



**HAL**  
open science

## Isotopes radioactifs produits par voies non conventionnelles

Etienne Nigron

► **To cite this version:**

Etienne Nigron. Isotopes radioactifs produits par voies non conventionnelles. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Nantes - Faculté des Sciences et Techniques, 2019. Français. NNT: . tel-02433056

**HAL Id: tel-02433056**

**<https://theses.hal.science/tel-02433056>**

Submitted on 8 Jan 2020

**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.

# THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE DE NANTES  
COMUE UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE

ECOLE DOCTORALE N° 596  
*Matière, Molécules, Matériaux*  
Spécialité : Physique Nucléaire

Par

**Etienne NIGRON**

## Isotopes radioactifs produits par voies non conventionnelles

Thèse présentée et soutenue à Nantes, le 20 septembre 2019  
Unité de recherche : Laboratoire SUBATECH, UMR 6457  
Thèse N° :

### Rapporteurs avant soutenance :

Maëlle KERVENO  
Xavier LEDOUX

Chargée de Recherche CNRS/IN2P3, IPHC  
Chargé de Recherche CEA, GANIL

### Composition du Jury :

Président :	Philippe EUDES	Professeur de l'Université de Nantes, Subatech
Examineurs :	Gaia PUPILLO Gilles de FRANCE	Chargée de Recherche INFN, LNL et FE Directeur de Recherche CNRS/IN2P3, GANIL
Directeur de thèse :	Férid HADDAD	Professeur de l'Université de Nantes, Subatech, GIP ARRONAX
Co-encadrant :	Arnaud GUERTIN	Chargé de Recherche CNRS/IN2P3, Subatech



# Remerciements

Tout d'abord je souhaite remercier mes encadrants de thèse.

Merci Férid de m'avoir guidé durant cette thèse et de m'avoir apporté toutes ces connaissances.

Je remercie également Arnaud, sérieux concurrent à George Abitbol, d'avoir été là au quotidien et d'avoir été aux petits soins particulièrement sur les démarches administratives que je déteste. Durant cette thèse, tout s'est bien déroulé et je vous en remercie.

Je veux remercier les membres de l'équipe PRISMA qui m'ont aidé dans mon travail. Charbel pour tes réponses et nos discussions qui m'ont permis de comprendre et d'avancer. Noël pour ta grande participation à la mise en place du dispositif expérimental. Thomas pour ton travail sur l'électrodéposition et de m'avoir tout expliqué en détails. Nathalie pour m'avoir aidé à répondre à certaines problématiques. Merci à toute l'équipe PRISMA pour votre aide et votre sympathie.

Merci à l'administration de votre gentillesse. Merci aux équipes d'ARRONAX (SPR, GA, l'administration...) de m'avoir permis de réaliser mes expériences au cyclotron.

Merci à Charlotte pour m'avoir fait découvrir ce domaine de la physique et de m'avoir transmis tes connaissances sur la technique des « stacked foils ». Merci à mes collègues de bureau pour votre soutien et les bons moments partagés ; Alexandre avec sa maîtrise incroyable du topdeck, Flavien le sous-chef presque rien ne t'arrive à la cheville surtout en termes d'humour, Quentin qui cache j'en suis sûr sous ses vêtements non pas l'uniforme de superman mais son uniforme de pompier. Merci aux autres doctorants du laboratoire avec qui nous avons partagé des discussions tantôt sérieuses et bien souvent décalées : Antony, Chloé, David, David, Emeline, Erwann, Florian, Gabriel, Manu, Mateusz, Ophélie, Stéphane.

Je souhaite remercier ma famille qui a toujours été là pour moi. Merci pour votre soutien clairement de taille. Je vous aime.

Je remercie mes amis de leur soutien et de leur curiosité dans mon travail de thèse : Benoit, Ellen, Sami mais aussi Antoine, Bastien, Gwen, Lucie, Max, Paul, Pierre-Antoine, Simon et évidemment tous les autres. Je souhaiterais faire un clin d'œil aux

membres de l'équipe : Gosu, Stouphy, Paca, Jack, Thorium, Math, Motard et Beejee.

« Tout poutre ! ». Rock and Stone, brothers !

Yahya, toujours souriant et de bonne humeur, et Flavia au doigt tueur, je vous remercie pour votre soutien, les bons conseils et pour ces soirées inoubliables. Cela a été une joie de partager ces parties de jeux de sociétés et de manière générale tous ces moments avec vous.

Il m'est difficile de trouver les mots appropriés pour décrire à quel point votre soutien m'a été précieux et pour lequel je ne vous remercierai jamais assez.

Avec toute ma reconnaissance.

# Tables des matières

<b>CHAPITRE I. LES RADIONUCLEIDES EN MEDECINE.....</b>	<b>7</b>
1. LA RADIOACTIVITE.....	8
1.1. LA DECROISSANCE ALPHA.....	9
1.2. LA DECROISSANCE BETA ET LA CAPTURE ELECTRONIQUE.....	9
1.2.1. La décroissance bêta - .....	9
1.2.2. La décroissance bêta +.....	10
1.2.3. La capture électronique .....	10
1.3. LES EMISSIONS DE PHOTONS .....	11
1.4. LES ELECTRONS DE CONVERSION INTERNE ET ELECTRONS AUGER .....	11
2. LA CLASSIFICATION DES NOYAUX PAR LEURS PROPRIETES PHYSIQUES .....	12
3. LES RADIONUCLEIDES EN MEDECINE.....	14
3.1. LE RADIOPHARMACEUTIQUE.....	15
3.2. L'IMAGERIE MEDICALE .....	15
3.2.1. La tomographie par émission mono-photonique (TEMP).....	15
3.2.2. La tomographie par émission de positon (TEP) .....	16
3.3. LA THERAPIE.....	16
3.3.1. La radiothérapie interne vectorisée .....	16
3.3.2. La curiethérapie .....	18
3.3.3. L'approche théranostique .....	18
4. LA PRODUCTION DE RADIONUCLEIDES.....	19
4.1. LE PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DES ACCELERATEURS DE PARTICULES .....	19
4.2. LES VOIES NON-CONVENTIONNELLES DE PRODUCTION .....	21
<b>CHAPITRE II. LA MESURE DE SECTION EFFICACE : MATERIEL ET METHODE .....</b>	<b>23</b>
1. LA SECTION EFFICACE, CALCUL DANS LE CAS DE CIBLES MINCES ET EPAISSES.....	24
1.1. LA NOTION DE SECTION EFFICACE .....	24
1.2. LA FORMULE D'ACTIVATION POUR DES CIBLES EPAISSES.....	24
1.3. LA FORMULE D'ACTIVATION POUR DES CIBLES MINCES.....	25
2. LA TECHNIQUE DES « STACKED FOILS » .....	26
3. LA PERTE D'ENERGIE DES PARTICULES LOURDES CHARGEES DANS LA MATIERE .....	27
4. LA MESURE DE L'EPAISSEUR DES CIBLES .....	30
5. LA MESURE D'ACTIVITE A L'AIDE D'UN SPECTROMETRE GAMMA .....	31
5.1. LE SPECTROMETRE GAMMA .....	31
5.2. LES INTERACTIONS PHOTON/MATIERE.....	32
5.2.1. L'effet photoélectrique .....	32
5.2.2. La diffusion Compton.....	33
5.2.3. La création de paires .....	34
5.2.4. Les processus sur un spectre gamma.....	35
5.3. L'ACQUISITION DE DONNEES .....	36

5.3.1.	L'étalonnage en énergie du détecteur .....	36
5.3.2.	L'étalonnage en efficacité du détecteur .....	38
5.3.3.	L'acquisition de spectres dans la pratique .....	40
5.4.	L'ANALYSE DES SPECTRES .....	41
5.4.1.	Le calcul d'activité à partir d'une émission gamma .....	41
5.4.2.	Le calcul d'activité lorsque plusieurs émissions gamma entre en jeu .....	42
6.	LA DETERMINATION DE L'ENERGIE SEUIL DE REACTION .....	43
7.	LA NOTION D'ACTIVITE SPECIFIQUE .....	44
8.	L'ESTIMATION DE L'ACTIVITE PRODUITE PAR LE CALCUL DE RENDEMENT EN CIBLE EPAISSE .....	44
9.	LA DETERMINATION DE SECTIONS EFFICACES A TRAVERS L'OUTIL TALYS .....	46
10.	CONCLUSION SUR LE CHAPITRE .....	48
	<b>CHAPITRE III. LA MESURE DE COURANT .....</b>	<b>49</b>
1.	LA MESURE DE COURANT PAR LES REACTIONS MONITEURS .....	50
1.1.	LA REACTION MONITEUR .....	50
1.2.	LE CALCUL DE SECTION EFFICACE .....	50
1.3.	L'INCERTITUDE DE LA METHODE RELATIVE .....	51
2.	LA MESURE DE COURANT A L'AIDE DE LA « FARADAY CUP » .....	52
2.1.	LA MESURE DU FLUX DE PARTICULES AVEC UNE « FARADAY CUP » .....	52
2.2.	LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL .....	54
2.3.	ETUDE DE LA MESURE DE COURANT .....	57
2.3.1.	La réponse du dispositif à un courant donné .....	57
2.3.2.	Les expériences d'étude de la mesure de courant à l'aide de la « Faraday cup » .....	59
2.4.	LA VALIDATION DU DISPOSITIF DE MESURE DE COURANT AVEC LA FARADAY A TRAVERS LES COURBES DE SECTION EFFICACE DITES DE REFERENCE. ....	72
2.4.1.	Une réaction moniteur avec des protons .....	72
2.4.2.	Une réaction moniteur avec des deutons .....	73
2.4.3.	Une réaction moniteur avec des particules alpha .....	74
3.	LES CONCLUSIONS DU CHAPITRE .....	74
	<b>CHAPITRE IV. LA PRODUCTION DU <sup>197M</sup>HG SUR DE L'OR AVEC UN FAISCEAU DE DEUTONS ....</b>	<b>77</b>
1.	LE RADIONUCLEIDE <sup>197M</sup> HG .....	78
1.1.	L'INTERET DU <sup>197M</sup> HG .....	78
1.2.	LES VOIES DE PRODUCTION DU <sup>197M</sup> HG .....	79
1.2.1.	Les voies de production avec des protons .....	80
1.2.2.	Les voies de production avec des particules alpha .....	81
1.2.3.	Les voies de production avec des deutons .....	82
2.	LES MESURES DE SECTIONS EFFICACES DE PRODUCTION <sup>197</sup> AU(D,X) <sup>197M</sup> HG .....	84
2.1.	LES EXPERIENCES « STACKED FOILS » .....	84
2.2.	LA DETERMINATION DES POINTS DE MESURES EN ENERGIE .....	85
2.3.	LA MESURE D'ACTIVITE DES FEUILLES IRRADIEES .....	87
2.4.	LA MESURE D'ACTIVITE DU <sup>48</sup> V .....	90

2.5.	LE CALCUL DE LA SECTION EFFICACE DES NOYAUX A L'ETAT FONDAMENTAL .....	91
3.	LES RESULTATS .....	94
3.1.	LA REACTION MONITEUR : $^{NAT}Ti(D,X)^{48}V$ .....	94
3.2.	LES REACTIONS D'INTERET : $^{197}Au(D,2N)^{197G}Hg$ & $^{197M}Hg$ .....	96
3.3.	LA PRODUCTION DE CONTAMINANTS .....	98
3.3.1.	Le radionucléide $^{195m}Hg$ .....	99
3.3.2.	Le radionucléide $^{196m2}Au$ .....	100
3.3.3.	Les radionucléides $^{196g}Au$ & $^{196m1}Au$ .....	101
3.3.4.	Le radionucléide $^{198m}Au$ .....	102
3.3.5.	Le radionucléide $^{198g}Au$ .....	104
3.4.	L'ESTIMATION DE L'ACTIVITE PRODUITE EN CIBLE EPAISSE .....	104
4.	CONCLUSION DU CHAPITRE .....	105
	<b>CHAPITRE V. LA PRODUCTION DE <math>^{67}Cu</math> SUR UNE CIBLE ENRICHIE EN <math>^{70}Zn</math> .....</b>	<b>107</b>
1.	LE RADIONUCLEIDE $^{67}Cu$ .....	108
1.1.	L'INTERET DU $^{67}Cu$ .....	108
1.2.	LES VOIES DE PRODUCTION DU $^{67}Cu$ .....	109
1.2.1.	Les voies de production avec des protons .....	110
1.2.2.	Les voies de production avec des particules alpha .....	114
1.2.3.	Les voies de production avec des deutons .....	116
2.	LES MESURES DE SECTIONS EFFICACES DE PRODUCTION $^{70}Zn(D,X)^{67}Cu$ .....	118
2.1.	LA FABRICATION DES CIBLES .....	118
2.2.	LES EXPERIENCES DE « STACKED FOILS » .....	122
2.2.1.	Les irradiations .....	122
2.2.2.	La détermination des points de mesure en énergie .....	123
2.2.3.	La mesure d'activité des feuilles irradiées .....	125
2.2.4.	L'extraction des valeurs de sections efficace du $^{67}Cu$ et prise en compte de la pollution de $^{67}Ga$ .....	128
2.2.5.	La mesure d'activité du $^{48}V$ .....	129
3.	LES RESULTATS .....	130
3.1.	LA REACTION D'INTERET $^{70}Zn(D,X)^{67}Cu$ .....	130
3.2.	LA PRODUCTION DE CONTAMINANTS .....	131
3.2.1.	Le radionucléide $^{67}Ga$ .....	132
3.2.2.	Le radionucléide $^{61}Cu$ .....	133
3.2.3.	Le radionucléide $^{66}Ni$ .....	134
3.3.	L'ESTIMATION DE L'ACTIVITE PRODUITE EN CIBLE EPAISSE .....	135
4.	CONCLUSIONS DU CHAPITRE .....	136
	<b>CHAPITRE VI. ETUDE DE LA VALORISATION DES PRODUITS DE FISSION .....</b>	<b>137</b>
	<b>CONCLUSION ET PERSPECTIVES .....</b>	<b>139</b>



# Chapitre I. Les radionucléides en médecine

<b>1. LA RADIOACTIVITE .....</b>	<b>8</b>
1.1. LA DECROISSANCE ALPHA.....	9
1.2. LA DECROISSANCE BETA ET LA CAPTURE ELECTRONIQUE.....	9
1.2.1. La décroissance bêta - .....	9
1.2.2. La décroissance bêta + .....	10
1.2.3. La capture électronique .....	10
1.3. LES EMISSIONS DE PHOTONS .....	11
1.4. LES ELECTRONS DE CONVERSION INTERNE ET ELECTRONS AUGER .....	11
<b>2. LA CLASSIFICATION DES NOYAUX PAR LEURS PROPRIETES PHYSIQUES .....</b>	<b>12</b>
<b>3. LES RADIONUCLEIDES EN MEDECINE .....</b>	<b>14</b>
3.1. LE RADIOPHARMACEUTIQUE.....	15
3.2. L'IMAGERIE MEDICALE .....	15
3.2.1. La tomographie par émission mono-photonique (TEMP).....	15
3.2.2. La tomographie par émission de positon (TEP) .....	16
3.3. LA THERAPIE.....	16
3.3.1. La radiothérapie interne vectorisée .....	16
3.3.2. La curiethérapie .....	18
3.3.3. L'approche théranostique .....	188
<b>4. LA PRODUCTION DE RADIONUCLEIDES .....</b>	<b>19</b>
4.1. LE PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DES ACCELERATEURS DE PARTICULES.....	19
4.2. LES VOIES NON-CONVENTIONNELLES DE PRODUCTION .....	21

## 1. La radioactivité

L'environnement, qui nous entoure, est composé d'atomes. Ces atomes sont constitués d'électrons (particules de charge négative -1) et d'un noyau constitué de protons et de neutrons. La taille des noyaux est de l'ordre de  $10^{-14}$  m. A titre comparatif, les différents ordres de grandeurs de la taille des galaxies aux protons/neutrons sont présentés dans le tableau 1.1.

	Galaxie	Soleil	Terre	Humain	Cellule	Molécule	Atome	Noyau	Proton Neutron
Ordre de grandeur (m)	$10^{21}$	$10^9$	$10^7$	1	$10^{-5}$	$10^{-9}$	$10^{-10}$	$10^{-14}$	$10^{-15}$

Table 1.1 - Tableau des ordres de grandeurs, en mètre, de la taille de la galaxie aux protons/neutrons.

Un noyau X peut s'écrire sous la forme  ${}^A_ZX$  avec Z le numéro atomique égal au nombre de protons (charge électrique +1) et A le nombre de masse égal au nombre de nucléons (protons + neutrons). Compte tenu du caractère neutre de l'atome, il y aura Z électrons associés à un noyau contenant Z protons. En changeant le nombre de neutrons d'un noyau, le nombre d'électrons restera inchangé. Les noyaux possédant le même Z sont des isotopes et possèdent les mêmes propriétés chimiques. L'élément X donnant indirectement le nombre de protons, le Z n'est souvent pas écrit lorsqu'on parle d'un noyau.

La plupart des noyaux présents dans notre environnement sont stables. Cependant, il existe de très nombreuses configurations de neutrons et de protons qui sont instables. Elles vont chercher à trouver une stabilité en émettant, à un moment donné, un ou des rayonnements. Ces noyaux instables sont dits radioactifs et les mécanismes de transformation sont souvent caractérisés par le terme de décroissance ou encore de désintégration radioactive. La radioactivité peut être naturelle (radioactivité tellurique ...) ou artificielle (production en accélérateur, réacteur). Les différents rayonnements émis lors de la décroissance sont appelés alpha, bêta et gamma. Ils sont émis avec une certaine énergie, l'unité utilisée, dans ce domaine de la physique, est l'électronvolt (eV) où  $1 \text{ eV} = 1,6 \cdot 10^{-19}$  Joule. L'électronvolt a été défini à partir de l'énergie acquise par un électron soumis à une différence de potentiel de 1 V.

## 1.1. La décroissance alpha

Certains noyaux, particulièrement les plus lourds, vont émettre un noyau  $\text{He}^{2+}$  lors de leur décroissance, c'est la décroissance alpha. Ce noyau  $\text{He}^{2+}$ , composé de 2 protons et de 2 neutrons, va être émis avec une certaine énergie cinétique dépendant des caractéristiques du noyau initial émetteur et du noyau fils.

Avec X le noyau radioactif émetteur alpha, sa décroissance peut s'écrire comme (1.1) où Y est le noyau résultant de cette émission. Le noyau Y est appelé noyau fils et X le noyau père.



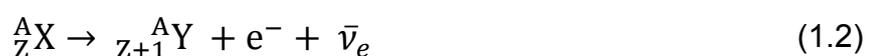
Les particules alpha sont émises avec une énergie de l'ordre de plusieurs MeV. Cependant, compte tenu de sa charge, doublement positivement, la particule alpha va être très peu pénétrante et va rapidement déposer toute son énergie dans la matière. Typiquement, une feuille de papier ou la couche externe de la peau suffit pour l'arrêter. Ce fort dépôt d'énergie sur une distance courte (quelques dizaines de  $\mu\text{m}$  dans l'eau) peut être particulièrement destructeur sur des cellules.

## 1.2. La décroissance bêta et la capture électronique

La décroissance bêta concerne les noyaux radioactifs capables de transformer un neutron en proton ou inversement. Cette décroissance laisse invariant le nombre de nucléons, décroissance isobare. La décroissance bêta est différenciée suivant l'émission d'un électron ou d'un positon et est appelée respectivement bêta- et bêta+.

### 1.2.1. La décroissance bêta -

Dans le cas de la décroissance bêta-, le neutron est transformé en proton. Ce mécanisme s'applique pour les noyaux riches en neutrons. Pour conserver le nombre de charges, un électron est expulsé du noyau et est accompagné de l'émission d'un antineutrino pour conserver le nombre leptonique. La réaction associée à ce mécanisme peut s'écrire sous la forme :



La différence d'énergie entre le noyau père et le noyau fils va être répartie entre l'électron et l'antineutrino sous forme d'énergie cinétique. Le partage variant d'une

désintégration à l'autre, nous avons une distribution continue en énergie des électrons émis. L'énergie cinétique des électrons émis peut varier de quelques dizaines de keV à plusieurs MeV. Compte tenu de leur charge -1 et de leur faible masse, les électrons ont un grand parcours dans les tissus (jusqu'à quelques mm). En termes de radioprotection, une couche d'aluminium de quelques millimètres permet de s'en prémunir.

### 1.2.2. La décroissance bêta +

Cette décroissance correspond à la transformation d'un proton en neutron via l'émission d'un positon, l'antiparticule de l'électron, et d'un neutrino. Cette décroissance s'écrit sous la forme :



La différence d'énergie entre le noyau père et le noyau fils va être répartie entre le positon et le neutrino sous forme d'énergie cinétique. Le partage variant d'une désintégration à l'autre, nous avons une distribution continue en énergie des positons émis. Le positon émis va très rapidement perdre son énergie dans la matière puis s'annihiler avec un électron du milieu donnant naissance à deux photons gamma de 511 keV émis dans des directions opposées.

### 1.2.3. La capture électronique

La capture électronique est un mécanisme de décroissance qui est en compétition avec la décroissance bêta+. Ces deux modes de désintégrations sont observés pour des noyaux possédant un excès de protons. Ils partent du même noyau père et arrivent sur le même noyau fils. La capture électronique transforme un proton en neutron, elle s'écrit sous la forme :



Une lacune est créée dans le cortège électronique qui va se combler via l'émission de rayons X ou l'émission d'électrons Auger. Le noyau fils peut être dans un état excité à l'issue de la capture électronique et il va descendre vers l'état fondamental par transition interne ou par conversion interne.

### 1.3. Les émissions de photons

Le photon peut être un corpuscule élémentaire ou quantum d'énergie associé à une onde électromagnétique. Sur la figure 1.1 est présenté le spectre des ondes électromagnétiques couvrant un domaine de longueurs d'ondes allant des rayons gamma aux ondes radio. Le domaine du visible allant de 400 nm à 800 nm est agrandi sur la figure. L'énergie des rayons X varie de l'eV à quelques dizaines de keV et les photons gamma ont une énergie au-delà de la dizaine keV. Les photons gamma sont très pénétrant, ils interagissent peu avec la matière. En radioprotection, des couches épaisses de plomb (plusieurs centimètres) ou de béton (de l'ordre du mètre) sont utilisées pour réduire ces rayonnements.

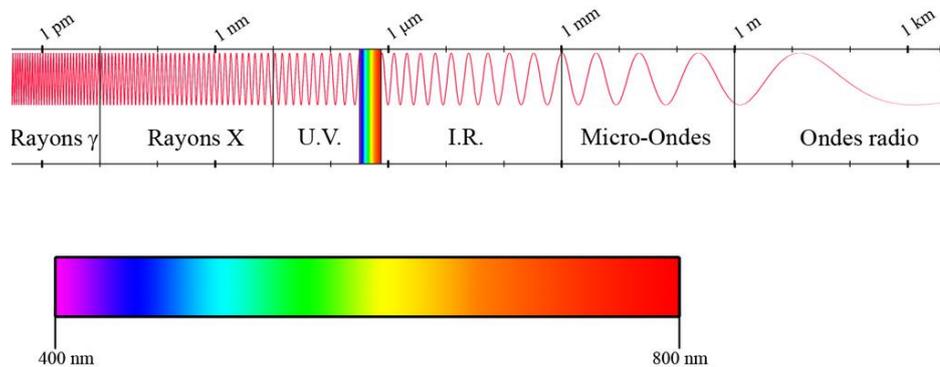


Figure 1.1 - Spectre des longueurs d'ondes électromagnétiques avec un grossissement sur le domaine du visible.

Un noyau possédant un surplus d'énergie sous forme d'excitation interne peut l'évacuer sous forme d'émission de photons, c'est le mécanisme de la transition interne. Ces émissions accompagnent souvent les décroissances radioactives pour lesquelles le noyau fils est dans un état excité.

### 1.4. Les électrons de conversion interne et électrons Auger

En compétition avec l'émission de photons, un noyau possédant un surplus d'énergie sous forme d'excitation interne peut libérer cette énergie par conversion interne. L'énergie excédentaire est transférée à un électron du cortège électronique. Cet électron est alors éjecté et il est appelé électron de conversion interne.

Lorsqu'un électron est éjecté, un trou est laissé dans le cortège électronique. Un électron d'une couche supérieure va venir combler ce trou et peut, soit entraîner l'émission d'un photon X dont l'énergie correspond à la différence d'énergie de liaison entre les deux couches, soit donner cette énergie à un électron périphérique du cortège

électronique ce qui lui permet d'être éjecté sous la forme d'un électron Auger, principe présenté en figure 1.2.

