaient rivetés dans l'ordre $Cu/Ni/Al$. À ces énergies, les sections efficaces de production du ^{61}Cu sont environ 100 fois plus élevées dans le Cuivre que dans le Nickel. La contribution des noyaux de recul devient du même ordre de grandeur que celle des noyaux créés dans la cible. Il nous était difficile de dissocier les deux contributions, aussi ces valeurs ne sont elles pas présentées. Il en est de même pour les ^{56,57,58,58m,61}Co et le ^{60}Cu. Par la suite, la feuille d'Aluminium est intercalée entre le Cuivre et le Nickel lors du rivetage.

6.3 Données de section efficace extraites des moniteurs de Nickel

La composition du Nickel naturel de nos feuilles est donnée par *Goodfellows*. Elle comprend du ^{58}Ni à 68.27 %, ^{60}Ni à 26.1 % ^{61}Ni à 1.13 %, ^{62}Ni à 3.59 % et ^{64}Ni à 0.91 %.

Le tableau 6.4 dresse le bilan des isotopes étudiés, ainsi que leurs données de décroissance. La même méthodologie que dans l'étude du ^{47}Sc est utilisée. Les seules difficultés supplémentaires concernent le nombre plus importants de filiations, ^{52m}Mn/^{52g}Mn, ^{52}Fe/^{52g}Mn, ^{56}Ni/^{56}Co et ^{57}Ni/^{57}Co. Le ^{49}V sur lequel décroit le ^{49}Cr ne possède aucune raie γ. Le ^{55}Fe d'une période 2.74 ans fait sa décroissance par EC(100 %) vers l'isotope stable ^{55}Mn. Sa raie unique d'émission γ à 126.0 keV possède une intensité de $1.28 \cdot 10^{-7}$ %, ce qui le rend indétectable.

6.3.1 ^{61}Cu

Nos résultats concernant les sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{61}Cu sont présentés figure 6.2. Nos données à basse énergie sont en accord avec celles de Michel *et al.* [58]. Aussi concluons nous que les valeurs présentées par Barrandon *et al.* [70] sont biaisées et ne doivent, pour cette réaction, pas être prises en considération.

Notre accord avec les précédentes données s'étend aux énergies moyennes avec les résultats de Al-Saleh *et al.* [71] ainsi que Michel *et al.* [55]. Nous remarquons cependant une singularité pour deux de nos points à 43 MeV et 45 MeV. Leurs valeurs sont supérieures à Michel *et al.* [55]. Une explication possible serait liée à l'ouverture d'une nouvelle voie dans cette zone. Enfin les points à haute énergie montrent la diminution de cette section efficace qui explique l'absence de ^{61}Cu détecté dans la feuille irradiée à 68.24 MeV.

Exp.	Irr.	Moniteur	Réaction ref.	Feuille	$E(MeV)$	$\sigma_E(MeV)$
^{47}Sc	1	Nickel	$^{nat}Ni(p,X)^{57}Ni$	1	34.95	0.15
				2	32.83	0.19
				3	30.83	0.23
				4	26.76	0.31
				5	22.16	0.4
	3	Nickel	$^{nat}Ni(p,X)^{57}Ni$	1	50.23	0.23
				2	47.83	0.28
				3	44.73	0.33
				4	43.15	0.36
				5	40.11	0.40
				6	37.06	0.46
				7	33.8	0.56
	5	Nickel	$^{nat}Ni(p,X)^{57}Ni$	1	34.75	0.15
				2	31.11	0.23
				3	27.08	0.29
				4	22.54	0.37
				5	19.77	0.42
				6	16.67	0.49
HH$^+$	1	Nickel	$^{nat}Ni(p,X)^{57}Ni$	1	16.38	0.16
				2	13.62	0.22
				3	10.35	0.28
				4	6.01	0.45
^{67}Cu	1	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	52.53	0.15
				2	49.81	0.24
				3	46.97	0.28
				4	44.01	0.33
				5	42.18	0.4
	2	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	60.58	0.14
				2	58.16	0.22
				3	55.66	0.26
				4	53.06	0.30
				5	50.46	0.37
	4	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{56}Co$	1	68.38	0.14
				2	64.03	0.22
	5	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	60.65	0.14
				2	56.93	0.26
	6	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	52.61	0.14

TABLEAU 6.2 - Récapitulatifs des points en énergies couverts lors des différentes irradiations du Nickel. Les valeurs moyennes d'énergie E ainsi que les écarts-types σ_E ont été obtenus par simulations GEANT$_4$.

Exp.	Irr.	Moniteur	Réaction ref.	Feuille	$E(MeV)$	$\sigma_E(MeV)$
^{47}Sc	2	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	60.84	0.14
				2	58.53	0.18
				3	56.15	0.22
				4	53.68	0.28
				5	51.13	0.36
	3	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	52.81	0.15
	5	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{56}Co$	1	68.55	0.14
				2	66.09	0.18
				3	63.56	0.23
				4	60.95	0.28
^{67}Cu	1	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	52.64	0.14
				2	49.92	0.24
				3	47.09	0.28
				4	44.14	0.33
				5	42.20	0.4
	2	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	60.68	0.14
				2	58.27	0.22
				3	55.76	0.26
				4	53.17	0.30
				5	50.46	0.37
	3	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	42.59	0.15
				2	39.22	0.23
	4	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{56}Co$	1	68.24	0.14
				2	63.88	0.22
	5	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	60.50	0.14
				2	56.76	0.26
	6	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	52.43	0.15
				2	48.42	0.28
	7	Cuivre	$^{nat}Cu(p,X)^{62}Zn$	1	50.67	0.15
				2	46.57	0.29

TABLEAU 6.3 - Récapitulatifs des points en énergies couverts lors des différentes irradiations du Cuivre. Les valeurs moyennes d'énergie E ainsi que les écarts-types σ_E ont été obtenus par simulations GEANT4.

Élmt	Période	Mode déc.(%)	Fils	$E_\gamma(keV)$	$I_\gamma(\%)$	Réactions	$E_S(MeV)$
^{49}Cr	42.3 min	$\epsilon(100)$	^{49}V	62.29	16.4	^{58}Ni (p,2α+p+n)	28.3
				152.93	30.3		
^{51}Cr	27.7 j	$\epsilon(100)$	^{51}V	320.08	10.08	^{58}Ni (p,α+3p+n)	34.41
^{52m}Mn	21.1 min	$IT(1.75)$	^{52g}Mn	1434.06	98.3	^{58}Ni (p,α+2p+n)	27.78
		$\epsilon(98.25)$	^{52}Cr				
^{52g}Mn	5.59 j	$\epsilon(100)$	^{52}Cr	744.23	99.9		
				935.54	94.5		
^{54}Mn	312.12 j	$\epsilon(100)$	^{54}Cr	834.82	99.98	^{58}Ni (p,4p+n)	35.21
						^{60}Ni (p,α+2p+n)	27.15
^{52}Fe	8.28 h	$\epsilon(100)$	^{52g}Mn	168.68	99.2	^{58}Ni (p,α+p+2n)	30.99
^{55}Co	17.53 h	$\epsilon(100)$	^{55}Fe	477.20	20.2	^{58}Ni (p,α)	1.36
				931.10	75.0	^{58}Ni (p,2p+2n)	30.15
				1408.50	16.9		
^{56}Co	77.23 j	$\epsilon(100)$	^{56}Fe	846.76	99.94	^{58}Ni (p,2p+n)	19.88
				1238.28	66.9	^{60}Ni (p,α+n)	11.84
^{57}Co	271.74 j	$\epsilon(100)$	^{57}Fe	122.06	85.6	^{58}Ni (p,2p)	8.31
				136.47	10.68	^{60}Ni (p,α)	0.27
						^{60}Ni (p,2p+2n)	29.04
^{58g}Co	70.86 j	$\epsilon(100)$	^{58}Fe	810.77	99.45	^{60}Ni (p,2p+n)	20.32
^{61}Co	1.65 h	$\beta^-(100)$	^{61}Ni	67.41	84.7	^{62}Ni (p,2p)	11.32
^{56}Ni	6.08 j	$\epsilon(100)$	^{56}Co	158.38	98.8	^{58}Ni (p,p+2n)	22.86
				269.5	36.5		
				480.44	36.5		
				749.95	49.5		
				811.85	86.0		
^{57}Ni	35.6 h	$\epsilon(100)$	^{57}Co	127.19	16.7	^{58}Ni (p,p+n)	12.43
				1377.59	81.7	^{60}Ni (p,p+3n)	3.15
^{60}Cu	23.7 min	$\epsilon(100)$	^{60}Ni	826.40	21.7	^{60}Ni (p,n)	7.03
				1333.0	88.0	^{61}Ni (p,2n)	14.67
						^{62}Ni (p,3n)	25.74
^{61}Cu	3.33 h	$\epsilon(100)$	^{61}Ni	282.95	12.5	^{61}Ni (p,n)	3.07
				656.0	10.7	^{62}Ni (p,2n)	13.84
						^{64}Ni (p,4n)	30.59

TABLEAU 6.4 - Données de décroissance et principales raies γ des différents éléments étudiés lors des irradiations du Nickel.

Élmt	Période	Mode déc.(%)	Fils	$E_\gamma(keV)$	$I_\gamma(\%)$	Réactions	$E_S(MeV)$
^{54}Mn	312.12 j	ϵ(100)	^{54}Cr	834.82	99.98	^{63}Cu (p,2α+p+n)	23.31
						^{65}Cu (p,2α+p+3n)	41.4
^{56}Mn	2.58 h	β^-(100)	^{56}Fe	846.75	98.9	^{63}Cu (p,α+3p+n)	34.28
				1810.72	27.20	^{65}Cu (p,2α+p+n)	23.64
^{56}Co	77.23 j	ϵ(100)	^{56}Fe	846.76	99.94	^{63}Cu (p,α+p+3n)	36.76
				1238.28	66.9		
^{57}Co	271.74 j	ϵ(100)	^{57}Fe	122.06	85.6	^{63}Cu (p,α+p+2n)	25.2
				136.47	10.68	^{65}Cu (p,α+p+4n)	43.29
^{58g}Co	70.86 j	ϵ(100)	^{58}Fe	810.77	99.45	^{63}Cu (p,α+p+n)	16.49
						^{63}Cu (p,3p+3n)	45.24
						^{65}Cu (p,α+p+3n)	34.59
^{61}Co	1.65 h	β^-(100)	^{61}Ni	67.41	84.7	^{63}Cu (p,3p)	17.54
						^{65}Cu (p,α+n)	6.9
						^{65}Cu (p,3p+2n)	35.63
^{57}Ni	35.6 h	ϵ(100)	^{57}Co	127.19	16.7	^{63}Cu (p,α+3n)	29.31
				1377.59	81.7		
^{60}Cu	23.7 min	ϵ(100)	^{60}Ni	826.40	21.7	^{63}Cu (p,p+3n)	31.92
				1333.0	88.0	^{65}Cu (p,p+5n)	50.04
^{61}Cu	3.33 h	ϵ(100)	^{61}Ni	282.95	12.5	^{63}Cu (p,p+2n)	20.05
				656.0	10.7	^{65}Cu (p,p+4n)	38.15
^{64}Cu	12.70 h	ϵ(61.5)	^{64}Ni	1345.77	0.47	^{65}Cu (p,p+n)	10.06
		β^-(38.5)	^{64}Zn				
^{62}Zn	9.26 h	ϵ(100)	^{62}Cu	548.35	15.3	^{63}Cu (p,2n)	13.47
				596.56	26.0	^{63}Cu (p,4n)	31.57
^{63}Zn	38.47 min	ϵ(100)	^{63}Cu	669.62	8.2	^{63}Cu (p,n)	4.22
				962.06	6.5	^{65}Cu (p,3n)	22.32
^{65}Zn	243.93 j	ϵ(100)	^{65}Cu	1115.54	50.7	^{65}Cu (p,n)	2.17

TABLEAU 6.5 - Données de décroissance et principales raies γ des différents éléments étudiés lors des irradiations du Cuivre.

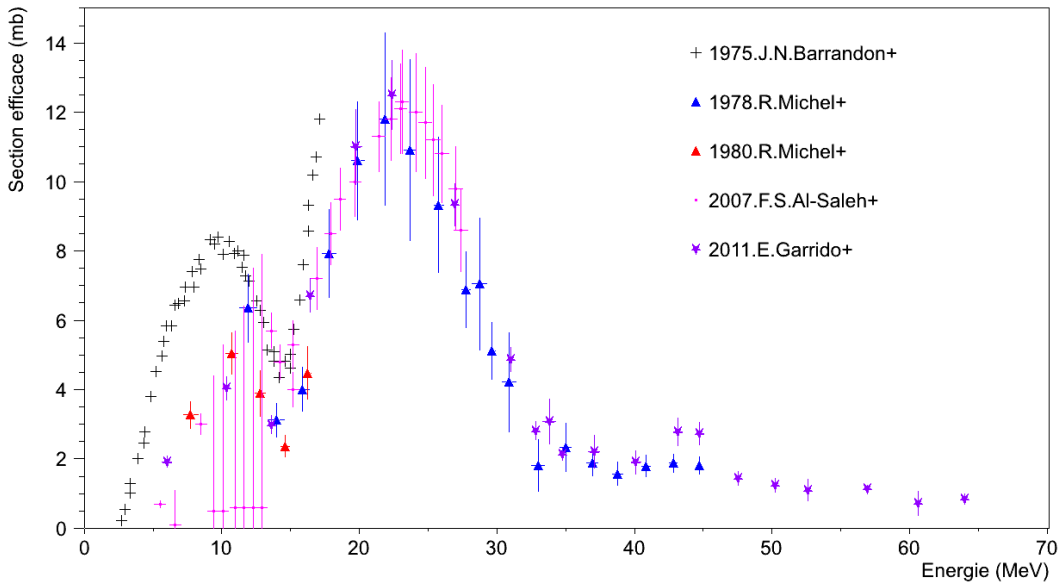

FIGURE 6.2 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{61}Cu.

6.3.2 ^{60}Cu

Autre isotope du Cuivre dont nous avons également pu extraire des sections efficaces, le ^{60}Cu se différencie par une période très courte, 23.7 min. Aussi, seules les irradiations pour lesquelles les comptages des moniteurs de Nickel ont été réalisées peu de temps *end of beam* ont pu permettre l'obtention des sections efficaces. C'est notamment le cas des irradiations de l'étude du ^{67}Cu et le tir d'ions HH^{+}. Nos résultats sont présentés figure 6.3.

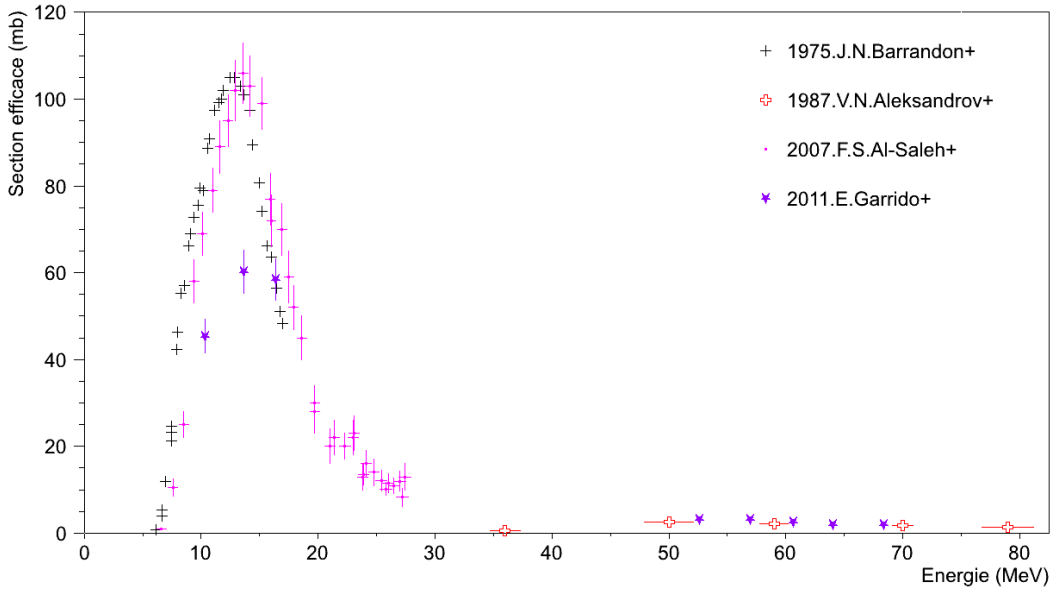

FIGURE 6.3 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{60}Cu.

Nos deux points de plus basse énergie sont en désaccord avec les valeurs obtenues par

Barrandon *et al.* et Al-Saleh *et al.* À noter que nous n'avons pu obtenir de mesure du ^{60}Cu pour le dernier point, situé à 6 MeV, de l'irradiation HH^{+}. Il a totalement décru pendant le passage des trois premières feuilles au comptage, 30 min d'acquisition chacune. Nous pouvons supposer que c'est également un problème de décroissance qui est à l'origine de notre désaccord. La première feuille ayant été portée au comptage étant celle du point à 17 MeV, pour lequel la statistique, ainsi que l'accord, sont bons.

Nous n'avons pu obtenir de valeurs que sur la gamme de 50 MeV à 70 MeV [a]. À haute énergie nous sommes en accord avec les résultats d'Aleksandrov *et al.* [72].

6.3.3 ^{57}Ni

Le fait d'avoir associé une feuille de Nickel à une feuille de Cuivre pour certaines irradiations du chapitre 5, nous permet d'obtenir des valeurs de sections efficaces pour la réaction ^{nat}Ni (p , X) ^{57}Ni. Confronter nos résultats à ceux existants et ayant été validés par l'IAEA nous donne une indication sur la qualité de nos mesures. La comparaison, FIG. 6.4, s'ef-

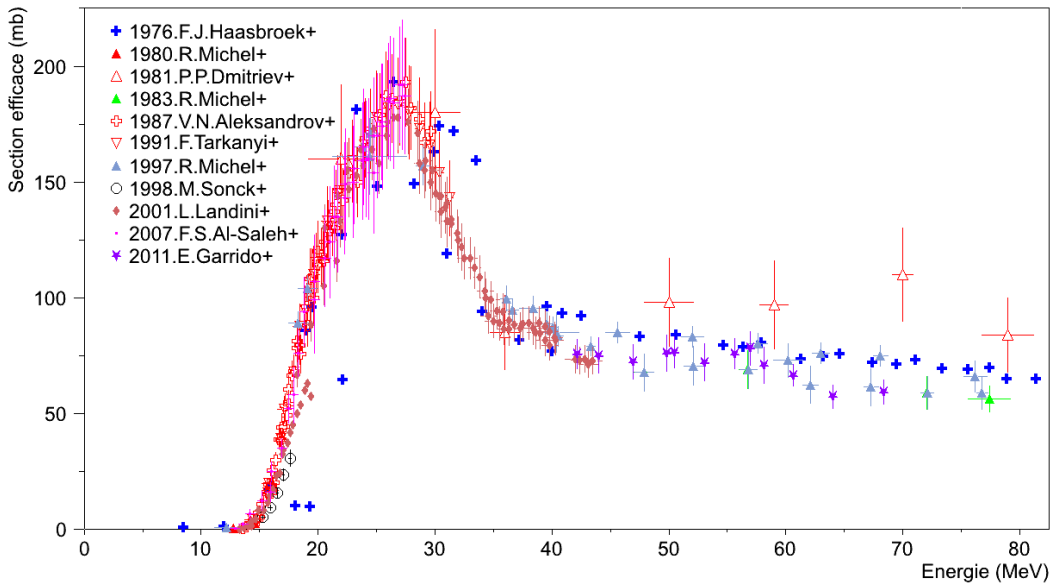

FIGURE 6.4 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{57}Ni.

fectue en limite de la zone de référence pour cette réaction, qui s'étend de 13 MeV à 50 MeV. Nous pouvons tout de même dire que, sur la gamme [40 MeV; 45 MeV], nous sommes en accord avec les précédentes données comme Landini *et al.* [73] et Michel *et al.* [42]. L'accord avec ce dernier se poursuit aux énergies plus hautes. Nous observons une divergence avec Haasbroek *et al.* [74] dont les résultats, plus élevés, n'avaient pas été pris en compte par l'IAEA au moment de réaliser l'ajustement [13].

6.3.4 ^{52m}Mn/^{52g}Mn et ^{52}Fe

Nous sommes face à une double filiation, puisque et le ^{52m}Mn et le ^{52}Fe font leur décroissance sur le ^{52}Mn.

a. Elles correspondent aux irradiations ayant bénéficié de comptages réalisés juste *end of beam*.

^{52}Fe Dans le cas du ^{52}Fe, son analyse ne présente pas de difficulté. Sa raie unique à 168.58 keV, avec une intensité d'émission de 99.2 %, lui est propre. Sa période de 8.28 h explique peut être le fait, qu'à ce jour, il n'existe aucune donnée pour la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{52}Fe présente dans la littérature. Les nôtres, FIG. 6.5, constituent donc les premiers résultats publiés pour cette réaction. Nos points sont cohérents entre eux, nous distinguons l'ouverture d'une voie

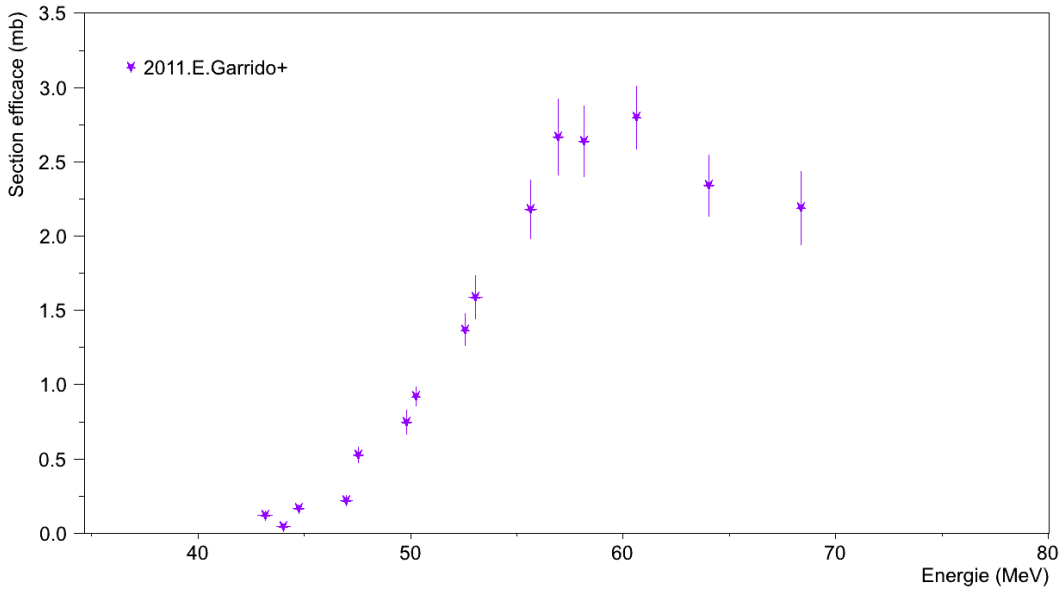

FIGURE 6.5 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{52}Fe.

de création, ^{58}Ni (p,α+p+2n) ^{52}Fe, avec un maximum local à 60 MeV. GÉNIE$_{2000}$ peut ainsi effectuer la correction de la contribution du ^{52}Fe au ^{52g}Mn.

^{52m}Mn L'analyse du ^{52m}Mn est compliquée par sa très courte période, 21.1 min, et le fait que sa raie unique à 1434.06 keV est commune à l'état fondamental. Nous avons remarqué que le logiciel ne parvient pas toujours à effectuer la correction pour extraire l'activité du métastable. Ainsi que la **Bibliothèque** le prévoit, *cf.* 4.3.5 chapitre 4, nous ignorons la contribution de la raie commune lors du calcul d'activités du ^{52g}Mn. Une correction manuelle nous permet, lorsque les comptages ont été effectués suffisamment tôt, de dissocier la contribution du ^{52m}Mn et donc sa section efficace.

$^{52m+g}$Mn Nous présentons pour l'instant les résultats obtenus pour la réaction ^{nat}Ni (p,X) $^{52m+g}$Mn. Le fait que nous retrouvions des activités similaires associées aux trois raies des ^{52m,52g}Mn nous indique que le métastable à totalement décru sur le fondamental. Les résultats sont présentés figure 6.6. Une première constatation est que les valeurs d'Aleksandrov *et al.* [72] sont en désaccord avec les nôtres, mais aussi avec celles de Michel *et al.* [55, 49, 42]. La forme décrite est certes la même, mais l'amplitude est plus importante, jusqu'à deux fois, pour Aleksandrov *et al.*. Aussi considérons nous leurs résultats comme erronés et nous concentrons sur les comparaisons avec Michel *et al.* FIG. 6.7. Nous remarquons que certains points, deux, de la série de Michel *et al.* [42] divergent à haute énergie, entre 60 MeV et 70 MeV. Les auteurs n'ayant que peu détaillé leurs analyses, nous ne sommes pas en mesure d'expli-

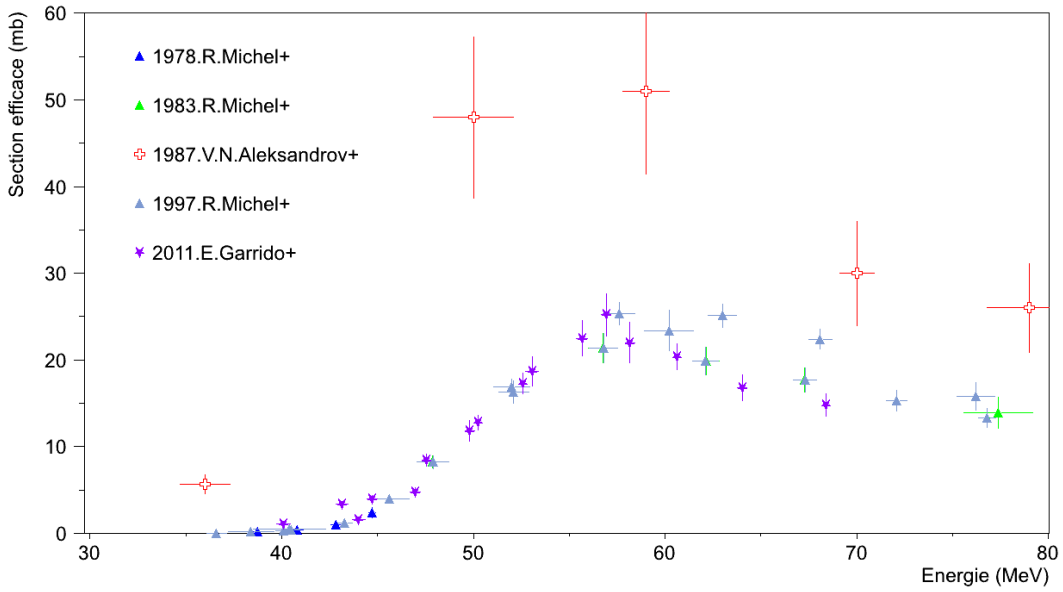

FIGURE 6.6 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) $^{52m+g}$Mn.