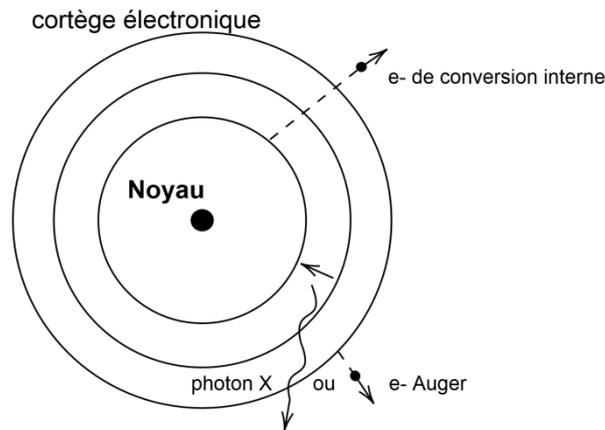


Figure 1.2 - Schéma de principe de désexcitation d'un atome par conversion interne.

A chaque radiation sont associées une énergie caractéristique (keV) et une intensité (%). L'intensité correspond au nombre de rayonnements d'un type à une énergie donnée émis pour 100 désintégrations. Il arrive dans certain cas que ce chiffre soit supérieur à 100 comme par exemple pour l'émission de photons de 511 keV lors de la décroissance bêta+. La somme des probabilités d'émission des rayonnements émis peut aussi dépasser 100 % puisqu'il peut y avoir plusieurs radiations émises pour assurer le passage d'un état excité à l'état fondamental.

## 2. La classification des noyaux par leurs propriétés physiques

Les nucléides, c'est à dire les noyaux caractérisés par un nombre de protons et de neutrons, sont classés dans la charte des nucléides, présentée en figure 1.3. Sur cette figure, en ordonnée nous avons le nombre de protons et en abscisse le nombre de neutrons constituant le nucléide. Chaque carré représente un noyau. En noir, les noyaux stables présents dans la nature forment la vallée de stabilité, correspondant grossièrement à  $Z=N$  pour les noyaux légers. Les noyaux, représentés par une couleur différente du noir, sont radioactifs et vont chercher à retrouver la vallée de stabilité par décroissance. Les couleurs définissent le mode de décroissance dominant du noyau : en bleu pour la décroissance bêta+/capture électronique, rose la décroissance bêta- et jaune la décroissance alpha.

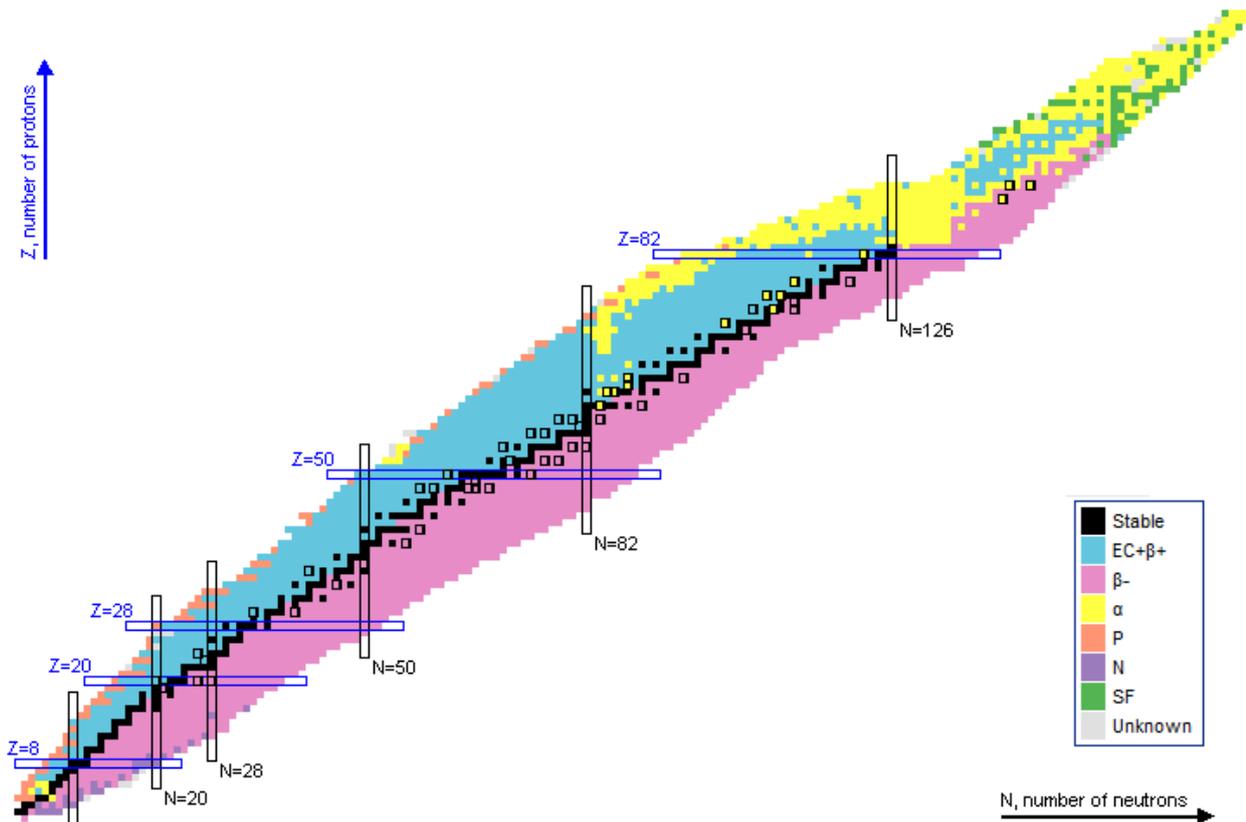


Figure 1.3 - Charte des nucléides extraite de NNDC où les différentes couleurs caractérisent le mode de décroissance [1].

Les noyaux radioactifs vont mettre plus ou moins de temps à décroître. La grandeur physique caractérisant ce temps de décroissance est le temps de demi-vie qui correspond au temps au bout duquel une population initiale de noyaux a décré de moitié. Le temps de demi-vie est propre à chaque espèce nucléaire. Nous pouvons connaître l'évolution de la population en utilisant l'expression de la loi de décroissance radioactive présentée en (1.5).

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.5)$$

$$\text{Avec } \lambda = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} \quad (1.6)$$

Où  $N(t)$  est le nombre de noyaux d'un radionucléide à l'instant  $t$ ,  $N_0$  est la population initiale à  $t = 0$ ,  $\lambda$  la constante radioactive du radionucléide en  $s^{-1}$  donnée par l'expression (1.6) et  $T_{1/2}$  le temps de demi-vie en seconde.

La charte des nucléides peut aussi être représentée en utilisant un code couleur associé aux valeurs de temps de demi-vie, figure 1.4. Nous pouvons voir en noir les noyaux stables ou à durée de vie très longue. Les nucléides en périphérie ont des durées de vie extrêmement courtes (vert clair, jaune, rose...) c'est-à-dire ceux possédant un grand excès de protons ou de neutrons.

Une population de radionucléide va induire un nombre de désintégrations par seconde donné appelé « activité » et exprimé en Becquerel (Bq). La relation entre le nombre de noyaux,  $N$ , et l'activité,  $Act$ , est donnée par :

$$Act = \lambda N \quad (1.7)$$

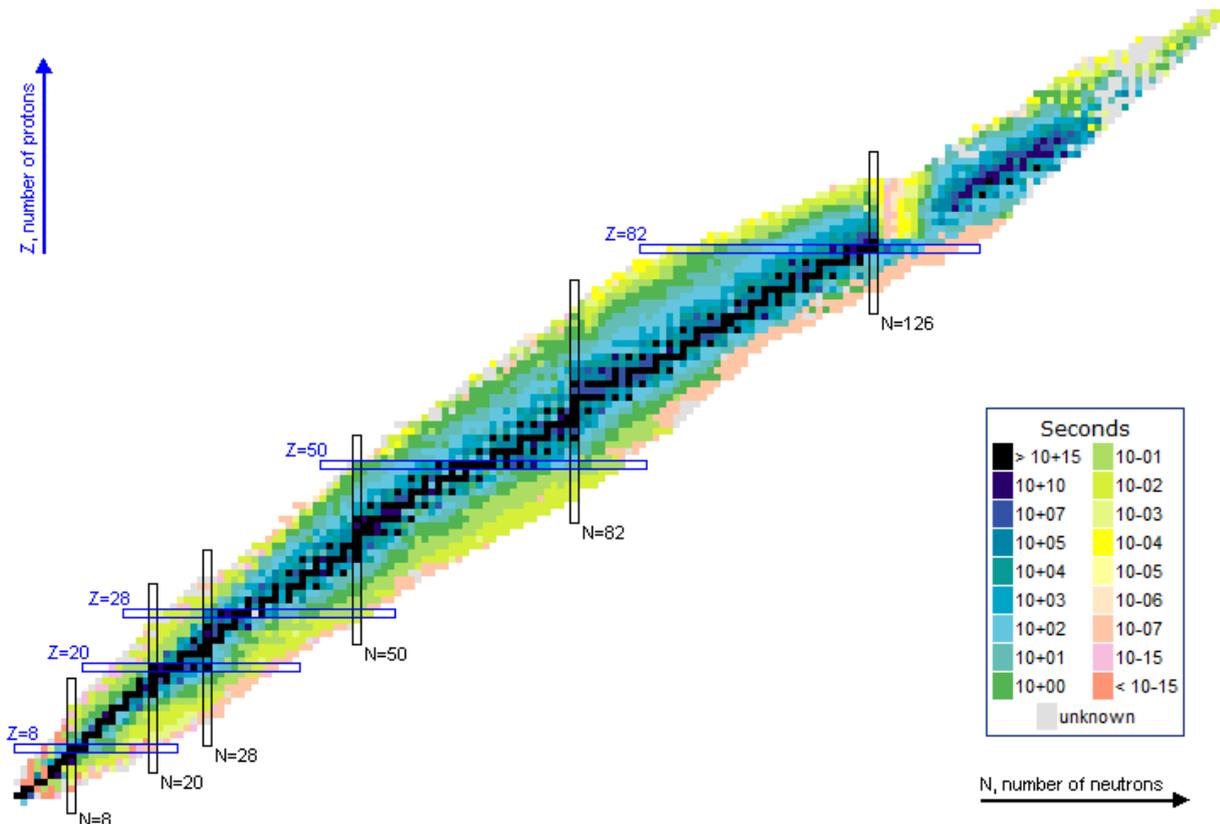


Figure 1.4 - Carte des nucléides extraite de NNDC où les différentes couleurs caractérisent le temps de demi-vie [1].

### 3. Les radionucléides en médecine

Les effets des rayonnements dépendent du type de rayonnement, de la quantité d'énergie déposée par unité de masse (dose absorbée) et de l'organe. La dose absorbée a pour unité le Gray (Gy). Un Gray correspond au dépôt de 1 Joule dans un 1 kilogramme. Cette dose absorbée sera simplement appelée dose par la suite.

Les effets se classent suivant deux catégories : les effets stochastiques et les effets déterministes. Les effets déterministes sont par définition ceux se produisant de manière certaine à partir d'une dose seuil. A contrario, les effets stochastiques ne dépendent pas de la dose et arrivent de manière aléatoire.

En médecine, il est possible d'utiliser les rayonnements/particules émis lors de la décroissance des radionucléides pour effectuer un diagnostic ou un traitement, par

exemple des cellules cancéreuses. Ces rayonnements/particules doivent être émis à proximité des cellules cancéreuses afin de les localiser et/ou de les détruire.

### 3.1. Le radiopharmaceutique

Un radiopharmaceutique est un médicament radioactif. Dans certains cas, un radionucléide possède des affinités naturelles avec le milieu et peut être utilisé seul. C'est le cas de l'iode  $^{131}\text{I}$  qui est utilisé sans vecteur en thérapie pour le traitement de la thyroïde. Dans la plupart des cas, le radionucléide est couplé avec un vecteur. Le vecteur possédant des affinités avec les cellules ciblées va transporter le radionucléide jusqu'à celle-ci. L'émission de rayonnements/particules va donc être concentrée sur l'organe souhaitée. Le radionucléide possède les propriétés physiques permettant son utilisation dans le domaine médical de l'imagerie ou de la thérapie et le vecteur va permettre d'acheminer le radionucléide dans la région souhaitée.

Par exemple, le  $^{18}\text{F}$  largement utilisé en imagerie médicale est couplé avec un analogue du glucose. Les cellules cancéreuses consommant davantage de sucre que les cellules saines vont capter une grande quantité de  $^{18}\text{F}$  qui sera visible à l'image.

Grâce à la vectorisation, qui s'appuie sur un mécanisme biologique particulier, nous allons obtenir une imagerie fonctionnelle par opposition aux images morphologiques qui sont obtenues avec un scanner X, IRM ou l'échographie.

### 3.2. L'imagerie médicale

Les photons gamma sont très pénétrants et interagissent peu avec la matière. Ils sont utilisés pour l'imagerie médicale car ils pourront traverser le patient et atteindre les détecteurs placés à proximité du patient. A partir des rayonnements collectés, une image va être construite qui fournira des informations diagnostiques précieuses pour le médecin. Il existe deux types d'imagerie nucléaire en fonction de l'énergie des photons détectés et du traitement de ces photons pour la reconstruction de l'image.

#### 3.2.1. La tomographie par émission mono-photonique (TEMP)

La tomographie par émission mono-photonique, abrégée par TEMP, consiste à construire une image à partir des photons gamma d'énergie comprise entre 100 keV et 400 keV qui sont issus de la désintégration d'un radionucléide. Un détecteur tourne autour du patient et collecte les photons gamma émis. Des collimateurs sont mis devant la tête de détection permettant de fixer la direction des photons gamma collectés et de limiter la collection de photons gamma parasites. Ces rayonnements « parasites » peuvent venir de l'interaction des photons gamma initiaux avec le milieu impliquant la

diffusion de photons gamma dans une direction non souhaitée. Les données acquises autour du patient permettent à l'aide d'un algorithme, la construction d'une image où il est possible de visualiser les sources des émissions gamma.

Le radionucléide  $^{99m}\text{Tc}$  (6 h) est un émetteur de photons gamma de 140,5 keV à 89 %. Ce radionucléide est obtenu grâce à un générateur  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  (66 h/6 h) [2]. Il est très utilisé en imagerie TEMP notamment pour l'évaluation du fonctionnement du cœur (fraction d'éjection ventriculaire –FEV-) [3]. Le  $^{99m}\text{Tc}$  est le radionucléide le plus utilisé dans le monde.

### **3.2.2. La tomographie par émission de positon (TEP)**

La tomographie par émission de positons (TEP) se base sur la décroissance bêta+ qui induit la création de deux photons gamma de 511 keV émis dans la même direction mais dans des sens opposés (cf. 1.2.2). Le patient est placé au centre d'une couronne de détecteurs qui vont collecter les photons gamma et sélectionner ceux détectés en coïncidence à  $180^\circ$ . Ainsi, une image est construite permettant de visualiser la ou les sources émettrices et donc, entre autres, les cellules ciblées par le vecteur.

Le radionucléide  $^{18}\text{F}$  (110 min) est un émetteur bêta+ largement utilisé en imagerie TEP grâce au FDG (analogue du glucose), il permet de visualiser les cellules qui consomment plus de sucre que la normale comme les cellules cancéreuses [4].

Le temps de demi-vie du radionucléide utilisé en imagerie doit être suffisamment long pour le produire, effectuer le radio-marquage et l'acheminer au centre médical. Mais il doit être suffisamment court pour limiter les émissions de rayonnement dans le temps afin d'éviter l'hospitalisation et l'accumulation de dose sur le personnel médical et les proches. Afin d'obtenir une image de bonne qualité, une activité minimum est nécessaire c'est-à-dire qu'il faut un certain nombre de désintégrations par seconde pendant l'acquisition de l'image. Un temps de demi-vie court permet d'administrer moins de noyaux radioactifs, d'acquérir une image de bonne qualité et de limiter la dose reçue par le patient. Typiquement, les radionucléides aux temps de demi-vie compris entre plusieurs minutes à quelques heures sont utilisés.

## **3.3. La thérapie**

### **3.3.1. La radiothérapie interne vectorisée**

La thérapie se base sur l'apport d'une dose brève, localisée et élevée permettant d'obtenir un effet déterministe maîtrisé c'est-à-dire la mort des cellules ciblées. Pour cela, les particules ionisantes peuvent être utilisées (particules alpha, électrons issus de

la désintégration bêta-, électrons de conversion interne ou électrons Auger). Le radiopharmaceutique est injecté au patient, il est acheminé par la molécule vectrice sur les cellules ciblées. Le radionucléide va décroître et émettre une particule qui va déposer son énergie lors de son parcours. On parle de transfert linéique d'énergie (TLE) décrivant l'énergie transférée par une particule ionisante dans la matière par unité de distance exprimé en  $\text{MeV}\cdot\text{cm}^{-1}$ . En médecine, nous nous intéressons au parcours de ces particules ionisantes dans l'eau puisque le corps humain est constitué essentiellement d'eau (~65 %). Plus le TLE est élevé, plus nous nous attendons à une efficacité biologique importante c'est-à-dire une application de dose localisée et élevée. Le TLE varie en fonction du type de radiation.

Les particules alpha ont un TLE moyen dans l'eau de l'ordre de  $100 \text{ keV}\cdot\mu\text{m}^{-1}$  correspondant à plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$  de parcours. La taille d'une cellule étant de l'ordre de quelques dizaines de  $\mu\text{m}$ , nous pouvons voir l'intérêt de l'utilisation des particules alpha dans le cas de cellules isolées. Il existe déjà quelques produits utilisant des émetteurs alpha. Ainsi, le  $^{223}\text{Ra}$  (11,4 j) est un émetteur alpha utilisé pour le traitement des métastases osseuses et du cancer métastatique de la prostate [5]. L' $^{211}\text{At}$  (7,2 h) en phase finale de recherche est un radionucléide très prometteur pour la thérapie [6].

Les électrons issus de la désintégration bêta- ont des énergies variables (cf. 1.2.1) et ont un TEL dans l'eau de l'ordre du  $\text{keV}\cdot\mu\text{m}^{-1}$  ce qui correspond à un parcours de l'ordre du millimètre. Dans le cas de cellules isolées, ce genre d'émission est moins adapté mais l'est pour un amas de cellules où la dose reçue par les cellules correspond à la somme des doses déposées par les différents rayonnements via la technique de feux croisés. La technique de feux croisés est présentée figure 1.5 où les émissions bêta- représentées ne sont que celles mettant en évidence la technique. Dans la réalité, les émissions sont isotropes.

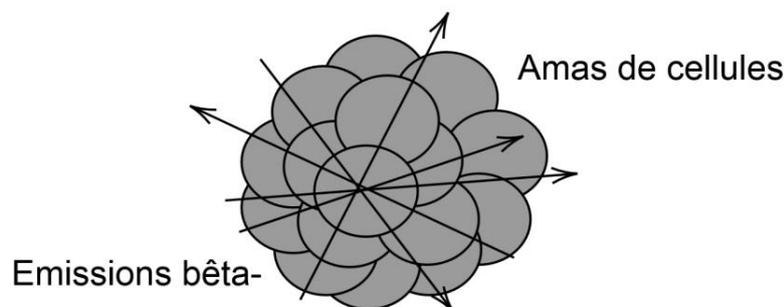


Figure 1.5 - Schéma de la technique des feux croisés où ne sont représentées que les émissions bêta- mettant en évidence la technique.

L' $^{131}\text{I}$  (8 j) émetteur de bêta- est utilisé dans le traitement du cancer de la thyroïde. Son émission bêta- principale avec 89,6 % d'intensité correspond à une énergie moyenne de 191,6 keV et une énergie maximum de 606,3 keV.

Les électrons Auger et de conversion interne ont des énergies fixes ce qui présente un certain avantage à leur utilisation. Les énergies des électrons de conversion interne varient de la dizaine de keV à plusieurs centaines de keV et pour les électrons Auger de quelques keV à une dizaine de keV. Les électrons de conversion interne pourraient être utilisés pour des applications similaires à celles utilisant l'émission bêta-. Un exemple est le  $^{117\text{m}}\text{Sn}$  dont les électrons peuvent être utilisés dans le traitement des plaques vulnérables en cardiologie. Les électrons Auger ayant des parcours très faibles ( $< 10 \mu\text{m}$ ) pourraient être utilisés mais demandent d'être acheminés dans le noyau de la cellule pour un dépôt de dose efficace. L'utilisation des électrons Auger et de conversion interne est encore en phase de recherche.

### 3.3.2. La curiethérapie

La curiethérapie consiste à venir placer des sources radioactives à proximité d'une tumeur. Cette thérapie s'applique lorsque la zone à traiter est en surface ou à proximité d'une cavité. Cette zone est analysée par une étude dosimétrique permettant de définir l'emplacement des sources radioactives. Ces sources, d'une taille s'approchant de celle d'un grain de riz, sont généralement émettrices de photons ( $^{125}\text{I}$  -59,4 j- [7]) ou bêta- ( $^{192}\text{Ir}$  -73,8 j- [8]) par nécessité d'avoir un long parcours.

Le temps de demi-vie des radionucléides utilisés en curiethérapie est souvent plus long que celui des isotopes qui sont utilisés en imagerie et en thérapie interne vectorisée. Par exemple, les radionucléides  $^{213}\text{Bi}$  (46 min),  $^{212}\text{Pb}$  (10,6 h),  $^{225}\text{Ac}$  (10 j),  $^{211}\text{At}$  (7,2 h),  $^{67}\text{Cu}$  (2,6 j) sont utilisés ou en phase de recherche pour la radiothérapie interne vectorisée et les radionucléides  $^{131}\text{Cs}$  (9,7 j),  $^{125}\text{I}$  (60 j),  $^{103}\text{Pd}$  (17 j),  $^{223}\text{Ra}$  (11,4 j),  $^{90}\text{Y}$  (2,7 j),  $^{137}\text{Cs}$  (30 a),  $^{60}\text{Co}$  (5,3 a) sont utilisés en curiethérapie [9], [10]. Cela est dû au fait que nous cherchons à obtenir un effet dosimétrique déterministe et que les sources sont dans certains cas placées pendant le temps nécessaire pour délivrer la dose prescrite (2 à 5 jours) puis retirées par la suite.

### 3.3.3. L'approche théranostique

Un même élément peut avoir plusieurs isotopes possédant des caractéristiques physiques permettant une utilisation pour des applications médicales. Dans le cas, où l'un d'entre eux peut être utilisé pour de l'imagerie et un autre pour une application

thérapeutique, il est possible de mettre en place une approche théranostique qui couple l'utilisation de ces deux isotopes afin d'identifier les patients répondeurs à travers l'imagerie puis réaliser le traitement avec l'isotope thérapeutique. Nous pouvons parler d'une paire théranostique. Cela est rendu possible grâce au fait que ces radionucléides possèdent les mêmes propriétés chimiques ce qui permet de les coupler au même vecteur. C'est le cas pour l'yttrium avec les isotopes  $^{86}\text{Y}/^{90}\text{Y}$  [11]. Le  $^{86}\text{Y}$  (14,7 h) est émetteur bêta+ et peut être utilisé en imagerie TEP. Le  $^{90}\text{Y}$  (2,7 j) est émetteur bêta- et peut avoir des applications en thérapie.

Nous pouvons avoir une approche un peu plus étendue de l'approche théranostique en couplant des isotopes qui ont de propriétés chimiques similaires sans être des isotopes du même élément. C'est par exemple le cas de la paire  $^{68}\text{Ga}/^{177}\text{Lu}$  [12].

## 4. La production de radionucléides

Les radionucléides peuvent être produits par l'interaction de particules ou noyaux avec la matière (cf. chapitre 2 partie 3.2) c'est-à-dire d'un faisceau de particules et d'une cible. Le faisceau de particules apporte l'énergie nécessaire pour que la réaction nucléaire puisse avoir lieu.

La production peut être effectuée à partir de l'interaction de particules chargées avec la matière, pour cela des accélérateurs de particules sont utilisés. Il existe plusieurs types d'accélérateur : linéaire, synchrotron ou cyclotron...