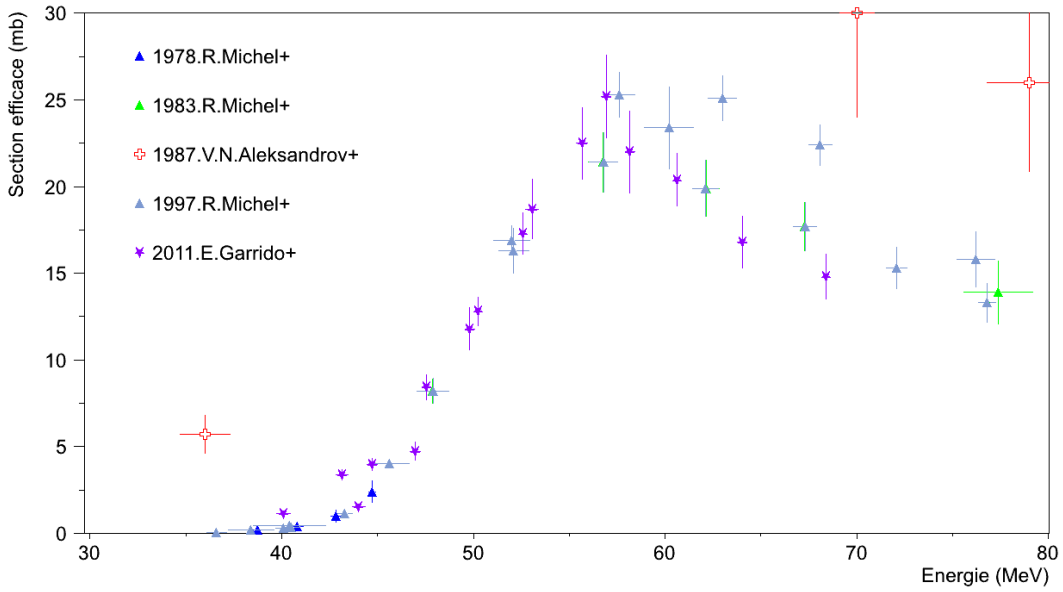

FIGURE 6.7 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) $^{52m+g}$Mn.

quer cette divergence. Exception faite de ces deux valeurs, nos résultats sont en accord avec Michel *et al.* [49, 42] sur toute la gamme couverte en énergie.

6.3.5 ^{49}Cr

La courte période du ^{49}Cr, 42.3 min, explique pourquoi nous avons pu extraire sa section efficace, FIG. 6.8, uniquement lors des irradiations pour le ^{67}Cu, TAB. 6.2. Les premiers comptages ayant été effectués plus rapidement *end of beam*. De plus, nous voyons qu'aux hautes

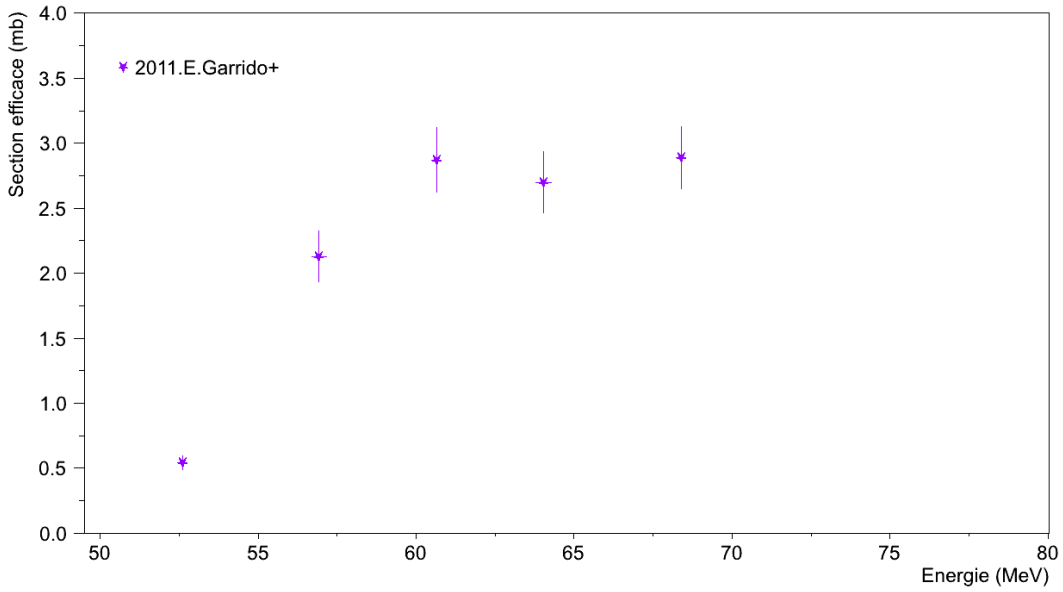

FIGURE 6.8 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{49}Cr.

énergies, auxquelles correspondent nos tirs, la section efficace devient plus élevée, tout en restant relativement faible, environ 3 mb, facilitant la création de ^{49}Cr et donc sa détection. De nouveau, nos résultats pour cette réaction constituent une première.

6.3.6 ^{61}Co

Dans un registre similaire au ^{49}Cr, l'obtention des sections efficaces pour la réaction ^{nat}Ni (p , X) ^{61}Co est compliquée par la période courte, 1.65 h, du ^{61}Co. Elle n'a été possible que pour les irradiations suivies de comptages rapides *end of beam*, comme au moment de l'étude du ^{67}Cu. Ajoutons que sa raie unique ayant une intensité exploitable, 84.7 % pour 67.41 keV, est commune au ^{61}Cu . Aussi est-il indispensable de vérifier que les corrections d'interférence sont bien effectuées par GÉNIE$_{2000}$. Nos résultats sont présentés figure 6.9. Nous obtenons des sections efficaces très faibles, inférieures au barn. Nos résultats sont cohérents entre eux, les cinq valeurs obtenues décrivant un plateau. L'absence d'autres données ne nous permet pas d'en dire plus sur la pertinence de ces mesures.

6.3.7 ^{55}Co

L'identification du ^{55}Co ne pose pas de problème, ses raies d'intensités suffisantes lui sont propres. Cependant nos analyses nous ont amené à des résultats en partie incohérents FIG. 6.10.

La série en rouge, 1.2011.E.Garrido+, correspond aux points issus des irradiations 3 et 5 de l'étude du ^{47}Sc. La série en vert, 2.2011.E.Garrido+, contient tous les autres points obtenus.

À haute énergie cette série en vert est cohérente avec les résultats de Michel *et al.* [42]. Elle présente comme dans le cas du ^{57}Ni, FIG. 6.4, des valeurs inférieures à celles de Haasbroek *et al.* [74]. Sur la gamme des énergies inférieures à 45 MeV elle est en accord avec Michel

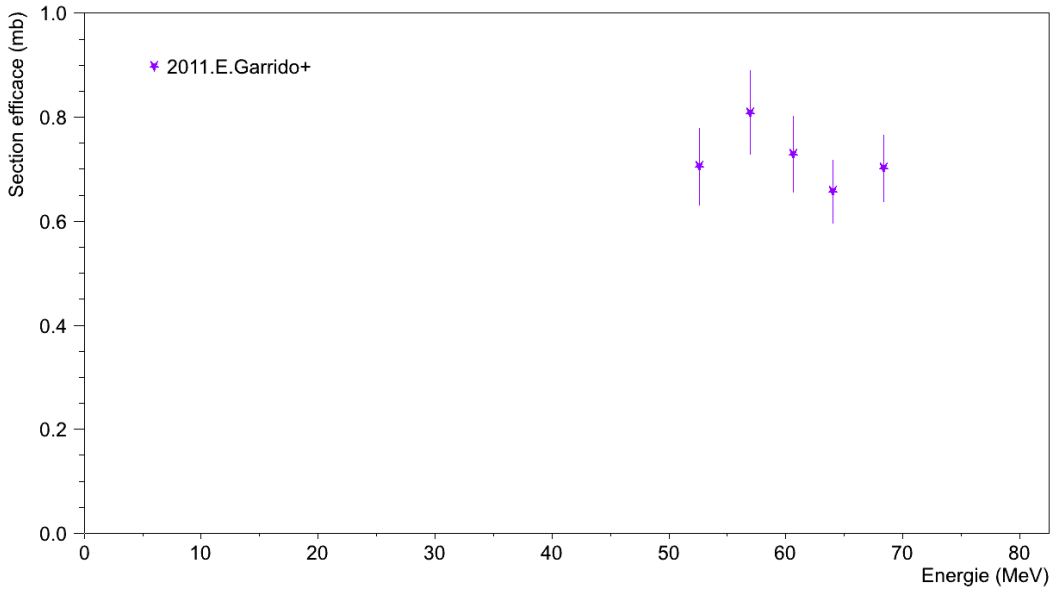

FIGURE 6.9 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{61}Co.

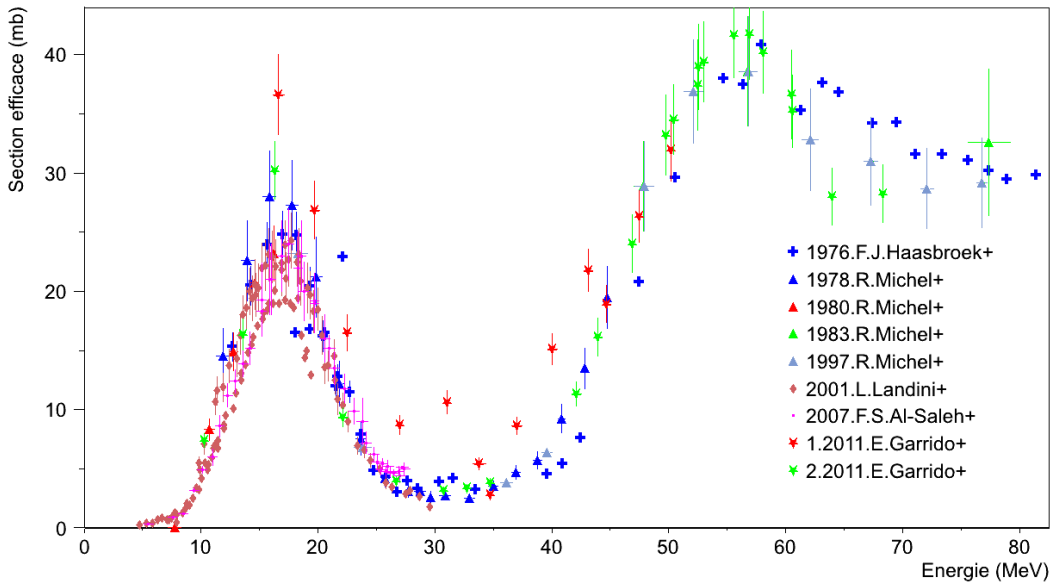

FIGURE 6.10 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p , X) ^{55}Co. Sont distinguées deux différentes séries de valeurs concernant nos points.

et al. [55, 58], Landini *et al.* [73] et Al-Saleh *et al.* [71]. Seule la valeur du maximum local de 17 MeV se trouve être supérieur aux résultats de Landini *et al.* et Al-Saleh *et al.*

La série en rouge présente des divergences. Les valeurs de plus de la moitié des points de cette série sont supérieures à celles de nos autres résultats, ainsi qu'à celles de Michel *et al.* [55, 58], Landini *et al.* [73] et Al-Saleh *et al.* [71]. Nous n'avons pas pu expliquer ces divergences. Elles s'observent uniquement dans deux *stack* et pour cet isotope. Ce n'est donc pas un biais sur les feuilles de ces *stack* car les autres éléments analysés ne présentent pas de

divergence. De même la méthode d'identification et de calcul associée au ^{55}Co est identique pour tous les *stack*. Dans certains cas, et à des énergies similaires, nous trouvons des résultats pour le ^{55}Co cohérents avec les expériences précédentes. La validité de cette méthode n'est donc pas à reconsidérer.

Ne pouvant ainsi justifier son exclusion, nous présentons cette série en rouge, en soulignant le fait que nous remettons en cause sa pertinence.

6.3.8 Filiation ^{58m}Co/^{58g}Co

Le ^{58}Co possède un état métastable ^{58m}Co, d'une période de 9.04 h, qui décroit à 100% sur l'état fondamental ^{58g}Co. Cet état métastable ne dispose d'aucune raie γ pour procéder à son identification. Nous pouvons remonter à sa section efficace en effectuant plusieurs comptages espacés dans le temps. L'activité du ^{58g}Co y est différente et nous permet d'en dissocier la contribution par filiation du ^{58m}Co.

6.3.9 ^{56}Ni

Le ^{56}Ni ne pose pas de problème pour son analyse, nos résultats sont présentés figure 6.11. Sur la gamme de 40 MeV à 70 MeV nos points sont en accord avec ceux de Landini

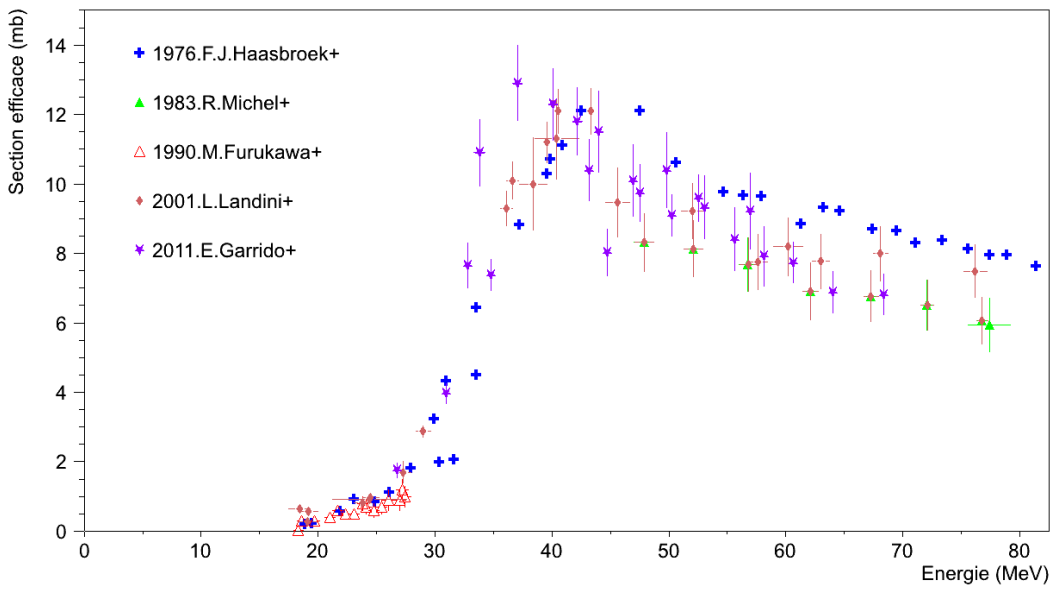

FIGURE 6.11 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{56}Ni.

et al. [73] et Michel *et al.* [49]. À 45 MeV une de nos valeurs, plus faible, semble cependant diverger des autres. Nous remarquons également que les résultats de Haasbroek *et al.* [74] sont légèrement supérieurs, comme c'était le cas pour les réactions ^{nat}Ni (p,X) ^{57}Ni FIG. 6.4 et ^{nat}Ni (p,X) ^{55}Co FIG. 6.10. Notre accord avec Landini *et al.* se poursuit à basse énergie même si nous notons que nos valeurs indiquent un maximum local plus bas en énergie : 36 MeV pour nous, contre 40 MeV pour Landini *et al.*

6.4 Données extraites des moniteurs de Cuivre

La composition du Cuivre naturel de nos feuilles est donnée par *Goodfellows*. Elle comprend du ^{63}Cu à 69.2 % et du ^{65}Cu à 30.8 %.

Le tableau 6.5 dresse le bilan des isotopes étudiés, ainsi que leurs données de décroissance. Nous retrouvons, comme pour le Nickel, les filiations ^{56}Ni/^{56}Co et ^{57}Ni/^{57}Co. Le ^{62}Cu est un élément de période 9.67 min. En plus du fait que sa détection soit compliquée par sa courte période, sa raie principale à 1173.02 keV possède une intensité de 0.34 %. L'activité obtenue serait donc uniquement celle des éléments issus de la filiation avec le ^{62}Zn. Aussi, il nous est difficile d'étudier la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{62}Cu, nous l'excluons donc de nos analyses.

6.4.1 ^{62}Zn

De manière similaire au cas du ^{57}Ni dans le Nickel, il est intéressant de comparer nos résultats pour les réactions moniteurs en dehors des domaines définis par l'IAEA [13]. Comme pour la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{62}Zn aux énergies supérieures à 60 MeV FIG. 6.12. Nos quatre

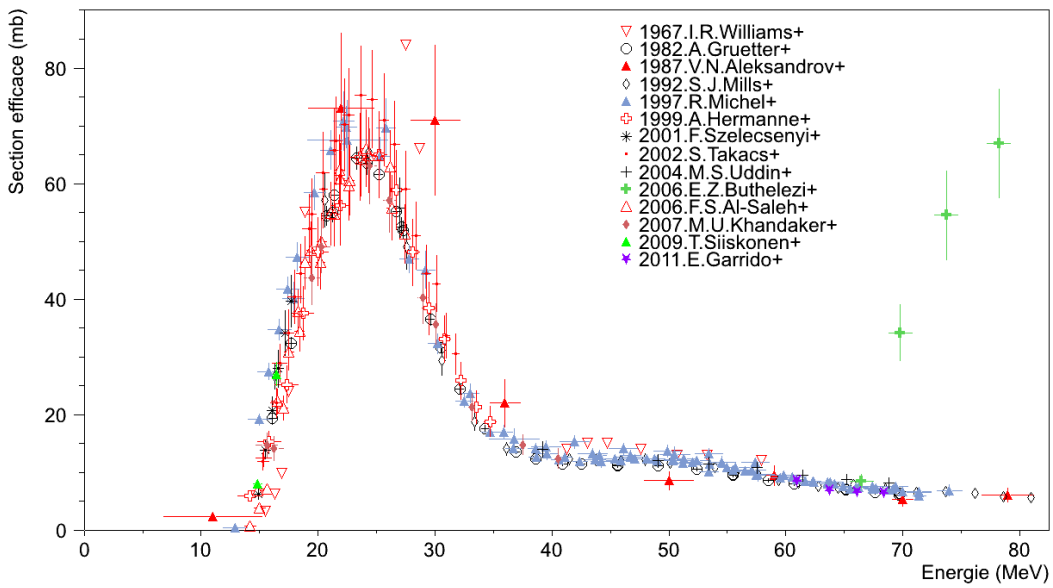

FIGURE 6.12 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{62}Zn.

points obtenus sur la gamme de 60 MeV à 70 MeV s'intègrent parfaitement aux précédents résultats. Un resserrement sur cette zone, FIG. 6.13, nous permet de mieux nous en rendre compte. L'accord avec les résultats précédents de Gruetter *et al.* [75], Mills *et al.* [76] et Michel *et al.* [42] est bon.

6.4.2 ^{56}Mn

Des deux raies γ du ^{56}Mn, celle à 846.75 keV possède la plus forte intensité d'émission : 98.9 %, mais elle est commune avec le ^{56}Co. Aussi pour nous assurer qu'aucune interférence entre les deux isotopes ne vienne perturber nos mesures, nous n'utiliserons que la seconde raie du ^{56}Mn à 1810.72 keV. Son intensité, de 27.2 %, est suffisante pour permettre une étude

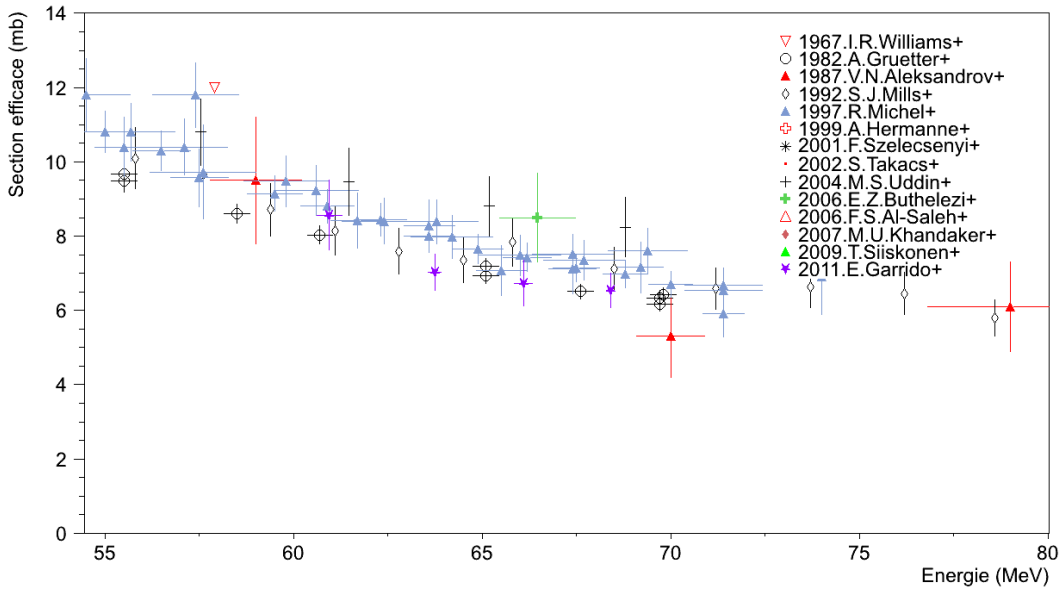

FIGURE 6.13 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{62}Zn.

précise de l'isotope. Nous obtenons les sections efficaces présentées figure 6.14. Le ^{56}Mn

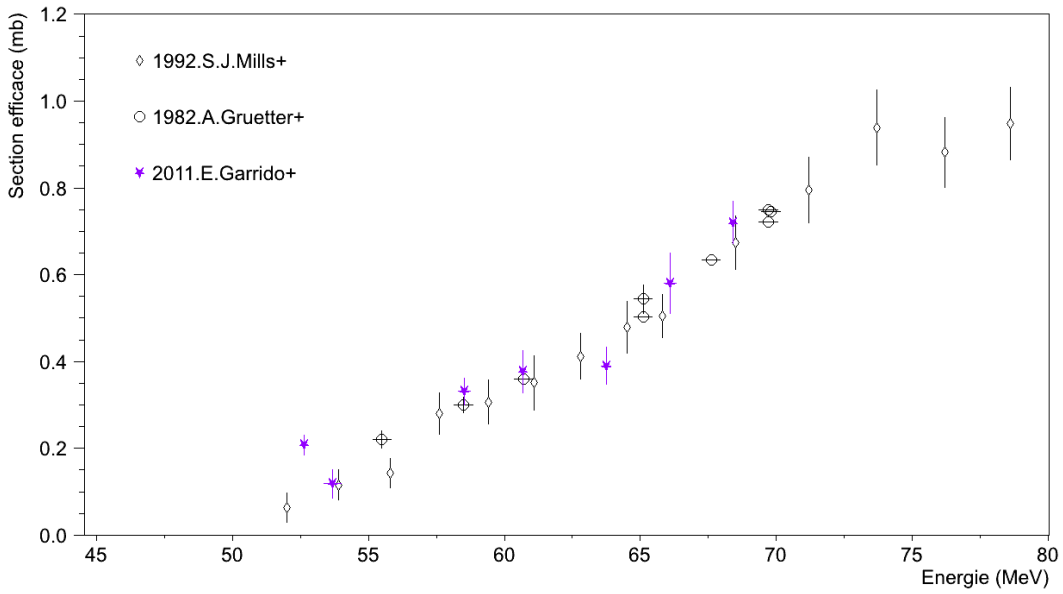

FIGURE 6.14 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{56}Mn.

étant relativement éloigné des isotopes du Cuivre naturel, cela explique que les sections efficaces soient faibles. Nous sommes cependant en parfait accord avec les résultats obtenus précédemment par Gruetter *et al.* [75] et Mills *et al.* [76].

6.4.3 ^{57}Ni

L'analyse du ^{57}Ni ne présente pas non plus de difficultés. Les quantités mesurées sont toutefois moins importantes que dans le cas des irradiations du Nickel naturel, FIG. 6.4. Cela s'explique par des sections efficaces plus élevées, environ 100 fois, pour la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{57}Ni que pour la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{57}Ni FIG. 6.15.