### 4.1. Le principe de fonctionnement des accélérateurs de particules

L'accélérateur linéaire permet d'accélérer des particules chargées grâce à l'application d'un champ électrique généré par un courant alternatif. Les particules chargées vont traverser dans le vide une série de tubes. La tension appliquée aux tubes alterne entre positif et négatif. Les tubes adjacents possèdent des tensions opposées créant une différence de potentiel et donc un champ électrique entre ces tubes. Les particules acquièrent de l'énergie, composante électrique de la force de Lorentz (1.8), lorsqu'elle passe d'un tube à l'autre. Le courant alternatif synchronisé avec les particules permet d'obtenir un champ électrique « accélérateur » maximal lors du passage des particules d'un tube à un autre. L'énergie des particules en bout de ligne dépend de la longueur de l'accélérateur linéaire et du champ électrique appliqué.

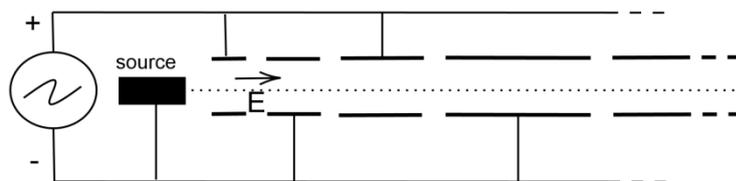


Figure 1.6 - Schéma de fonctionnement d'un accélérateur linéaire.

Le cyclotron est un accélérateur circulaire constitué d'électro-aimants, les « Dees », dans lesquels le champ magnétique est fixe au cours du temps. Les premiers cyclotrons possédaient deux « Dees » ayant la forme de demi-disques. Un courant alternatif, appliqué sur des électrodes placées entre les « Dees », accélère les particules lors de chaque passage entre les électrodes (composante électrique de la force de Lorentz (1.8)). A l'intérieur des « Dees », le champ magnétique va dévier les particules et la trajectoire va correspondre à un demi-cercle permettant de faire faire un demi-tour à la particule. La particule va alors re-subir une accélération entre les deux aimants. La vitesse variant d'un passage de « Dee » à l'autre, la particule va avoir un rayon de courbure de plus en plus grand (1.9) ce qui entraîne une trajectoire en forme de spirale. Une fois l'énergie souhaitée atteinte, la particule doit être extraite pour être guidée jusqu'à la cible. La méthode d'extraction dépend du signe de la charge de la particule accélérée :

- Si la particule accélérée a une charge négative, nous utiliserons une feuille de « stripper » pour extraire la particule. En passant dans la feuille, les électrons sont arrachés de la particule qui se trouve alors avec une charge de signe positif. L'effet du champ magnétique sur la particule va faire sortir la particule de la machine. Le rendement de cette technique est proche de 100 % mais tous les ions ne peuvent pas être chargés négativement.
- Si la particule accélérée a une charge positive, nous utilisons un septum électrostatique. Le rendement est de l'ordre de 70 %. Cette technique peut être appliquée à tous les ions.

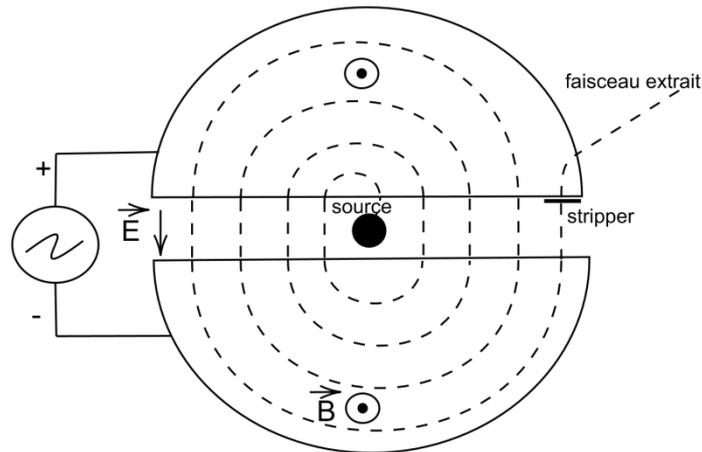


Figure 1.7 - Schéma de fonctionnement d'un cyclotron.

Le synchrotron comme le cyclotron est circulaire et fonctionne sur les mêmes principes. La différence est que le synchrotron va adapter le champ magnétique de façon à garder le même rayon de courbure tout au long de l'accélération. Plus on est capable d'appliquer un champ magnétique élevé plus il est possible d'accélérer les particules.

$$\vec{F} = q (\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B}) \quad (1.8)$$

$$R = \frac{m v}{|q| B} \quad (1.9)$$

Où  $q$  est la charge de la particule,  $\vec{E}$  le champ électrique,  $v$  la vitesse de la particule,  $\vec{B}$  le champ magnétique,  $R$  le rayon de courbure et  $m$  la masse de la particule.

## 4.2. Les voies non-conventionnelles de production

Les voies usuelles de production des radionucléides utilisés dans des applications médicales sont celles mettant en jeu des protons de 20 MeV ou des flux de neutrons. Les flux de neutrons sont délivrés par des réacteurs comme par exemple le HFR (Pays bas), Br-2 (Belgique), OPAL (Australie), Safari-1 (Afrique du sud), etc. Les principaux radionucléides produits par les voies neutroniques sont le  $^{99}\text{Mo}$ , le  $^{177}\text{Lu}$  et le  $^{131}\text{I}$ . Pour la production du  $^{18}\text{F}$ , ce sont des accélérateurs de protons (20 MeV) qui sont utilisés. Dû à son court temps de demi-vie du  $^{18}\text{F}$  (110 min), ces accélérateurs sont généralement placés à proximité ou dans les centres hospitaliers afin de limiter le temps d'acheminement.

Les voies non-conventionnelles sont celles ne s'inscrivant pas dans les précédentes. Elles peuvent mettre en jeu des protons de haute énergie ou d'autres particules

chargées comme des particules alphas, des deutons... Des flux de neutrons générés indirectement par des accélérateurs peuvent également être utilisés pour la production de radionucléides d'intérêt. D'autres voies comme la fission de certains noyaux, l'utilisation d'ions lourds ou de photons constituent des voies de productions non-conventionnelles.

L'objectif des études de cette thèse est d'explorer des voies de production non-conventionnelles. Pour cela, des expériences, effectuées durant la thèse, ont été réalisées avec le cyclotron C70 du GIP ARRONAX qui possède les caractéristiques données dans le tableau 1.2. Avec cette diversité des particules pouvant être extraites et les énergies disponibles, ce cyclotron, hors du commun, permet d'accéder à une large gamme de réactions et d'étudier des voies de production non conventionnelles. Ces voies de production non-conventionnelles permettent d'avoir un plus grand éventail de réactions, d'accéder à une plus large gamme de cibles et potentiellement à des taux de production du radionucléide d'intérêt plus élevés.

Faisceau de particules extrait	Energie (MeV)	Intensité max. ( $\mu\text{A}$ )
Protons	35-70	750
Alpha	68	35
Deutons	15-35	80

Table 1.2 - Caractéristiques du cyclotron C70 du GIP ARRONAX.

# Chapitre II. La mesure de section efficace : matériel et méthode

<b>1. LA SECTION EFFICACE, CALCUL DANS LE CAS DE CIBLES MINCES ET EPAISSES .....</b>	<b>24</b>
1.1. LA NOTION DE SECTION EFFICACE .....	24
1.2. LA FORMULE D'ACTIVATION POUR DES CIBLES EPAISSES .....	24
1.3. LA FORMULE D'ACTIVATION POUR DES CIBLES MINCES .....	25
<b>2. LA TECHNIQUE DES « STACKED FOILS » .....</b>	<b>26</b>
<b>3. LA PERTE D'ENERGIE DES PARTICULES LOURDES CHARGEES DANS LA MATIERE .....</b>	<b>27</b>
<b>4. LA MESURE DE L'EPAISSEUR DES CIBLES .....</b>	<b>30</b>
<b>5. LA MESURE D'ACTIVITE A L'AIDE D'UN SPECTROMETRE GAMMA .....</b>	<b>31</b>
5.1. LE SPECTROMETRE GAMMA .....	31
5.2. LES INTERACTIONS PHOTON/MATIERE .....	32
5.2.1. L'effet photoélectrique .....	32
5.2.2. La diffusion Compton .....	33
5.2.3. La création de paires .....	34
5.2.4. Ces mécanismes physiques sur un spectre gamma .....	35
5.3. L'ACQUISITION DE DONNEES .....	36
5.3.1. L'étalonnage en énergie du détecteur .....	36
5.3.2. L'étalonnage en efficacité du détecteur .....	38
5.3.3. L'acquisition de spectres dans la pratique .....	40
5.4. L'ANALYSE DES SPECTRES .....	41
5.4.1. Le calcul d'activité à partir d'une émission gamma .....	41
5.4.2. Le calcul d'activité lorsque plusieurs émissions gamma entre en jeu .....	42
<b>6. LA DETERMINATION DE L'ENERGIE SEUIL DE REACTION .....</b>	<b>43</b>
<b>7. LA NOTION D'ACTIVITE SPECIFIQUE .....</b>	<b>44</b>
<b>8. L'ESTIMATION DE L'ACTIVITE PRODUITE PAR LE CALCUL DE RENDEMENT EN CIBLE EPAISSE .....</b>	<b>44</b>
<b>9. CALCULS DES SECTIONS EFFICACES A PARTIR DU CODE DE REACTIONS NUCLEAIRES TALYS. ....</b>	<b>46</b>
<b>10. CONCLUSION SUR LE CHAPITRE .....</b>	<b>48</b>

# 1. La section efficace, calcul dans le cas de cibles minces et épaisses

## 1.1. La notion de section efficace

Dans le chapitre précédent (cf. partie 4), nous avons vu que la production de radionucléides se faisait par l'interaction d'un projectile et d'une cible. Lors de ces interactions, de nombreuses réactions peuvent avoir lieu. La grandeur physique permettant de traduire la probabilité d'obtenir un produit de réaction donné est la section efficace de production. Elle est homogène à une surface et dépend de l'énergie de la particule incidente. Elle est notée  $\sigma$  et son unité est le barn, 1 barn est égal à  $1.10^{-24} \text{ cm}^2$ .

La connaissance précise de la section efficace est essentielle pour optimiser la production du radionucléide d'intérêt et pour limiter, dans le même temps, la production de contaminants.

## 1.2. La formule d'activation pour des cibles épaisses

Le nombre de noyaux obtenus pour un produit de réaction donné est proportionnel à sa section efficace de production. Ce nombre de noyaux est proportionnel à l'activité produite qui est calculée à partir de la formule d'activation (2.1).

$$\text{Act} = \varphi \chi \frac{N_a \rho}{A} (1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}) \int_{E_f}^{E_i} \frac{\sigma(E)}{\frac{dE}{dx}} dE \quad (2.1)$$

Où :

- $A$  : la masse molaire de la cible ( $\text{g.mol}^{-1}$ )
- $\rho$  : la densité de la cible ( $\text{g.cm}^{-3}$ )
- $\frac{dE}{dx}$  : le transfert d'énergie linéaire de la particule incidente dans la cible ( $\text{MeV.cm}^{-1}$ )
- $\chi$  : la pureté isotopique et chimique de la cible
- $\varphi$  : le flux de projectiles ( $\text{particules.s}^{-1}$ )
- $t_{\text{irr}}$  : le temps d'irradiation (s)
- $E_i$  et  $E_f$  : l'énergie incidente et de sortie des particules de la cible (MeV)
- $\lambda$  : la constante radioactive du radionucléide ( $\text{s}^{-1}$ )
- $\text{Act}$  : l'activité produite du radionucléide
- $\sigma(E)$  : la section efficace de production à l'énergie  $E$  ( $\text{cm}^2$ )
- $N_a$  : la constante d'Avogadro

Certains de ces paramètres sont liés à la cible :  $A$ ,  $\rho$ ,  $\chi$ . Le flux  $\varphi$  de particules incidentes est un paramètre lié au faisceau.  $\frac{dE}{dx}$  et  $[E_i, E_f]$  sont des paramètres à la fois liés à la cible et au faisceau. D'autres paramètres sont liés au radionucléide produit :  $\lambda$ ,  $Act$ . Enfin,  $\sigma(E)$ , est liée à la réaction et dépend de la cible, du projectile et de l'énergie.

### 1.3. La formule d'activation pour des cibles minces

Dans le cas de cibles minces, c'est-à-dire suffisamment fines pour que la perte d'énergie de la particule soit négligeable lors de son parcours. La variation d'énergie  $dE$  dans la cible est considérée comme négligeable. Nous considérons alors que le faisceau traverse la cible avec une énergie constante et donc la section efficace est donnée à cette énergie fixée. La formule d'activation (2.2) s'écrit alors :

$$Act = \sigma(E) \varphi \chi \frac{N_a \rho e}{A} (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) \quad (2.2)$$

Avec :

- $\sigma(E)$ : la section efficace de production du radionucléide produit à l'énergie  $E$  ( $\text{cm}^2$ )
- $e$  : l'épaisseur de la cible (cm)

Si les paramètres sont maîtrisés et que l'activité est connue (en général par la mesure), la section efficace peut alors être extraite à partir de la formule suivante :

$$\sigma(E) = \frac{A Act}{N_a \rho e \varphi \chi (1 - e^{-\lambda t_{irr}})} \quad (2.3)$$

Nous cherchons maintenant à déterminer l'incertitude sur ce calcul de section efficace. Les incertitudes sur la masse volumique, le temps de tir et la constante radioactive sont faibles au regard des autres sources d'incertitudes et peuvent être négligées. Les paramètres de l'équation (2.3) étant indépendants, l'incertitude s'écrit alors :

$$\left(\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right)^2 = \left(\frac{\Delta e}{e}\right)^2 + \left(\frac{\Delta Act}{Act}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\varphi}{\varphi}\right)^2 \quad (2.4)$$

Pour les mesures de sections efficaces, l'activité, l'épaisseur des cibles et le flux de particules sont les paramètres à acquérir lors des expériences. Les méthodes et outils utilisés pour les obtenir vont être détaillés dans les parties suivantes. Pour commencer

la technique expérimentale utilisée pendant nos campagnes de mesures va être discutée.

## 2. La technique des « stacked foils »

La technique des « stacked foils » consiste à effectuer plusieurs mesures de sections efficaces à des énergies différentes en utilisant des feuilles cibles, minces, positionnées l'une derrière l'autre. L'épaisseur des feuilles cibles est de l'ordre de la dizaine de micromètres. Le « stack » est un assemblage de plusieurs motifs identiques composés chacun d'une feuille cible, d'un moniteur et d'une feuille « catcher » qui sont séparés par une feuille épaisse, le dégradeur, permettant d'adapter l'énergie des particules du faisceau entre chaque empilement. La figure 2.1 montre un schéma d'un « stack » traversé par un faisceau représenté par la flèche.

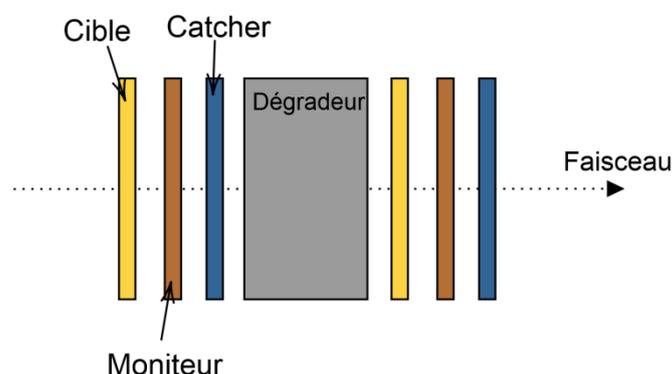


Figure 2.1 – Technique des « stacked foils » - Schéma d'un « stack ».

La feuille cible en jaune est la feuille d'intérêt là où se déroule la réaction étudiée.

La suivante, en marron, est la feuille moniteur. Elle sert à déterminer le flux de particules, son utilisation sera détaillée dans le chapitre suivant.

Il est possible, suite à une réaction nucléaire, que le noyau formé ait suffisamment d'énergie pour sortir de la feuille cible. Ces noyaux sont appelés noyaux de reculs et s'ils ne sont pas correctement quantifiés, cela induira une erreur sur la mesure de la section efficace. La feuille moniteur est là pour récupérer les noyaux de recul provenant de la cible tandis que la feuille « catcher », en bleu, accomplit ce rôle pour la feuille moniteur.

Entre chaque motif, une feuille plus ou moins épaisse, appelée dégradeur, est placée permettant de réduire l'énergie du faisceau pour le motif suivant. Son épaisseur est choisie de façon à obtenir l'énergie faisceau souhaitée.

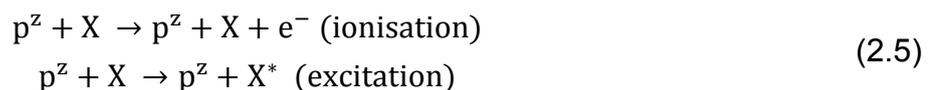
Avant la fabrication d'un « stack », une estimation des épaisseurs des feuilles est faite de façon à obtenir l'énergie souhaitée dans chacune d'entre elles. Pour cela, la perte d'énergie des particules dans la matière est calculée.

### 3. La perte d'énergie des particules lourdes chargées dans la matière

Les particules lourdes chargées sont ici les protons, deutons ou alpha par opposition aux électrons ou positons. Les particules lourdes chargées arrivant dans la matière vont interagir avec les noyaux et les électrons. Ces interactions sont présentées dans les parties suivantes.

#### L'interaction avec les électrons de la matière

Le processus dominant de perte d'énergie des particules chargées dans la matière est l'interaction avec les électrons du milieu. C'est le mécanisme d'interaction coulombienne. La particule chargée, par son passage au voisinage d'un électron d'un atome, va transférer une partie de son énergie à l'électron. Si l'énergie transférée est suffisante pour libérer l'électron de l'atome, il y a alors ionisation. Dans le cas contraire, l'électron prend place dans une couche orbitale supérieure et reste lié à l'atome, on parle alors d'excitation. Les processus sont indiqués ci-dessous (2.5) avec  $p$  une particule de charge  $z$ ,  $X$  l'atome et  $X^*$  l'atome dans un état excité.



L'atome excité  $X^*$  va, généralement dans un temps très bref ( $< ps$ ), se désexciter en émettant un photon. La particule chargée ayant interagit va alors perdre une partie de son énergie et être déviée de sa trajectoire initiale.

Un effet plus rare est l'effet Cherenkov. L'effet Cherenkov, qui implique l'émission de lumière, intervient lorsqu'une particule chargée se déplace à une vitesse supérieure à celle de la lumière dans ce milieu.

Pour connaître l'énergie moyenne perdue par une particule lourde chargée dans la matière par interaction avec les électrons, il existe une première approche donnée par la formule de Bethe-Bloch (2.6) [13].

$$-\frac{dE}{dx} = 2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 \rho \frac{Z z^2}{A \beta^2} \left[ \ln\left(\frac{2m_e \gamma^2 v^2 W_{\max}}{I^2}\right) - 2\beta \right] \quad (2.6)$$

Où :

- $N_a$  : la constante d'Avogadro ( $\text{mol}^{-1}$ )
- $r_e$  : le rayon classique d'un électron ( $2,817 \cdot 10^{-23}$  cm)
- $m_e$  : la masse de l'électron (g)
- $\rho$  : la densité du matériau absorbant ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ )
- $Z$  : le nombre atomique du matériau absorbant
- $A$  : la masse molaire du matériau absorbant ( $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$ )
- $z$  : la charge de la particule incidente
- $E_i$  et  $E_f$  : son énergie incidente et de sortie de la cible (MeV)
- $\beta$  : le rapport  $v/c$  de la particule incidente
- $\gamma$  : le facteur de Lorentz est donné par  $1/\sqrt{1 - \beta^2}$
- $W_{\max}$  : le transfert d'énergie maximal en une seule collision
- $I$  : le potentiel d'excitation moyen (eV)

Dans la pratique, deux facteurs de correction sont ajoutés à la formule de Bethe-Bloch (2.6) : la correction de l'effet de densité  $\delta$  et la correction « en couche » nommée *correction shell* en anglais. En prenant en compte ces corrections, la formule s'écrit :

$$-\frac{dE}{dx} = 2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 \rho \frac{Z z^2}{A \beta^2} \left[ \ln\left(\frac{2m_e \gamma^2 v^2 W_{\max}}{I^2}\right) - 2\beta - \delta - 2\frac{C}{Z} \right] \quad (2.7)$$

### L'interaction avec les noyaux de la matière

Les processus à l'origine de la perte d'énergie d'une particule lourde chargée avec les noyaux de la matière sont :

- La diffusion élastique : collision avec conservation d'énergie cinétique totale mais changement de direction.
- Les réactions nucléaires : réorganisation ou la décomposition du noyau cible. Ce sont les réactions étudiées dans le cadre de cette thèse à travers leur section efficace.
- Le phénomène de rayonnement de freinage ou bremsstrahlung : phénomène dans lequel une particule chargée ou un électron passant dans le champ d'un noyau va être freinée et émettre un rayonnement électromagnétique.

Les processus associés à l'interaction avec le noyau sont rares comparés au mécanisme d'interaction coulombienne avec les électrons et nous utilisons la formule de Bethe-Bloch pour déterminer la perte d'énergie des projectiles dans la matière.

## Le calcul de la perte d'énergie des projectiles dans la matière

En pratique, la perte d'énergie a été calculée en utilisant le logiciel SRIM-2013 qui utilise la formule de Bethe-Bloch agrémenté de plusieurs améliorations à basse énergie [14]. C'est un logiciel qui fonctionne avec un code Monte Carlo appelé TRIM. Il a pour avantage de prendre en compte l'ensemble des mécanismes physiques qui interviennent. Après avoir défini la particule incidente, son énergie, les différents matériaux traversés avec leurs caractéristiques, TRIM donne l'énergie de sortie de chaque particule. Les calculs ont été effectués pour 99.999 particules incidentes. Les énergies des particules données dans cette thèse ont été calculées au milieu des feuilles.

Si l'énergie n'est pas assez élevée pour traverser la matière, la particule va alors déposer toute son énergie dans celle-ci. Plus l'énergie des particules lourdes chargées est faible plus le dépôt d'énergie est grand. La courbe de l'énergie déposée en fonction de la profondeur pour un faisceau de protons de 30 MeV dans 5 mm d'aluminium est présentée en figure 2.2. Cette image est issue d'une simulation TRIM. Le pic formé à la fin du parcours est nommé pic de Bragg et correspond au maximum de l'énergie déposée.

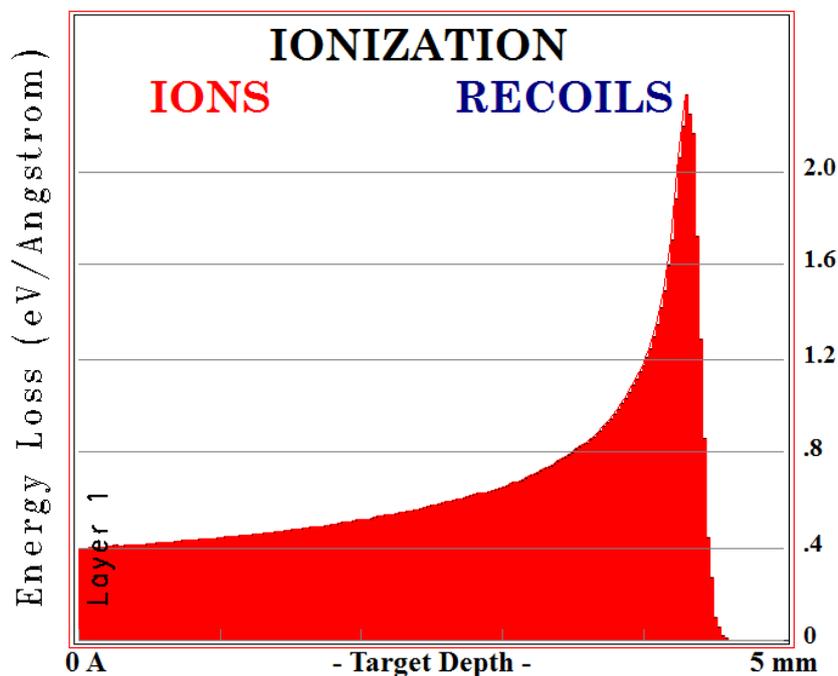


Figure 2.2 - Graphique donnant l'énergie perdue des protons de 30 MeV en fonction de l'épaisseur d'aluminium traversée.

Les incertitudes sur l'énergie des particules ont été calculées à partir des données du constructeur IBA du cyclotron C70 ( $\pm 0,5$  MeV pour les protons et les deutons et  $\pm 0,61$  MeV pour les alphas) [15].

Les épaisseurs des feuilles ont été choisies afin d'obtenir l'énergie souhaitée dans chacune d'entre elles sur la base des simulations effectuées avec le logiciel SRIM.

#### 4. La mesure de l'épaisseur des cibles

Les feuilles sont généralement achetées auprès de la société GOODFELLOW spécialisée dans les matériaux de haute pureté. Les épaisseurs de ces feuilles sont données avec une incertitude de l'ordre de 15 %. Dans l'objectif d'obtenir des valeurs de sections efficaces avec la plus petite incertitude possible (cf. formule 1.5), il est nécessaire de redéterminer l'épaisseur des feuilles. En faisant l'hypothèse que les feuilles ont une épaisseur homogène, la formule (2.8) permet de calculer l'épaisseur à partir de la masse et de la surface.

$$e = \frac{m}{\rho \cdot S} \quad (2.8)$$

Où  $e$  est l'épaisseur de la feuille en cm,  $m$  sa masse en g,  $\rho$  est sa masse volumique en  $\text{g.cm}^{-3}$  et  $S$  sa surface en  $\text{cm}^2$ .

Avant chaque irradiation, les feuilles sont pesées avec une balance précise à  $10^{-4}$  g et leur surface est mesurée à l'aide d'un scanner haute résolution. Le scanner va dessiner une image « binaire » c'est-à-dire mettre les pixels en noir s'il n'y pas eu de matière et en blanc dans le cas contraire. Un programme Matlab va analyser l'image en comptant le nombre de pixels blancs sur l'image ce qui nous permet de déduire la surface de la feuille.

Les paramètres de la formule (2.8) étant indépendants, l'incertitude sur l'épaisseur de la feuille est donnée par la formule (2.9).

$$\left(\frac{\Delta e}{e}\right)^2 = \left(\frac{\Delta m}{m}\right)^2 + \left(\frac{\Delta S}{S}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \rho}{\rho}\right)^2 \quad (2.9)$$

Dans nos études, les incertitudes ainsi obtenues sont inférieures à 0,4 %.

Avec les épaisseurs et leurs incertitudes ainsi obtenues, un calcul précis de l'énergie des particules traversant chacune des feuilles est effectué. Ces mesures de l'épaisseur des feuilles permettent de contribuer à moindre échelle à la détermination de l'incertitude sur la section efficace (cf. formule 2.4).

## 5. La mesure d'activité à l'aide d'un spectromètre gamma

Un autre facteur intervenant dans la formule (2.4) est la mesure de l'activité.

Souvent les radionucléides produits pendant l'irradiation vont émettre des photons gamma suite à leur décroissance. Ces photons gamma émis à une certaine énergie et à une certaine intensité sont généralement propres à chaque radionucléide. Cela va nous permettre d'identifier les noyaux radioactifs présents (inventaire) et de les quantifier (mesure de l'activité).

### 5.1. Le spectromètre gamma

Un spectromètre gamma est un détecteur permettant de mesurer les caractéristiques des photons gamma. Après acquisition, il est possible de réaliser un spectre qui représente le nombre de photons collectés en fonction de leur énergie. Dans cette thèse, un détecteur Germanium Hyper Pur (GeHP) a été utilisé, présenté en figure 2.3. C'est un détecteur à semi-conducteur qui possède une très bonne résolution permettant de discriminer les photons en énergie (largeur à mi-hauteur de l'ordre de 1 keV).

Les semi-conducteurs ont des caractéristiques intermédiaires entre les matériaux isolants et conducteurs. Les matériaux isolants ne permettent pas la circulation d'électrons et à contrario les matériaux conducteurs laissent la libre circulation des électrons. La conduction d'un semi-conducteur dépend de son agitation thermique interne c'est-à-dire que sa résistance diminue lorsque la température augmente. Le semi-conducteur utilisé est placé à une température (77 K, -196,15 °C) le considérant alors comme isolant avec une énergie de gap faible. L'azote liquide est utilisé pour atteindre cette température. Lorsqu'un rayonnement interagit avec le semi-conducteur, un courant proportionnel à l'énergie déposée est créé et collecté permettant de détecter les photons gamma et d'obtenir leur énergie avec une grande précision.

Un contrôle hebdomadaire du détecteur est fait par le groupe Recherche et Développement d'ARRONAX afin de connaître l'évolution des paramètres et d'en tenir compte si besoin. Nous pouvons voir sur la figure 2.3, le spectromètre utilisé. Au centre, il y a la tête de détection isolée dans une enceinte en plomb. Cette enceinte permet de limiter les rayonnements parasites venant de la radioactivité naturelle. A l'intérieur, entre le plomb et la tête de détection, une couche de cuivre atténue les rayons X de fluorescence produits par l'interaction des photons de la source radioactive avec le plomb.



Figure 2.3 – Photo du spectromètre « recherche » utilisé à ARRONAX.

## 5.2. Les interactions photon/matière

Les photons interagissent avec la matière à travers trois mécanismes principaux dans la gamme d'énergie d'intérêt pour nos études : l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la création de paires. Ils sont schématisés sur les figures 2.4, 2.5, 2.6.

### 5.2.1. L'effet photoélectrique

L'effet photoélectrique (cf. figure 2.4) correspond à l'absorption totale du photon par un électron d'un atome du milieu. Cet électron est alors éjecté du cortège électronique du noyau avec une énergie cinétique égale à l'énergie du photon moins son énergie de liaison [13]. Le trou ainsi généré est comblé par un électron d'une couche supérieure qui va soit émettre un rayonnement X de fluorescence soit transmettre cette énergie à un autre électron qui va être éjecté (électron Auger).

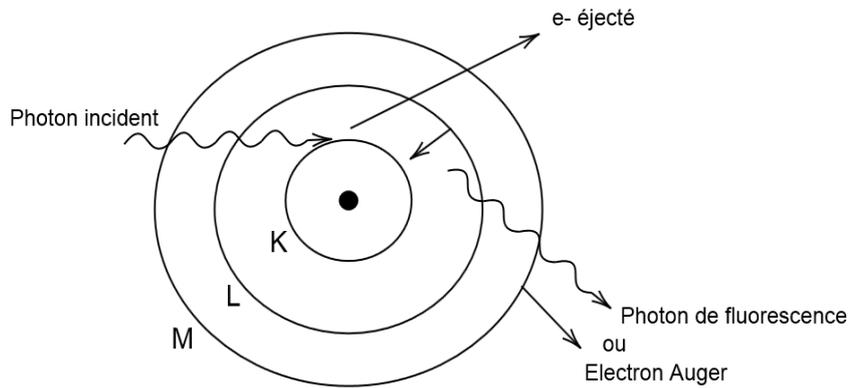


Figure 2.4 - Schéma de principe de l'effet photoélectrique.

### 5.2.2. La diffusion Compton

La diffusion Compton est la diffusion élastique d'un photon sur un électron libre. Dans la matière, les électrons possèdent une énergie de liaison cependant si le photon incident possède une énergie élevée devant celle de l'énergie de liaison, l'électron peut être considéré comme libre [13]. La figure 2.5 présente le processus de diffusion Compton. Le photon incident va interagir avec l'électron et lui transmettre une partie de son énergie. Le photon est alors diffusé et l'électron éjecté.

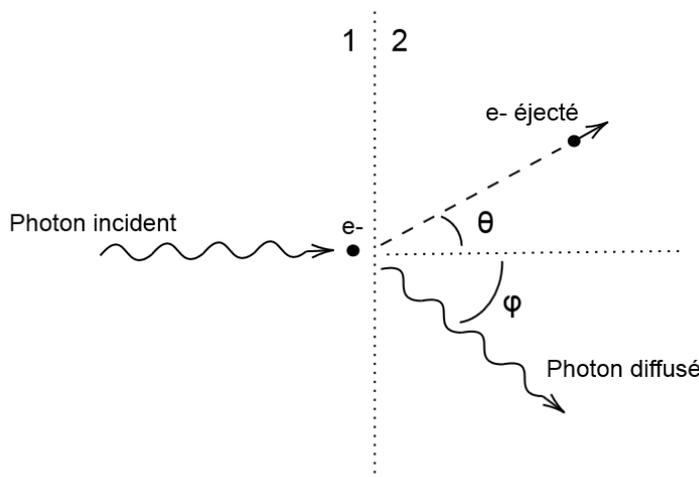


Figure 2.5 - Schéma de principe de la diffusion Compton.

L'énergie  $E'$  du photon diffusé est donnée par la relation (2.10) et l'énergie cinétique de l'électron est égale à  $E_{\text{electron}} = E - E'$ .

$$E' = \frac{E}{1 + \gamma(1 - \cos \varphi)} \quad (2.10)$$

Avec  $E$  l'énergie du photon incident,  $\varphi$  l'angle de déviation du photon et  $\gamma = \frac{E}{m_e c^2}$  avec  $m_e c^2$  égal à 511 keV. La relation entre les angles de diffusion s'écrit :

$$\cot \varphi = (1 + \gamma) \tan\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (2.11)$$

La probabilité de diffusion du photon n'est pas isotrope. Cette probabilité peut être calculée à partir de la formule de Klein-Nishina [13].

### 5.2.3. La création de paires

Pour un photon d'énergie supérieure à  $E_\gamma > 1022$  keV, le processus de création de paires est possible. Ce processus est la transformation de la totalité de l'énergie du photon, par passage à proximité d'un noyau, en un électron et un positon. L'excédent d'énergie ( $E_\gamma - 1022$  keV) va être distribué, sous forme d'énergie cinétique, à l'électron et au positon. Le positon va, une fois ralenti (après à un temps  $\sim$ ps), s'annihiler avec un électron du milieu pour donner naissance à deux photons de 511 keV émis dans des directions opposées [13]. Le mécanisme est schématisé dans la figure 2.6.

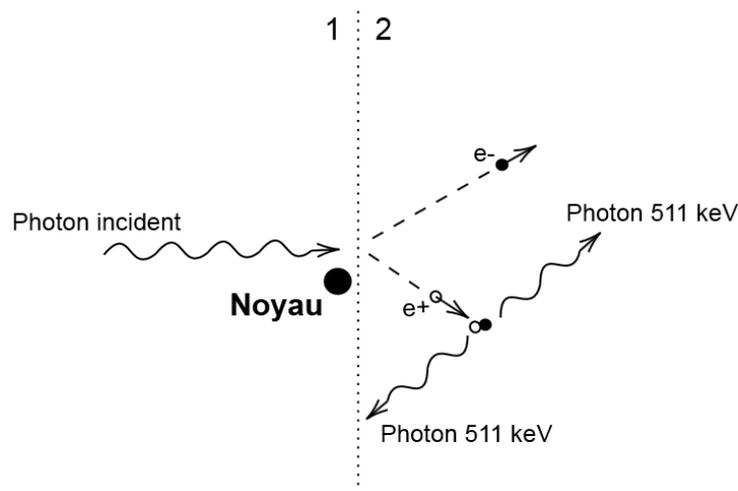


Figure 2.6 - Schéma de principe de la création de paires.

La section efficace de ces mécanismes dépend du nombre atomique  $Z$  du matériau absorbant. Plus le  $Z$  du matériau absorbant est élevé plus cela favorise la probabilité d'avoir les processus photoélectrique et de création de paires car un  $Z$  plus grand implique un cortège électronique plus dense [13]. Nous n'avons pas de dépendance en  $Z$  pour la diffusion Compton. Ces trois mécanismes ont aussi une probabilité d'être présent qui dépend de l'énergie du photon. Le domaine de prédominance de chacun de ces mécanismes en fonction du  $Z$  du matériau absorbant et de l'énergie du photon est présenté sur la figure 2.7.

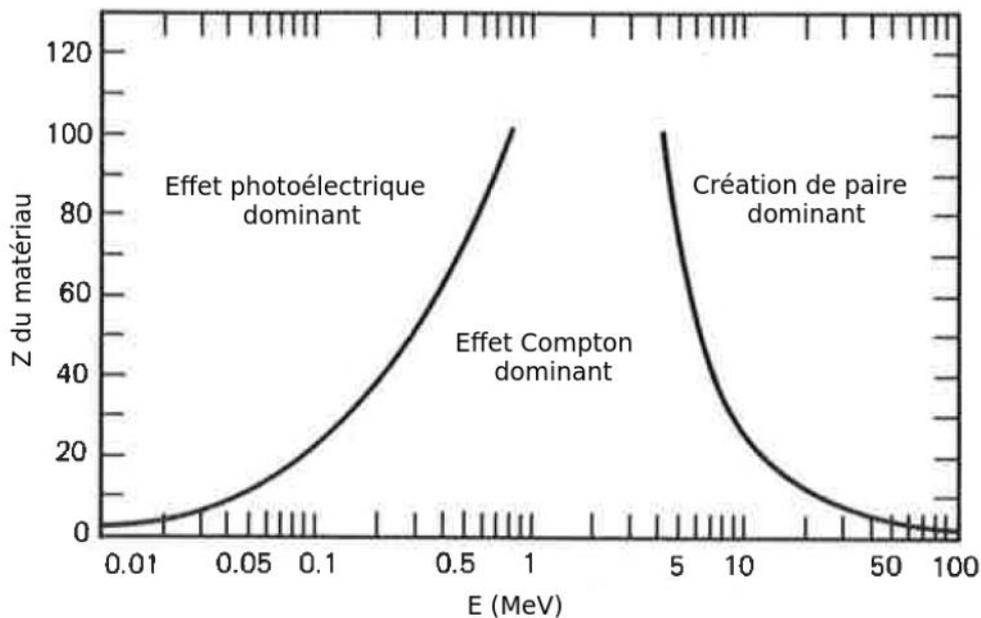


Figure 2.7 - Graphique donnant le mécanisme dominant d'interaction photon/matière dans un milieu absorbant de nombre atomique Z en fonction de l'énergie des photons [16].

#### 5.2.4. Ces mécanismes physiques sur un spectre gamma

Les différents processus, effet photoélectrique, diffusion Compton et création de paires, peuvent induire des artefacts (formation de pics inconnus, d'un plateau sur le spectre...) dans les spectres qui sont mesurés. Ces artefacts sont schématisés sur la figure 2.8.

Via l'effet photoélectrique, le photon gamma va transmettre toute son énergie à un électron du milieu. Cet électron collecté va déposer son énergie dans le détecteur ce qui va induire la formation du pic d'absorption totale à l'énergie du photon gamma incident.

Via la diffusion Compton, le photon va transmettre une partie de son énergie à un électron qui va déposer son énergie dans le détecteur et une autre partie à un photon qui peut s'échapper du détecteur sans déposer d'énergie. Le détecteur va donc collecter une énergie qui est inférieure à celle du photon incident. De plus, comme l'angle de diffusion de l'effet Compton est variable, l'énergie collectée varie d'un photon à l'autre. Cela va se traduire par la création d'un plateau appelé front Compton sur le spectre.

Via le mécanisme de création de paires, le positon après annihilation donne naissance à deux photons de 511 keV. L'un ou les deux photons peuvent s'échapper du détecteur sans déposer d'énergie. L'énergie mesurée sera alors diminuée de 511 ou 1022 keV et nous verrons apparaître deux nouveaux pics dans le spectre appelés pic d'échappement simple ou double respectivement.

Il est important, lors de l'analyse des données, de prendre en compte l'ensemble de ces phénomènes.

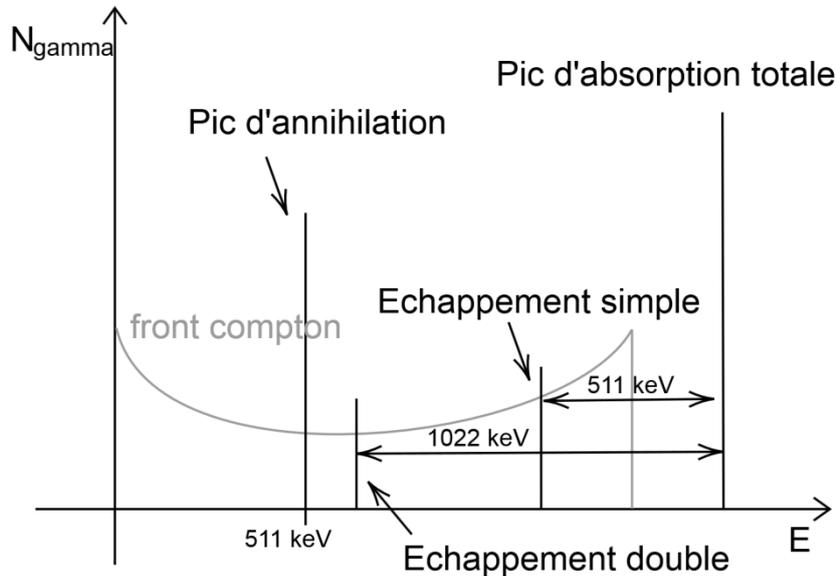


Figure 2.8 - Schéma d'un spectre explicitant les pics issus des différents mécanismes d'interaction des gammas avec un détecteur germanium.

### 5.3. L'acquisition de données

Pour pouvoir analyser les données acquises avec le spectromètre gamma, il est nécessaire d'étalonner le détecteur. Pour cela, des données ont été acquises à l'aide d'une source de référence d' $^{152}\text{Eu}$ .

#### 5.3.1. L'étalonnage en énergie du détecteur

Comme vu précédemment, souvent, les radionucléides émettent lors de leur décroissance des photons gamma à une énergie qui leur est propre ce qui permet de les identifier. L'énergie des photons gamma est alors le paramètre permettant l'identification des radionucléides présents dans la source et il est important de mettre en correspondance le numéro du canal de détection et l'énergie des photons mesurés. L'étalonnage en énergie permet d'associer à chaque canal de détection une énergie. Pour cela, il faut déterminer les facteurs A et B reliant un numéro de canal à une énergie par une relation linéaire,  $E_{\gamma} = A * N_{\text{canal}} + B$ .

Pour effectuer cet étalonnage, une source étalon d' $^{152}\text{Eu}$  est utilisée. Cette source présente l'intérêt d'avoir plusieurs photons émis dans la gamme d'énergie d'intérêt dans notre étude (cf. tableau 2.1). Sa période radioactive est de 13,537 ans et l'activité de la source était de 3,437 kBq le 26/11/2008 à 12 h GMT. L'acquisition du spectre est réalisée pendant plusieurs jours dans la géométrie utilisée dans le cadre de cette thèse,

c'est-à-dire à 19 cm de la tête de détection. Un des spectres acquis est présenté en figure 2.9.

Energie des photons gamma (keV)	Intensité des photons gamma (%)
121,8	28,6
244,7	7,6
344,3	26,5
411,1	2,2
444,0	2,8
778,9	12,9
867,4	4,2
964,1	14,6
1085,9	10,2
1112,1	13,6
1212,9	1,4
1299,1	1,6
1408,0	21,0

Table 2.1 - Energies et intensités associées aux photons gamma émis par l' $^{152}\text{Eu}$  qui a été utilisé pour l'étalonnage du détecteur [17].

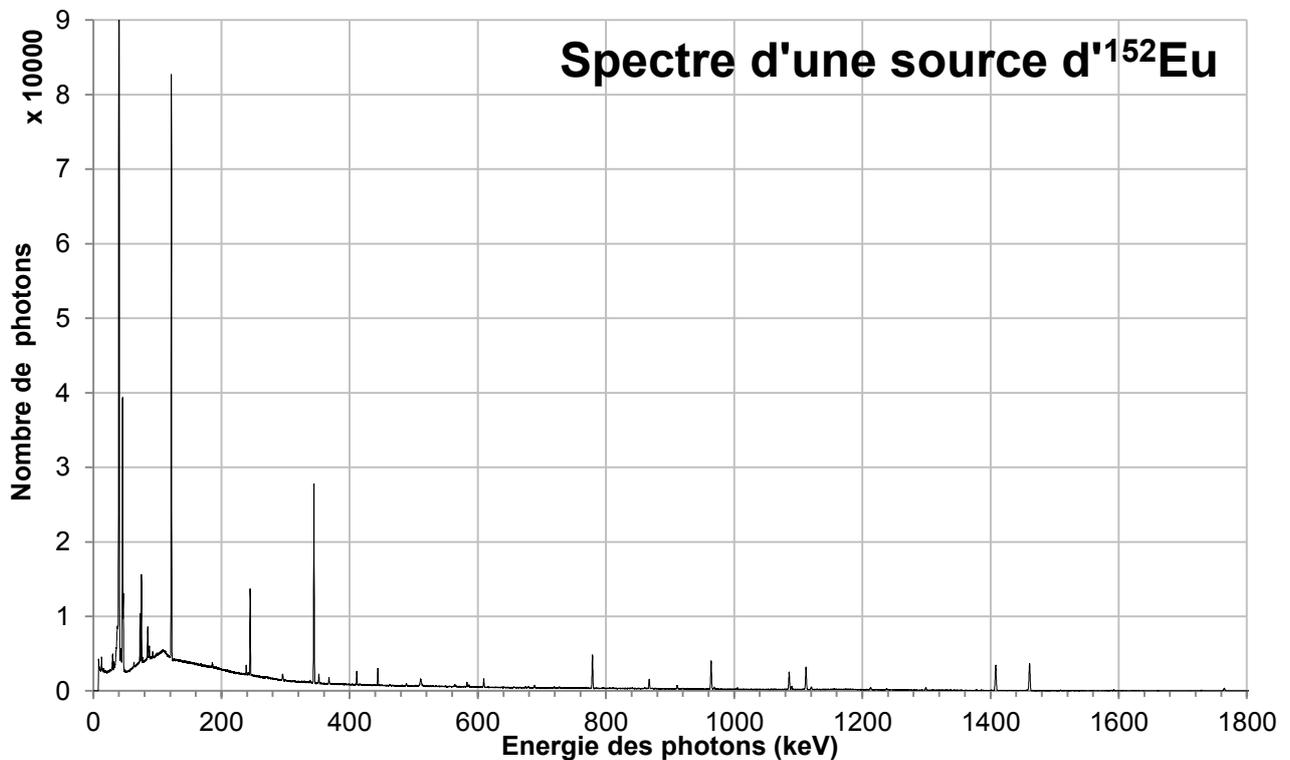


Figure 2.9 - Spectre d'une source d' $^{152}\text{Eu}$  acquis pendant une durée de 5 jours et utilisé pour la calibration du détecteur (2019)

Le suivi régulier du détecteur a montré de faibles fluctuations des paramètres durant la thèse. L'étalonnage du détecteur a été fait 4 fois et les paramètres A et B obtenus sont donnés dans le tableau 2.2 et sur le graphique de la figure 2.10. Nous pouvons voir dans ce tableau l'évolution des paramètres et dans le graphique la linéarité de l'étalonnage en énergie. Ces étalonnages permettent de prendre en compte ces petites évolutions en adoptant un nouvel étalonnage régulièrement.

	A	B
23/03/2016	0,12677	0,37267
05/05/2017	0,12674	0,40122
04/03/2018	0,12672	0,43280
29/05/2019	0,12670	0,39352
Ecart type	0,00003	0,0249

Table 2.2 - Les paramètres A et B obtenues pour l'étalonnage en énergie du détecteur "recherche".

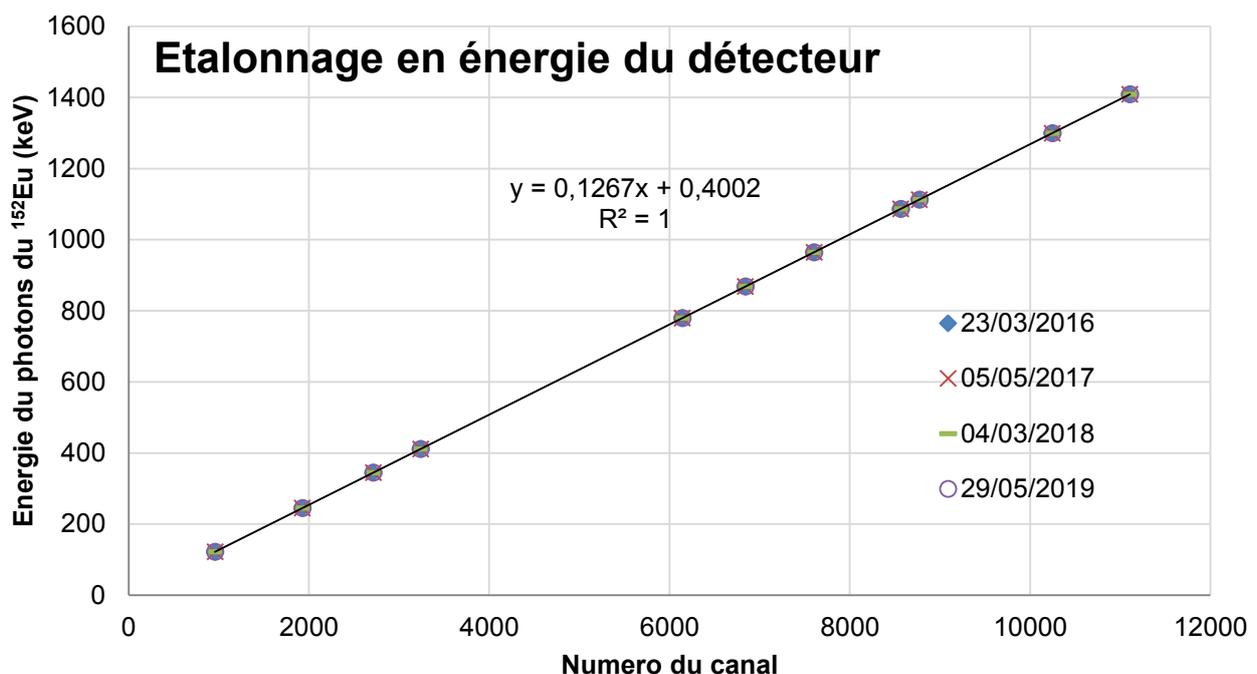


Figure 2.10 - Graphique d'étalonnage en énergie du détecteur « recherche ».