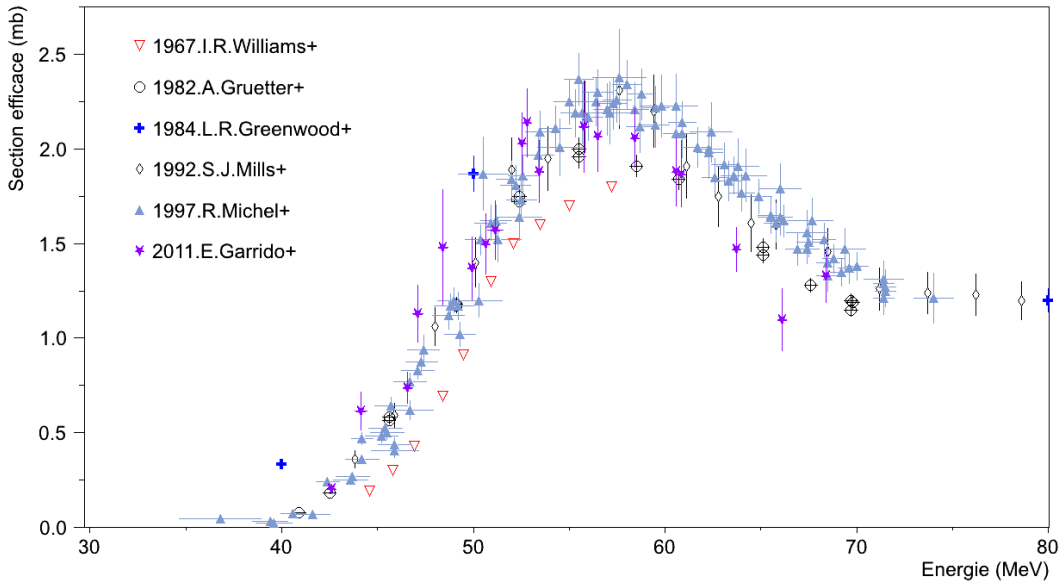

FIGURE 6.15 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{57}Ni.

Jusqu'au maximum local à 60 MeV, nos points sont cohérents avec Michel *et al.* [42]. Pour les énergies supérieures à 60 MeV, nous sommes de nouveau en accord avec Gruetter *et al.* [75] et Mills *et al.* [76]. Leurs valeurs de sections efficaces ainsi que les nôtres sont plus faibles que celles de Michel *et al.* Cependant, notre point à 66 MeV diverge des autres par une valeur plus basse.

6.4.4 ^{61}Co/^{61}Cu

Comme dans le cas des irradiations de Nickel, la courte période du ^{61}Co, 1.65 h et les interférences avec le ^{61}Cu ne favorisent pas son analyse. Ici également nous prêtons une attention particulière aux corrections effectuées par GÉNIE$_{2000}$. Les autres raies γ propres au ^{61}Cu, à 282.95 keV et 656.0 keV, permettent de dissocier correctement sa contribution sur le pic à 67.41 keV.

^{61}Cu De l'analyse de ces deux pics propres au ^{61}Cu nous obtenons les sections efficaces figure 6.16. De nouveau nos résultats montrent un bon accord avec Gruetter *et al.* [75], Mills *et al.* [76] et Michel *et al.* [42]. Comme dans le cas du ^{57}Ni FIG. 6.15, les résultats présentés par Williams *et al.* [77] sont plus faibles que les autres. Aussi n'en tiendrons nous pas compte par la suite.

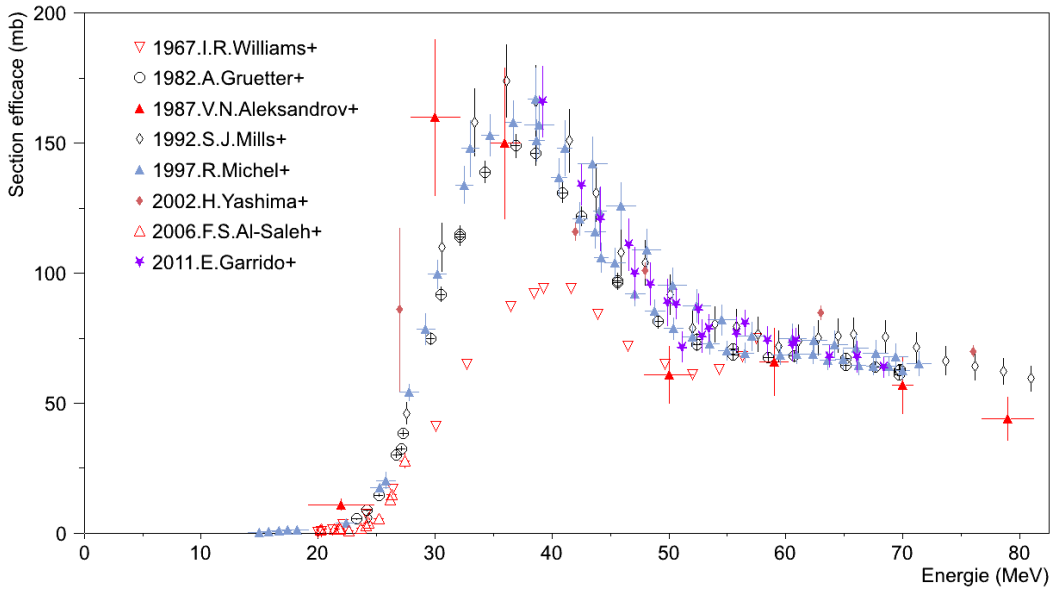

FIGURE 6.16 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{61}Cu.

^{61}Co Une fois cette correction d'interférence effectuée, nous avons pu extraire les données de sections efficaces pour la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{61}Co. Elles sont présentées figure 6.17 Seuls

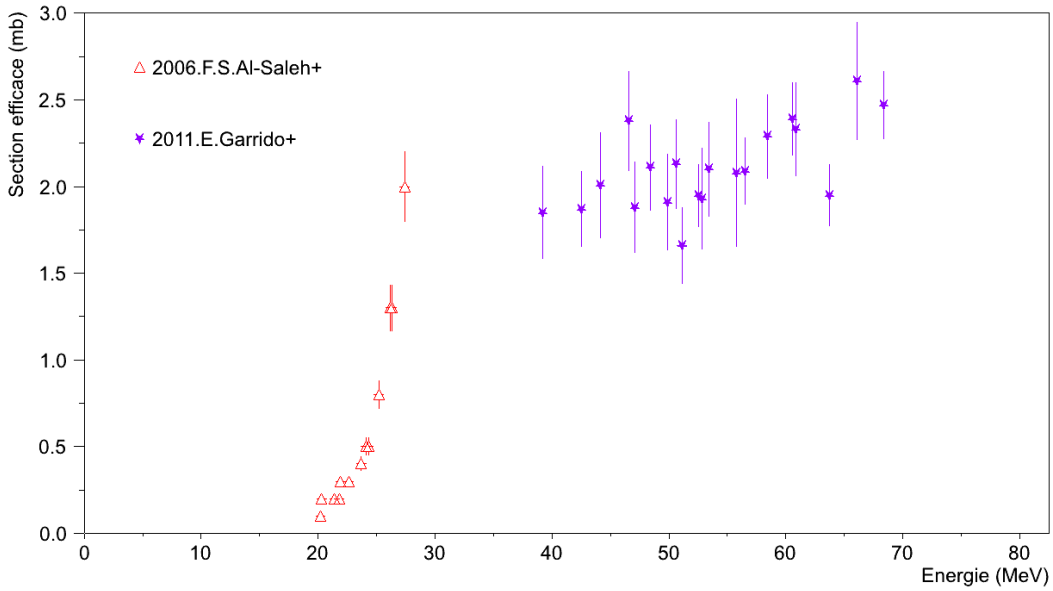

FIGURE 6.17 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{61}Co.

Al-Saleh *et al.* [78] avait précédemment publié des résultats pour cette réaction. Bien que les deux gammes ne correspondent pas, Al-Saleh *et al.* s'arrêtant à 30 MeV et notre travail commençant à 40 MeV, nous observons une cohérence dans les données. Nous pouvons deviner une forme constituée par l'ouverture d'une voie, ^{63}Cu (p,3p) ^{61}Co, et la rapide montée de ses sections efficaces, décrites par Al-Saleh *et al.* Elles sont suivies par une augmentation moins

prononcée, consécutive de l'ouverture d'une autre voie ^{65}Cu (p , 3p+2n) ^{61}Co, représentée par nos données.

6.4.5 ^{60}Cu et ^{64}Cu

Les isotopes 60 et 64 du Cuivre ont également été étudiés.

^{60}Cu Comme déjà expliqué dans la partie Nickel, la courte période du ^{60}Cu, 23.7 min, complique sa mesure. Nous avons cependant pu obtenir des valeurs de sections efficaces, FIG. 6.18. Nous retrouvons l'accord avec les résultats de Mills *et al.* [76] ainsi qu'avec Yashima

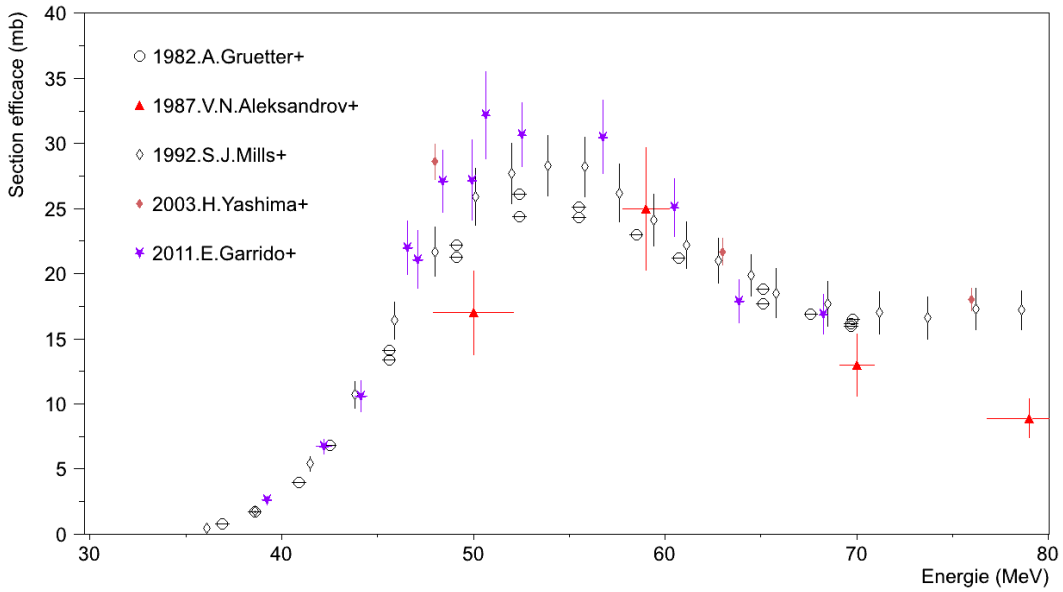

FIGURE 6.18 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{60}Cu.

et al. [79] sur toute la gamme en énergie. Nous observons que les valeurs obtenues par Gruetter *et al.* [75] sont légèrement inférieures aux nôtres au niveau du maximum local, situé autour de 55 MeV.

^{64}Cu Dans le cas du ^{64}Cu la faible intensité, 0.47 %, de sa raie unique à 1345.77 keV rend sa détection plus complexe. Cette raie lui étant propre, nous ne rencontrons pas de problème d'interférences. Aussi avons nous pu extraire les sections efficaces pour la réaction ^{nat}Cu (p , X) ^{64}Cu, présentées figure 6.19. Comme pour le ^{61}Cu, nos résultats sont cohérents avec ceux de Gruetter *et al.* [75], Mills *et al.* [76] et Michel *et al.* [42].

6.4.6 ^{63}Zn

La période courte du ^{63}Zn, 38.47 min, permet d'obtenir une statistique suffisante pour ses deux raies γ, malgré des intensités d'émissions relativement basses, 8.2 % à 669.92 keV et 6.5 % à 962.06 keV. Ce compromis autorise la mesure des sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p , X) ^{63}Zn, présentées figure 6.20. L'accord avec Gruetter *et al.* [75] et Mills *et al.* [76]

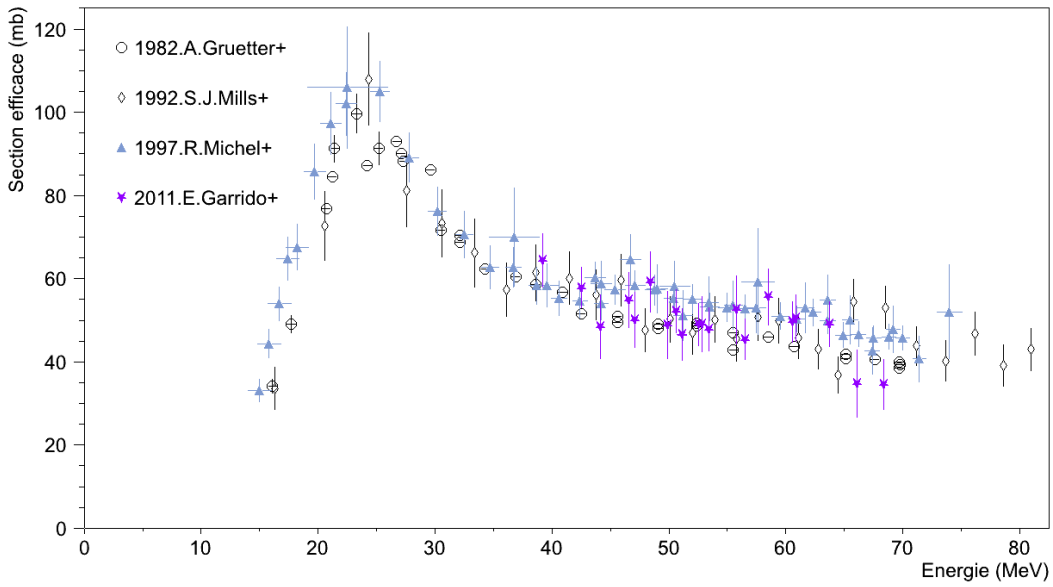

FIGURE 6.19 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{64}Cu.

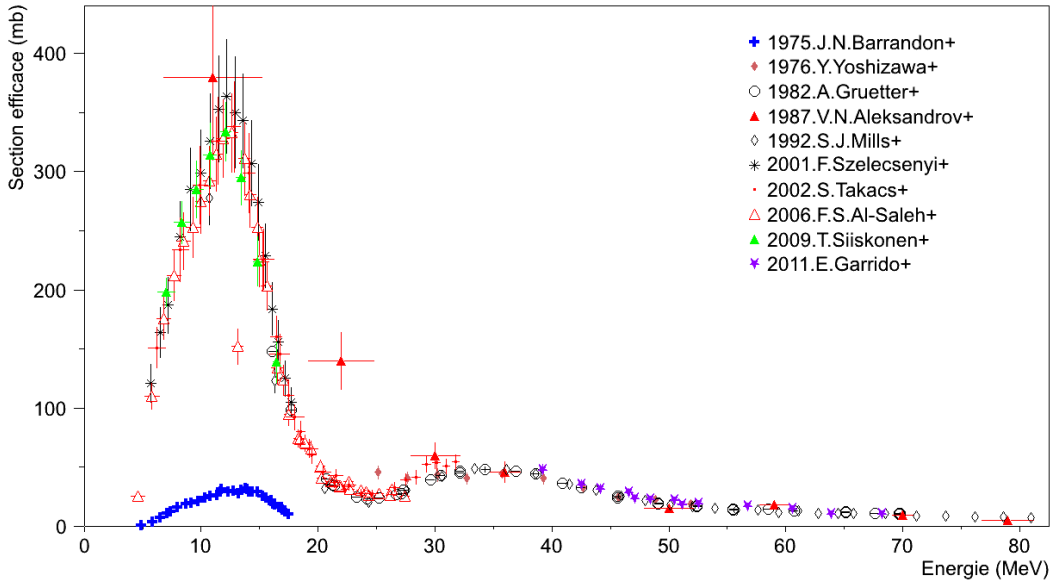

FIGURE 6.20 - Sections efficaces de la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{63}Zn.

ainsi qu'avec Yoshizawa *et al.* [80] est bon. Les valeurs présentées par Aleksandrov *et al.* [72] sont aussi en accord sur cette gamme d'énergie allant de 35 MeV à 70 MeV.

6.5 Bilan sur les données obtenues et comparaisons réalisées.

L'analyse de ces moniteurs nous a permis d'en extraire les sections efficaces de 17 nouvelles réactions. Elles sont répertoriées dans les tableaux de l'annexe B. Dans certains cas, nos résultats complètent les données déjà existantes sur des domaines non couverts en

énergie : ^{nat}Cu (p , X) ^{61}Co. Pour d'autres, ils constituent les premières valeurs publiées : ^{nat}Ni (p , X) ^{52}Fe ou ^{nat}Ni (p , X) ^{61}Co. L'étude de ces réactions n'étant pas le but principal de ce travail, les contraintes de mesures pour les feuilles cibles ont parfois limité notre capacité à récupérer toutes les données liées aux isotopes à vies courtes : comme le ^{49}Cr dans le Nickel ou le ^{60}Cu dans le Nickel et le Cuivre.

Toutefois, les données que nous obtenons sont en accord avec celles déjà présentes dans la littérature. Seuls certains points de la réaction ^{nat}Ni (p , X) ^{55}Co présentent des divergences que nous n'avons pas su expliquer. Comme pour l'étude autour du ^{47}Sc, ces accords avec de précédents résultats nous conduisent penser que la procédure d'analyse que nous avons développée, dans ce travail, est pertinente.

Ces nouveaux points que nous présentons seront incorporés dans l'étude comparative avec les modèles théoriques.

Chapitre 7

Comparaisons avec les modèles théoriques

7.1 Introduction

Des comparaisons systématiques avec les données obtenues par d'autres équipes ont toujours, exceptés les cas où nous étions les premiers à établir des valeurs sections efficaces, été menées. De plus, nous avons souhaité confronter nos résultats aux prédictions des modèles. Plusieurs codes – TALYS, ALICE-IPPE [81], EMPIRE [82], FLUKA [83] ... – permettent d'établir ces sections efficaces en faisant appel à différents modèles théoriques. Nous avons privilégié l'utilisation de TALYS pour réaliser ces comparaisons. Sa facilité d'accès, la simplicité de mise en place et le fait que ce code ait déjà été utilisé au sein du laboratoire [84] motivent ce choix.

7.2 Présentation du code TALYS

TALYS [85] est un logiciel pour la simulation de réactions nucléaires. Il permet de simuler les réactions induites par des projectiles légers – neutrons, γ, protons, deutons, tritons, ^{3}He et α – sur tous les noyaux cibles plus lourds que le Carbone. La gamme des énergies accessibles se situe de 1 keV, plage des résonances non résolues, à 200 MeV. TALYS intègre de nombreux modèles théoriques. Ils lui permettent de prendre en compte l'ensemble des phénomènes physiques présents dans la gamme couverte en énergie. Il est donc possible d'analyser ou de prévoir le comportement de nombreuses observables, comme les sections efficaces doublement différentielles en énergie et en angles [40] ou, comme dans ce travail de thèse, la production de noyaux résiduels. TALYS est né de la collaboration entre le NRG [86] de Petten, Pays-Bas, et le CEA de Bruyères-le-Châtel, France. Il s'est intéressé dans un premier temps aux basses énergies, inférieures à 20 MeV, puis a été étendu, début des années 2000, jusqu'à 200 MeV.

L'architecture du code TALYS et les principaux modèles qui le composent sont présentés sur la figure 7.1.

Nous y retrouvons les grandes familles de mécanismes réactionnels à l'œuvre aux énergies intermédiaires. Par une description précise incorporant les dernières paramétrisations du modèle optique – *Spherical OM* – le code détermine les contributions élastiques

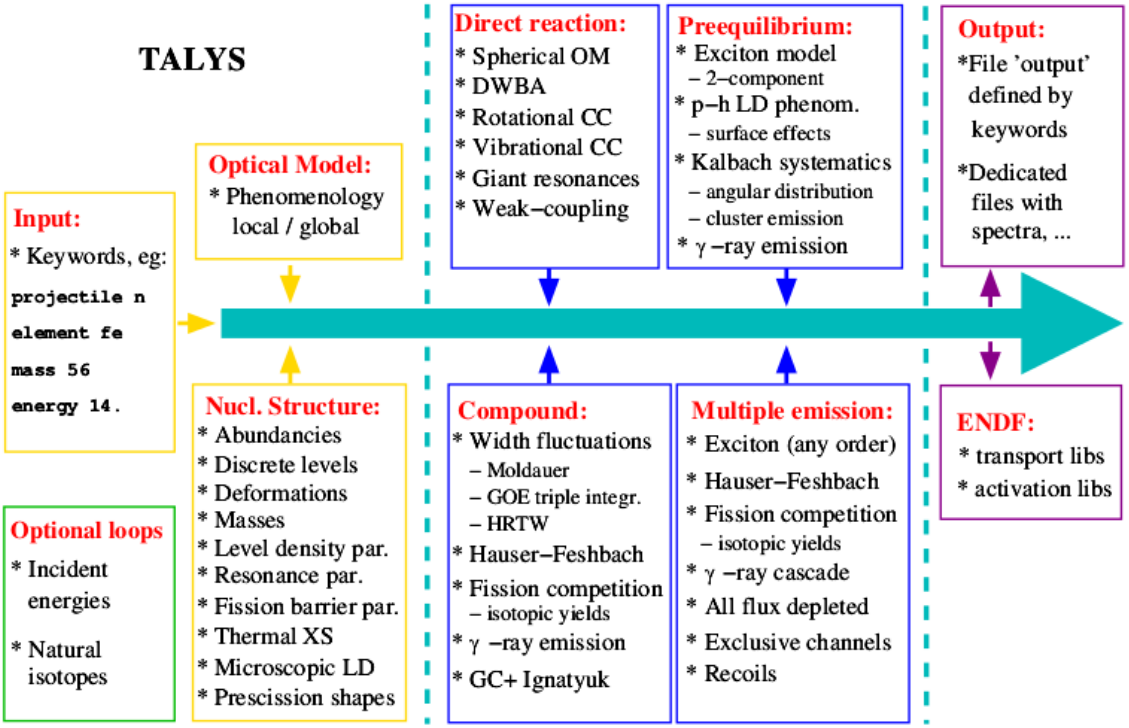

FIGURE 7.1 - Architecture de TALYS et principaux modèles nucléaires intervenants [87].

et inélastiques décrivant les réactions directes – *Direct reaction*. En outre, le modèle intègre les effets collectifs pouvant être présents dans les noyaux comme les effets rotationnels ou vibrationnels – *Rotational, Vibrational CC*. Il permet également une approche statistique de la décroissance des noyaux chauds ayant une énergie d'excitation – *Compound*. Les phénomènes de fission nucléaire – *Fission competition* – ainsi que la production de photons – *γ-ray emission* – sont intégrés dans cette description de la décroissance. Aux énergies voisines de l'énergie de Fermi, les effets de pré-équilibre commencent à poindre et ils doivent être pris en charge explicitement, notamment via le modèle d'exciton – *Exciton model* – et des émissions multiples – *Multiple emission*.

De manière à avoir une description la plus correcte possible des noyaux, les données nucléaires sont extraites des bases de données de l'IAEA et plusieurs modèles d'évolution des densités de niveaux sont disponibles, qu'ils soient phénoménologiques ou microscopiques.

L'ensemble des informations intervenant dans le calcul pourrait rendre l'utilisation du code complexe. Il n'en est rien. Une série de paramètres par défaut établie par les concepteurs limite au strict minimum les données à fournir par l'utilisateur en voie d'entrée – *Input*. Le projectile, son énergie et la cible suffisent à TALYS pour effectuer ses prédictions. Se familiariser avec le code en devient aisé. Il est néanmoins possible de modifier la majeure partie des paramètres pour une utilisation plus experte du programme. Les valeurs par défaut des paramètres ont été testées par une série de comparaisons avec les bases de données portant essentiellement sur les réactions induites par des neutrons [88].

Enfin, un manuel de l'utilisateur complet et détaillé est disponible.

7.3 Mise en place de la méthode

7.3.1 Phénomène de filiation

Nous l'avons vu dans les chapitres 4 et 6 qu'il est possible pour un élément créé lors d'une irradiation, de faire sa décroissance sur un deuxième élément d'intérêt. C'est le cas notamment pour les couples ^{44m}Sc/^{44g}Sc ou ^{57}Ni/^{57}Co. Quand la correction est possible, nous sommes capables de différencier chacune des contributions et ainsi d'obtenir les sections efficaces de réaction propres au ^{44g}Sc ou au ^{57}Co. Cependant il existe des cas où la différenciation est impossible, comme le couple ^{43}Ti/^{43}Sc. Le ^{43}Ti est susceptible d'être créé lors de l'irradiation de Titane naturel, mais sa période de 503 ms le rend totalement indétectable par nos mesures. Son mode unique de décroissance par capture électronique le fait tomber sur le ^{43}Sc dans 100 % des cas. Durant nos mesures, nous avons accès uniquement à la somme des deux contributions, réaction directe et décroissance du ^{43}Ti, pour le calcul de la section efficace de la réaction ^{nat}Ti (p , X) ^{43}Sc. Les énergies seuils de création du ^{43}Ti étant cependant assez élevées, l'ouverture de la réaction majoritaire ^{48}Ti (p ,p+5n) ^{43}Ti se fait à 60.8 MeV, nous considérons son impact comme faible dans nos calculs d'ajustement. Les comparaisons se font donc entre les prédictions de création de ^{43}Sc du code TALYS et nos mesures pour la réaction ^{nat}Ti (p , X) ^{43}Sc.

7.3.2 Premières comparaisons

Nous avons comparé les prévisions du code TALYS aux données expérimentales extraites de nos mesures. Pour ce faire, nous simulons dans TALYS, en utilisant les paramètres par défaut, l'irradiation d'une cible de Titane par des protons, dans la gamme d'énergie [0 MeV; 80 MeV]. Le code TALYS intègre la composition du Titane naturel suivante : ^{46}Ti 8.25 %, ^{47}Ti 7.44 %, ^{48}Ti 73.72 %, ^{49}Ti 5.41 %, ^{50}Ti 5.18 %. Les différences avec celle fournie par *Goodfellow* pour nos feuilles, chapitre 4, sont négligeables. Aussi avons nous choisi de garder la composition par défaut de TALYS pour nos simulations.

Nous obtenons en sortie les valeurs de sections efficaces théoriques pour l'ensemble des noyaux résiduels créés au cours de l'irradiation. Les premières confrontations, réalisées avec les paramètres de TALYS par défaut, sont mitigées. Nous présentons ci-dessous les résultats concernant trois des réactions de production étudiées.

Pour le ^{48}V nous trouvons un bon accord entre résultats expérimentaux et prédictions de TALYS FIG. 7.2. Comme mentionné dans le tableau 4.6, ce sont des réactions de type (p, xn) qui permettent sa création. Leurs seuils en énergie sont bas, ce qui les rend facilement réalisables et elles ont ainsi été étudiées depuis de nombreuses années [a]. Aussi les mécanismes entourant ces réactions sont connus et les modèles parviennent à décrire de façon précise ce type de réactions.

Dans les cas de réactions plus complexes, comme ^{nat}Ti (p,X) ^{42}K, FIG. 7.3, et ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc, FIG. 7.4, l'écart observé est important. Nous remarquons cependant que TALYS reproduit bien les variations de forme des sections efficaces. Cela indique que le code gère correctement l'ouverture des différentes voies de réactions.

Cette particularité nous permet d'ailleurs de revenir sur un point évoqué chapitre 4. Dans le cas du ^{43}Sc nous observions les bosses caractéristiques des voies de réactions. TALYS

a. De plus, les émissions neutroniques ont fait l'objet de beaucoup d'études, notamment pour la physique des réacteurs.

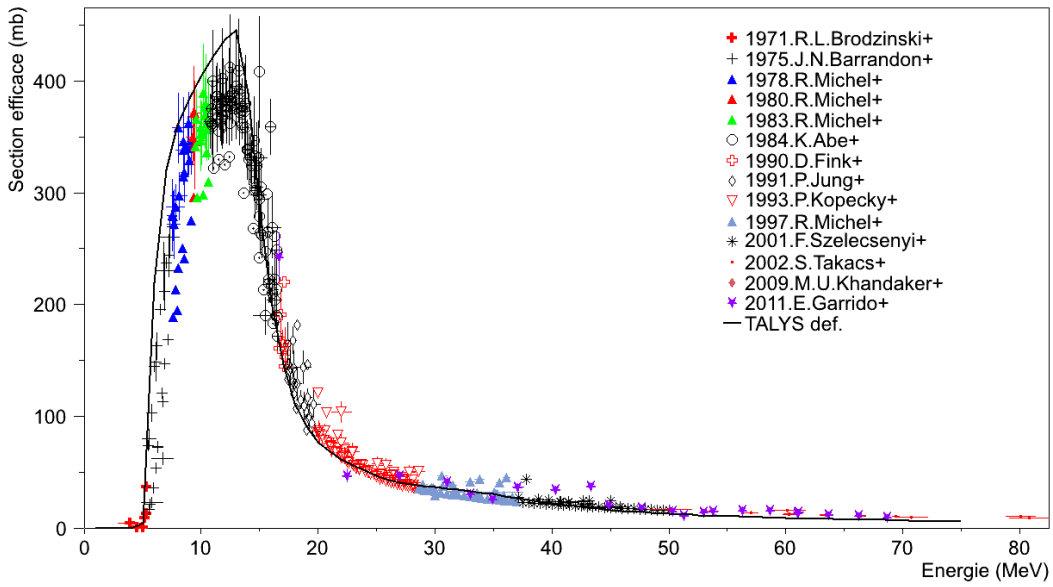

FIGURE 7.2 - Comparaison entre les prédictions théoriques par défaut du code TALYS et les données expérimentales pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{48}V.

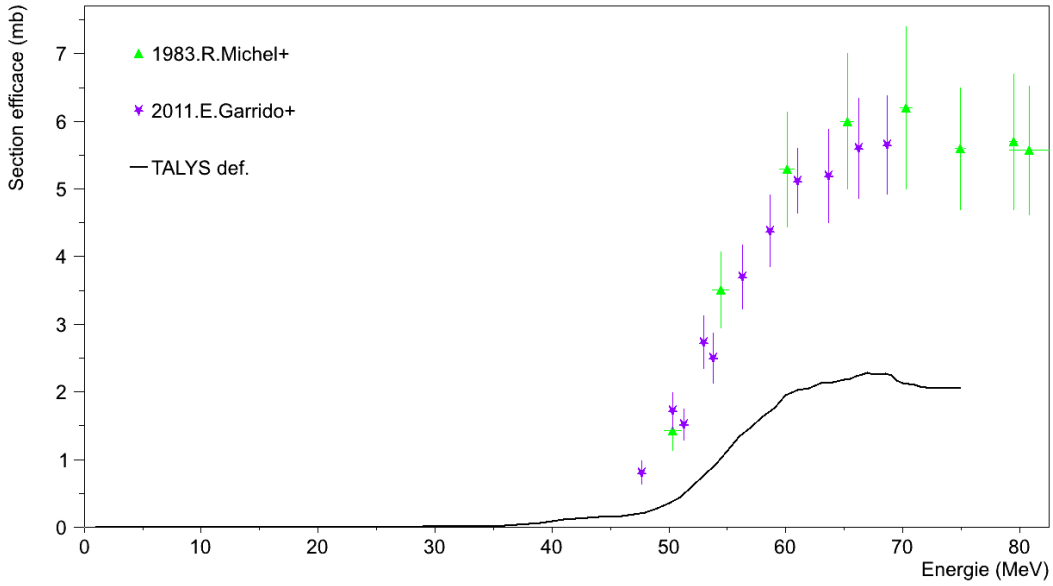

FIGURE 7.3 - Comparaison entre les prédictions théoriques par défaut du code TALYS et les données expérimentales pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{42}K.

faisant la distinction des contributions pour chaque isotope de la cible, ici ^{46,47,48,49,50}Ti, nous pouvons regarder plus en détail chacune d'elles, comme présenté figure 7.5.

Nous retrouvons bien en premier lieu l'ouverture d'une voie sur le ^{46}Ti – ^{46}Ti (p,α) ^{43}Sc – puis sur le ^{47}Ti – ^{47}Ti (p,α+n) ^{43}Sc – et sur le ^{48}Ti – ^{48}Ti (p,α+2n) ^{43}Sc. L'évolution en forme des sections efficaces est bien décrite par TALYS, mais ici encore nous remarquons un écart important avec les données expérimentales.

Ces trois derniers exemples concernant le ^{42}K et les ^{43,47}Sc FIG. 7.3, 7.5 et 7.4, montrent

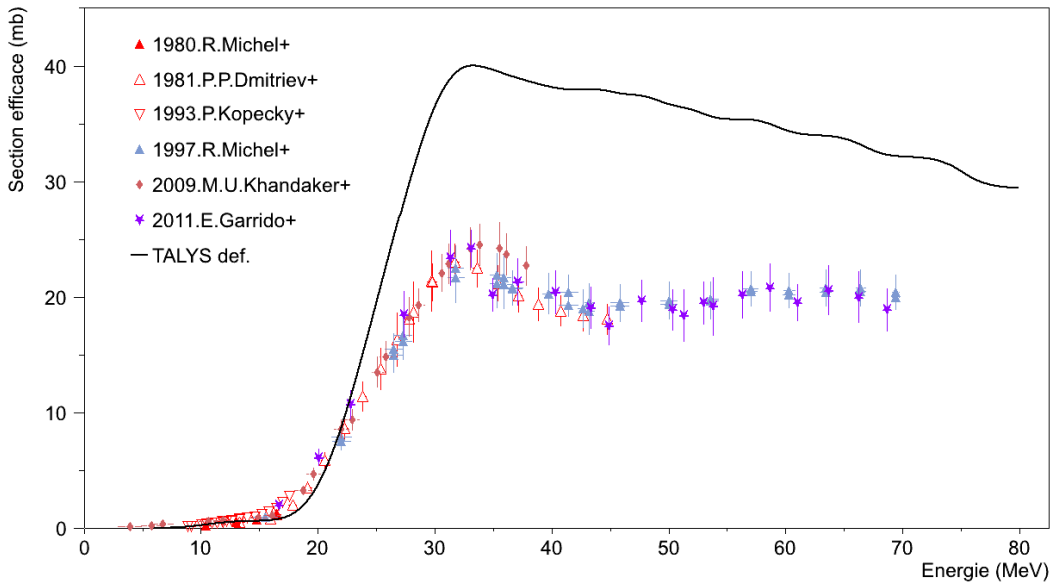

FIGURE 7.4 - Comparaison entre les prédictions théoriques par défaut du code TALYS et les données expérimentales pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc.

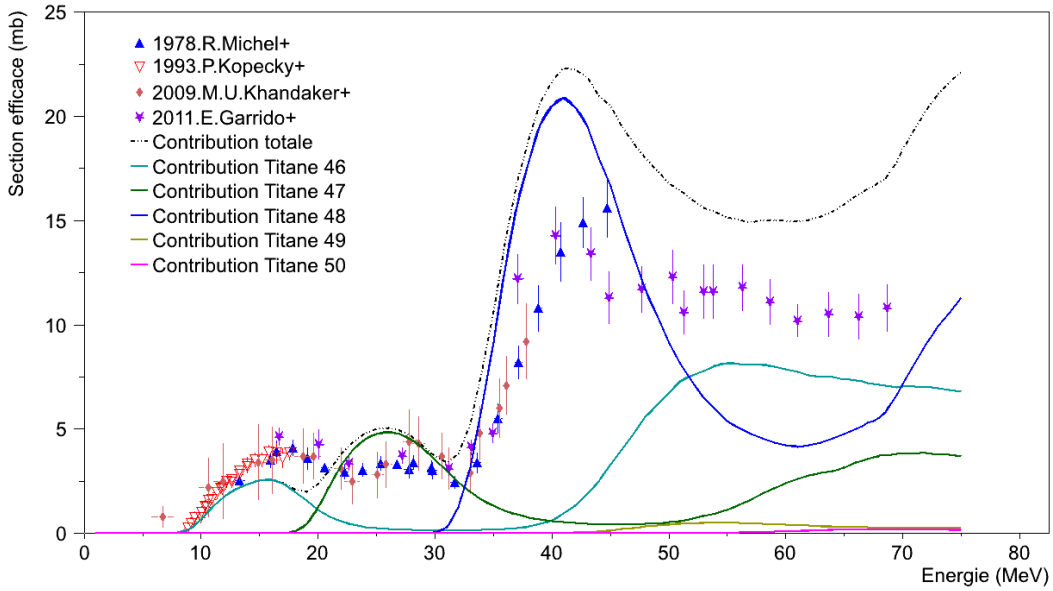

FIGURE 7.5 - Évolution des prédictions de contributions en sections efficaces de chaque isotope du Titane naturel pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{43}Sc pour les valeurs par défaut.

bien que l'amplitude est mal estimée, tantôt trop faible FIG. 7.3 ou trop forte FIG. 7.4-7.5. Pour aller plus avant dans la comparaison des données avec le calcul, il est nécessaire d'intervenir plus dans le code et notamment d'agir sur certains paramètres comme le préconisent les concepteurs de TALYS [87] .

7.3.3 Ajustement des prévisions de TALYS

Il nous est permis d'adapter un bon nombre des paramètres d'entrée, données en *Input*. Ces changements entraînent une réorganisation du mode de calcul et donc une évolution des prédictions. Un premier travail consiste à identifier les paramètres d'intérêt.

Nous nous sommes attardés sur quatre d'entre eux qui ont déjà fait l'objet d'études lors d'une expérience précédente [89]. Il s'agit du $M_2Constant$, qui gouverne les émissions de particules résiduelles dans le modèle du pré-équilibre. S'éloigner en masse des noyaux cibles revient à nécessiter l'éjection de particules secondaires plus nombreuses. Bien décrire ces émissions est nécessaire pour nous qui travaillons avec des isotopes du Potassium de $Z = 19$ obtenus à partir de cibles en Titane de $Z = 22$.

Les trois autres paramètres sont les *avadjust*, *avdadjust* et *rvadjust* qui touchent au modèle optique sphérique. Comme précisé, c'est principalement l'amplitude des prédictions de TALYS qui pose problème. En jouant sur ces paramètres, nous espérons faire varier ces amplitudes afin de se rapprocher au mieux des résultats expérimentaux.

Les plages de variations, suggérées par les concepteurs du code, sont importantes, de $[0.; 100.]$ pour le $M_2Constant$ et de $[0.5; 2.]$ pour les trois autres. Par défaut, leurs valeurs sont toutes fixées à 1 [87].

7.3.4 Optimisation par la méthode des moindres carrés

Nous avons développé un programme qui, faisant varier ces paramètres indépendamment les uns des autres, nous permet d'obtenir les prédictions théoriques de TALYS suivant chaque combinaison possible.

Pour une réaction donnée, une comparaison entre ces valeurs de sortie et celles obtenues expérimentalement est réalisée par l'intermédiaire d'un calcul du χ^2. À l'énergie de chaque point expérimental x_i, avec son incertitude associée dx_i, correspond une section efficace théorique $\mathcal{O}_i$. La quantité χ^2 est définie comme suit :

$$\chi^2 = \sum_i \left(\frac{\mathcal{O}_i - x_i}{dx_i} \right)^2 \tag{7.1}$$

Sommer sur l'ensemble des points expérimentaux nous permet d'obtenir une valeur de χ^2 associée à un jeu de paramètres et à une réaction. Le programme détermine pour quelle combinaison ce χ^2 est minimal, et ainsi identifie la combinaison qui amène au meilleur accord entre les prédictions de TALYS et les données expérimentales.

Ce calcul a été réalisé à partir de l'ensemble des données présentées dans les chapitres précédents incluant nos résultats. Ont été exclus celles présentant des divergences avec les autres données, comme la contribution de Michel *et al.* [49] pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc.

7.3.5 Évolution des paramètres

Les plages de variations des paramètres peuvent être relativement étendues : $[0.; 100.]$ pour le $M2Constant$. Jouer sur plusieurs paramètres entraîne un nombre d'arrangements possibles très important. Afin de limiter les calculs nous avons tenté d'identifier les zones d'intérêts, χ^2 minimal, pour chacun des paramètres. Dans ce but nous les avons fait varier un par un, laissant les valeurs par défaut des autres paramètres.

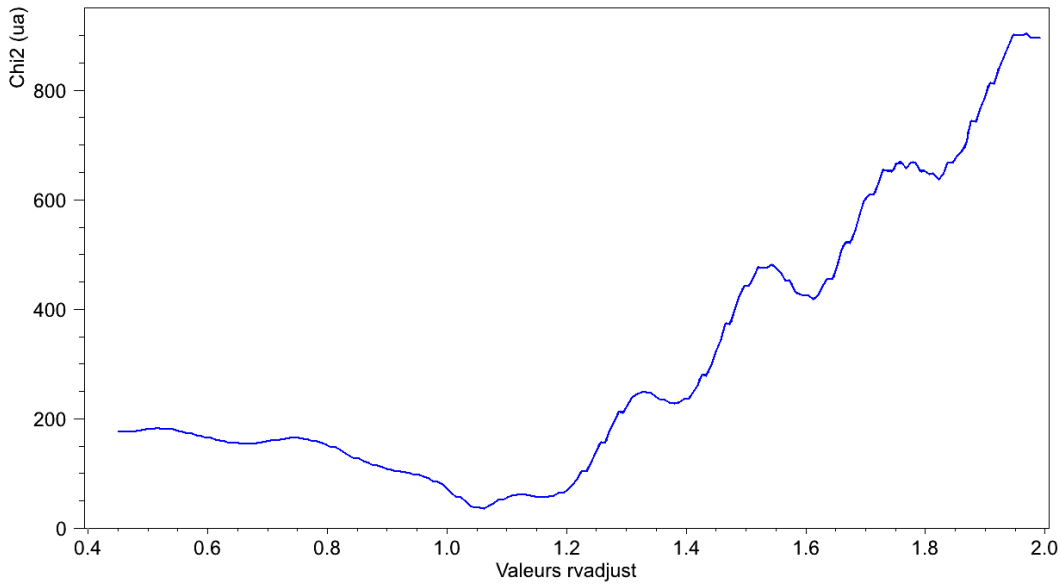

FIGURE 7.6 - Évolution de la valeur du χ^2 suivant la valeur du *rvadjust* pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{46}Sc.

À titre d'exemple, deux cents valeurs du *rvadjust* de $[0.5; 2.]$ ont été testées pour obtenir la courbe présentée figure 7.6. Elle nous montre que pour des valeurs comprises entre 0.5 et 1.3, les prédictions de TALYS sont relativement semblables. C'est également dans cet intervalle qu'elles sont les plus proches des données expérimentales.

Réaliser cette étude sur tous les isotopes nous permet de définir les zones de variations d'intérêts pour chacun des paramètres. Au final, les intervalles ont été restreints aux valeurs suivantes :

- $M_2Constant = \{0.75, 0.85, 0.9, 0.95, 1.0, 1.1, 1.25, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0, 5.0\}$;
- $avadjust$, $avdadjust$ et $rvadjust = \{0.7, 0.8, 0.9, 1.0, 1.15, 1.3\}$.

Pour réduire les temps de calculs, nous ne simulons avec TALYS que les données de sections efficaces par pas de 2 MeV ; leur comportement lentement variable sur notre gamme d'énergie le justifie.

À titre d'information, la simulation d'une seule combinaison de paramètres nécessite 25 min de temps de calcul. Les 2592 jeux différents, issus des arrangements suivant les valeurs précédemment citées, représentent donc 45 jours de temps de calcul. Notre programme nous permet de répartir toutes ces simulations simultanément sur les 20 canaux alloués à chaque utilisateur de notre ferme de calcul.

Une interpolation des résultats du code par fonctions *Splines* cubiques naturelles est alors effectuée pour couvrir tout le domaine de $[0\,\text{MeV}; 80\,\text{MeV}]$. De plus, cela nous permet d'obtenir des valeurs d'énergies très proches de celles des données expérimentales [b]. L'utilisation des *Splines* permet d'assurer la continuité de la courbe ainsi que de ses dérivées premières et secondes, *cf.* chapitre 2.

b. La discrétisation dans le calcul de l'interpolation est fixée à 1000, ce qui correspond à un pas de 0.08 MeV en énergie.

7.4 Premiers résultats

Nous avons exclu des comparaisons les réactions ^{nat}Ti (p , X) ^{41}Ar et ^{nat}Ti (p , X) ^{45}Ti. Comme précisé dans le chapitre 4, les conditions de mesures pour ces sections efficaces ne sont pas optimales. De plus, nos mesures sont les seules publiées à ce jour, ce qui limite la portée de la comparaison avec les prédictions de TALYS.

Une fois obtenu les prédictions de TALYS pour chacune des 2592 combinaisons précédemment définies, notre programme effectue deux minimalisations de χ^2 différentes. La première traite indépendamment chaque isotope. La seconde globalise le χ^2 à l'ensemble des isotopes, dans ce cas il s'agit de la cohérence globale des paramètres. Les premières comparaisons réalisées ont abouti aux résultats présentés dans le tableau 7.1.

	Déf.	^{42}K	^{43}K	^{43}Sc	^{44g}Sc	^{44m}Sc	^{46}Sc	^{47}Sc	^{48}Sc	^{48}V	Global
M_2Constant	1.0	0.85	0.75	0.90	1.50	1.00	2.00	1.50	1.25	0.90	1.50
avadjust	1.0	1.30	1.15	1.00	1.15	1.00	1.00	1.00	1.00	0.80	1.15
avdadjust	1.0	1.30	1.30	1.30	1.00	1.15	0.80	0.80	0.80	0.90	0.80
rvadjust	1.0	1.15	1.15	1.30	0.80	1.15	1.15	0.90	1.00	1.30	0.90

TABLEAU 7.1 - Inventaire des paramètres permettant le meilleur ajustement entre données expérimentales et valeurs de TALYS pour chacun des isotopes.

Les nouvelles prédictions se rapprochent fortement des valeurs expérimentales, comme en témoignent les cas des réactions ^{nat}Ti (p , X) ^{42}K FIG. 7.7, ^{nat}Ti (p , X) ^{47}Sc FIG. 7.8 et ^{nat}Ti (p,X) ^{48}V FIG. 7.9. L'amplitude est cette fois beaucoup mieux évaluée.

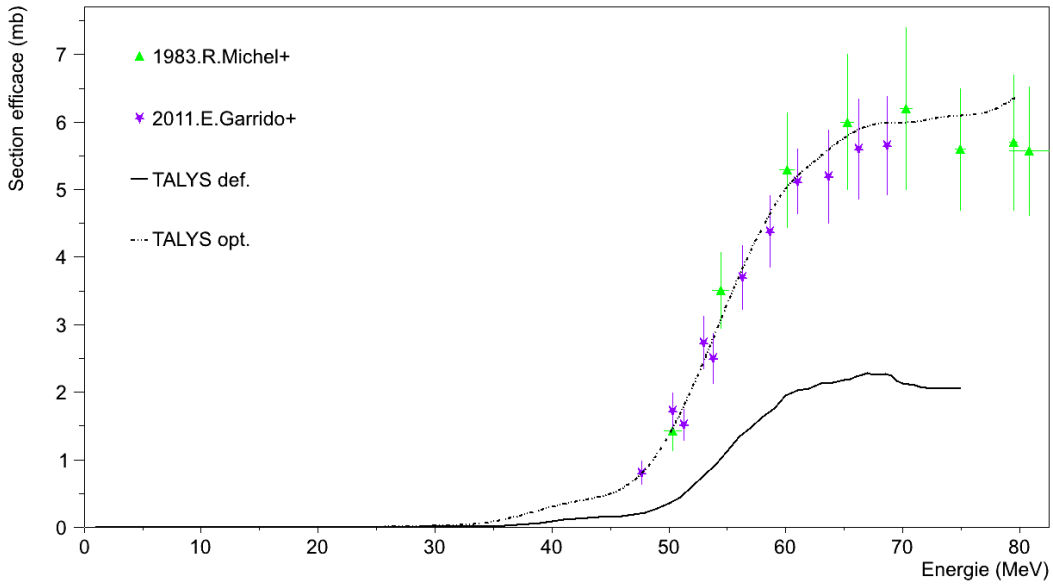

FIGURE 7.7 - Comparaison entre les prédictions théoriques par défaut, trait plein, et optimisées, pointillés, du code TALYS et les données expérimentales pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{42}K.

Cependant, nous constatons que les valeurs des paramètres obtenues sont différentes, et aucun comportement d'ensemble ne nous apparaît. Elles ne semblent pas suivre d'évolutions propres aux isotopes, isobares ou isotones. De plus, les jeux, bien que proches en

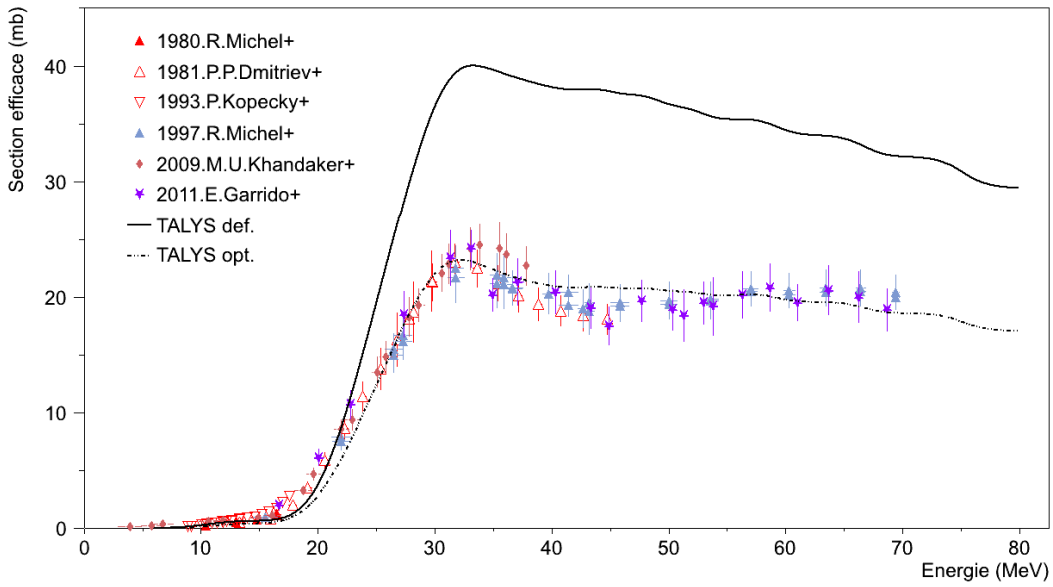

FIGURE 7.8 - Comparaison entre les prédictions théoriques par défaut, trait plein, et optimisées, pointillés, du code TALYS et les données expérimentales pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc.