### 5.3.2. L'étalonnage en efficacité du détecteur

L'efficacité change en fonction du détecteur, de la géométrie utilisée (position de la source plus ou moins proche de la tête de détection) et de l'énergie des photons. L'objectif de l'étalonnage en efficacité est de déterminer le rapport entre le nombre de photons gamma détectés et le nombre de gamma émis par la source à chaque énergie en adoptant la géométrie de notre étude.

$$\varepsilon(E) = \frac{N_{\gamma,\text{collectés}}(E)}{N_{\gamma,\text{émis}}(E)} \cdot 100 \quad (2.12)$$

Où  $\varepsilon(E)$  est l'efficacité du détecteur en % à une énergie  $E$ ,  $N_{\gamma,\text{collectés}}(E)$  le nombre de gamma collectés par le détecteur et  $N_{\gamma,\text{émis}}(E)$  est le nombre de gamma émis par la source étalon à cette énergie.

Le nombre de gamma émis par la source pour une énergie  $E$  est donné par (2.13).

$$N_{\gamma,\text{émis}}(E) = N_{0,\text{noyaux}}(1 - e^{-\lambda t_{\text{comptage}}}) \cdot I(E) \quad (2.13)$$

Où  $N_{0,\text{noyaux}}$  est le nombre de noyaux au début du comptage,  $\lambda$  la constante radioactive du radionucléide étalon,  $t_{\text{comptage}}$  le temps de comptage et  $I(E)$  est l'intensité du gamma à l'énergie  $E$ .

L'équation permettant l'étalonnage en efficacité du détecteur devient alors :

$$\varepsilon(E) = \frac{N_{\gamma,\text{collectés}}(E)}{N_{0,\text{noyaux}}(1 - e^{-\lambda t_{\text{comptage}}}) \cdot I(E)} \cdot 100 \quad (2.14)$$

Nous obtenons une valeur pour chaque énergie des photons gamma émis par la source étalon. Ces énergies ont été présentées dans le tableau 2.1. A partir de ces points, une courbe d'efficacité est établie afin de définir une efficacité pour toute la gamme en énergie du détecteur. Sur la figure 2.11, nous avons représenté les courbes d'efficacité obtenues lors des 4 étalonnages réalisés pendant ce travail de thèse. Ces 4 courbes se superposent ce qui traduit la stabilité de l'étalonnage du détecteur « recherche » sur une longue période de temps.

Les émissions de l' $^{152}\text{Eu}$  ne couvrent pas la totalité de la plage en énergie. Cela implique que le comportement, extrait des valeurs mesurées à basse énergie, est très différent du comportement attendu car l'efficacité doit diminuer pour les faibles énergies jusqu'à atteindre une efficacité nulle pour des photons d'énergie nulle. La quantification des radionucléides ne pourra donc se faire, avec notre courbe d'efficacité, que pour des photons d'énergie comprise entre 121 et 2000 keV.

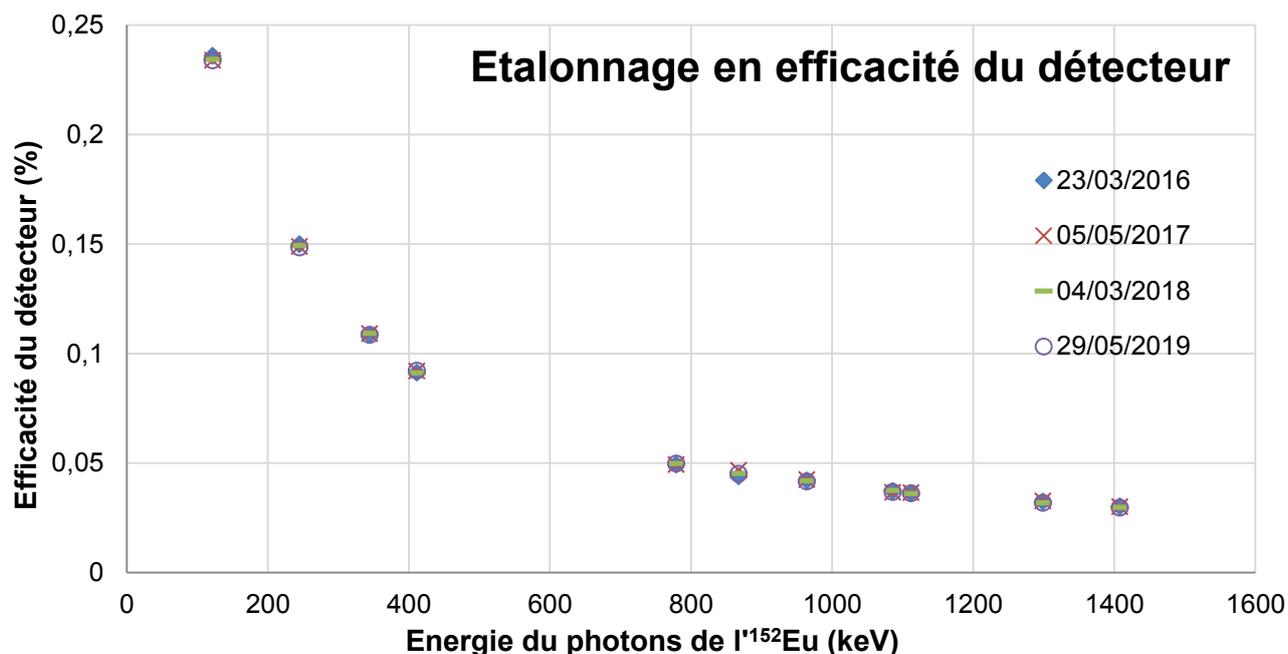


Figure 2.11 - Graphique de l'étalonnage en efficacité du détecteur "recherche".

### 5.3.3. L'acquisition de spectres dans la pratique

Après l'irradiation, les feuilles sont laissées pendant environ 15 h dans la casemate. Cela correspond en général à un tir en fin de journée et une collecte des feuilles le lendemain en début de journée. Ce temps d'attente permet de laisser décroître les radionucléides à temps de demi-vie très courts (< 1,5 h). Ces radionucléides, si ce ne sont pas ceux que nous souhaitons étudier, ne sont pas des contaminants potentiels car quelques heures suffiraient à les faire disparaître. La récupération tardive des feuilles permet d'obtenir un temps mort bas pendant l'acquisition de spectres. De plus, la dose reçue par les expérimentateurs est limitée.

Un comptage court d'une à deux heures puis un comptage long à plusieurs jours d'intervalles a été effectué pour chaque feuille du « stack » à l'exception du dégradeur. Un comptage court permet d'acquérir un spectre pour les radionucléides au temps de demi-vie court (< 10 h) et un comptage long permet de mesurer les radionucléides au temps de demi-vie plus long.

Lors des comptages, plusieurs rayonnements peuvent arriver quasi-simultanément sur le détecteur. Le premier va être comptabilisé mais va engendrer un temps durant lequel la chaîne d'acquisition ne sera pas opérationnelle. Ce temps d'inactivité est appelé temps mort. Afin de limiter ce temps mort pour une source donnée, il est possible de faire varier l'angle solide de détection ce qui a pour effet de diminuer le nombre de photons qui arrivent dans le détecteur car l'angle solide diminue. Cette diminution évolue comme l'inverse de la distance, source/détecteur, au carré. Dans mon cas, les sources ont été placées à 19 cm de la tête de détection. Le plus souvent, le temps mort

était inférieur à 1 % et aucun spectre n'a été acquis avec un temps mort supérieur à 8 %.

## 5.4. L'analyse des spectres

Après leur acquisition et l'étalonnage du détecteur, les spectres sont analysés pour identifier les radionucléides produits et ensuite déterminer leur activité. Le logiciel Fitzpeaks [18] est utilisé pour l'analyse. Pour chaque radionucléide, une bibliothèque est construite permettant l'analyse de l'activité. La bibliothèque d'un radionucléide contient son temps de demi-vie et répertorie ses émissions gamma c'est-à-dire leur énergie avec leur incertitude, et leur intensité. La création de ces bibliothèques, plutôt que l'utilisation de bibliothèques génériques, est effectuée afin d'utiliser la même base de données pour l'ensemble des radionucléides car les bibliothèques génériques ont été implémentées pour peu de radionucléides. De plus, il arrive qu'une émission gamma soit commune avec celle d'un autre radionucléide ce qui rend l'analyse incorrecte. Lors de la création de nos propres bibliothèques, nous sélectionnons les émissions gamma qui sont propres aux radionucléides présents.

Dans la pratique, les bibliothèques ont été créées en deux versions ; la première permet d'identifier les raies présentes sur le spectre et de discerner les éventuelles raies polluées par une autre décroissance, la deuxième bibliothèque contient les raies non polluées identifiées par la première et permet le calcul de l'activité. Nous commençons par une analyse dans laquelle l'activité est calculée à partir de chaque émission du radionucléide, la première bibliothèque. Ensuite, les activités obtenues sont comparées entre elles et si elles sont cohérentes, en prenant en compte l'incertitude, l'activité est déterminée à partir de l'ensemble des émissions gamma, la deuxième bibliothèque. La base de données utilisée pour la conception de ces bibliothèques est Nudat 2.7 du NNDC (National Nuclear Data Center) [1].

### 5.4.1. Le calcul d'activité à partir d'une émission gamma

Le nombre de photons gamma détectés à une certaine énergie est calculé à partir de l'intégration de la gaussienne centrée à cette énergie après soustraction du bruit de fond. Nous souhaitons établir la relation entre le nombre de photons gamma collectés et l'activité du noyau émetteur. L'évolution du nombre de désintégrations par seconde d'un radionucléide  $i$  est régie par la loi de décroissance :

$$\text{Act}_i(t) = \text{Act}_i(0) e^{-\lambda_i t} \quad (2.15)$$

Où  $\lambda_i$  est la constante radioactive du radionucléide  $i$ ,  $\text{Act}_i(0)$  est son activité initiale.

Pour avoir le nombre de désintégrations sur le temps d'acquisition, on intègre cette loi entre  $t_{\text{début comptage}}$  et  $t_{\text{fin comptage}}$ . Pour un temps de comptage  $T$ , on fixe  $t_{\text{début comptage}}$  à 0 et  $t_{\text{fin comptage}}$  à  $T$ .

$$N_{\text{désin}_i} = \int_0^T \text{Act}_i(0) e^{-\lambda_i t} dt = \frac{\text{Act}_i(0)}{\lambda_i} (1 - e^{-\lambda_i T})$$

Où  $N_{\text{désin}_i}$  est le nombre de désintégrations du radionucléide  $i$ .

En prenant en compte l'efficacité du détecteur et l'intensité du photon gamma émis nommé  $x$ , le nombre de photons gamma détectés est :

$$N_{i,\text{photon}}^x = \text{Act}_i(0) \frac{\varepsilon^x \cdot I_i^x \cdot (1 - e^{-\lambda_i T})}{\lambda_i}$$

Soit

$$\text{Act}_i(0) = N_{i,\text{photon}}^x \frac{\lambda_i}{\varepsilon^x \cdot I_i^x \cdot (1 - e^{-\lambda_i T})} \quad (2.16)$$

Où  $N_{\text{photon}}^x$  est le nombre de photons  $x$  détectés,  $\varepsilon$  est l'efficacité du détecteur pour un gamma  $x$ ,  $I$  l'intensité du gamma  $x$  du radionucléide  $i$ ,  $N_{i,\text{noyaux}}$  est le nombre de noyaux du radionucléide  $i$ .

L'activité d'un radionucléide peut être calculée à partir d'une raie gamma mais il est préférable quand cela est possible de la déterminer à partir de plusieurs raies gamma.

#### 5.4.2. Le calcul d'activité lorsque plusieurs émissions gamma entre en jeu

Les radionucléides émetteurs de gamma à différentes énergies vont faire apparaître sur le spectre des pics d'absorption totale à chacune de ses énergies. Il va alors être possible de calculer l'activité à partir de l'ensemble de ces pics.

Dans un premier temps, l'activité associée à chaque pic est calculée à l'aide de la relation (2.17). Ensuite, une moyenne pondérée par l'incertitude permet de déduire l'activité du radionucléide [13]. La relation définissant cette moyenne est donnée par :

$$\langle \text{Act}_i \rangle = \frac{\sum \text{Act}_j / \Delta \text{Act}_j^2}{\sum 1 / \Delta \text{Act}_j^2} \quad (2.17)$$

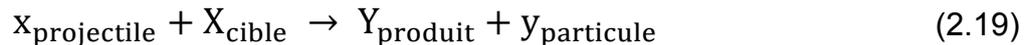
Où  $\langle \text{Act}_i \rangle$  est l'activité moyenne pondérée d'un radionucléide  $i$ ,  $\text{Act}_j$  est l'activité calculée au pic d'énergie  $j$  et  $\Delta \text{Act}_j$  est l'incertitude sur la mesure de l' $\text{Act}_j$ .

L'incertitude sur cette moyenne pondérée [13] est alors définie par la relation (2.18).

$$\Delta^2 \langle Act_i \rangle = \frac{1}{\sum 1/\Delta Act_i^2} \quad (2.18)$$

## 6. La détermination de l'énergie seuil de réaction

La détermination de l'énergie seuil des réactions permet pour un faisceau à une énergie donnée et une cible de connaître les réactions pouvant alors avoir lieu. L'énergie seuil constitue ainsi un paramètre permettant de limiter la production de contaminants en choisissant une énergie de projectile inférieure aux énergies seuils des réactions les produisant. Pour calculer ces énergies seuils, nous considérons la réaction (2.19) d'un projectile  $x$  interagissant sur un noyau cible  $X$  produisant un noyau  $Y$  et l'éjection de la particule  $y$ . L'éjection de particules peut être multiple. Nous pouvons écrire cette réaction sous la forme  $X_{cible}(x_{projectile}, y_{particule})Y_{produit}$ .



Le bilan d'énergie est défini par (2.20). Cette équation est appelée calcul de « Q-value » ou de la chaleur de réaction.

$$Q = (m_X + m_x) - (m_Y + m_y) \quad (2.20)$$

Où les masses sont exprimées en MeV. Cette relation (2.19) peut être établie en utilisant les excès de masse. L'excès de masse est la différence entre la masse réelle d'un noyau et son nombre de masse exprimé en unité de masse atomique qui s'écrit comme la relation (2.21). Les excès de masse sont disponibles dans le « Nuclear Waller card » [19].

$$\Delta_{masse} = m_{noyau} - A * m_u \quad (2.21)$$

$$Q = (\Delta m_X + \Delta m_x) - (\Delta m_Y + \Delta m_y) \quad (2.22)$$

Où  $A$  est la masse atomique du noyau et  $m_u = 931,49 \text{ MeV}/c^2$  l'unité de masse atomique unifiée.

Si  $Q > 0$ , la réaction est exothermique ce qui signifie qu'il n'y a pas besoin d'ajouter de l'énergie pour former les produits de la réaction à partir des énergies de masse du projectile et de la cible.

Si  $Q < 0$ , la réaction est endothermique. Pour qu'elle puisse avoir lieu, il faut apporter de l'énergie, ce qui se fait grâce à l'énergie cinétique du projectile. Pour que la réaction puisse avoir lieu, il faut fournir une énergie cinétique du projectile supérieure à l'énergie seuil de la réaction,  $E_{\text{seuil}}$ . L'énergie seuil d'une réaction est définie par la relation (2.23).

$$E_{\text{seuil}} = -Q \frac{m_X + m_x + m_Y + m_y}{2m_X} \quad (2.23)$$

## 7. La notion d'activité spécifique

L'activité spécifique est la mesure de l'activité du radionucléide d'intérêt par rapport à la masse de tous les autres noyaux du même élément présents dans un échantillon. Elle s'écrit :

$$\text{Act}_{\text{spécifique}} = \frac{\text{Act}_{\text{radionucléide d'intérêt}}}{\sum_i m_i} \quad (2.24)$$

Où  $m_i$  est la masse molaire du noyau  $i$  qui est un isotope du radionucléide d'intérêt. L'activité spécifique est alors exprimée en MBq/mg ou MBq/nmol. Pour le radio-marquage de peptides avec des métaux, un consensus scientifique s'accorde pour avoir au minimum une activité spécifique de 10 MBq/nmol. L'objectif est de s'approcher de la production exclusive du radionucléide d'intérêt et donc pour cela de limiter la production d'autres noyaux. Nous pouvons étendre la définition de l'activité spécifique en prenant la masse de l'ensemble des atomes qui ont un comportement chimique équivalent au radionucléide d'intérêt.

## 8. L'estimation de l'activité produite par le calcul de rendement en cible épaisse

Lorsque la courbe de section efficace de production a été définie, une estimation de la production peut être effectuée. La production d'un radionucléide se fait en cible épaisse afin de maximiser l'activité produite.

Le rendement de production est noté TTY en anglais (Thick Target Yield), cette notation TTY sera adoptée par la suite. Le rendement est calculé à partir de la formule (2.1) de la partie 1.2. Le rendement TTY est exprimé en  $\text{MBq} \cdot \mu\text{A}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ . Le calcul de rendement donne pour un faisceau de 1  $\mu\text{A}$  et un temps d'irradiation d'une heure, l'activité du radionucléide produite en MBq. Les bornes d'intégration en énergie sont choisies en

fonction de la section efficace de façon à optimiser la production et en fonction de la section efficace des contaminants afin d'en limiter la production.

Les courbes de rendement présentées dans ces études, ont été calculées à partir de l'ensemble de la section efficace de la réaction d'intérêt. Elles ont généralement l'allure présentée sur la figure 2.12. La valeur obtenue à une énergie donnée correspond à la production attendue en utilisant un faisceau incident d'énergie égale à cette énergie et une cible dont l'épaisseur réduit l'énergie des particules du faisceau jusqu'à atteindre  $E_{\text{seuil}}$ . Nous pouvons voir que la courbe atteint un quasi-plateau à une valeur  $y_{\text{max}}$ . Cette valeur de TTY,  $y_{\text{max}}$ , est atteinte si l'ensemble du pic de la section efficace est utilisée. Au-delà du pic, la section efficace atteint un plateau dont la valeur correspond en général à quelques millibarns ce qui se traduit par une faible évolution de TTY.

Pour un faisceau de particules incidentes  $E_2$ , traversant une cible d'épaisseur impliquant la perte d'énergie de ces particules jusqu'à  $E_1$ , l'activité peut être obtenue en faisant la soustraction  $y_2 - y_1$  puis en multipliant par l'intensité et le temps d'irradiation. Cette estimation sera d'autant plus valide que le temps d'irradiation reste inférieur à la demi-vie de l'élément d'intérêt.

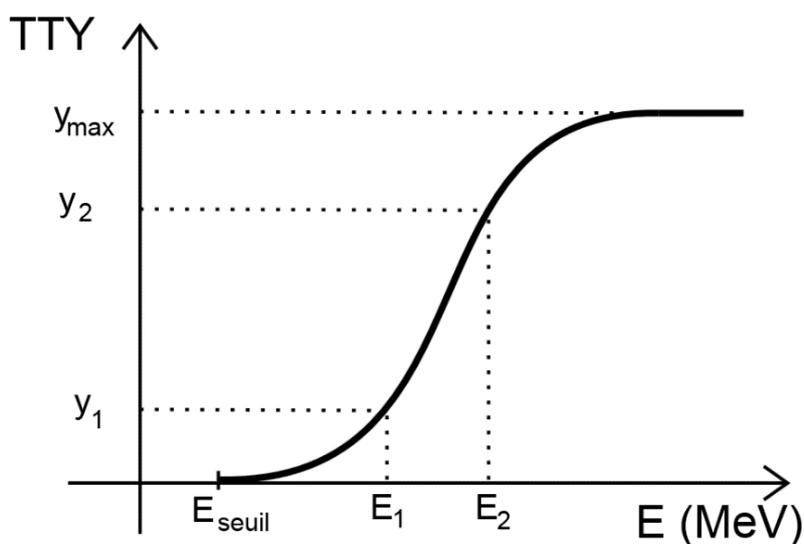


Figure 2.12 - Schéma d'une courbe de rendement ou TTY, Thick Target Yield, dans un cas général.

Un programme « Radionuclide Yield Calculator » (RYC) a été développé à ARRONAX permettant de calculer la courbe de rendement à partir d'une section efficace donnée [20]. Cet outil a été utilisé dans ces études pour les estimations d'activités produites en cibles épaisses.

## 9. Calculs des sections efficaces à partir du code de réactions nucléaires TALYS.

Les données de sections efficaces ne sont pas toujours disponibles. C'est, par exemple, le cas pour certaines réactions qui ont été délaissées et d'autres pour lesquelles la mesure est compliquée comme par exemple pour la détermination de la production des noyaux stables. Dans le but d'obtenir une estimation de la production de ces noyaux, nous avons utilisé le code TALYS pour déterminer ces sections efficaces. C'est un code de calcul nucléaire qui permet de simuler l'ensemble des processus présents lors de l'interaction de projectiles légers (photons, n, p, d, t, He) avec une cible ( $A > 12$ ) dans une gamme d'énergie allant jusqu'à 200 MeV [21].

Après avoir défini les paramètres de réaction c'est à dire le matériau cible, la particule incidente et l'énergie incidente de la particule, les calculs effectués par TALYS donnent l'ensemble des sections efficaces de toutes les productions de radionucléides possibles dans des états excités ou non.

TALYS propose un grand nombre de modèles pour décrire les différents phénomènes physiques intervenant lors des interactions entre les particules incidentes et la matière. La structure du code les définissant est présentée sur la figure 2.13. Pour chaque phénomène, TALYS renferme plusieurs modèles physiques permettant de le décrire. Par défaut, TALYS utilise une combinaison de ces modèles physiques pour calculer des valeurs de sections efficaces, présentée dans le tableau 2.3. Le code offre à l'utilisateur la possibilité de choisir le modèle décrivant chaque phénomène.

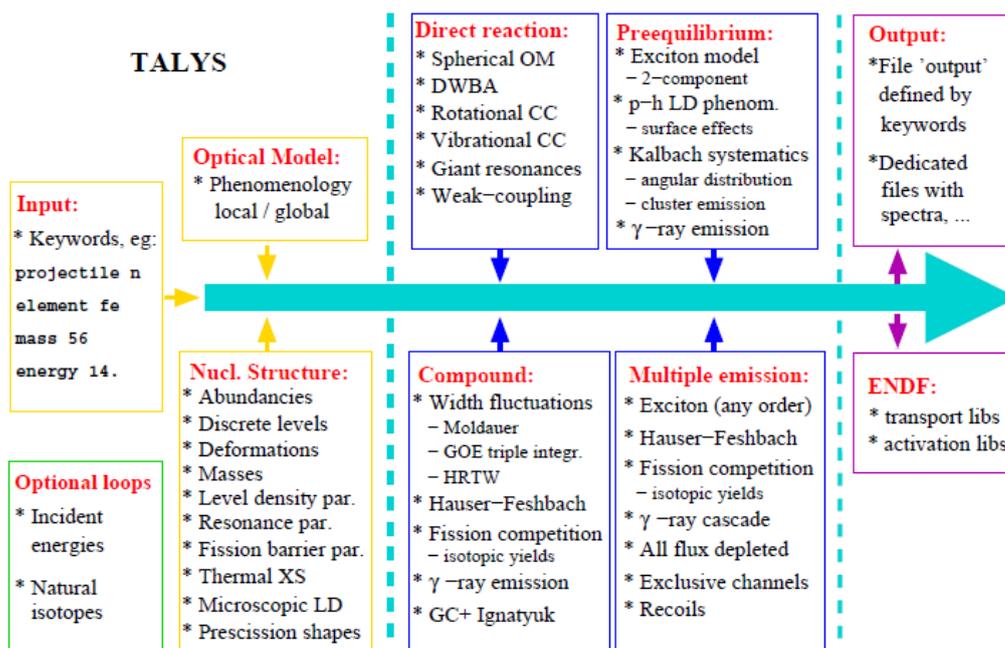


Figure 2.13 - Schéma de la structure de TALYS [21].