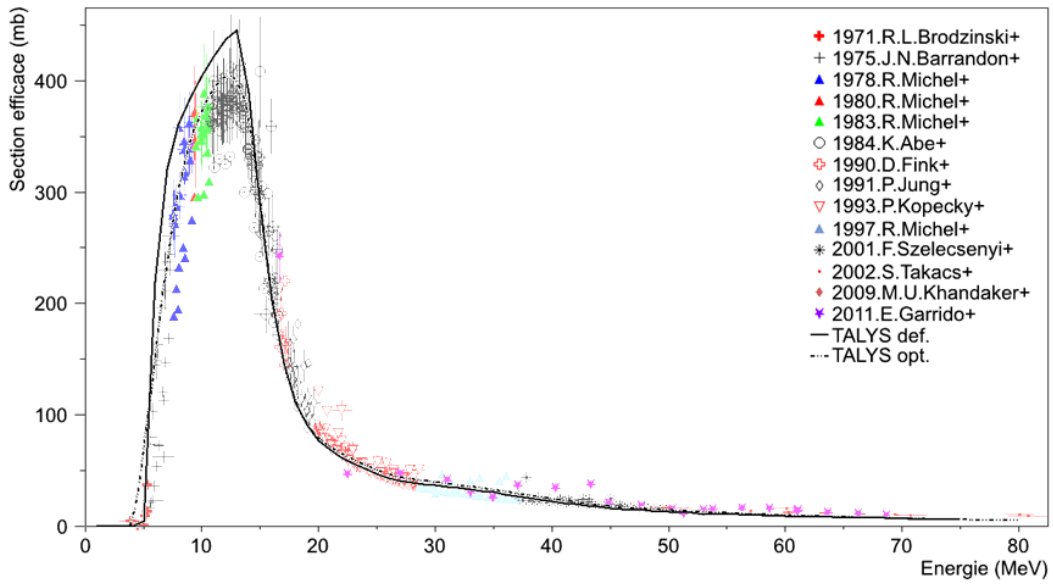

FIGURE 7.9 - Comparaison entre les prédictions théoriques par défaut, trait plein, et optimisées, pointillés, du code TALYS et les données expérimentales pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{48}V.

valeurs, ne conviennent pas d'une réaction à l'autre. Si nous reprenons les deux cas précédents, le jeu optimal pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc appliqué aux prédictions de sections efficaces de ^{nat}Ti (p,X) ^{44m}Sc conduisent à une importante divergence d'amplitude à basse énergie FIG. 7.10.

Cette combinaison pour la cohérence globale permet aux prédictions d'être plus proches des valeurs expérimentales que dans le cas par défaut FIG. 7.11. Les prédictions issues de la combinaison optimale pour la réaction restent en meilleur accord.

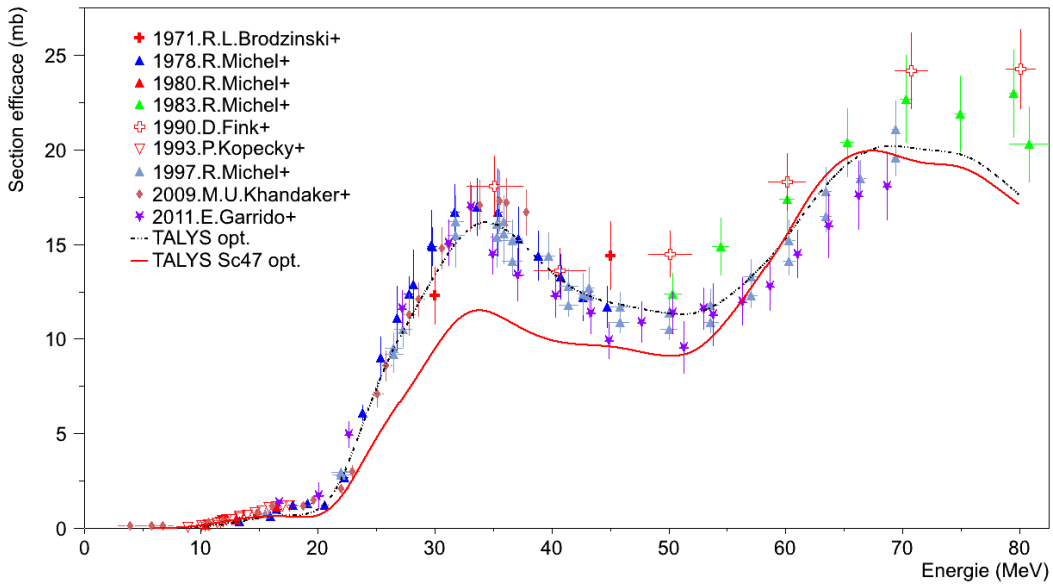

FIGURE 7.10 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS optimisées, pointillés, pour la réaction ^{nat}Ti (p , X) ^{44m}Sc et celles issues du jeu de paramètre optimal de la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc, trait plein.

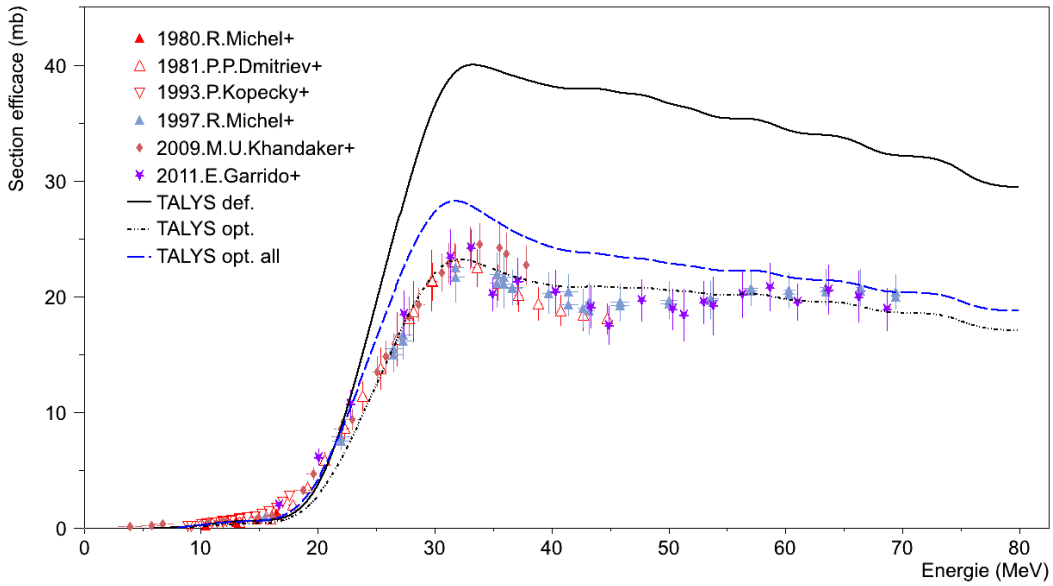

FIGURE 7.11 - Comparaison entre les prédictions théoriques par défaut, trait plein, du code TALYS, celles optimisées, petits pointillés, pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc et dans le cas global, grands pointillés.

7.5 Nouveaux paramètres

Nous venons de voir qu'une même combinaison conduisait à des différences d'accord de prédiction d'un isotope sur l'autre FIG. 7.10. Cela suggère que nous devons examiner l'incidence d'autres paramètres du code prenant en compte les spécificités de chaque noyau. Afin d'explorer cette voie et d'obtenir des informations, nous avons pris contact avec l'équipe de

développement de TALYS. Celle-ci s'est montrée très intéressée par notre travail et nous a suggéré d'examiner l'influence du paramètre *ldmodel* qui fixe le modèle décrivant les densités de niveaux des éléments [87]. Cinq modèles différents [c] sont implémentés dans le code :

1. – Température constante + modèle du gaz de Fermi.
2. – Modèle *back-shifted* du gaz de Fermi.
3. – Modèle superfluide généralisé.
4. – Densités de niveau microscopique de la table de Goriely.
5. – Densités de niveau microscopique de la table de Hilaire.

Nous avons donc relancé nos simulations sur les mêmes intervalles pour les premiers paramètres en testant ce *ldmodel* sur les quatre nouvelles valeurs. Cela a conduit aux résultats présentés dans le tableau TAB. 7.2. Nous remarquons que le *ldmodel* permettant la meilleure

	Déf.	^{42}K	^{43}K	^{43}Sc	^{44g}Sc	^{44m}Sc	^{46}Sc	^{47}Sc	^{48}Sc	^{48}V	Global
ldmodel	1	4	2	2	5	3	1	1	5	1	1
$M_2Constant$	1.0	0.95	1.25	0.90	3.00	2.00	2.00	1.50	2.00	0.90	1.50
avadjust	1.0	1.15	1.00	1.30	1.00	0.80	1.00	1.00	1.00	0.80	1.15
avdadjust	1.0	0.90	1.00	1.30	1.30	0.80	0.80	0.80	1.30	0.90	0.80
rvadjust	1.0	1.30	1.15	1.15	0.80	1.00	1.15	0.90	1.00	1.30	0.90

TABLEAU 7.2 - Inventaire des paramètres permettant le meilleur rapprochement entre les données de TALYS et expérimentales pour chacun des isotopes avec prise en compte du modèle de densité de niveaux.

cohérence sur tous les isotopes étant le 1, les paramètres globaux restent les mêmes.

Nous remarquons que pour le ^{42}K, un modèle de densité de niveaux différents de celui par défaut fait partie du jeu de paramètres permettant les prédictions les plus proches de l'expérience. Les valeurs des autres paramètres, $M_2Constant$, *avadjust*, *avdadjust* et *rvadjust*, ont également changé TAB. 7.1. Elles sont passées, respectivement de 0.85 à 0.95, 1.30 à 1.15, 1.30 à 0.90 et de 1.15 à 1.30. La courbe 7.12 représente les prédictions associées à ces deux jeux de paramètres. Malgré des paramètres tous différents, les deux prédictions sont très proches. La minimalisation du χ^2 nous livre un résultat purement mathématique, à savoir le jeu pour lequel ce χ^2 est minimal. Nous remarquons cependant que rien ne permet de privilégier d'un point de vue physique, l'une ou l'autre des deux prédictions de la figure 7.12.

7.6 Bilan des comparaisons dans le cas du Titane

Les comparaisons que nous avons effectuées avec le code TALYS montrent une variation importante des prédictions d'un isotope à l'autre. La description de la forme des sections efficaces est correctement simulée par le code mais pas leurs amplitudes. Il est possible d'améliorer l'accord entre les prévisions de TALYS et les données expérimentales en faisant évoluer un certain nombre de paramètres. Ce faisant, nous avons été capable d'extraire la combinaison, des paramètres étudiés, permettant la meilleure cohérence sur tous les isotopes produits lors de nos irradiations de Titane.

c. Par défaut c'est le modèle 1 qui est utilisé.

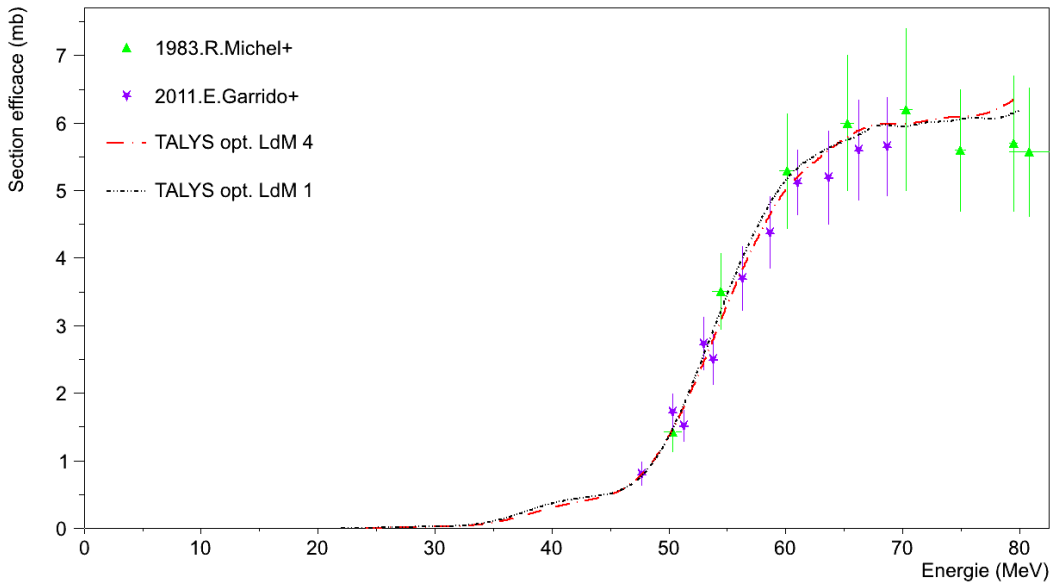

FIGURE 7.12 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS pour les jeux de paramètres optimisés dans les cas du *ldmodel* 1, grands pointillés, et 4, petits pointillés, pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{42}K et dans le cas global.

Nous souhaitons, par la suite, étudier le comportement des prédictions de TALYS suivant ces mêmes paramètres pour les autres isotopes intervenant dans notre travail : le ^{67}Cu et les réactions des moniteurs.

7.7 Étude des réactions issues des moniteurs et du ^{68}Zn

7.7.1 Comparaison suivant la cohérence globale du Titane

Nous avons extrait les sections efficaces de dix-sept réactions dans les moniteurs, huit pour le Cuivre, neuf pour le Nickel, et trois dans le ^{68}Zn. Avant de réaliser une minimalisation du χ^2 pour chacune de ces réactions, nous avons souhaité comparer les résultats fournis avec les paramètres par défaut, et avec ceux permettant la meilleure cohérence globale pour les réactions dans le Titane. Les valeurs des paramètres de ces deux jeux sont rappelées tableau 7.3.

Jeux de paramètres	*ldmodel*	M_2*Constant*	*avadjust*	*avdadjust*	*rvadjust*
Défaut	1	1.00	1.00	1.00	1.00
Cohérence globale	1	1.50	1.15	0.80	0.90

TABLEAU 7.3 - Paramètres utilisés dans la configuration par défaut de TALYS ainsi que ceux permettant la meilleure cohérence globale pour les réactions issues du Titane.

Toutes les courbes ne sont pas présentées, mais nous remarquons que dans l'ensemble, les paramètres globaux amènent de meilleures prédictions que ceux par défaut. C'est notamment le cas pour les réactions ^{nat}Ni (p,X) $^{52m+g}$Mn, FIG. 7.13, et ^{nat}Ni (p,X) ^{57}Ni, FIG. 7.14, où l'accord avec l'expérience est bon.

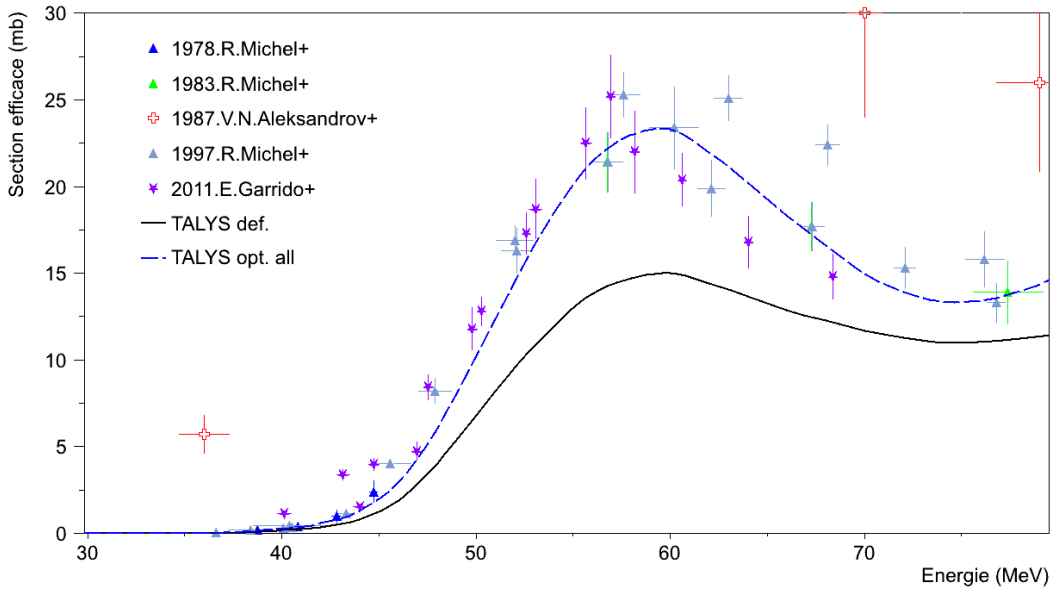

FIGURE 7.13 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS pour les jeux de paramètres optimisés dans les cas des réactions issues du Titane, grands pointillés, et par défaut, trait plein, pour la réaction ^{nat}Ni (p,X) $^{52m+g}$Mn.

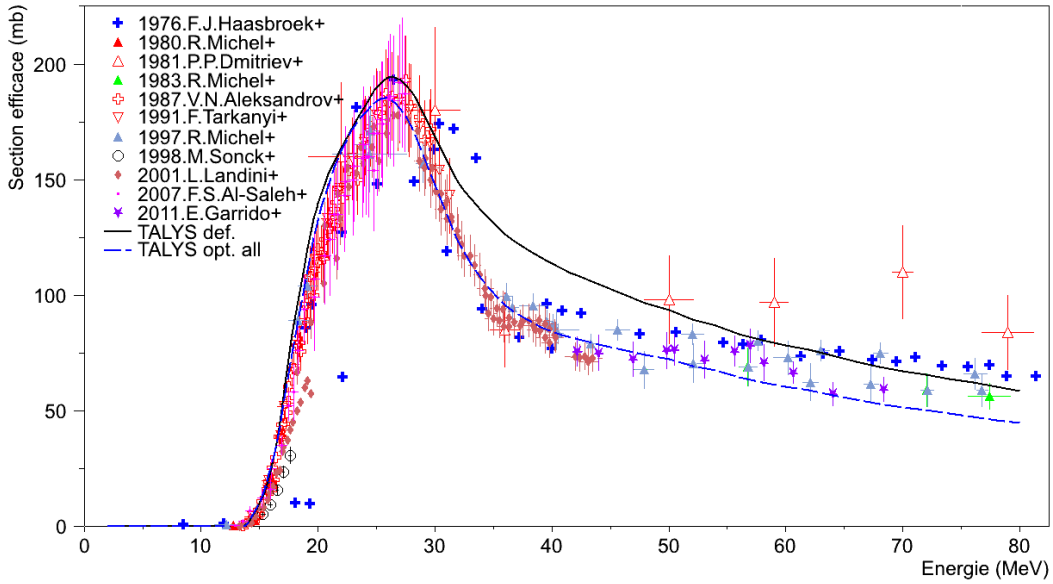

FIGURE 7.14 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS pour les jeux de paramètres optimisés dans les cas des réactions issues du Titane, grands pointillés, et par défaut, trait plein, pour la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{57}Ni.

Nous retrouvons également un bon accord pour les prédictions concernant la réaction ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu, FIG. 7.15.

Dans le cas des réactions issues des moniteurs de Cuivre, les résultats des comparaisons sont plus mitigés. Pour aucune des sections efficaces étudiées ne se dégage de bon accord avec les prédictions faisant appel au paramètre global. La réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{57}Ni, FIG. 7.16,

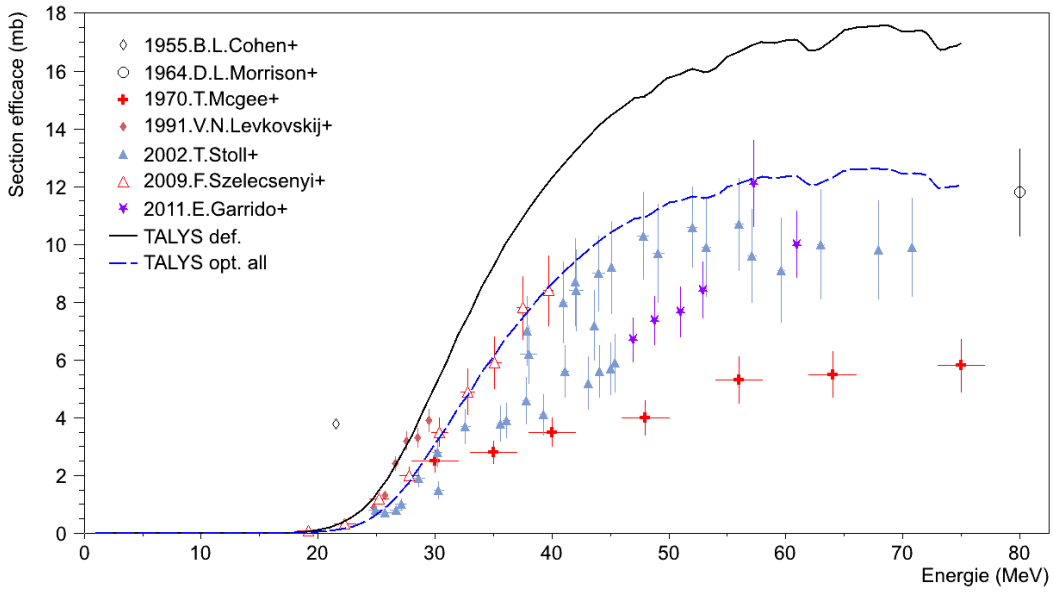

FIGURE 7.15 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS pour les jeux de paramètres optimisés dans les cas des réactions issues du Titane, grands pointillés, et par défaut, trait plein, pour la réaction ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu.

est celle pour laquelle l'accord avec l'expérience est le meilleur. Notons que l'amplitude est

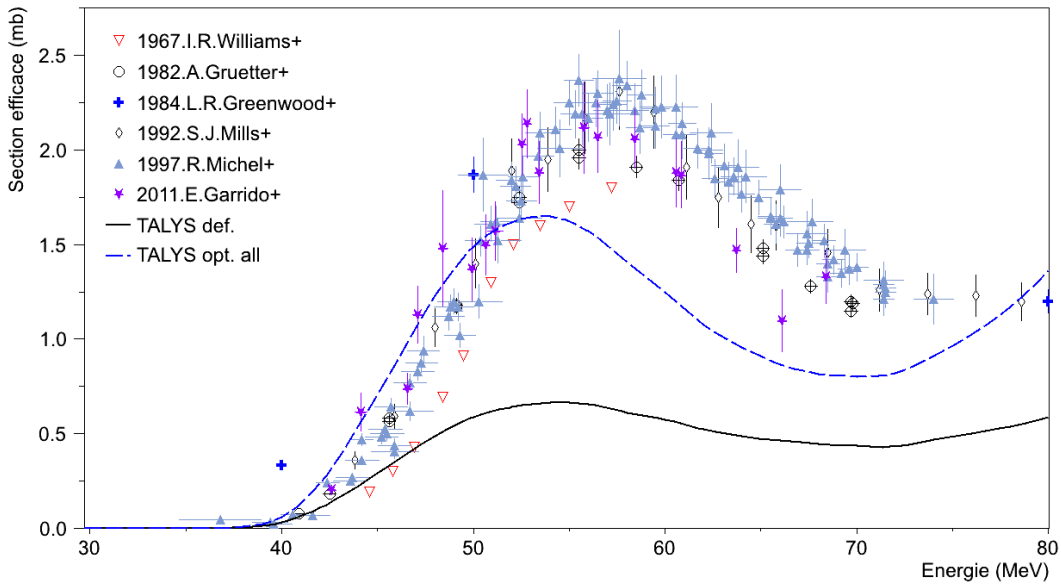

FIGURE 7.16 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS pour les jeux de paramètres optimisés dans les cas des réactions issues du Titane, grands pointillés, et par défaut, trait plein, pour la réaction ^{nat}Cu (p,X) ^{57}Ni.

mal évaluée et que ces prédictions sont perfectibles.

Il existe des cas pour lesquels les paramètres par défaut amènent de meilleures prédictions, comme pour la réaction ^{nat}Ni (p , X) ^{55}Co, FIG. 7.17. Avec les paramètres de la cohérence globale, TALYS surestime l'amplitude des maximums locaux. Elle est mieux évaluée

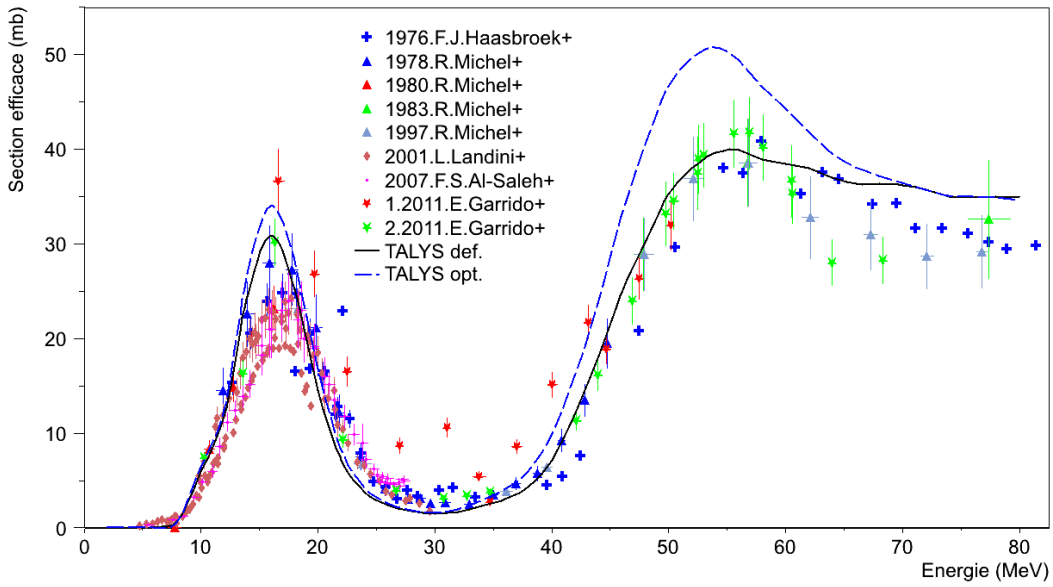

FIGURE 7.17 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS pour les jeux de paramètres optimisés dans les cas des réactions issues du Titane, grands pointillés, et par défaut, trait plein, pour la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{55}Co.

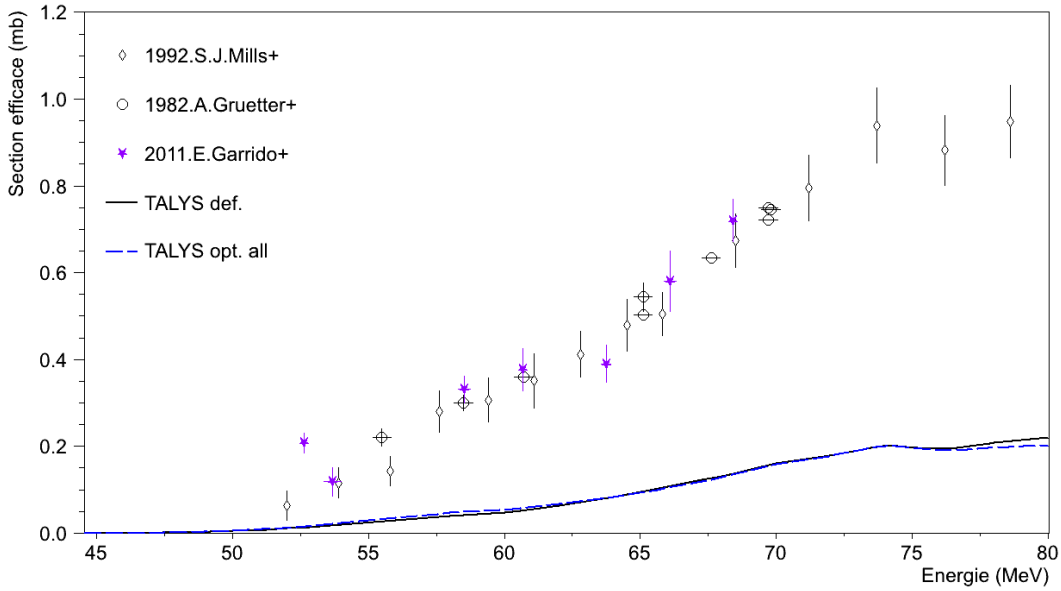

FIGURE 7.18 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS pour les jeux de paramètres optimisés dans les cas des réactions issues du Titane, grands pointillés, et par défaut, trait plein, pour la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{56}Mn.

dans l'utilisation par défaut du code.

Nous remarquons également que pour certaines réactions, les prédictions fournies par TALYS divergent des résultats expérimentaux, et ce pour les deux jeux de paramètres utilisés. C'est le cas de la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{56}Mn, FIG. 7.18.

Dans les deux cas, paramètres par défaut et global, les prédictions sont proches, et leur

amplitude mal évaluée par rapport aux données expérimentales.

7.8 Perspectives pour ce travail d'ajustement de paramètres

Nous remarquons donc une grande variabilité dans les accords entre les prédictions du code par défaut et l'expérience. Ces valeurs par défaut ont été établies de telle sorte que les prédictions soient les plus cohérentes possibles sur toute la gamme en énergie , de 1 keV à 200 MeV, et en masse, les noyaux de masse atomique supérieure au Carbone, couvertes par TALYS. Durant ce travail nous nous sommes cantonnés à une zone en énergie comprise entre 5 MeV et 70 MeV, et à des intervalles des masses restreints, $42 \leq A \leq 68$. Nous avons été capables de contraindre ces prédictions et d'obtenir une meilleure cohérence avec les résultats expérimentaux. Pour cela nous avons fait évoluer les valeurs de certains paramètres. Nous pouvons supposer que ces valeurs de paramètres sont plus judicieuses pour nos gammes d'intérêt en énergie et masse.

Ce travail d'ajustement constitue une première approche. Une étude de la qualité des prédictions est à effectuer. Comme nous l'avons vu, figure 7.12, des combinaisons de valeurs de paramètres différentes amènent à des prédictions très proches. Il serait intéressant de pouvoir obtenir les intervalles d'évolution des paramètres pour lesquelles les résultats fournis par TALYS sont équivalents. Nous pourrons également établir sur quels nouveaux paramètres il est pertinent de travailler.

Une étude sur des gammes de masses atomiques différentes est également possible, les caractéristiques d'ARRONAX ne permettant pas de s'étendre en énergie.

Enfin, des comparaisons avec les prédictions d'autres code de calcul, comme ALICE-IPPE et sa dernière version ALICE_{2010}, ainsi qu'avec EMPIRE, doivent être effectuées. A notre demande F.M. Nortier [d] les a réalisées pour les réactions ^{nat}Ti (p , X) ^{47}Sc, figure 7.19, et ^{68}Zn (p ,2p) ^{67}Cu, figure 7.20.

Les prédictions de ces trois nouveaux codes sont celles obtenues en utilisant les valeurs par défaut. Comme pour TALYS, ils décrivent correctement les variations des sections efficaces. Dans les deux cas nous remarquons cependant que ALICE-IPPE évalue mieux les amplitudes que ALICE_{2010}, ou EMPIRE pour le ^{67}Cu. Ce code ALICE-IPPE est plus ancien ainsi des travaux d'optimisations ont déjà pu être menés. Cela lui permet donc de fournir des prédictions plus proches de l'expérience que les deux autres.

C'est ce genre de travail d'optimisation que nous souhaitons poursuivre en collaboration avec l'équipe travaillant sur TALYS. En effet la démarche "en aveugle" que nous venons d'exposer présente des limites évidentes. Dans un code offrant de si nombreux paramètres ajustables, il est aisé de trouver des combinaisons qui, mathématiquement, permettent de suivre au plus près les résultats des mesures. La question qui se pose est celle de la pertinence et de la justification des paramètres choisis, notamment en fonction des types de réactions étudiés.
A ce stade, la collaboration avec des théoriciens possédant une bonne maîtrise des modèles et du code est indispensable.

d. C-IIAC : Inorganic Isotope & Actinide Chemistry, Los Alamos National Laboratory
f. Ces calculs ont été réalisés par Roberto Capote-Noy.

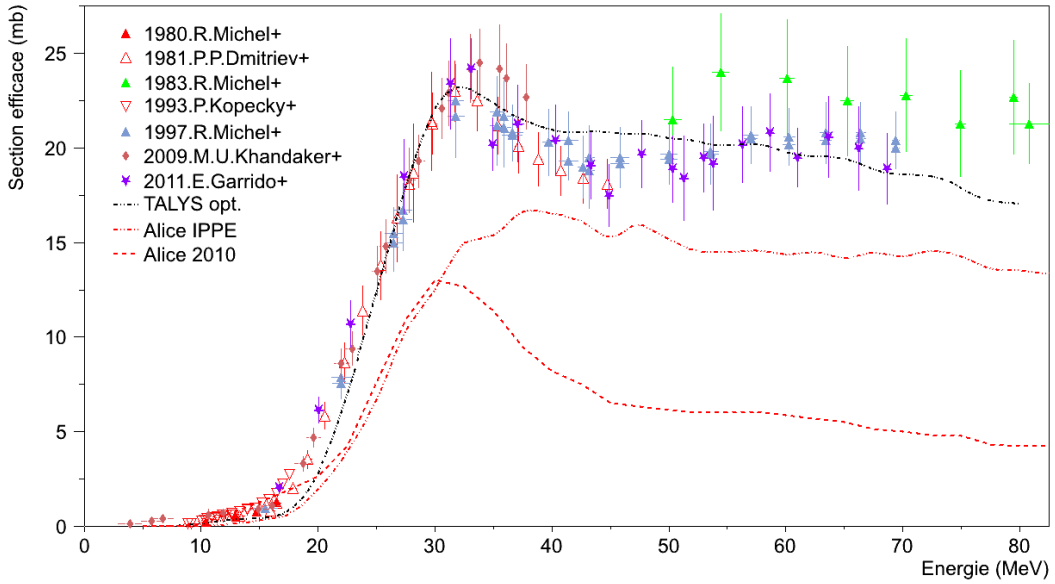

FIGURE 7.19 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS pour le jeux de paramètres optimisé au cas du ^{47}Sc, et les prédictions par défaut des codes ALICE-IPPE et ALICE$_{2010}$ pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc.

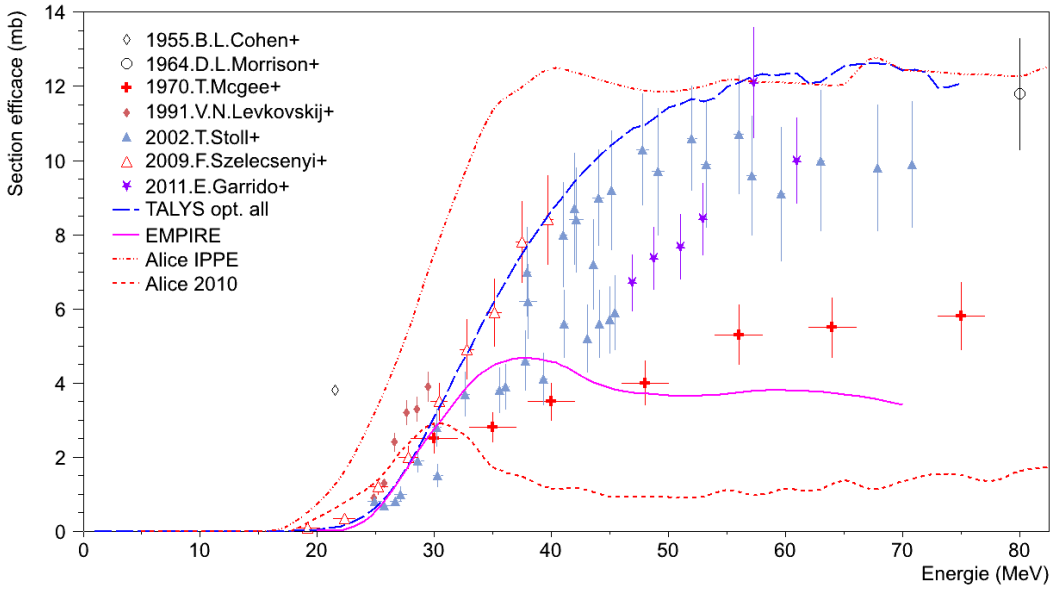

FIGURE 7.20 - Comparaison entre les prédictions théoriques du code TALYS pour le jeux de paramètres optimisé pour la cohérence global du Titane, et les prédictions par défaut des codes EMPIRE [f], ALICE-IPPE et ALICE$_{2010}$ pour la réaction ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc.

Conclusion

Ce travail de thèse a porté sur l'optimisation de la production de radio-isotopes. Il s'est effectué dans le cadre de la mise en route de l'accélérateur ARRONAX. Un des objectifs de ce cyclotron est la production de radio-isotopes innovants pour des applications médicales.

Nous avons ainsi mis en place un code de calcul qui faisant intervenir tous les paramètres d'une irradiation, nous permet d'anticiper les taux de productions d'un isotope. Nous sommes donc capables de définir, préalablement aux irradiations, les conditions assurant la production optimale d'un élément. Elles tiennent compte des quantités de l'isotope d'intérêt générées, mais également de celles des contaminants créés lors de l'irradiation. Les propriétés chimiques étant identiques pour deux isotopes d'un même élément, leur séparation est impossible. Minimiser cette contamination est essentielle dans le cadre d'une utilisation médicale. Développer ce code nous a permis de mettre en évidence l'importance d'une bonne connaissance des sections efficaces de réaction.

Parmi les radio-isotopes intéressant le monde de la médecine nucléaire, certains demandent l'utilisation de faisceaux à haute énergie, au delà de 40 MeV, comme le Scandium 47 ou le Cuivre 67. Sur cette gamme en énergie, les données nucléaires sont peu nombreuses et manquent parfois de précision.

Nous avons donc développé et mis en œuvre un dispositif expérimental permettant la mesure des sections efficaces de production. Il fait appel à la technique des *Stacked-foils*. Avec cette méthode, il est possible d'obtenir la distribution en énergie des sections efficaces, pour chacun des noyaux résiduels créés lors des interactions entre la cible et les projectiles. Afin d'obtenir un bon suivi des énergies et flux au travers du *stack*, nous avons pris le parti d'intercaler un moniteur, en Nickel ou Cuivre naturels, derrière chacune de nos cibles. Cela nous a permis en outre d'obtenir de nouvelles informations sur les noyaux créés dans ces moniteurs au cours des irradiations.

Au final, c'est un ensemble de quelques 40 sections efficaces de production qui a été obtenu, au cours de deux séries d'expériences, sur une plage en énergie allant de 17 MeV à 69 MeV. Notre première étude portait sur la production de ^{47}Sc par irradiation de Titane naturel avec des protons. La seconde, sur la production de ^{67}Cu par irradiation de cibles enrichies en ^{68}Zn également par des protons.

Les cibles en Titane naturel utilisées lors de notre première expérience provenaient du commerce. Elles ne demandaient pas de traitement radiochimique supplémentaire. Les séries de mesures associées à cette expérience ont amené à de très bons résultats, complétant parfois les bases de données à haute énergie. Nous avons également pu améliorer la précision sur les sections efficaces de production du ^{47}Sc. Cela nous convainc du fait que nous avons

développé une méthodologie de travail pertinente.

Dans le cas de la deuxième expérience, nous avons été contraints de développer nos propres cibles enrichies en ^{68}Zn. Un protocole de séparation, indispensable à l'analyse des résultats, à également dû être mis en place. Si ces deux étapes ont été maîtrisées au cours de cette thèse, des incohérences dans les résultats obtenus nous obligent à poursuivre cette étude.

Grâce à cet ensemble important de données, ainsi qu'à celles déjà présentes dans la littérature, nous avons cherché à contraindre les prédictions théoriques du code de calcul TALYS. Il intègre différents modèles nucléaires pour parvenir à une bonne description des phénomènes présents dans la gamme d'énergie allant de 1 keV à 200 MeV.

Nous avons ainsi extrait un ensemble de paramètres qui correctement modifiés permettent un meilleur accord, entre les prédictions de TALYS et l'expérience, que celui obtenu dans le cas d'une utilisation de leurs valeurs par défaut. Notre étude s'est concentrée sur les plages de masses atomiques et énergies couvertes par nos expériences.

Ce travail de thèse a permis de faire ressortir la nécessité de disposer d'un dispositif de mesures de sections efficaces sur ARRONAX. Il nous permet de compléter les bases de données concernant les isotopes d'intérêt. Une bonne maîtrise des codes de prédictions, comme TALYS, est également nécessaire. Des échanges plus étroits avec les concepteurs de ce code doivent être développés.

Au niveau de la production, nous disposons, sur ARRONAX, de faisceaux de deutons à haute énergie. Cela nous offre la possibilité d'explorer de nouvelles voies de réaction, comme dans le cas de la production de ^{64}Cu. Des modes de production utilisant la voie ^{64}Ni (d , 2n) ^{64}Cu, contrairement à la voie ^{64}Ni (p , n) ^{64}Cu généralement retenue pour les accélérateurs de basses énergies, sont déjà en place sur ARRONAX [90]. En terme de rendements, les productions associées à cette voie sont compétitives. Il serait intéressant d'-explorer de telles voies alternatives quant à la production du Scandium 47 ou du Cuivre 67. L'ensemble des outils développés au cours de cette thèse, code de calcul de production, dispositif de mesures de sections efficaces, le permettent. De plus, les nouvelles données obtenues interviendront dans l'étude de l'influence des projectiles sur les prédictions de TALYS.

Annexes

Annexe A

Équation de production d'un radio-isotope

Production d'un radio-isotope en cible épaisse

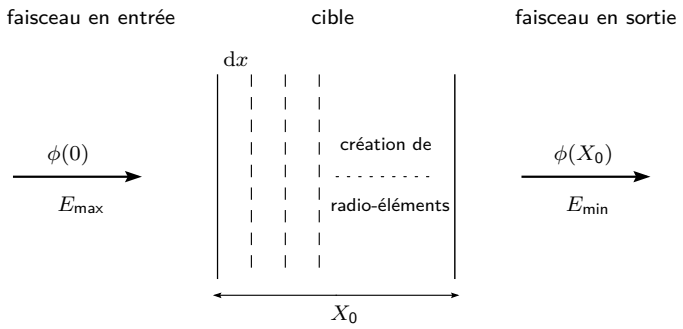

FIGURE A.1 - Découpe d'une cible épaisse en cibles d'épaisseurs infinitésimales dx

L'atténuation d'un flux de particules dans une cible dx, issue de la découpe d'une cible épaisse FIG. A.1 est donnée par :

$$d\phi = -\frac{\phi \cdot \mathcal{N}_A \cdot \rho \cdot \sigma(E)}{A} dx$$

où

ϕ	:	flux de particules	$\sigma(E)$	:	section efficace à l'énergie E
A	:	masse atomique de la cible	ρ	:	masse volumique de la cible
$\mathcal{N}_A$	:	nombre d'Avogadro			

Nous intégrons sur l'épaisseur totale X_0 :

$$\ln \frac{\phi(X_0)}{\phi(0)} = -\frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho}{A} \int_0^{X_0} \sigma(E) dx$$

Nous connaissons l'évolution énergétique au sein de la cible

$$\ln \frac{\phi(X_0)}{\phi(0)} = -\frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho}{A} \int_{E_{in}}^{E_{fin}} \frac{dx}{dE} \sigma(E) dE$$

avec E_{in} l'énergie du faisceau en entrée de cible E_{max} et E_{fin} celle en sortie de cible E_{min}. L'expression du flux devient donc :

$$\phi(X_0) = \phi(0) \cdot \exp\left(\frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho}{A} \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{dx}{dE} \sigma(E) dE \right)$$

Au premier ordre, nous considérons les interactions nucléaires comme faibles. L'argument de l'exponentielle est petit ce qui permet le développement limité suivant :

$$\phi(X_0) = \phi(0) \left(1 - \frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho}{A} \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{dx}{dE} \sigma(E) dE \right)$$

Le nombre n de radionucléides formés correspond à la différence des flux entrant et sortant

$$n = \phi(0) - \phi(X_0) = \phi(0) \frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho}{A} \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{dx}{dE} \sigma(E) dE$$

L'irradiation de la cible se fait sur une durée non négligeable. L'isotope produit étant un élément instable, il faut tenir compte de sa décroissance radioactive en introduisant son coefficient λ. La variation de n est donnée par :

$$\frac{dn}{dt} = \phi(0) \frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho}{A} \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{dx}{dE} \sigma(E) dE - \lambda \cdot n$$

En tenant compte du fait qu'initialement les quantités de l'isotope voulu sont nulles, l'intégration conduit à :

$$n(t) = \phi(0) \frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho}{A \cdot \lambda} (1 - \exp^{-\lambda t}) \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{dx}{dE} \sigma(E) dE$$

Nous nous intéressons à l'activité A_{ct} du radio-isotope :

$$A_{ct} = \lambda \cdot n(t) = \phi(0) \frac{\mathcal{N}_A \cdot \rho}{A} (1 - \exp^{-\lambda t}) \int_{E_{min}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E)}{\mathrm{dE}/\mathrm{dx}} dE \tag{2.1}$$

Annexe **B**

Valeurs de sections efficaces de production

B.1 Sections efficaces issues du Titane

Énergie	Sections efficaces en millibarn(mb)					
MeV	^{42}K	^{43}K	^{43}Sc	^{44m}Sc	^{44g}Sc	^{48}Sc
68.67±0.15	5.65±0.73	0.69±0.17	10.80±1.12	18.10±1.79	35.40±3.34	1.19±0.25
66.21±0.23	5.60±0.74	1.01±0.20	10.40±1.07	17.60±1.81	36.00±3.44	1.39±0.31
63.68±0.32	5.19±0.69	1.11±0.21	10.50±1.05	16.00±1.68	32.30±3.06	1.75±0.34
60.98±0.15	5.12±0.48	1.22±0.13	10.20±0.76	14.50±1.25	28.70±2.04	1.37±0.19
58.66±0.22	4.38±0.53	1.31±0.20	11.10±1.07	12.80±1.27	28.10±2.54	1.36±0.25
56.28±0.28	3.70±0.47	1.38±0.19	11.80±1.10	12.00±1.27	26.10±2.33	1.50±0.24
53.82±0.33	2.50±0.37	1.40±0.22	11.60±1.29	11.30±1.64	24.30±2.62	1.59±0.27
52.96±0.15	2.73±0.39	1.33±0.25	11.60±1.28	11.60±1.10	23.20±2.10	1.89±0.31
51.28±0.40	1.52±0.23	1.11±0.18	10.60±1.05	9.57±1.36	22.00±1.95	1.83±0.27
50.36±0.27	1.72±0.27	1.07±0.22	12.30±1.27	11.40±1.10	21.70±2.01	1.41±0.25
47.71±0.27	0.81±0.18	0.99±0.17	11.70±1.11	10.90±1.06	23.10±2.12	1.73±0.28
44.89±0.32		0.57±0.12	11.30±1.23	9.92±0.95	21.90±2.02	0.87±0.19
43.32±0.36		0.73±0.14	13.40±1.27	11.40±1.12	24.70±2.29	1.37±0.25
40.29±0.40		0.34±0.11	14.30±1.37	12.30±1.14	26.10±2.43	1.35±0.26
37.09±0.46			12.20±1.18	13.40±1.39	29.30±2.72	1.37±0.28
34.95±0.10			4.79±0.46	14.50±1.06	33.00±2.13	0.66±0.16
33.10±0.20			4.12±0.35	17.00±1.14	39.80±2.59	0.56±0.14
31.19±0.16			3.11±0.34	15.10±1.20	43.70±2.85	
27.17±0.21			3.72±0.37	11.60±0.95	38.90±2.55	
22.64±0.27			3.34±0.32	4.96±0.68	12.90±0.85	
20.08±0.42			4.27±0.70	1.74±0.67	4.44±0.47	
16.67±0.16			4.63±0.41	1.36±0.15	5.67±0.40	

TABLEAU B.1 - Sections efficaces obtenues dans le cas des irradiations du Titane pour les réactions ^{nat}Ti (p,X) ^{42,43}K, ^{43,44m,44g,48}Sc.

Énergie MeV	$\sigma(\mu b)$ ^{41}Ar
68.67±0.15	96.70±31.10
66.21±0.23	97.80±29.20
60.98±0.15	58.20±10.60
52.96±0.15	26.30± 7.42
51.28±0.40	16.80± 6.13
50.36±0.27	30.50± 8.84

Énergie MeV	σ(mb) ^{45}Ti
60.97±0.15	51.10±16.70
58.66±0.22	72.90±19.20
56.28±0.28	51.80±17.40
53.82±0.33	82.40±18.50
52.96±0.15	62.20±21.30
51.28±0.40	57.90±17.70
50.36±0.27	85.40±19.70
47.71±0.27	29.50± 9.15
44.72±0.15	38.80± 9.11

TABLEAU B.2 - Sections efficaces obtenues dans le cas des irradiations du Titane pour les réactions ^{nat}Ti (p,X) ^{41}Ar, ^{45}Ti.

Énergie MeV	σ(mb) ^{46}Sc
68.67±0.15	42.50±4.27
66.21±0.23	45.00±4.99
63.68±0.32	46.50±4.71
60.98±0.15	44.20±3.49
58.66±0.22	46.90±4.43
56.28±0.28	46.30±4.24
53.82±0.33	46.70±5.06
52.96±0.15	52.40±4.87
51.28±0.40	42.30±4.02
50.36±0.27	54.20±4.99
47.71±0.27	54.10±5.03
44.89±0.32	44.20±4.08
43.32±0.36	49.70±4.53
40.29±0.40	60.50±5.58
37.09±0.46	56.40±5.24
34.95±0.10	27.50±2.50
33.10±0.20	29.30±2.19
31.04±0.23	17.24±1.82
27.17±0.21	8.58±1.15
22.64±0.27	5.68±0.88
20.08±0.42	5.84±1.85
16.64±0.15	3.95±0.59

Énergie MeV	σ(mb) ^{47}Sc
68.67±0.15	18.90±1.86
66.21±0.23	20.00±2.21
63.68±0.32	20.60±2.13
60.98±0.15	19.50±1.56
58.66±0.22	20.80±2.05
56.28±0.28	20.20±2.00
53.82±0.33	19.20±2.49
52.96±0.15	19.50±1.80
51.28±0.40	18.40±2.22
50.36±0.27	18.90±1.76
47.71±0.27	19.70±1.78
44.89±0.32	17.50±1.64
43.32±0.36	19.10±1.77
40.29±0.40	20.40±1.87
37.09±0.46	21.30±2.02
34.95±0.10	20.20±1.39
33.10±0.20	24.20±1.59
31.32±0.22	23.40±2.41
27.32±0.29	18.50±1.97
22.81±0.37	10.70±1.22
20.08±0.42	6.13±0.69
16.64±0.15	2.03±0.19

Énergie MeV	σ(mb) ^{48}V
68.67±0.15	9.65± 0.97
66.21±0.23	11.70± 1.24
63.68±0.32	12.60± 1.25
61.07±0.44	14.30± 1.73
60.97±0.15	13.70± 2.39
58.66±0.22	15.80± 2.70
56.28±0.28	16.20± 2.64
53.82±0.33	15.20± 2.80
51.28±0.40	11.30± 2.50
52.96±0.15	14.50± 1.40
50.36±0.27	15.40± 1.44
47.71±0.27	18.60± 1.75
44.89±0.32	20.40± 1.89
43.32±0.36	37.30± 3.39
40.29±0.40	34.30± 3.15
37.09±0.46	36.70± 3.38
34.95±0.15	26.20± 2.37
33.04±0.19	30.90± 3.44
31.04±0.23	41.50± 4.01
27.01±0.31	46.70± 4.46
22.45±0.40	47.20± 5.94
16.64±0.15	243.00±21.40

TABLEAU B.3 - Sections efficaces obtenues dans le cas des irradiations du Titane pour les réactions ^{nat}Ti (p,X) $^{46,47}Sc$, ^{48}V.

B.2 Sections efficaces issues du Zinc 68

Énergie	Sections efficaces en millibarn(mb)		
MeV	^{67}Cu	^{66}Ga	^{67}Ga
68.66±0.14		10.33± 0.90	15.04± 1.49
64.32±0.21		7.29± 0.66	14.91± 1.40
60.95±0.14	10.05±1.14	36.75± 3.81	54.10± 5.60
57.24±0.22	13.11±1.49	57.47± 6.04	82.94± 8.71
52.94±0.14	8.42±0.96	61.63± 6.56	55.25± 5.86
51.00±0.14	7.67±0.87	50.42± 5.57	62.76± 6.93
48.76±0.23	7.36±0.83	68.77± 7.29	69.75± 7.36
46.92±0.23	6.70±0.76	69.98± 7.41	70.15± 7.43
42.76±0.15		156.50±16.62	108.26±11.50
39.40±0.24		187.21±16.73	108.69± 9.32

TABLEAU B.4 - Sections efficaces obtenues dans le cas des irradiations du ^{68}Zn pour les réactions ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu, ^{68}Zn (p,xn) ^{66,67}Ga.