La combinaison par défaut utilisée par TALYS ne prédisant pas toujours de manière satisfaisante les sections efficaces expérimentales, une étude a essayé de déterminer une combinaison de modèles qui permettrait une meilleure reproduction des données de sections efficaces. Trois processus physiques ont un effet important sur les résultats : le modèle optique, le modèle de pré-équilibre et le modèle densité de niveaux [22],[23].

**Le modèle optique** est une approche de diffusion nucléon-noyau. Il considère le noyau comme un milieu optique absorbant et diffusant pour l'onde incidente. Il permet d'expliquer les oscillations observées dans les sections différentielles de diffusion des particules sur les noyaux.

**Le modèle de pré-équilibre** apparait pour des énergies de projectiles supérieures à quelques dizaines de MeV. A ces énergies, le projectile subit une succession de chocs avec les nucléons du noyau. Le système {cible + projectile} peut émettre des particules avant de parvenir à une situation d'équilibre. Les particules ont une énergie moyenne plus élevée que les particules émises après que la situation d'équilibre est atteinte et sont fortement focalisées vers l'avant conservant une mémoire de la voie d'entrée.

**Le modèle de densité de niveaux** s'appuie sur le principe de Pauli où chaque particule peut occuper un certain nombre d'états à des énergies différentes. Toutes les particules ont les mêmes niveaux d'énergie accessibles et plusieurs peuvent se trouver dans le même état. La densité de niveaux représente le nombre d'états entre les énergies  $E$  et  $\Delta E$ .

	Paramètres par défaut			Paramètres ajustés		
	Proton	Deuton	Alpha	Proton	Deuton	Alpha
Modèle optique	-	Normal deuteron potential [24]	Normal alpha potential	-	Deuteron potential of Han et al.[25]	Alpha potential table 1[26]
Modèle de pré-équilibre [27]–[29]	Exciton model: Analytical transition rates with energy-dependent matrix element.			Exciton model: Numerical transition rates with optical model for collision probability		
Modèle de densité de niveau [30]	Constant temperature + Fermi gas model			Microscopic level densities (Skyrme force) from Hilaire's combinatorial tables		

Table 2.3 - Modèles utilisés pour les combinaisons par défaut et "ajustée" [21]–[23].

Pour chacun de ces trois mécanismes, il existe plusieurs modèles dans le code TALYS. Un travail auquel j'ai eu l'occasion de participer pendant mes années d'étude de licence a été fait sur le code afin de trouver une combinaison de modèles permettant de définir au mieux n'importe quelle section efficace de production pour des isotopes d'intérêt

médical pouvant être produit par accélérateur. Cette combinaison de modèles est appelée « ajustée » et sera notée par la lettre a dans les graphiques. Elle est présentée dans le tableau 2.3.

Pour les différentes réactions étudiées, j'ai utilisé TALYS version 1.9 pour obtenir des valeurs de sections efficaces pour la combinaison de modèles par défaut et ajustée. Cela m'a permis de comparer les valeurs du code avec mes valeurs expérimentales et de confirmer que la combinaison dite ajustée prédit globalement mieux les sections efficaces.

De manière générale, le code donne une allure de section efficace convenable mais elle est souvent décalée en énergie et en amplitude.

Lorsqu'une réaction n'a aucune donnée de sections efficaces, cet outil permet de faire une estimation de ces valeurs avec un bon ordre de grandeur. Il constitue un outil puissant dans ces cas de figure.

## **10. Conclusion sur le chapitre**

Dans ce chapitre, nous avons vu la notion de section efficace de production. De nouvelles données pourront permettre d'optimiser la production d'un radionucléide d'intérêt et de minimiser la production de contaminants. Les paramètres intervenants dans la mesure et le calcul des sections efficaces ont été discutés. Les outils permettant l'obtention de ces paramètres ont été explicités.

Cependant, un de ces paramètres, le flux de particules, n'a pas été présenté. Les méthodes de sa caractérisation et de son calcul feront l'objet du prochain chapitre.

# Chapitre III. La mesure de courant

<b>1. LA MESURE DE COURANT PAR LES REACTIONS MONITEURS.....</b>	<b>50</b>
1.1. LA REACTION MONITEUR .....	50
1.2. LE CALCUL DE SECTION EFFICACE .....	50
1.3. L'INCERTITUDE DE LA METHODE RELATIVE .....	51
<b>2. LA MESURE DE COURANT A L'AIDE DE LA « FARADAY CUP ».....</b>	<b>52</b>
2.1. LA MESURE DU FLUX DE PARTICULES AVEC UNE « FARADAY CUP » .....	52
2.2. LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL .....	54
2.3. ETUDE DE LA MESURE DE COURANT .....	57
2.3.1. La réponse du dispositif à un courant donné.....	57
2.3.2. Les expériences d'étude de la mesure de courant à l'aide de la « Faraday cup » .....	59
2.3.2.1. Le principe de fonctionnement du photomultiplicateur.....	59
2.3.2.2. L'installation expérimentale .....	60
2.3.2.3. L'introduction d'un courant corrigé.....	60
2.3.2.4. L'influence de l'anneau de garde.....	61
2.3.2.5. L'influence de la présence de matière .....	64
2.3.2.6. L'expérience avec deux feuilles d'aluminium d'épaisseurs différentes .....	65
2.3.2.7. L'expérience avec un dispositif de mesure de courant modifié.....	67
2.3.2.8. L'expérience de l'aluminium relié à la masse .....	68
2.3.2.9. L'estimation du nombre de protons perdus par interaction nucléaire avec l'aluminium .....	70
2.3.2.10. La conclusion générale des expériences .....	71
2.4. LA VALIDATION DU DISPOSITIF DE MESURE DE COURANT AVEC LA « FARADAY CUP » A TRAVERS LES COURBES DE SECTION EFFICACE DITES DE REFERENCE. ....	72
2.4.1. Une réaction moniteur avec des protons .....	72
2.4.2. Une réaction moniteur avec des deutons .....	73
2.4.3. Une réaction moniteur avec des particules alpha.....	74
<b>3. LES CONCLUSIONS DU CHAPITRE .....</b>	<b>74</b>

Dans ce chapitre, la détermination du flux de particules incident va être discutée. Pour cela, il est nécessaire d'obtenir l'intensité du faisceau qui a traversé la cible. La méthode et les outils pour effectuer la mesure d'intensité vont faire l'objet de ce chapitre.

Il existe plusieurs techniques pour effectuer une mesure d'intensité faisceau. Dans mon cas, lors des expériences de mesures de sections efficaces par la technique des « stacked foils », deux techniques différentes ont été utilisées. La première méthode consiste à utiliser une réaction moniteur. Le résultat dépend alors de notre connaissance sur la section efficace de la réaction moniteur. Nous l'appellerons la méthode relative. Une autre méthode, appelée méthode absolue, consiste à utiliser une « Faraday cup » comme arrêt faisceau et à mesurer les charges arrivant sur cet arrêt faisceau.

## 1. La mesure de courant par les réactions moniteurs

### 1.1. La réaction moniteur

La méthode relative de calcul de la section efficace consiste à déterminer le flux de particules à partir d'une feuille appelée moniteur. Cette feuille placée dans le « stack » va à la traversée du faisceau engendrer plusieurs réactions dont une possède une section efficace connue.

L'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) a entrepris de rationaliser l'utilisation de cette méthode en mettant en place une validation des valeurs expérimentales de plusieurs sections efficaces de références utilisant différents projectiles dans une gamme d'énergie étendue. Des courbes de section efficace dites de références ont été tracées à partir de ces données permettant l'utilisation de la méthode relative. La méthode relative présente des avantages dont le principal est sa mise en place peu contraignante lors des expériences. Les sections efficaces des réactions moniteurs utilisées dans cette thèse sont celles répertoriées par l'AIEA [31].

### 1.2. Le calcul de section efficace

A partir de la réaction moniteur, le flux de particules traversant le « stack » est déterminé à l'aide de la formule d'activation pour des cibles minces. Les paramètres correspondant au moniteur sont notés avec une apostrophe.

$$\varphi' = \frac{A' Act'}{N_a \rho' e' \sigma'(E') \chi' (1 - e^{-\lambda' t_{\text{irr}}})} \quad (3.1)$$

Une étude a été faite afin d'évaluer la perte du flux de particules traversant un « stack ». Pour un faisceau de proton de 35 MeV, la perte du flux est inférieure à 0,25 % pour 500  $\mu\text{m}$  d'aluminium. L'étude a été poussée jusqu'à 10 répétitions de 500  $\mu\text{m}$  d'aluminium, dans ce cas la perte du flux est de 2,5 % [32].

Dans la mesure où les expériences menées durant cette thèse utilisent une feuille cible et une feuille moniteur juxtaposées de l'ordre de la dizaine de micromètre d'épaisseur chacune, nous pouvons faire l'hypothèse que le flux de particules qui a traversé la feuille cible est identique à celui de la feuille moniteur,  $\varphi = \varphi'$ . La formule (3.1) peut alors s'écrire :

$$\frac{A \text{ Act}}{N_a \rho e \sigma(E) \chi (1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}})} = \frac{A' \text{ Act}'}{N_a \rho' e' \sigma'(E') \chi' (1 - e^{-\lambda' t_{\text{irr}}})} \quad (3.2)$$

La section efficace d'une réaction dans la feuille cible est alors déterminée par la relation :

$$\sigma(E) = \sigma'(E') \frac{A \text{ Act} \rho' e' \chi' (1 - e^{-\lambda' t_{\text{irr}}})}{A' \text{ Act}' \rho e \chi (1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}})} \quad (3.3)$$

Cette méthode est dépendante de la connaissance de la section efficace de la réaction moniteur. Les incertitudes, associées aux valeurs dites de références utilisées dans cette méthode de calcul, sont de l'ordre de 10 % et vont influencer la précision des mesures.

### 1.3. L'incertitude de la méthode relative

La mesure de la section efficace par la méthode relative est décrite par la relation (3.3). L'incertitude sur la masse volumique, le temps d'irradiation, la pureté de la cible sont négligeables devant les incertitudes associées aux autres grandeurs. Les paramètres étant indépendants l'incertitude sur la mesure de la section efficace est donnée par l'expression (3.4) :

$$\left(\frac{\Delta\sigma}{\sigma}\right)^2 = \left(\frac{\Delta\sigma'}{\sigma'}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\text{Act}}{\text{Act}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\text{Act}'}{\text{Act}'}\right)^2 + \left(\frac{\Delta e}{e}\right)^2 + \left(\frac{\Delta e'}{e'}\right)^2 \quad (3.4)$$

L'incertitude sur la section efficace moniteur n'était pas donnée par l'AIEA. De nouvelles évaluations de l'AEIA fournissent ces informations et peuvent être de l'ordre de 12 %. Cela implique alors une incertitude élevée sur la valeur de section efficace.

La méthode de détermination de section efficace à l'aide de réaction moniteur donne de bons résultats mais dépend de la connaissance de la réaction moniteur et de son incertitude. Un des objectifs de la thèse a été de mettre en place, comprendre et vérifier un nouveau dispositif expérimental permettant la mesure directe du flux de particules lors des expériences de « stacked foils ». Nous cherchons à travers ce dispositif à nous affranchir de la dépendance à la réaction moniteur afin de diminuer l'incertitude des valeurs de sections efficaces.

## 2. La mesure de courant à l'aide de la « Faraday cup »

### 2.1. La mesure du flux de particules avec une « Faraday cup »

La méthode absolue de mesure de sections efficaces consiste à mesurer le flux de particules à l'aide d'une « Faraday cup ». Il s'agit d'un cube conducteur de courant en cuivre qui joue le rôle d'arrêt faisceau, devant lequel se trouve un anneau de garde placé à un potentiel négatif et d'une cage de Faraday pour l'isolation électrique reliée à la masse. Le faisceau va traverser le « stack », franchir la cage de Faraday, passer l'anneau de garde et s'arrêter dans le cube de cuivre.

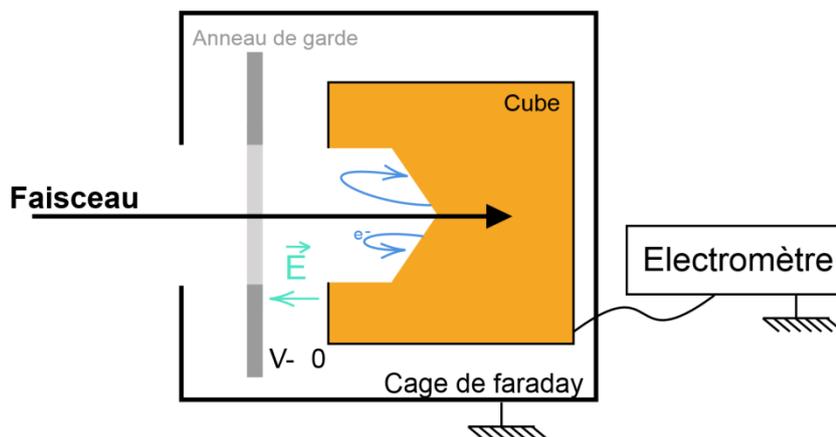


Figure 3.1 - Schéma du dispositif de la « Faraday cup » et fonctionnement de l'anneau de garde.

Le cube est relié à un électromètre de grande précision qui permettra de mesurer les charges déposées dans le cube. Lorsque les ions composants le faisceau s'arrêtent dans le cube, ils apportent des charges excédentaires qui doivent être neutralisées.

Cela crée un courant mesuré par l'électromètre dont le signe dépend de la charge des ions. L'intensité est liée au nombre de projectiles et à leur état de charge.

Lors de l'interaction des projectiles avec la matière, il y a interaction avec le milieu et création de paires  $e^-/trou$  qui vont finir par se recombiner. En surface, une partie des électrons, dits secondaires, s'échappe du bloc de cuivre créant de manière artificielle un excès de charge dans le cube. Afin de ne pas surestimer la mesure de courant, un anneau de garde est placé entre le cube de cuivre et la cage de Faraday, voir figures 3.1, 3.2, 3.3. Cet anneau est alimenté par une tension négative ce qui génère un champ électrique qui renvoie les électrons secondaires dans le cuivre, présenté en figure 3.1. Pour éviter les interactions avec l'air (création de paires électrons/trous que le champ électrique, crée par l'anneau de garde, dissocierait, dirigeant les électrons vers le cube), l'ensemble du dispositif est placé dans le vide. Pour cela, le dispositif est raccordé à la ligne du cyclotron où réside un vide poussé d'approximativement  $10^{-6}$  mbar.

Sur un temps d'irradiation donné, un nombre de charges est mesuré par l'électromètre permettant de déterminer un courant moyen. Ensuite, le flux de particules est calculé. La relation liant l'intensité moyenne et le flux de particules dépend du nombre d'atomes ionisés et du degré d'ionisation. Par exemple, une particule alpha,  $He^{2+}$ , a un niveau d'ionisation 2 et va entraîner le passage de 2 électrons à travers l'électromètre. Cette relation est :

$$\varphi = \frac{N_i \langle I \rangle}{e k} \quad (3.5)$$

Où  $\varphi$  est le flux de projectiles en particules/s,  $N_i$  est le nombre d'atomes composant chaque projectile,  $e$  est la charge élémentaire,  $k$  est le niveau d'ionisation de la particule.  $\langle I \rangle$  est l'intensité moyenne mesurée pendant une irradiation.

Le tableau 3.1 donne les paramètres  $k$  et  $N_i$  pour les différents projectiles disponibles sur ARRONAX.

Particules	k	$N_i$
H+	1	1
HH+	1	2
D+	1	1
$He^{2+}$	2	1

Table 3.1 - Tableau donnant le niveau d'ionisation et le nombre d'atome pour chaque projectile disponible au cyclotron ARRONAX.

Grâce à cette « Faraday cup », le flux de particules peut directement être calculé sans dépendance à un paramètre extérieur à l'expérience comme avec la méthode relative.

Nous espérons, à travers cette mesure diminuer l'incertitude associée à la section efficace. Dans les prochaines parties, nous allons déterminer l'incertitude sur la mesure de courant à l'aide de la « Faraday cup » mais, avant, nous allons discuter de la mise en place du dispositif ainsi que des contraintes engendrées.

## 2.2. Le dispositif expérimental

Le dispositif a été réalisé à Subatech et est utilisé en bout de ligne du cyclotron ARRONAX. Ce dispositif permet d'accueillir un « stack » positionné dans l'alignement du faisceau. Derrière les « stacked foils » se trouvent le cube de cuivre et la cage de Faraday discutés dans la partie précédente. Un élément essentiel à la mesure de courant est à ajouter, c'est l'anneau de garde. L'ensemble du dispositif est représenté sur le schéma figure 3.2.

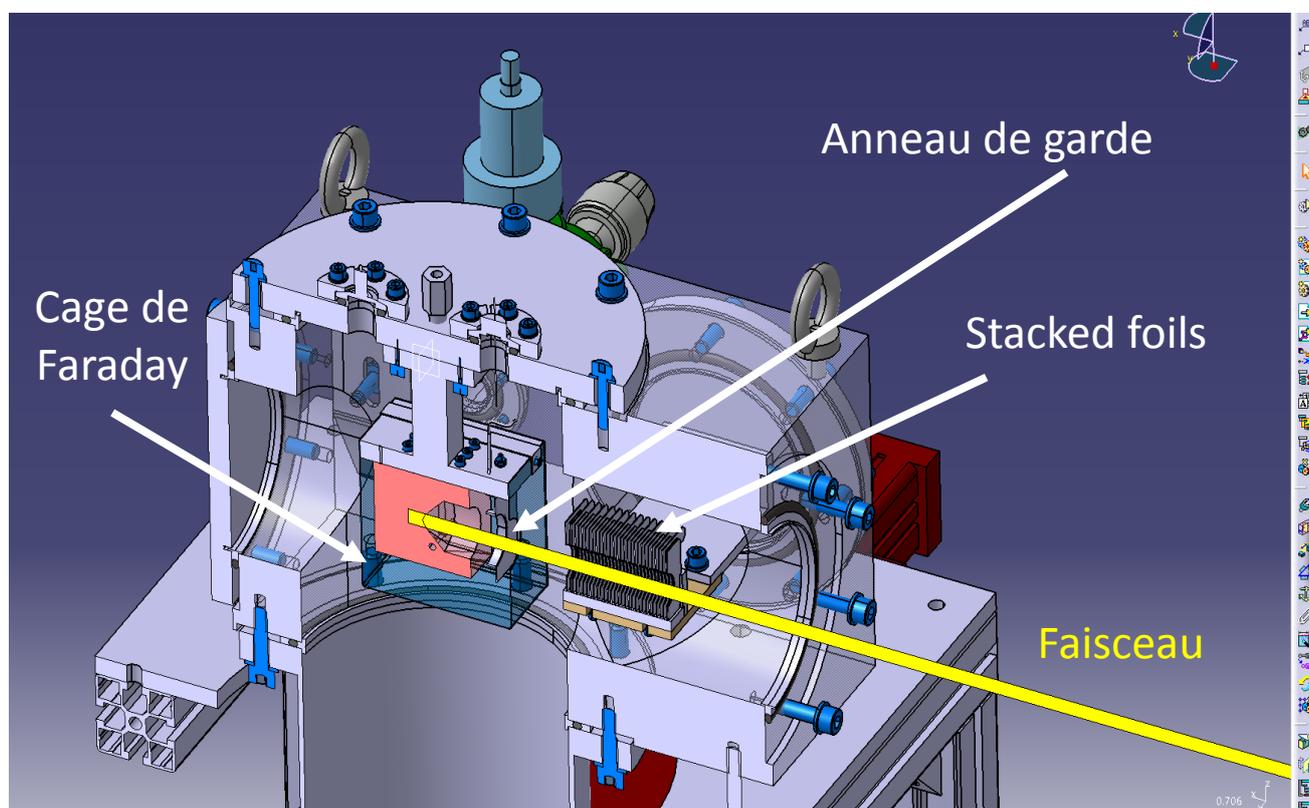


Figure 3.2 - Schéma vue en coupe du dispositif « stacked foils ».

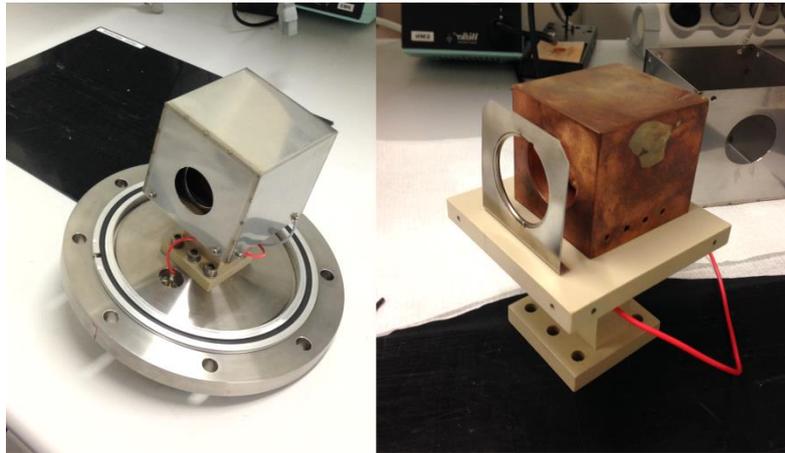


Figure 3.3 - A gauche, une photo de la cage de Faraday et à droite une photo du bloc de cuivre et de l'anneau garde sans la cage de Faraday.

Lors de l'installation du dispositif avant chaque expérience, le positionnement du cube de cuivre et du « stack » est effectué à l'aide d'un laser de manière à assurer l'alignement de l'ensemble avec le faisceau.

Les « stacked foils » se retrouvent dans une enceinte sous vide mais, avant de les exposer au faisceau, il est nécessaire de régler ce dernier. Pour cela, une alumine est placée devant le faisceau qui va émettre des rayonnements de fluorescence visibles lors de l'interaction du faisceau avec elle. Une caméra, placée dans la casemate, permet de visualiser, à travers une vitre, l'alumine. Depuis la salle de commande, le faisceau est réglé afin d'obtenir une tache sur l'alumine de moins de 1 cm de diamètre, voir figure 3.4.

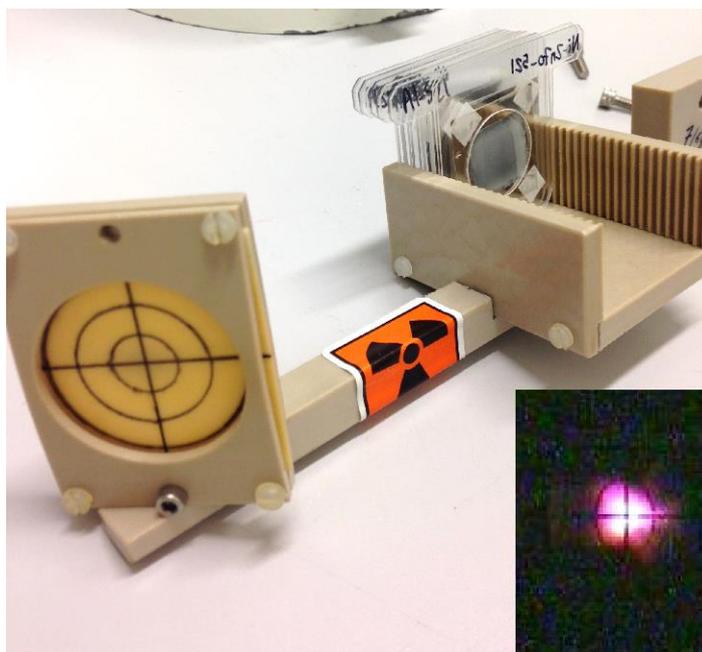


Figure 3.4 - Photo du support "stacked foils" avec au premier plan en jaune l'alumine et derrière un "stack" des expériences  $^{67}\text{Cu}$ . En bas à droite, une image de l'alumine exposée au faisceau.