B.3 Sections efficaces issues des moniteurs

B.3.1 Moniteurs de Nickel

Énergie MeV	σ(mb) ^{49}Cr
68.38±0.15	2.89±0.24
64.03±0.24	2.70±0.23
60.65±0.15	2.87±0.25
56.93±0.24	2.13±0.19
52.61±0.15	0.55±0.05

Énergie MeV	σ(μb) ^{61}Co
68.38±0.15	702.03±64.06
64.03±0.24	656.87±60.87
60.65±0.15	728.92±73.07
56.93±0.24	809.20±80.27
52.61±0.15	705.21±73.46

TABLEAU B.5 - Sections efficaces obtenues dans les moniteurs en Nickel pour les réactions ^{nat}Ni (p,X) ^{49}Co, ^{61}Co.

Énergie MeV	Sections efficaces en millibarn(mb) $^{52m+g}$Mn	^{52}Fe	^{56}Ni	^{57}Ni
68.38±0.15	13.25±1.18	2.19±0.25	6.82±0.59	59.18±5.22
64.03±0.24	13.63±1.18	2.34±0.21	6.88±0.60	57.29±5.03
60.62±0.11	20.39±1.51	2.80±0.21	7.74±0.59	66.50±4.61
58.16±0.24	21.95±2.37	2.64±0.24	7.92±0.86	70.68±7.78
56.93±0.24	25.22±2.41	2.67±0.25	9.22±1.09	9.22±1.09
55.66±0.28	22.54±2.05	2.18±0.20	8.41±0.91	75.78±6.65
53.06±0.33	18.73±1.71	1.59±0.15	9.33±0.90	72.08±7.91
52.57±0.11	17.31±1.20	1.37±0.11	9.59±0.67	75.85±5.26
50.26±0.15	12.82±0.83	0.92±0.06	9.10±0.60	76.37±6.66
49.81±0.24	11.79±1.22	0.75±0.08	10.38±1.07	76.12±7.82
47.55±0.23	8.44±0.72	0.53±0.05	9.74±0.81	
46.97±0.28	4.74±0.51	0.22±0.03	10.07±1.03	72.16±7.41
44.73±0.28	3.98±0.36	0.17±0.02	8.02±0.67	
44.01±0.33	1.55±0.16	0.05±0.01	11.55±1.17	74.99±7.70
43.15±0.33	3.39±0.30	0.12±0.03	10.44±0.87	
42.18±0.40			11.75±0.98	75.71±6.30
40.11±0.36	1.13±0.13		12.28±1.03	
37.06±0.40			12.94±1.08	
34.75±0.11			7.39±0.45	
33.80±0.46			10.94±0.95	
32.83±0.19			7.65±0.65	
30.98±0.16			3.97±0.29	
26.76±0.31			1.75±0.22	

TABLEAU B.6 - Sections efficaces obtenues dans les moniteurs en Nickel pour les réactions ^{nat}Ni (p,X) $^{52m+g}$Mn, ^{52}Fe, ^{56,57}Ni.

Énergie MeV	σ(mb) ^{55}Co
50.23±0.23	31.90±2.63
47.55±0.28	26.30±2.17
44.73±0.33	18.90±1.57
43.15±0.36	21.70±1.79
40.11±0.40	15.10±1.34
37.06±0.46	8.57±0.73
33.80±0.56	5.40±0.50
34.75±0.15	2.75±0.27
31.11±0.22	10.60±0.98
27.08±0.29	8.67±0.84
22.54±0.37	16.50±1.53
19.77±0.42	26.80±2.43
16.67±0.49	36.60±3.39

Énergie MeV	σ(mb) ^{55}Co
68.38±0.15	28.20±2.45
64.03±0.24	28.00±2.42
60.65±0.15	35.20±3.06
60.58±0.15	36.60±3.76
58.16±0.24	40.20±3.47
56.93±0.24	41.70±3.79
55.66±0.28	41.60±3.58
53.06±0.33	39.40±3.39
52.61±0.15	38.90±3.59
52.53±0.15	37.40±3.82
50.46±0.40	34.50±2.95
49.81±0.24	33.20±3.37
46.97±0.28	24.00±2.44
44.01±0.33	16.10±1.63
42.18±0.40	11.30±1.00
34.75±0.15	3.81±0.35
32.83±0.19	3.33±0.31
30.83±0.23	3.14±0.29
26.76±0.31	3.92±0.36
22.16±0.40	9.33±0.83
16.38±0.15	30.20±2.46
13.62±0.23	16.30±1.33
10.35±0.28	7.38±0.61

TABLEAU B.7 - Sections efficaces obtenues dans les moniteurs en Nickel pour la réaction ^{nat}Ni (p,X) ^{55}Co. Sont représentés les points des séries rouge, à gauche, et verte, à droite.

Énergie MeV	σ(mb) ^{60}Cu	^{61}Cu
68.38±0.15	1.89±0.16	
64.03±0.24	2.01±0.18	0.85±0.13
60.65±0.15	2.65±0.23	0.71±0.35
56.93±0.24	3.18±0.30	1.13±0.11
52.61±0.15	3.21±0.31	1.10±0.30
50.23±0.15		1.23±0.20
47.55±0.23		1.44±0.20
44.73±0.28		2.73±0.33
43.15±0.33		2.78±0.41
40.11±0.36		1.90±0.34
37.06±0.40		2.21±0.48
34.75±0.11		2.13±0.17
33.80±0.46		3.07±0.65
32.83±0.19		2.81±0.26
30.98±0.16		4.88±0.35
26.93±0.21		9.34±0.61
22.36±0.27		12.51±0.99
19.77±0.42		10.98±1.09
16.40±0.16	58.35±4.76	6.72±0.49
13.62±0.23	60.27±4.97	2.99±0.26
10.35±0.28	45.42±3.89	4.04±0.34
6.01±0.33		1.92±0.16

TABLEAU B.8 - Sections efficaces obtenues dans les moniteurs en Nickel pour les réactions ^{nat}Ni (p,X) ^{60,61}Cu.

B.3.2 Moniteurs de Cuivre

Énergie	Sections efficaces en millibarn(mb)				
MeV	^{61}Co	^{57}Ni	^{61}Cu	^{64}Cu	^{62}Zn
68.40±0.11	2.47±0.19	1.33±0.14	63.76± 3.80	34.52±6.03	6.54±0.46
66.09±0.23	2.61±0.34	1.10±0.16	67.93± 5.95	34.82±8.04	6.73±0.61
63.74±0.18	1.95±0.18	1.47±0.12	68.03± 4.20	49.15±5.35	7.03±0.49
60.86±0.15	2.33±0.27	1.87±0.18	74.14± 4.85	50.56±5.58	8.57±0.94
60.59±0.11	2.39±0.21	1.88±0.18	72.38± 6.27	49.58±4.91	
58.40±0.16	2.29±0.24	2.06±0.16	74.13± 5.55	55.57±6.71	
56.50±0.18	2.09±0.19	2.07±0.19	80.95± 4.94	45.36±4.82	
55.76±0.28	2.08±0.42	2.12±0.24	76.68± 6.51	52.47±8.09	
53.43±0.23	2.10±0.27	1.88±0.16	78.94± 5.17	47.84±5.24	
52.81±0.15	1.93±0.29	2.14±0.18	75.92± 6.21	48.96±6.65	
52.54±0.11	1.95±0.18	2.03±0.16	86.30± 5.88	48.99±5.12	
51.13±0.40	1.66±0.22	1.57±0.16	71.62± 5.81	46.46±6.22	
50.64±0.15	2.13±0.25	1.50±0.16	88.24± 5.81	52.17±5.21	
49.92±0.23	1.91±0.27	1.37±0.17	88.74± 8.99	48.92±8.10	
48.42±0.24	2.11±0.24	1.48±0.30	95.90± 8.23	59.16±7.29	
47.09±0.28	1.88±0.26	1.13±0.15	99.99±10.12	50.11±6.62	
46.57±0.24	2.38±0.29	0.74±0.08	111.04± 9.95	54.94±6.68	
44.14±0.33	2.01±0.30	0.62±0.10	120.71±12.23	48.43±7.62	
42.54±0.15	1.87±0.22	0.20±0.03	133.88± 7.83	57.80±4.87	
39.22±0.24	1.85±0.27		165.54±13.72	64.43±6.39	

TABLEAU B.9 - Sections efficaces obtenues dans les moniteurs en Cuivre pour les réactions ^{nat}Cu (p,X) ^{61}Co, ^{57}Ni, ^{61,64}Cu, ^{62}Zn.

Énergie	$\sigma(\mu$b)
MeV	^{56}Mn
68.40±0.11	719.78±48.93
66.09±0.23	581.17±69.55
63.74±0.18	389.72±42.84
60.67±0.11	377.28±48.12
58.53±0.23	330.73±31.63
53.68±0.33	119.36±32.82
52.62±0.11	207.82±23.01

Énergie	σ(mb)
MeV	^{60}Cu
68.24±0.15	16.92±1.50
63.88±0.24	17.95±1.64
60.50±0.15	25.10±2.23
56.76±0.24	30.49±2.82
52.54±0.11	30.69±2.44
50.67±0.15	32.15±3.35
49.92±0.23	27.16±3.09
48.42±0.24	27.08±2.39
47.09±0.28	21.08±2.20
46.57±0.24	21.96±2.05
44.14±0.33	10.58±1.22
42.20±0.40	6.73±0.57
39.22±0.24	2.67±0.23

Énergie	σ(mb)
MeV	^{63}Zn
68.24±0.15	10.80±1.22
63.88±0.24	11.20±1.29
60.59±0.11	15.29±1.65
56.76±0.24	17.73±1.83
52.54±0.11	19.49±1.63
51.13±0.40	18.70±2.45
50.45±0.13	22.70±1.89
48.42±0.24	23.41±2.20
47.09±0.28	24.07±2.63
46.57±0.24	28.75±2.93
44.14±0.33	32.02±3.58
42.54±0.15	35.94±3.14
39.22±0.24	48.23±4.04

TABLEAU B.10 - Sections efficaces dans les moniteurs en Cuivre pour les réactions ^{nat}Cu (p,X) ^{56}Mn, ^{60}Cu, ^{63}Zn.

Annexe C

Influence de la distance sur l'efficacité

Introduction

Des analyses effectuées pour l'irradiation de feuilles de Nickel ont révélé des incohérences. Nous avons réalisé deux étalonnages *cf.* 4.3.2 chapitre 5, le premier concerne les flacons de 50 mL placés au contact du détecteur, le deuxième, les feuilles solides mesurées à 19 cm. Les deux raies principales du ^{57}Ni ont des énergies de 127.19 keV et 1377.59 keV, avec respectivement des intensités d'émission de 16.7 % et de 81.7 %. Nous avons réalisé les calculs d'activité associée à chacune de ces raies. Dans l'absolu, nous devrions obtenir des valeurs très proches, étant donné que ces raies caractérisent le même isotope [a]. Le tableau TAB. C.1 présente les résultats de ces analyses réalisées avec chacun des deux étalonnages.

	Étalonnage au contact			Étalonnage à 19 cm		
Énergie(keV)	A_{ct}(kBq)		ΔA_{ct}(kBq)	A_{ct}(kBq)		ΔA_{ct}(kBq)
127.19	3.05	$\pm$	0.16	52.44	$\pm$	1.75
1377.59	3.36	$\pm$	0.13	52.91	$\pm$	1.21
Écart rel.		9.23 %			0.89 %	

TABLEAU C.1 - Comparaison entre les activités calculées pour chacun des deux principaux pics du ^{57}Ni en fonction de l'étalonnage utilisé. Cette mesure a été réalisée sur la feuille 5.2 de Nickel.

L'écart entre les activités associées au pic de basse énergie et à celui de haute énergie est trop important dans le cas de l'utilisation de l'étalonnage au contact pour être uniquement dû à un problème de statistique. Soit l'activité du pic à 127.19 keV est sous-évaluée, soit celle du pic à 1377.59 keV est surévaluée.

Comparaison des efficacités de détection

L'efficacité de détection est dépendante de la distance d entre la source et le détecteur. Augmenter d revient à diminuer l'angle solide de détection, celui étant inversement proportionnel au carré de la distance. L'énergie du photon détecté n'intervient pas dans l'expression de ce nouvel angle solide. Aussi cette efficacité de détection devrait être identique, à un

a. Il n'y a pas d'interférence avec les autres éléments présents dans le moniteur.

coefficient d'angle solide près, pour toutes les énergies. En comparant ces courbes d'efficacité pour chacun des étalonnages, initialement présentées figure 4.7, nous remarquons que la forme n'est pas semblable.

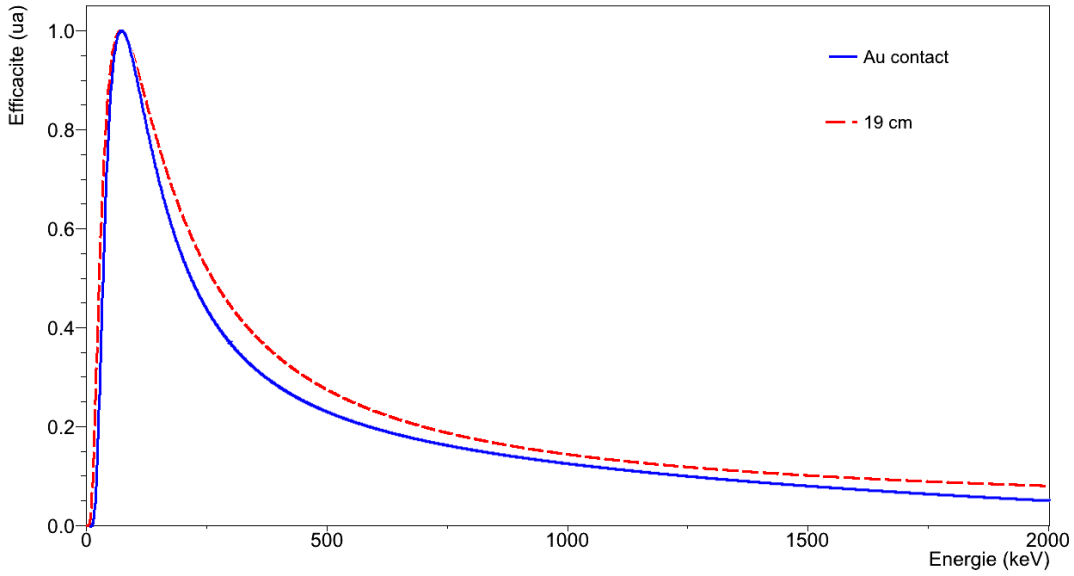

FIGURE C.1 - Comparaison, en échelle relative, des efficacités de détection des étalonnages au contact et à 19 cm du détecteur.

Le point d'inflexion ainsi que l'efficacité à haute énergie se situent plus bas dans le cas de la mesure au contact. Cela traduit une meilleure détection des photons de plus basse énergie par rapport à ceux de haute énergie. La correction d'efficacité aura donc tendance à surévaluer les activités associées au pic de plus haute énergie.

Il apparaît donc que l'évolution de l'efficacité de détection suivant la distance de mesure est dépendante de l'énergie du photon.

Explication du phénomène

Pour pouvoir expliquer ce phénomène, il faut considérer la taille physique du cristal de Germanium du détecteur. L'angle de pénétration des photons dans ce cristal dépend de la distance à laquelle est placée la source. Aussi, un échantillon placé au contact autorise des angles d'arrivée plus importants que dans le cas d'un comptage à 19 cm, FIG. C.2.

L'épaisseur moyenne de cristal traversée par les photons est donc plus faible pour ceux ayant des θ plus élevés. Lorsqu'un photon traverse la matière, il peut céder, par effet Compton ou création de paires, une partie de son énergie aux électrons du milieu, voire la totalité par effet photo-électrique. Les électrons recevant cette énergie sont recueillis par les électrodes du détecteur et créent ainsi un courant mesurable. La quantité de courant est directement proportionnelle à l'énergie déposée par le photon. Un étalonnage en énergie FIG. 4.5 permet de faire le lien entre la charge mesurée et l'énergie du photon. L'efficacité elle correspond au rapport entre les photons ayant cédé la totalité de leur énergie, donc détectés, et ceux ayant été émis par la source.

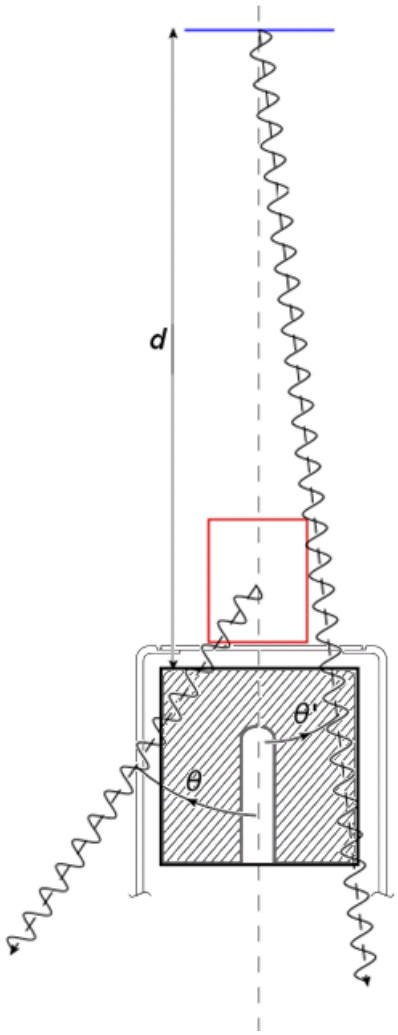

FIGURE C.2 - Dispositions et géométries possibles, flacon rouge au contact et feuille bleue à 19 cm, des échantillons par rapport au cristal de Germanium, volume hachuré, et représentation de l'angle θ de pénétration d'un γ.

La probabilité qu'un photon dépose toute son énergie augmente avec l'épaisseur de matière qu'il traverse. Elle dépend également de l'énergie initiale du photon. Des énergies plus importantes se traduisent par des parcours moyens plus longs donc des probabilités d'interactions plus faibles.

Ainsi l'efficacité de détection d'un γ de 2000 keV est plus sensible à ces différences d'épaisseurs que celle concernant un γ de 50 keV.

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons réalisé une simulation GEANT$_4$.

Vérification par l'intermédiaire d'une simulation GEANT$_4$

Nous avons construit le cristal de Germanium, ainsi que le blindage l'entourant, FIG. 4.3, dans une géométrie de simulation GEANT$_4$, FIG. C.3. Ses dimensions, FIG. C.4, nous sont fournies par CANBERRA.

Les deux géométries des échantillons ont été également simulées, et positionnées à leur distance de comptage respective, en bleu la feuille à 19 cm et en rouge le flacon au contact.

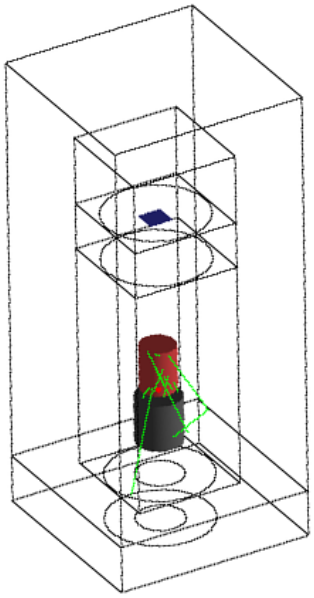

FIGURE C.3 - Visualisation de la géométrie du détecteur, dans son blindage, simulée sous GEANT$_4$.

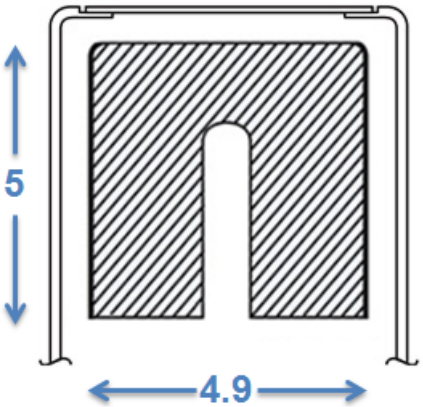

FIGURE C.4 - Dimensions, exprimées en centimètres, du cristal cylindrique, volume hachuré, de Germanium de notre détecteur.

Le cristal de Germanium est défini pour "agir" comme un détecteur γ réel. Dans notre simulation, nous avons fait en sorte d'obtenir en fichier de sortie l'énergie déposée par les électrons après thermalisation dans le Germanium. Ainsi, lorsque nous simulons l'émission du γ de 1332.49 keV du ^{60}Co, utilisé dans les sources d'étalonnage, nous obtenons la distribution énergétique présentée figure C.5.

L'aire du pic photoélectrique indique le nombre de γ dont l'énergie a été totalement cédée à la matière, rendant possible la détection. Dans cet exemple, la proportion entre γ générés et γ détectés, ou l'efficacité de détection, est de 15 %. Elle est bien supérieure aux cas réels des courbes FIG. 4.7 car nous avons généré des γ émis dans la direction du détecteur. Dans la réalité, leur émission se fait de façon isotrope et équiprobable en tout point de chaque source. Nous avons pris en compte ce paramètre dans nos futures simulations.

Étalonnage simulé en efficacité

Suivant ce principe, nous avons réalisé un étalonnage simulé de l'efficacité du détecteur. Nous avons généré l'émission de photons sur 4π pour chacune des géométries utilisées durant nos mesures. Leurs énergies correspondent à celles des sources répertoriées dans les tableaux 4.2 et 4.3. Les résultats sont représentés sur la figure C.6.

Nous retrouvons une forme similaire à celle du cas expérimental, FIG. C.1, décrivant une moins bonne détection à haute énergie pour le comptage au contact.

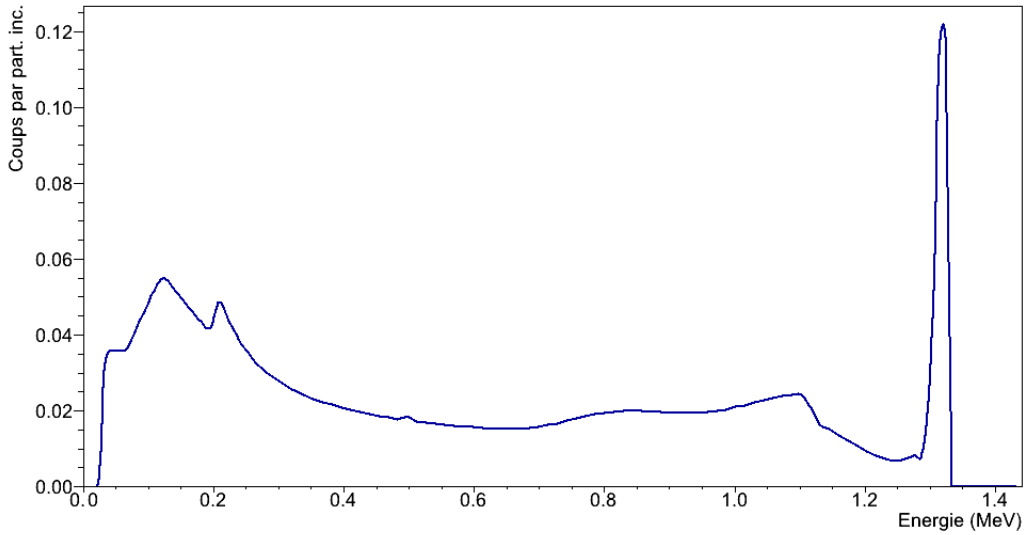

FIGURE C.5 - Distribution énergétique recueillie dans le cristal de Germanium lors de sa traversée par un γ de 1332.49 keV.

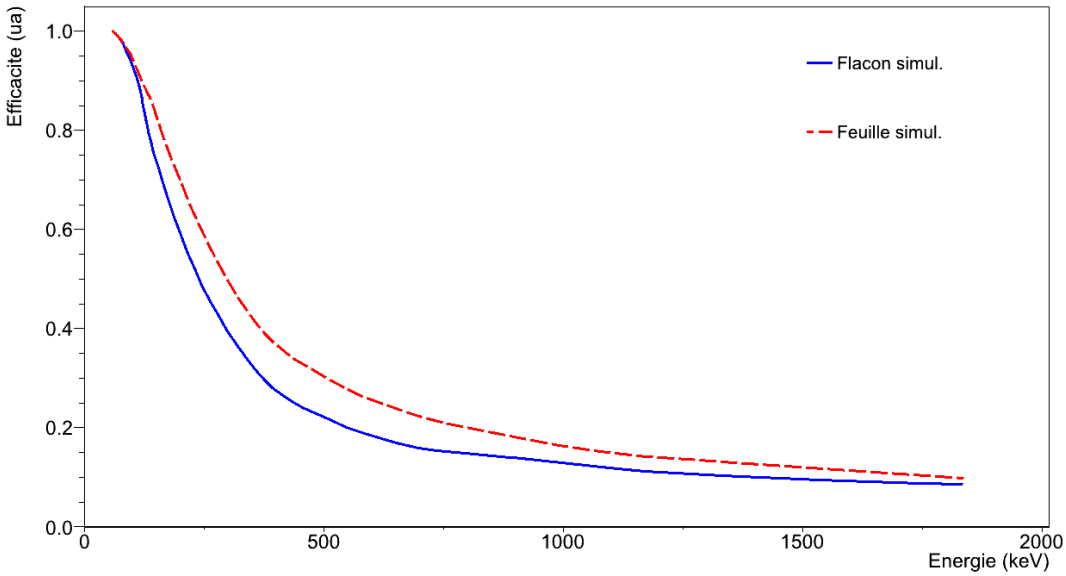

FIGURE C.6 - Efficacités de détection obtenues par simulation GEANT$_4$ pour chaque géométrie, feuille à 19 cm ou flacon au contact, utilisée durant nos mesures.

Évolution de l'efficacité suivant l'angle d'arrivée

Pour tester le bon fonctionnement de notre simulation, nous nous étions placés dans le cas de sources émettant de façon isotrope et équiprobable sur 4π. Cela nous a conduit aux résultats précédents, en accord avec l'expérience. Notre but est de vérifier l'influence de l'angle d'arrivé du photon dans le cristal sur l'efficacité de détection. Nous choisissons donc d'émettre tous les γ suivant un angle θ unique et d'observer l'évolution de l'efficacité pour

deux énergies de γ, 59.4 keV et 1332.49 keV. Les résultats sont présentés sur la figure C.7.

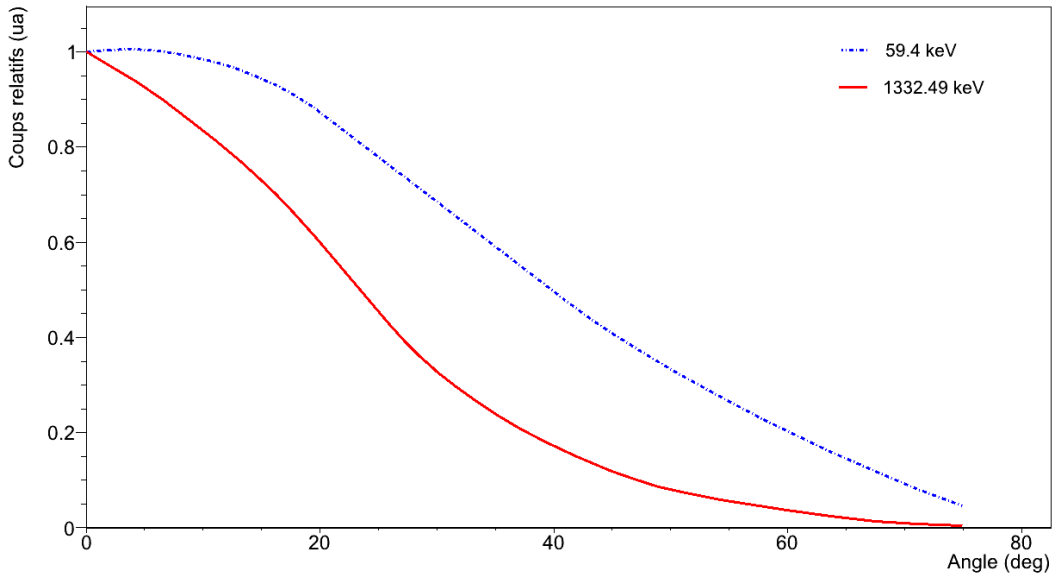

FIGURE C.7 - Courbes des efficacités de détection simulées pour les énergies de 59.4 keV et 1332.49 keV en fonction des angles de pénétration dans le cristal.

Nous remarquons que l'efficacité de détection du γ de 1332.49 keV décroit suivant l'angle d'arrivé θ plus rapidement que celle du γ de 59.4 keV. Cela traduit bien les dépendances angulaire et énergétique de l'efficacité de détection du cristal de Germanium.

Conclusion

L'efficacité de détection n'est donc pas seulement dépendante de l'angle solide suivant lequel la source voit le détecteur. Elle est également fonction de l'angle de pénétration des photons dans le cristal de Germanium. Pour deux sources placées au contact et à 19 cm, θ est compris respectivement entre ± 90 deg et ± 10 deg [b] Aussi est-il indispensable de réaliser un étalonnage en efficacité pour chaque géométrie, forme, matière, volume et densité, ainsi que pour chaque distance de comptage utilisées durant nos mesures.

b. En considérant des sources de 2 cm de diamètre placées au centre du cristal de Germanium.

Références

[1] Société Française des Physiciens Médicaux, http ://www.sfpm.asso.fr/. :int

[2] Chatal, J. F. Communication privée. :JFC

[3] Sundaresan, G. (2003) ^{124}I-labeled engineered anti-CEA minibodies and diabodies allow high-contrast, antigen-specific small-animal pet imaging of xenografts in athymic mice. *Journal of Nuclear Medicine*, **44**, 1962–1969. :2003

[4] Crumière, F. (2011) LET effects on the molecular hydrogen production in the radiolysis of pure water, en phase d'écriture. :2011

[5] IBA *Dossier technique cyclotron Cyclone70*. :cyclo

[6] Haddad, F., Ferrer, L., Guertin, A., Carlier, T., Michel, N., Barbet, J., and Chatal, J. F. (2008) ARRONAX, a high-energy and high-intensity cyclotron for nuclear medicine. *European Journal of Nuclear Medicine and Molecular Imaging*. :2011

[7] National nuclear data center. Brookhaven National Laboratory, http ://www.nndc.bnl.com. :int

[8] (2009) *Lutetium 177 – Broad production capabilities are expected to simulate clinical applications of this important therapeutic radioisotope*, therapeutic radiopharmaceuticals, Vienna, Austria. :2009

[9] Suresh, C. (2011) Paving the way to personalized medicine : production of some theragnostic radionuclides at brookhaven national laboratory. *Radiochimica Acta*, **99**, 635–640. :2011

[10] Simon, D. (2007) *Programme d'optimisation de la production d'un radioélément*. Master's thesis, UFR Sciences et Techniques de Nantes. :sim

[11] Leo, W. (2006) *Techniques for nuclear and particle physics experiments*. Springer-Verlag, 2nd edn. :book

[12] Ziegler, J. F., Biersack, J. P., and Ziegler, M. D. SRIM *: The stopping and range of ions in matter*. :srim

[13] Tárkányi, F., Takács, S., Gul, K., and Hermanne, A. (2001) Charged particle cross-section database for medical radioisotope production : diagnostic radioisotopes and monitor reactions. Tech. rep., IAEA. :iaea

[14] IAEA, http ://www-nds.iaea.org/. :nds

[15] Experimental nuclear reaction data. Brookhaven National Laboratory, http ://nndc.bnl.gov/exfor/. :int

[16] Blaser, J. P., Boehm, F., Marmier, P., and Scherrer, P. (1951) Anregungsfunktionen und wirkungsquerschnitte der (p,n)-reaktion (II). *Helvetica Physica Acta*, **24**, 441. :1951

[17] Tanaka, S. and Furukawa, M. (1959) Excitation functions for (p,n) reactions with titanium, vanadium, chromium, iron and nickel up to Ep=14 MeV. *Journal of the Physical Society of Japan*, **14**, 1269. :1959

[18] Tanaka, S., Furukawa, M., and Chiba, M. (1972) Nuclear reactions of nickel with protons up to 56 MeV. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, **34**, 2419. :1972

[19] Guzhovskii, B. Y., Borkin, I. M., Zvenigorodskii, A. G., Rudnev, V. S., Solodovnikov, A. P., and Trusillo, S. V. (1969) Isospin mixing in isobaric analog resonances observed for ^{59}Cu, ^{61}Cu, ^{63}Cu, ^{65}Cu. *Izv. Rossiiskoi Akademii Nauk, Ser.Fiz.*, **33**, 129. :1969

[20] Sevior, M. E., Mitchell, L. W., Anderson, M. R., Tingwell, C. I. W., and Sargood, D. G. (1983) Absolute cross sections of proton induced reactions on ^{65}Cu, ^{64}Ni and ^{63}Cu. *Australian Journal of Physics*, **36**, 463. :1983

[21] Levkovskij, V. N. (1991) *Activation cross section nuclides of average masses (A=40-100) by protons and alpha-particles with average energies (E=10–50* MeV*)*.. Levkovskij,Act.Cs.By Protons and Alphas,Moscow 1991. :1991

[22] Antropov, A. E., Gusev, V. P., Zhuravlev, Y. Y., Zarubin, P. P., Kolozhvari, A. A., and Smirnov, A. V. (1992) Total cross sections of the (p,n) reaction at nickel and zinc isotopesnuclei at E(p)=5–6 MeV. *Bull.Russian Academy of Sciences - Physics*, **56**, 1829. :1992

[23] Szelecsenyi, F., Blessing, G., and Qaim, S. M. (1993) Excitation functions of proton induced nuclear reaction on enriched ^{61}Ni and ^{64}Ni : possibility of production of no-carrier-added ^{61}Cu and ^{64}Cu at a small cyclotron. *Applied Radiation and Isotopes*, **44**, 575. :1993

[24] Rabut, C. (2009) *Des données aux modèles, première partie :* Splines *cubiques naturelles*. Master's thesis, INSA Toulouse. :rab

[25] Lemonnier, D. (2011) *Étude de la production d'^{225}Ac sur* ARRONAX. Master's thesis, UFR Sciences et Techniques de Nantes. :lem

[26] Avila-Rodriguez, M. A., Nyeb, J. A., and Nickles, R. J. (2007) Simultaneous production of high specific activity ^{64}Cu and ^{61}Co with 11.4 MeV protons on enriched ^{64}Ni nuclei. *Applied Radiation and Isotopes*, **65**, 1115. :2007

[27] Rebeles, R. A., Van den Winkel, P., Hermanne, A., and Tarkanyi, F. (2009) New measurement and evaluation of the excitation function of ^{64}Ni (p,n) reaction for the production of ^{64}Cu. *Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B*, **267**, 457. :2009

[28] Cohen, B. L., Newman, E., and Handley, T. H. (1955) (p,pn)+(p,2n) and (p,2p) cross sections in medium weight elements. *Physical Review*, **99**, 723. :1955

[29] Ditrói, F., Tárkányi, F., and Ali, M. A. (2000) Beam interactions with materials and atoms : Investigation of deuteron induced nuclear reactions on niobium. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, pp. 172–177. :2000

[30] Hermanne, A., Sonck, M., Takács, S., and Tárkányi, F. (2000) Beam interactions with materials and atoms : Experimental study of excitation functions for some reactions induced by deuterons (10–50 MeV) on natural Fe and Ti. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, pp. 178–185. :2000

[31] Takács, S., Tárkányi, F., Sonck, M., and Hermanne, A. (2002) Beam interactions with materials and atoms : New cross-sections and intercomparison of proton monitor reactions on ti, ni and cu. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, **188**, 106–111. :2002

[32] Tárkányi, F., Ditrói, F., and Takács, S. (2003) Beam interactions with materials and atoms : Excitation functions of 3He-particle induced nuclear reaction on iron. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, **211**, 312–318. :2003

[33] Khandaker, M., Uddin, M., Kim, K., Lee, Y., and Kim, G. (2007) Measurement of cross-sections for the (p, xn) reactions in natural molybdenum. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, **262**, 171–181. :2007

[34] *Goodfellow*, http ://www.goodfellow.com/fr/. :int

[35] CERN, http ://geant4.cern.ch/. :int

[36] ROOT. CERN, http ://root.cern.ch/. :int

[37] Atchinson, F. (2001) ORIHET$_3$ *: A guide for users*. http ://www.neutronics.web.psi.ch/doku1/orihet3.pdf. :orihet

[38] D.H. Wright, T. K. (2005). SLAC, http ://www.slac.stanford.edu/comp/physics/geant4/slac_physics_lists. :int

[39] (2003) Accelerators, spectrometers, detectors and associated equipment : G4–a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, **506**, 250–303. :art

[40] Guertin, A., et al. (2004) Neutron and light-charged-particle productions in proton-induced reactions on ^{208}Pb at 62.9 MeV. *The European Physical Journal A*, **23**, 49–60. :2004

[41] de Prévention des Risques SPR, S. Communication privée. :spr

[42] Michel, R., et al. (1997) Cross sections for the production of residual nuclides by low and medium-energy protons from the target elements C, N, O, Mg, Al, Si, Ca, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Sr, Y, Zr, Nb, Ba and Au. *Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B*, **129**, 153. :1997

[43] Khandaker, M. U., Kim, K., Lee, M. W., Kim, K. S., Kim, G. N., Cho, Y. S., and Lee, Y. O. (2009) Investigations of the ^{nat}Ti (p , x) ^{43,44m,44g,46,47,48}Sc, ^{48}V nuclear processes up to 40 MeV. *Applied Radiation and Isotopes*, **67**, 1348. :2009

[44] Sigmund, P. (1969) Theory of sputtering. *Phys. Rev.*, **187**, 768–768. :1969

[45] Nortier, F. M., Mills, S. J., and Steyn, G. F. Excitation functions and yields of relevance to the production of ^{67}Ga by proton bombardment of ^{nat}Zn and ^{nat}Ge up to 100 MeV. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*, **42**, 353–359. :1990

[46] Hilgers, K., Stoll, T., Skakun, Y., Coenen, H. H., and Qaim, S. M. (2003) Cross-section measurements of the nuclear reactions ^{nat}Zn (d , x) ^{64}Cu, ^{66}Zn (d , α) ^{64}Cu and ^{68}Zn (p , αn) ^{64}Cu for production of ^{64}Cu and technical developments for small-scale production of ^{67}Cu via the ^{70}Zn (p ,α) ^{67}Cu process. *Applied Radiation and Isotopes*, **59**, 343–351. :2003

[47] Stoll, T., Shubin, Y. N., Coenen, H. H., and Qaim, S. M. (2005) Excitation functions of proton induced reactions on ^{68}Zn from threshold up to 71 MeV with specific reference to the production of ^{67}Cu. :2005

[48] Bonardi, M. L., Groppi, F., Mainardi, H. S., Kokhanyuk, V. M., Lapshina, E. V., Mebel, M. V., and Zhuikov, B. L. (2005) Cross section studies on ^{64}Cu with zinc target in the proton energy range from 141 down to 31 MeV. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **264**, 101–105. :2005

[49] Michel, R., Peiffer, F., and Stuck, R. (1985) Measurement and hybrid model analysis of integral excitation functions for proton-induced reactions on vanadium, manganese and cobalt up to 200 MeV. *Nuclear Physics, Section A*, **441**, 617. :1985

[50] R, T., H, M., J, A., T, M., and A, T. (2002) Ion-induced luminescence of alumina with time-resolved spectroscopy. *J Nucl Sci Technol*, **39**, 15–18. :2002

[51] CANBERRA, http ://www.canberra.com/products/438055.asp (2008) GÉNIE$_{2000}$ *: Logiciel de spectrométrie*. :genie

[52] J. Magill, J. G., G. Pfennig *Karlsruhe : Nuclide chart*. :nucl

[53] GEANT$_4$ Collaboration, http ://geant4.web.cern.ch/geant4/UserDocumentation/UsersGuides (2010) GEANT$_4$ *User's Guide for Application Developers*. :geant

[54] (1981) *Vop. At.Nauki i Tekhn.,Ser.Yadernye Konstanty*, **1981**, 43. :1981

[55] Michel, R., Brinkmann, G., Weigel, H., and Herr, W. (1978) Proton-induced reactions on titanium with energies between 13 and 45 MeV. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, **40**, 1845. :1978

[56] Kopecky, J. (1985) Proton beam monitoring via the Cu (p , x) ^{58}Co, ^{63}Cu (p , 2n) ^{62}Zn and ^{65}Cu (p ,n) ^{65}Zn reactions in copper. *Applied Radiation and Isotopes*, **36**, 657. :1985

[57] Fink, D., Sisterson, J., Vogt, S., Herzog, G., Klein, J., Middleton, R., Koehler, A., and Magliss, A. (1990) Production of ^{41}Ca and K, Sc and V short-lived isotopes by the irradiation of Ti with 35 to 150 MeV protons : Applications to solar cosmic ray studies. *Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B*, **52**, 601. :1990

[58] (1980) *Journal of Radioanalytical Chemistry*, **59**, 467. :1980

[59] Neumann, S. (1999) *Activation experiments with medium-energy neutrons and the production of cosmogenic nuclides in extraterrestrial matter*. Ph.D. thesis, thesis or dissertation. :1999

[60] Szelecsenyi, F., Tárkányi, F., Takács, S., Hermanne, A., Sonck, M., Shubin, Y., Mustafa, M. G., and Zhuang, Y. (2001) Excitation function for the ^{nat}Ti (p , x) ^{48}V nuclear process : Evaluation and new measurements for practical applications. *Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B*, **174**, 47. :2001

[61] Abe, K., Iizuka, A., Hasegawa, A., and Morozumi, S. (1984) Induced radioactivity of component materials by 16 MeV protons and 30 MeV alpha particles. *Journal of Nuclear Materials*, **123**, 972. :1984

[62] Takács, S., Tárkányi, F., Sonck, M., and Hermanne, A. (2002) New cross-sections and intercomparison of proton monitor reactions on Ti, Ni and Cu. *Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B*, **188**, 106. :2002

[63] Huclier-Markai, S., Sabatie, A., Ribet, S., Kubícek, V., Paris, M., Vidaud, C., Hermann, P., and Cutler, C. S. (2011) Chemical and biological evaluation of scandium(III)-polyaminopolycarboxylate complexes as potential PET agents and radiopharmaceuticals. *Radiochimica Acta*, **99**, 653–662. :2011

[64] McGee, T., Rao, C. L., Saha, G. B., and Yaffe, L. (1970) Nuclear interactions of ^{45}Sc and ^{68}Zn with protons of medium energy. *Nuclear Physics, Section A*, **150**, 11. :1970

[65] Stoll, T., Kastleiner, S., Shubin, Y. N., Coenen, H. H., and Qaim, S. M. (2002) Excitation functions of proton induced reactions on ^{68}Zn from threshold up to 71 MeV, with specific reference to the production of ^{67}Cu. *Radiochimica Acta*, **90**, 309. :2002

[66] Szelecsenyi, F., Steyn, G. F., Dolley, S. G., Kovacs, Z., Vermeulen, C., and van der Walt, T. N. (2009) Investigation of the ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu nuclear reaction : New measurements up to 40 MeV and compilation up to 100 MeV. *Nucl. Instrum. Methods in Physics Res., Sect.B*, **267**, 1877. :2009

[67] Morrison, D. L. and Caretto Jr, A. A. (1964) Recoil study of the ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu reaction. *Physical Review*, **133**, B1165. :1964

[68] Sidqi, N. (2008) *Etude d'électrodéposition de Zinc sur différents supports*. Master's thesis, DUT Mesures Physiques. :rap

[69] Dirks, C., Scholten, B., Happel, S., Zulauf, A., Bombard, A., and Jungclas, H. (2010) Characterisation of a Cu selective resin and its application to the production of ^{64}Cu. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **286**, 671–674. :2010

[70] Barrandon, J. N., Debrun, J. L., Kohn, A., and Spear, R. H. (1975) étude du dosage de Ti, V, Cr, Fe, Ni, Cu et Zn par activation avec des protons d'énergie limitée a 20 MeV. *Nuclear Instrum.and Methods in Physics Res.*, **127**, 269. :1975

[71] Al-Saleh, F. S., Al Mugren, K. S., and Azzam, A. (2007) Excitation functions of (p,x) reactions on natural nickel between proton energies of 2.7 and 27.5 MeV. *Applied Radiation and Isotopes*, **65**, 104. :2007

[72] Aleksandrov, V. N., Semenova, M. P., and Semenov, V. G. (1987) Production cross section of radionuclides in (p,x) reactions at copper and nickel nuclei. *Atomnaya Energiya*, **62**, 411. :1987

[73] Landini, L. and Osso Jr, J. A. (2001) Simultaneous production of ^{57}Co and ^{109}Cd in cyclotron. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **250**, 429. :2001

[74] (1977) *Applied Radiation and Isotopes*, **28**, 533. :1977

[75] Grutter, A. (1982) Excitation functions for radioactive isotopes produced by proton bombardment of Cu and Al in the energy range of 16 to 70 MeV. *Nuclear Physics, Section A*, **383**, 98. :1982

[76] Mills, S. J. (1992) *Applied Radiation and Isotopes*, **43**, 1019. :1992

[77] Williams, I. R. and Fulmer, C. B. (1967) Excitation functions for radioactive isotopes produced by protons below 60 MeV on Al, Fe, and Cu. *Physical Review*, **162**, 1055. :1967

[78] Al-Saleh, F. S., Al-Harbi, A. A., and Azzam, A. (2006) Excitation functions of proton induced nuclear reactions on natural copper using a medium-sized cyclotron. *Radiochimica Acta*, **94**, 391. :2006

[79] Yashima, H., Uwamino, Y., Iwase, H., Sugita, H., Nakamura, T., Ito, S., and Fukumura, A. (2003) Measurement and calculation of radioactivities of spallation productsby high-energy heavy ions. *Radiochimica Acta*, **91**, 689. :2003

[80] Yoshizawa, Y., Noma, H., Horiguchi, T., Katoh, T., Amemiya, S., Itoh, M., Hisatake, K., Sekikawa, M., and Chida, K. (1976) Isotope separator on-line at INS FM Cyclotron. *Nuclear Instrum.and Methods in Physics Res.*, **134**, 93. :1976

[81] ALICE-IPPE. Institute for Physics & Power Engineering, http ://www.ippe.ru/podr/cjd/page2_1_cjd.html. :int

[82] EMPIRE. NEA, http ://www.oecd-nea.org/tools/abstract/detail/iaea1169. :int

[83] FLUKA. Http ://www.fluka.org/fluka.php. :int

[84] Haddad, F. (2010) *Production d'isotopes radioactifs dans la gamme 10* MeV–*70* MeV *à des fins médicales*. Ph.D. thesis, UFR Sciences et Techniques de Nantes. :haddad

[85] TALYS. Http ://www.talys.eu/. :int

[86] NRG, http ://www.nrg.eu/. :int

[87] A.J. Koning, S. H. and Duijvestijn, M. (2007) "TALYS-1.0", proceedings of the international conference on nuclear data for science and technology. *ND2007*, pp. 211–214. :art

[88] validation of TALYS. Http ://www.talys.eu/more-about-talys/validation-of-talys/. :valide

[89] Aslam, M., Sudár, S., Hussain, M., Malik, A. A., Shah, H. A., and Qaim, S. M. (2009) Charged particle induced reaction cross section data for production of the emerging medically important positron emitter ^{64}cu : A comprehensive evaluation. *Radiochimica Acta*, **97**, 669–686. :2009

[90] (2011) *Production of ^{64}Cu via ^{64}Ni (d,2n) ^{64}Cu for medical applications*, 7th International Conference on Isotopes, Moscou, Russia. :2011

Résumé

De nouveaux radio-isotopes pour la médecine nucléaire peuvent être produits par des accélérateurs de particules. C'est l'un des buts d'ARRONAX, un cyclotron de hautes énergies – 70 MeV – et hautes intensités – $2 \times 350 \mu A$ – installé à Nantes. Une liste d'émetteurs β^- – ^{47}Sc, ^{67}Cu – β^+ – ^{44}Sc, ^{64}Cu, ^{68}Ge/^{68}Ga, ^{82}Sr/^{82}Rb – et α – ^{211}At – à étudier en priorité a été établie. Parmi ceux là, le ^{47}Sc et le ^{67}Cu présentent un intérêt en thérapie ciblée. L'optimisation de leurs productions nécessite la bonne connaissance de leurs sections efficaces, mais aussi de celles de tous les contaminants créés. Nous avons lancé sur ARRONAX un programme de mesures de sections efficaces utilisant la technique des *Stacked-foils*. Elle consiste en l'irradiation simultanée d'un groupe de feuilles – cibles, moniteurs et dégradeurs – et la mesure par spectro-γ de la production d'isotopes. Les moniteurs permettent un contrôle des pertes de faisceau tandis que les dégradeurs en diminuent l'énergie. Nous avons étudié les réactions ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc et ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu. Les cibles étant respectivement des feuilles de ^{nat}Ti – achetées chez *Goodfellow* – ou des électrodépositions sur ^{nat}Ag de ^{68}Zn enrichi. Nous les réalisons nous même ainsi que la séparation chimique des isotopes de Cuivre et de Gallium indispensable avant de procéder au comptage γ. Les sections efficaces de plus de 40 réactions ont ainsi été obtenues sur l'intervalle de 18 MeV à 70 MeV. Une comparaison avec le code TALYS est systématiquement faite, et plusieurs paramètres des modèles théoriques étudiés. Nous montrons qu'il est impossible de reproduire avec exactitude toutes les sections efficaces à partir d'un seul jeu de ces paramètres.
Mots clés : section efficace — médecine nucléaire — *stacked-foils* — ARRONAX — scandium 47 — cuivre 67 — TALYS

Abstract

New radioactive isotopes for nuclear medicine can be produced using particle accelerators. This is one goal of ARRONAX, a high energy – 70 MeV – high intensity – $2 \times 350 \mu A$ – cyclotron set up in Nantes. A priority list was established containing β^- – ^{47}Sc, ^{67}Cu – β^+ – ^{44}Sc, ^{64}Cu, ^{68}Ge/^{68}Ga, ^{82}Sr/^{82}Rb – and α emitters – ^{211}At. Among these radioisotopes, the Scandium 47 and the Copper 67 have a strong interest in targeted therapy. The optimization of their productions required a good knowledge of their cross-sections but also of all the contaminants created during irradiation. We launched on ARRONAX a program to measure these production cross-sections using the *Stacked-foils*' technique. It consists in irradiating several groups of foils – target, monitor and degrader foils – and in measuring the produced isotopes by γ-spectrometry. The monitor – ^{nat}Cu or ^{nat}Ni – is used to correct beam loss whereas degrader foils are used to lower beam energy. We chose to study the ^{nat}Ti (p,X) ^{47}Sc and ^{68}Zn (p,2p) ^{67}Cu reactions. Targets are respectively natural Titanium foil – bought from Goodfellow – and enriched Zinc 68 deposited on Silver. In the latter case, Zinc targets were prepared in-house – electroplating of ^{68}Zn – and a chemical separation between Copper and Gallium isotopes has to be made before γ counting. Cross-section values for more than 40 different reactions cross-sections have been obtained from 18 MeV to 70 MeV. A comparison with the TALYS code is systematically done. Several parameters of theoretical models have been studied and we found that is not possible to reproduce faithfully all the cross-sections with a given set of parameters.
Keywords : cross-section — nuclear medecine — *stacked-foils* — ARRONAX — scandium 47 — copper 67 — TALYS