Le support, vu en figure 3.4, est raccordé à un axe motorisé qui permet un déplacement rectiligne perpendiculaire au faisceau comme montré en figure 3.5. Nous pouvons alors exposer dans un premier temps l'alumine au faisceau pour son réglage et ensuite exposer le « stack » pour une irradiation sur un temps bien défini. Il est possible de se placer entre les deux, où rien n'est exposé au faisceau, pour permettre une mesure directe de l'intensité. Il est fréquent qu'une grande partie du faisceau soit perdue dans les collimateurs, cette position dite « vide » permet de contrôler l'intensité faisceau particulièrement quand le faisceau ne traverse pas l'alumine pendant la phase de réglage (comme par exemple, des deutons de 15 MeV).

J'ai établi avant la thèse la mise en place de ce dispositif et j'ai également programmé avec LabVIEW le contrôle de l'axe à distance avec une interface utilisateur. Grâce à ce dispositif, il n'est plus nécessaire de faire des remises à l'air pour placer les différents éléments nécessaires au réglage et à l'expérience. Cela permet de gagner beaucoup de temps d'expérience car les étapes de pompage sont longues. De plus, il garantit que le faisceau vu par l'alumine sera identique sur le « stack » grâce à un changement rapide entre ces deux positions. Il offre aux expérimentateurs une limitation de l'exposition aux radiations en leur offrant la possibilité de contrôler l'expérience à distance.

Dans ce paragraphe, le dispositif de la figure 3.5, installé en bout de ligne du cyclotron ARRONAX, va être décrit. Le faisceau (en jaune sur l'image) arrive du cyclotron se situant dans une autre casemate derrière le mur en arrière-plan et vient s'arrêter dans le grand cube au premier plan qu'on nommera la chambre de réaction. Cette chambre de réaction est reliée à la ligne faisceau et contient le support « stacked foils » ainsi que le dispositif de mesure de courant décrit dans les paragraphes précédents. L'axe motorisé permet le déplacement du support « stacked foils » suivant l'axe en bleu. La caméra, au premier plan à droite, permet de visualiser l'alumine et le rayonnement de fluorescence à travers la vitre lorsqu'elle est exposée au faisceau. Au-dessus du cube, nous pouvons visualiser un câble rouge, qui permet l'alimentation de l'anneau de garde, et un câble noir, qui est relié au cube de cuivre pour la mesure de courant avec l'électromètre. Le tuyau gris, visible à gauche sous l'axe offre la possibilité d'utiliser une pompe primaire en bout de ligne.

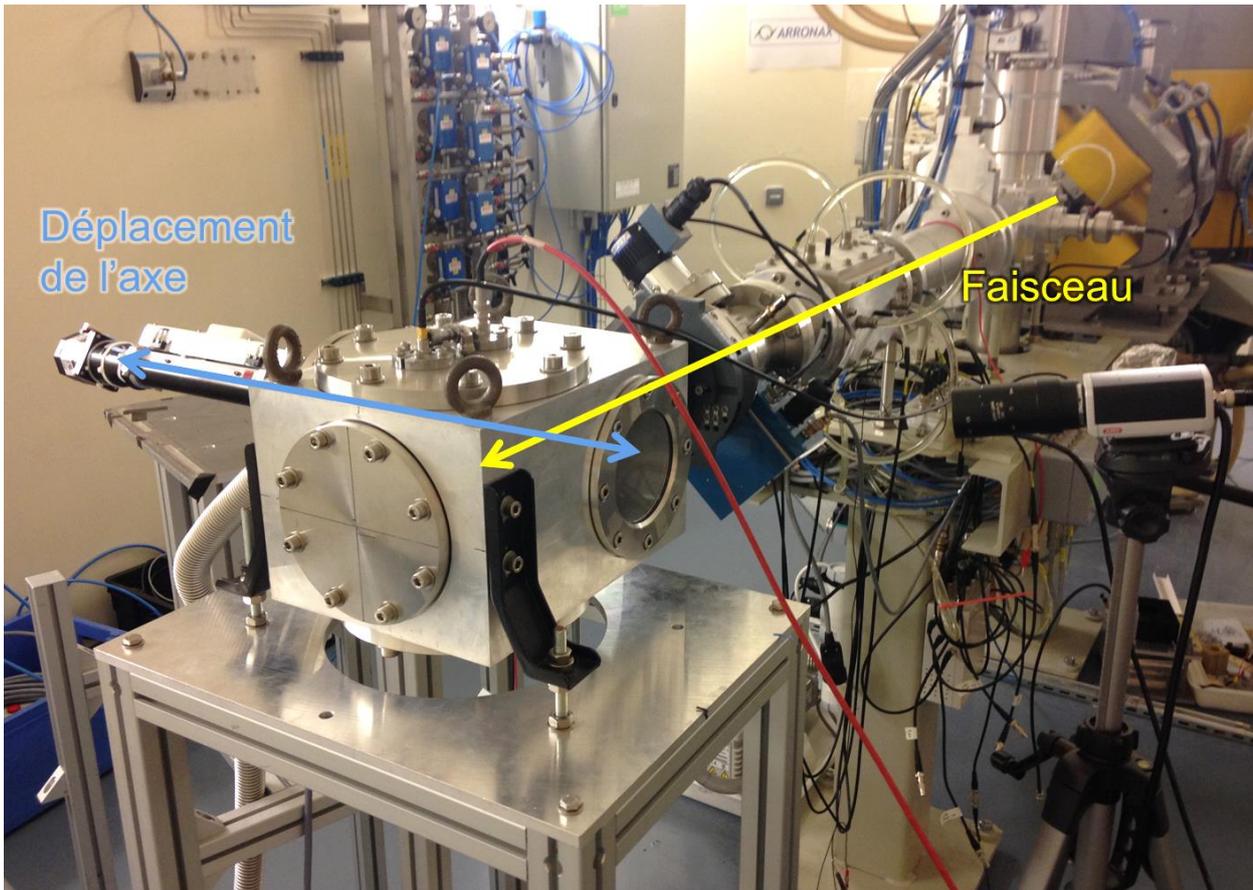


Figure 3.5 - Photo de l'ensemble du dispositif mis en place au cyclotron ARRONAX.

## 2.3. Etude de la mesure de courant

Dans cette partie, nous allons étudier la mesure de courant faite à l'aide de la « Faraday cup ». L'objectif est de déterminer les conditions de fonctionnement optimales ainsi que de déterminer l'incertitude sur la mesure de courant dans ces conditions.

### 2.3.1. La réponse du dispositif à un courant donné

Dans un premier temps, le but est de connaître la réponse du dispositif lorsqu'on lui envoie un courant connu. Pour cela, une alimentation est connectée au cube de cuivre lui-même relié à l'électromètre. Le tableau 3.2 donne le courant envoyé au dispositif par notre alimentation et la réponse mesurée par l'électromètre. Dans les expériences « stacked foils » l'intensité du courant est de l'ordre de 50 nA, c'est pour cette raison que la série de mesures a été effectuée pour un courant compris entre 1 et 200 nA. L'écart entre la valeur mesurée par l'électromètre et le courant envoyé par l'alimentation est au maximum de 0,3 %. C'est un écart faible qui est lié aux fuites de courant dans les câbles et à l'électromètre.

La documentation du constructeur sur l'électromètre donne une incertitude sur la mesure équivalente à 0,5 % plus  $\pm 1$  digit sur le dernier chiffre affiché. Dans une configuration de « stacked foils », l'intensité faisceau utilisée est de 50 nA ce qui correspond à une incertitude de l'électromètre de 0,52 %.

Dispositif testé	Courant envoyé par l'alimentation (nA)	Réponse de l'électromètre (nA)
Câbles + Electromètre	9	9,010
	25	25,06
	50	50,13
	75	75,20
	100	100,3
	125	125,3
	150	150,3
	200	200,4
Cube 30Ø + Câbles + Electromètre	9	8,995
	25	25,03
	50	50,09
	75	75,15
	100	100,2
	125	125,2
	150	150,3
	175	175,3
Cube 42Ø + Câbles + Electromètre	9	9,025
	25	25,05
	50	70,11
	75	75,17
	100	100,2
	125	125,2
	150	150,3
	175	175,3
	200	200,3

Table 3.2 - Tableau donnant la valeur d'intensité envoyée au dispositif expérimental et la réponse de ce dispositif à cette valeur.

### 2.3.2. Les expériences d'étude de la mesure de courant à l'aide de la « Faraday cup »

Nous souhaitons étudier la mesure de courant de la « Faraday cup » et visualiser les différents paramètres impactant cette mesure dans des conditions similaires aux expériences « stacked foils ». L'idée est de mesurer l'intensité faisceau en temps réel par deux méthodes : la première avec notre dispositif composé de la « Faraday cup » qui va mesurer un nombre de charges et une autre qui ne peut être influencée par la première. Pour réaliser la seconde méthode, le choix s'est porté sur l'utilisation d'un photomultiplicateur (PM) qui va mesurer les photons de fluorescence créés par l'interaction du faisceau dans l'air. Pour son utilisation, un espace d'air est laissé entre la ligne faisceau et la chambre de réaction. Le faisceau en traversant cette tranche d'air de quelques centimètres va exciter l'air qui va à son tour émettre des rayonnements lors de sa désexcitation. Ce sont ces photons émis par l'air qui vont être collectés par le photomultiplicateur. Le courant mesuré par le photomultiplicateur est proportionnel au courant du faisceau.

#### 2.3.2.1. Le principe de fonctionnement du photomultiplicateur

Le PM est isolé magnétiquement par une protection en Mu-métal et est connecté à un système électronique permettant la mesure du signal envoyé par le détecteur.

Le but du photomultiplicateur est à partir d'un photon de créer un signal électrique détectable. Le photon, une fois dans la capsule sous vide, rencontre une photocathode qui va le convertir en électron par effet photoélectrique (effet discuté au chapitre II partie 5.2.1). L'électron généré est dirigé vers une électrode, aussi appelée dynode, qui va libérer à chaque interaction avec un électron plusieurs électrons. Le photomultiplicateur, composé d'une série de dynodes (cf. un exemple en figure 3.6), va multiplier significativement le nombre d'électrons jusqu'à l'anode. Les électrons interagissant avec l'anode vont créer un courant qui est ensuite amplifié et analysé par un système électronique [13].

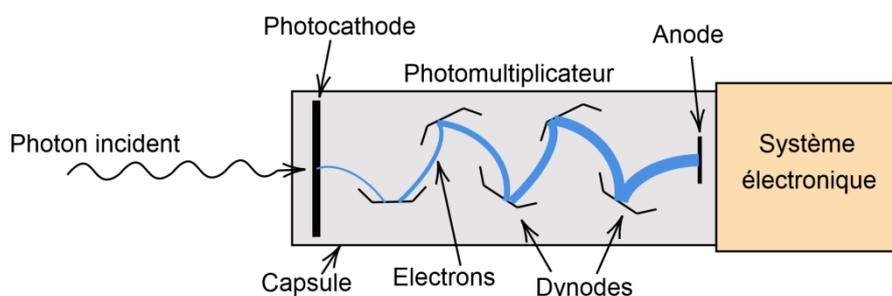


Figure 3.6 - Schéma d'un photomultiplicateur.

### 2.3.2.2. L'installation expérimentale

L'objectif est que l'installation expérimentale soit dans une configuration quasi-similaire aux expériences « stacked foils ». L'ajout d'un photomultiplicateur pour une seconde mesure du courant implique de laisser une tranche d'air de l'ordre de 4 cm. Un croquis de l'installation est présenté en figure 3.7. Les « stack » étant composés majoritairement d'aluminium (en terme d'épaisseur) et possédant une épaisseur totale comprise entre 500 et 1000  $\mu\text{m}$ , nous avons placé sur l'axe motorisé une feuille d'aluminium de 1 mm d'épaisseur permettant de simuler l'effet d'un « stack ». La chambre de réaction, où est placée cette feuille, est mise sous vide grâce à une pompe primaire annexe permettant d'atteindre une pression inférieure à  $10^{-3}$  mbar.

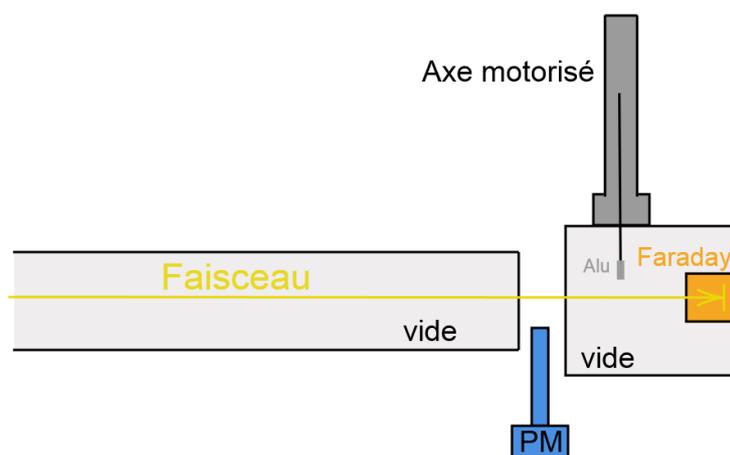


Figure 3.7 - Croquis de l'installation des expériences de l'étude de la mesure de courant à l'aide de la « Faraday cup ».

### 2.3.2.3. L'introduction d'un courant corrigé

Le photomultiplicateur permet de mesurer un signal qui est proportionnel aux nombres de projectiles du faisceau. N'étant pas influencé par le dispositif dans la chambre de réaction, il est utilisé comme valeur de référence. Il indiquera les éventuelles fluctuations de l'intensité faisceau en sortie de l'accélérateur. La mesure de notre dispositif PM est dépendante de l'angle solide et de la stabilité du faisceau en position. De plus, les mesures ne sont effectuées que si le faisceau est considéré comme stable (fluctuation d'intensité de l'ordre de 1 nA). Une étude, menée au cyclotron ARRONAX, a montré qu'il faut attendre environ 15 minutes pour obtenir un faisceau stable au niveau de la source [33].

L'objectif est de visualiser l'impact des différents paramètres de la mesure de courant avec la « Faraday cup ». Les mesures seront faites à différentes tensions dans l'anneau

de garde avec et sans cible devant la « Faraday cup ». Ces mesures correspondent à une intégration du courant sur un temps de 30 secondes. Un nombre de charges est obtenu pour la mesure avec le photomultiplicateur et avec la « Faraday cup », ensuite les courants moyens sont déterminés.

Une fois le faisceau stable, l'anneau de garde est alimenté à -1 kV et aucune matière n'est placée devant la « Faraday cup », ce sont les conditions de référence. Dans le cas où nous souhaitons faire varier les paramètres et modifier l'environnement de la « Faraday cup », nous garantissons à travers ces conditions de référence la bonne récupération des électrons secondaires. Cette valeur élevée de tension permet alors de s'affranchir des perturbations potentielles. Une série de mesures est effectuée pour définir les valeurs de référence entre le PM et la « Faraday cup », ensuite, les intensités moyennes sont calculées et sont notées  $I_{ref,PM}$  et  $I_{ref,far}$ .

Nous introduisons une intensité dite corrigée,  $I_{cor}$ , correspondant à l'intensité que devrait mesurer la « Faraday cup » d'après le PM et les valeurs de référence en supposant la proportionnalité (cf. formule 3.6).

$$I_{cor} = I_{PM} \frac{I_{ref,far}}{I_{ref,PM}} \quad (3.6)$$

Où  $I_{PM}$  correspond à l'intensité mesurée par le photomultiplicateur.

Pour visualiser les fluctuations liées à la modification de paramètres, la différence entre  $I_{far}$  et  $I_{cor}$  est calculée, où  $I_{far}$  est l'intensité mesurée par la « Faraday cup ». Cette différence est exprimée en pourcentage par rapport à  $I_{far}$  et est notée D, ce qui s'écrit :

$$D (\%) = \frac{I_{far} - I_{cor}}{I_{far}} \cdot 100 \quad (3.7)$$

#### 2.3.2.4. L'influence de l'anneau de garde

L'objectif de cette étude est de visualiser l'influence de l'anneau de garde. Pour cela, après acquisition des valeurs de référence, des séries de mesures sont effectuées à différentes valeurs de tension dans l'anneau de garde. Ces expériences ont été faites avec des faisceaux de protons à différentes énergies (30,7 MeV, 50 MeV et 68 MeV). Les valeurs obtenues sont présentées en figure 3.8. Chaque point représente la moyenne des données acquises à cette tension d'anneau de garde. Leur incertitude est égale à deux fois l'écart type des valeurs utilisées pour calculer cette moyenne.

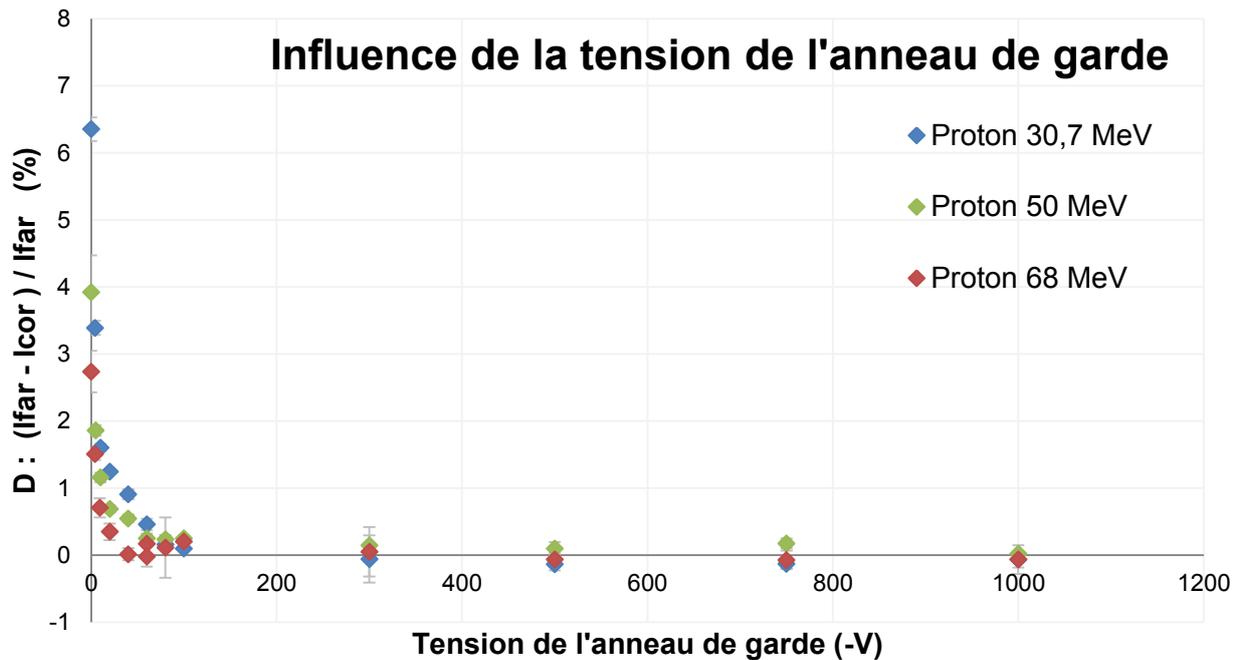


Figure 3.8 - Graphique explicitant l'influence de la tension de l'anneau de garde à différentes énergies de protons.

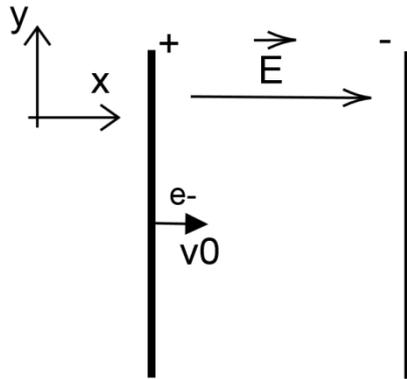
Le graphique, figure 3.8, montre qu'au-delà de -300 V le champ électrique généré est suffisant pour obtenir peu de différence entre la mesure du PM et de la « Faraday cup ». A travers ce graphique est explicitée l'influence de l'anneau de garde. Nous concluons qu'il est nécessaire d'avoir une tension inférieure à -300 V pour que l'ensemble des électrons soient collectés. Ce comportement est identique quel que soit l'énergie du faisceau.

Sans anneau de garde des électrons s'échappent du cube de cuivre. Ce sont alors plus d'électrons récupérés par le cube depuis la masse et donc plus de charges mesurées par l'électromètre. L'intensité de la « Faraday cup »,  $I_{far}$ , est alors surestimée ce qui est bien visualisé sur la figure 3.8. Dans ce cas, une différence d'intensité de plus de 6% peut être obtenue.

Un faisceau de basse énergie va avoir un dépôt d'énergie plus élevé sur la première couche de cuivre ce qui va impliquer plus d'électrons secondaires. A basse tension, la différence d'intensité sera plus grande pour un faisceau d'énergie plus basse. C'est ce que nous pouvons constater sur le graphique.

Nous souhaitons faire une estimation du champ électrique à générer pour récupérer la grande majorité des électrons et de l'énergie maximum des électrons que l'on récupère en appliquant une tension de -1 kV.

En mécanique classique, considérons le cube et l'anneau de garde comme deux plans à la tension  $V_+$  et  $V_-$  séparés d'une distance  $d = 15$  mm. Le champ généré est dirigé suivant l'axe  $x$  dans la même direction et est calculé suivant la formule (3.8). Un électron est éjecté du cube à la vitesse  $v_0$  dans la direction  $x$ , comme présenté figure 3.9.

Figure 3.9 - Schéma de l'éjection d'un l'électron soumis à un champ  $\vec{E}$ .

$$E = \frac{|V_+ - V_-|}{d} \quad (3.8)$$

L'électron est soumis au champ électrique, la force de Lorentz exercée est donnée par  $F_x = qE_x$  avec  $q$  la charge de l'électron en Coulomb. Nous sommes dans un problème à une dimension. D'après le principe fondamental de la dynamique, nous avons la relation (3.9).

$$a_x(t) = \frac{q E}{m_e} \quad (3.9)$$

Avec  $m_e$  la masse de l'électron,  $m_e = 9,1 \cdot 10^{-31}$  kg. La charge étant négative, l'électron subit une décélération constante dans le temps. Après une intégration par rapport au temps, la vitesse s'écrit :

$$v_x(t) = \frac{q E}{m_e} t + v_0 \quad (3.10)$$

Et sa position s'écrit :

$$x(t) = \frac{q E}{2m_e} t^2 + v_0 t + Cste \quad (3.11)$$

L'électron est à  $t=0$  à l'origine du référentiel donc  $Cste = 0$ .

La majorité des électrons émis lors de l'interaction avec un faisceau de protons de 68 MeV sont lents ( $<100$  eV) [34]. En mécanique classique, cela correspond à une vitesse,

$v_0 = \sqrt{\frac{2E}{m}}$ . Nous voulons savoir pour quel champ électrique  $E$ , l'électron a une trajectoire maximum équivalente à celle de l'anneau de garde c'est-à-dire que  $x_{\max} = 15$  mm. Au-delà de l'anneau de garde, l'électron sera alors accéléré suivant la direction  $Ox$  et ne va pas être collecté par le cube. La position maximale est obtenue quand  $v_x$  vaut 0, soit quand :

$$t = \frac{v_0 m_e}{q E} \quad (3.12)$$

A partir de l'équation (3.11),  $x_{\max}$  s'écrit :

$$x_{\max} = \frac{q E}{2m_e} \left( \frac{v_0 m_e}{q E} \right)^2 + \frac{v_0^2 m_e}{q E}$$

$$x_{\max} = \frac{3 m_e}{2 q E} v_0^2 \quad (3.13)$$

Le champ électrique maximum à appliquer s'écrit alors :

$$E = \frac{3 m_e}{2 q x_{\max}} v_0^2 \quad (3.14)$$

Avec l'équation (3.8) et (3.14), le calcul est effectué et une différence de potentiel maximum de -300,0 V est nécessaire. Cette valeur estimée correspond bien à l'ordre de grandeur présentée en figure 8. En appliquant une tension de -1000 V, nous garantissons, à travers ce calcul, la redirection des électrons ayant une énergie inférieure à 333,3 eV.

### 2.3.2.5. L'influence de la présence de matière

L'objectif est de visualiser une éventuelle influence lorsqu'un « stack », ici simulé par une feuille d'aluminium de 1 mm, est placé devant la « Faraday cup ». Dans cette expérience, la méthode reste identique à la précédente. Après que les valeurs de références sont prises, les mesures avec et sans feuille d'aluminium sont faites pour des tensions différentes. Les données avec et sans feuille d'aluminium sont prises avec un délai le plus court possible afin de garantir la stabilité du faisceau.

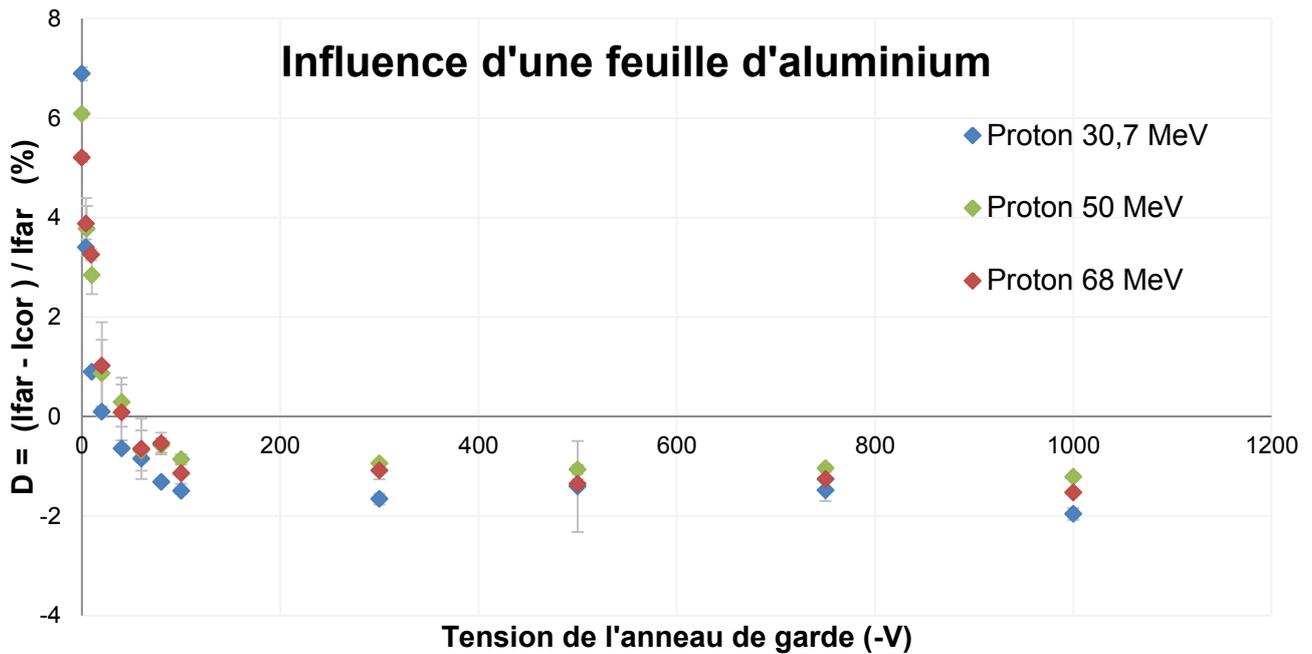


Figure 3.10 - Graphique explicitant l'influence d'une feuille d'aluminium à différentes tensions d'anneau de garde et différentes énergies de protons.

Globalement les comportements sont identiques que ce soit lorsqu'il y a présence de la feuille d'aluminium ou non, figure 3.8 et 3.10. Cependant, la feuille d'aluminium a un effet visible sur la mesure de courant : la valeur du plateau, précédemment égale à zéro, varie maintenant entre -2 % et -1 %. Cela traduit le fait que le courant mesuré par la « Faraday cup »,  $I_{far}$ , est plus petit que  $I_{cor}$ . Pour obtenir cet effet, nous pouvons avoir soit un apport de charges négatives, soit une perte de charges positives. En d'autres termes, nous avons soit un apport d'électrons au cube de cuivre, soit une perte de particules chargées entre l'endroit de la mesure par le PM et celle réalisée par le cube. Le premier cas, l'apport d'électrons, est écarté car la cage de Faraday a pour rôle d'isoler électriquement le cube de cuivre. Le deuxième cas, la perte de particules chargées, peut être expliqué par un effet de dispersion créé par la feuille d'aluminium. Une partie des protons traversant la feuille d'aluminium, de l'ordre de 2 %, serait déviée et pas collectée par la « Faraday cup ». Pour confirmer ou infirmer cet effet, connu sous le nom de « straggling angulaire », deux expériences ont été faites.

### 2.3.2.6. L'expérience avec deux feuilles d'aluminium d'épaisseurs différentes

L'objectif est d'exposer deux feuilles d'aluminium d'épaisseurs différentes pour mettre en évidence un changement de la collecte de particules chargées. Pour rester dans une configuration similaire aux expériences « stacked foils », la feuille choisie aura une épaisseur diminuée de moitié. Nous devrions donc avoir un effet dû à la dispersion moindre. Afin de garantir une comparaison fiable entre les valeurs acquises avec 1 mm

et 500  $\mu\text{m}$  d'épaisseur d'aluminium, une nouvelle position sur le support « stacked foils » a été aménagée, voir figure 3.11. Cet agencement temporaire a été conçu pour permettre l'exposition de l'alumine, d'un vide, d'une feuille d'aluminium de 1 mm d'épaisseur et d'une autre feuille d'aluminium de 500  $\mu\text{m}$ . L'objectif est de se situer à la même distance entre la feuille et la « Faraday cup » quelle que soit l'épaisseur considérée.

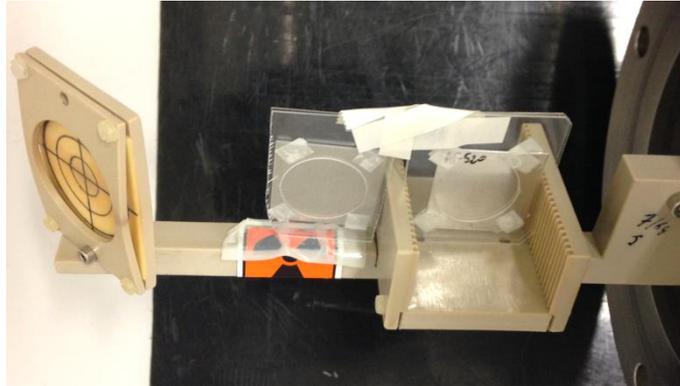


Figure 3.11 - Photo du support "stacked foils" lors de l'expérience aux deux feuilles d'aluminium.

Un faisceau de proton de 30,7 MeV d'énergie a été choisi pour maximiser l'effet de « straggling ». Les données acquises lors de cette expérience sont présentées sur la figure 3.12 ci-dessous.

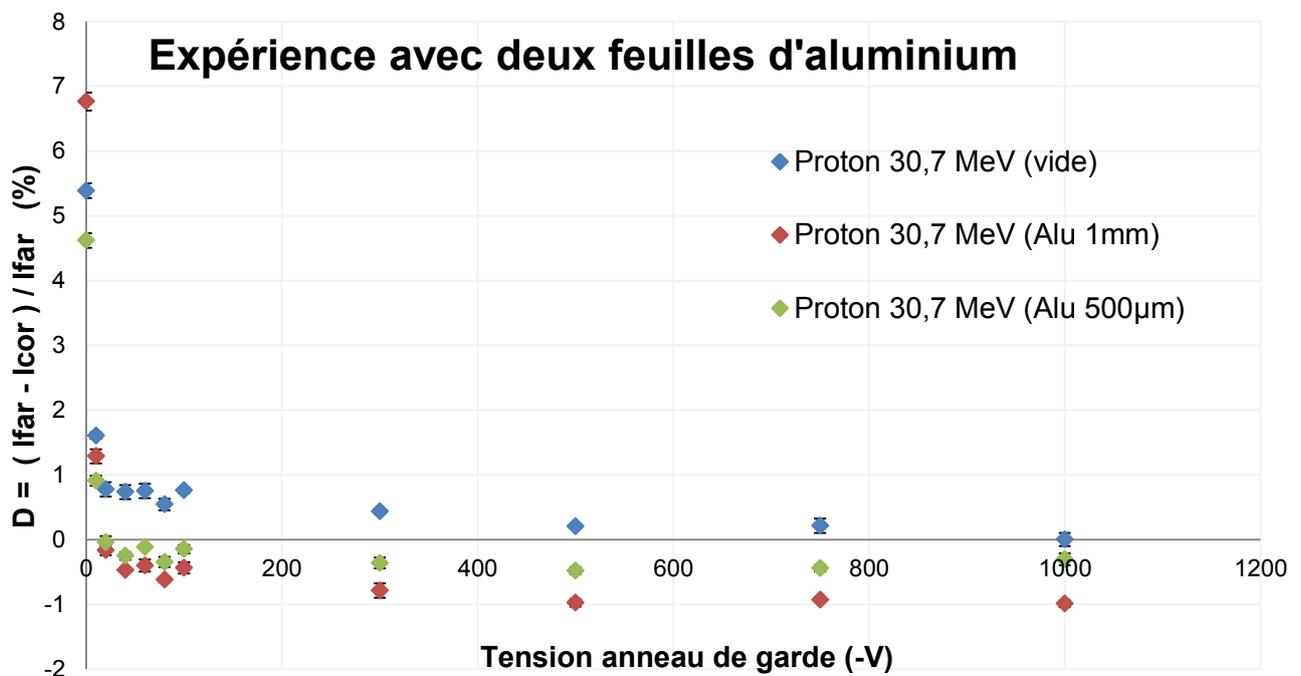


Figure 3.12 – Graphique de l'expérience avec deux feuilles d'aluminium de 1 mm et 500  $\mu\text{m}$ .

Les comportements des courbes obtenues sont identiques aux précédentes expériences. Nous pouvons voir qu'à haute tension, les valeurs obtenues avec 500  $\mu\text{m}$  d'aluminium se situent entre celles sans aluminium et celles avec 1 mm d'aluminium. La feuille étant moins épaisse, la perte de particules chargées est diminuée. Ces résultats confirment un effet non nul de la part de la matière mais néanmoins faible (<2 %). Un effet systématique de la matière est alors mis en évidence mais aussi un effet statistique, visible sur la courbe de mesure à vide.

Il semble qu'un « stack » de 1 mm implique un éclatement du faisceau et engendre la perte d'au maximum 2 % de particules mais cette expérience ne permet pas de conclure sur un effet de « straggling ». Pour pouvoir confirmer cette hypothèse le dispositif a été modifié pour une autre expérience.

### 2.3.2.7. L'expérience avec un dispositif de mesure de courant modifié

Le dispositif de mesure de courant c'est-à-dire le cube de cuivre, l'anneau de garde et la cage de Faraday, utilisé lors des expériences « stacked foils » offre une ouverture de 30 mm de diamètre pour le passage du faisceau. Pour récupérer les particules chargées perdues par un éventuel effet de « straggling », un nouveau dispositif de mesure a été construit par le service mécanique de Subatech. Ce dispositif est identique au précédent mise à part l'ouverture qui a été agrandie à 42 mm de diamètre, voir figure 3.13. La surface d'entrée a quasiment été doublée ce qui devrait permettre de récupérer une plus grande partie des particules déviées. Sur la photo, en (a) à gauche, le dispositif de mesure de courant, habituellement utilisé pour les expériences « stacked foils », sans la cage de Faraday avec une ouverture de 30 mm de diamètre. A droite, en (b), le nouveau dispositif de mesure construit pour cette expérience avec une entrée de 42 mm de diamètre.

L'objectif de cette expérience est de voir si avec ce nouveau dispositif de mesure de courant nous collectons un plus grand nombre de particules. Deux expériences ont été faites avec deux faisceaux de protons à une énergie minimale et maximale disponible au cyclotron ARRONAX. Les valeurs obtenues sont présentées sur la figure 3.14.

Les résultats obtenus ne montrent pas de comportement différent par rapport aux précédentes expériences. Malgré l'agrandissement de l'ouverture de la « Faraday cup », la feuille d'aluminium garde un effet de l'ordre de 1 % sur la mesure de courant. Le nouveau cube de cuivre ne collecte pas plus de particules du faisceau lorsque la feuille d'aluminium est présente. L'effet de 1 % venant de la présence de la feuille d'aluminium ne vient pas d'un effet d'éclatement de faisceau. Les conclusions de cette expérience sont rassurantes pour les expériences « stacked foils » qui utilisent la « Faraday cup » avec l'ouverture la plus petite.

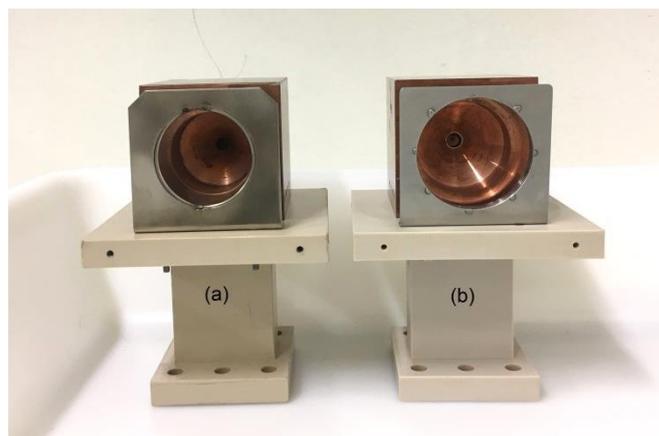


Figure 3.13 - Photo des deux dispositifs de mesures sans cage de Faraday (a) avec une ouverture de 30  $\varnothing$  (b) le nouveau dispositif de mesure avec une ouverture de 42  $\varnothing$ .

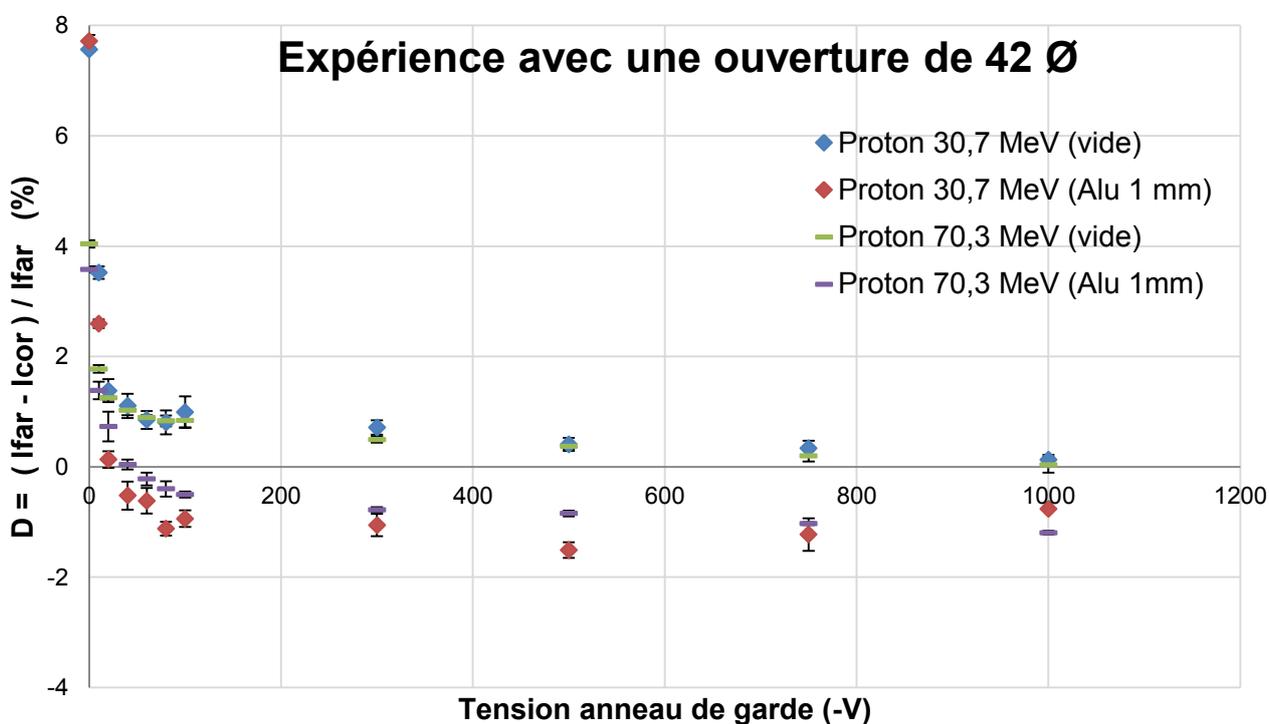


Figure 3.14 - Graphique donnant les résultats obtenus avec un dispositif de mesure de courant avec une ouverture de 42 mm de diamètre.

Il nous faut rechercher une autre explication : est-ce que le dégradeur se charge et perturbe les lignes de champs générées par l'anneau de garde venant compromettre localement l'efficacité de la « Faraday cup » ? Pour répondre à cela, une dernière expérience a été menée.

### 2.3.2.8. L'expérience de l'aluminium relié à la masse

L'ouverture de cette nouvelle « Faraday cup » étant plus grande, la cage de Faraday est alors plus sensible à un passage d'électrons. La feuille d'aluminium se charge créant une différence de potentiel entre cette feuille et la cage de Faraday. Pour éviter

cette situation, la feuille d'aluminium a été reliée, à l'aide d'un fil électrique, à la masse, en figure 3.15 la photo de la feuille d'aluminium utilisée. L'expérience est basée sur les mêmes processus que les précédents. Nous utilisons un faisceau de protons de 30,7 MeV.



Figure 3.15 - La feuille d'aluminium avec le fils électrique adaptée pour cette expérience.

Les résultats obtenus lors de cette expérience sont en figure 3.16 ci-dessous. Le comportement de la mesure d'intensité est identique aux précédentes expériences. Le raccordement de la feuille d'aluminium à la masse n'a pas d'effet sur la mesure de courant. Malgré l'agrandissement de l'ouverture de la « Faraday cup », l'expérience montre qu'elle accomplit correctement son rôle.

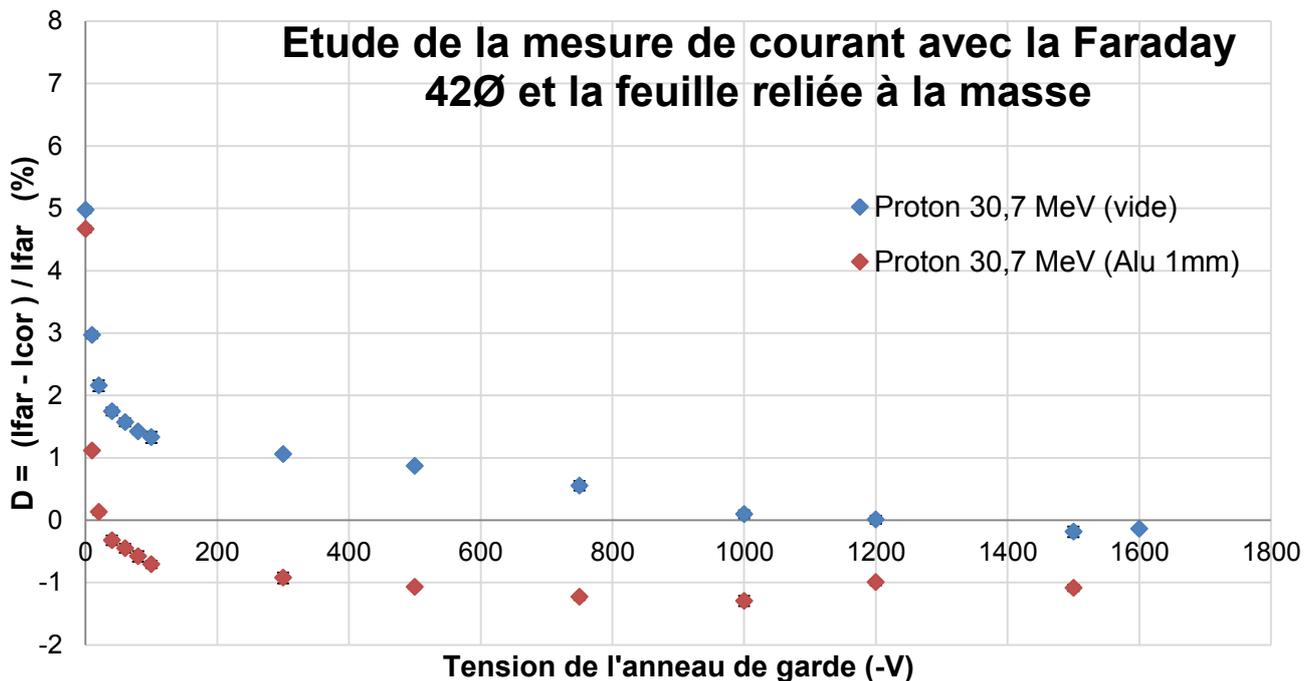


Figure 3.16 - Graphique des résultats obtenus dans l'expérience avec la « Faraday cup » de 42 mm de diamètre et la feuille d'aluminium reliée à la masse.

### 2.3.2.9. L'estimation du nombre de protons perdus par interaction nucléaire avec l'aluminium

Dans cette partie, l'objectif est d'estimer quel pourcentage du faisceau a été perdu par interaction nucléaire dans la feuille d'aluminium. Dans un premier temps, nous souhaitons connaître le nombre de particules qui arrive sur la feuille. Pour un faisceau de protons de 50 nA, le flux de particules, calculé à partir de la relation (3.5), est de  $3 \cdot 10^{11}$  particules/s. Puisque les mesures ont été effectuées sur des temps de 30 secondes, nous avons donc  $9,4 \cdot 10^{12}$  particules qui sont arrivées sur l'aluminium.

Ensuite, nous souhaitons estimer le nombre de projectiles faisceau qui ont interagi dans la feuille d'aluminium. Cette estimation a été faite pour un faisceau de protons de 30,7 MeV, le faisceau le plus utilisé dans cette étude. Chaque réaction qui a lieu dans la feuille implique la contribution d'un proton et produit un noyau. Un calcul TTY va être effectué pour chaque réaction donnant le nombre de noyaux produits et donc le nombre de protons qui ont interagi. Afin de ne pas sous-estimer ce nombre de protons, la décroissance des radionucléides pendant l'irradiation n'est pas prise en compte. Pour effectuer le calcul TTY, l'ensemble des réactions ainsi que leur section efficace est nécessaire. Elles ont été obtenues grâce à une simulation TALYS aux paramètres ajustés [23]. La perte d'énergie d'un faisceau de protons de 30,7 MeV dans une feuille d'aluminium de 1 mm est de 4,2 MeV, la gamme d'énergie utilisée est alors 30,7 - 26,5 MeV. Avec les paramètres, 30 secondes d'irradiation, 50 nA d'intensité faisceau et une cible d'une pureté de 99,99 %, le nombre de noyaux produits est calculé pour l'ensemble des réactions entrant en jeu, les résultats sont donnés dans le tableau 3.3. Le calcul n'a pas été effectué pour les réactions dont la section efficace est inférieure à  $10^{-3}$  mb car trop peu probables pour impacter le résultat final. Les sections efficaces des réactions produisant le  $^{22}\text{Na}$  et le  $^{24}\text{Na}$  sont bien connues et les valeurs utilisées pour cette étude sont celles recommandées par l'AIEA. La quantité de protons perdus par réactions nucléaires dans la feuille d'aluminium est estimée à 0,45 %.

Noyau	Quantité produite
$^{28}\text{Si}$	$5,0 \cdot 10^6$
$^{27}\text{Si}$	$2,3 \cdot 10^8$
$^{26}\text{Si}$	$5,2 \cdot 10^7$
$^{27}\text{Al}$	$5,4 \cdot 10^9$
$^{26}\text{Al}$	$1,2 \cdot 10^{10}$
$^{25}\text{Al}$	$2,0 \cdot 10^8$
$^{26}\text{Mg}$	$6,4 \cdot 10^9$
$^{25}\text{Mg}$	$9,2 \cdot 10^9$
$^{24}\text{Mg}$	$3,6 \cdot 10^8$
$^{23}\text{Mg}$	$8,9 \cdot 10^8$
$^{24}\text{Na}$	$4,7 \cdot 10^6$
$^{23}\text{Na}$	$4,8 \cdot 10^9$
$^{22}\text{Na}$	$5,8 \cdot 10^7$
$^{23}\text{Ne}$	$4,8 \cdot 10^9$
$^{22}\text{Ne}$	$1,5 \cdot 10^8$
$^{20}\text{Ne}$	$1,7 \cdot 10^9$
$^{16}\text{O}$	$1,6 \cdot 10^8$
Total	$4,2 \cdot 10^{10}$

Table 3.3 - Tableau donnant la quantité des noyaux produits par l'interaction de protons de 30,7 MeV à 50 nA sur une feuille d'aluminium de 1 mm pendant 30 secondes.

### 2.3.2.10. La conclusion générale des expériences

Les expériences de cette partie 2.3.2 ont montré le bon fonctionnement du dispositif de mesure de courant pour une tension dans l'anneau de garde inférieure à -300 V. Lors des expériences une tension de -1 kV sera appliquée.

La traversée d'un « stack » a un effet sur la mesure de courant mais ne semble pas venir d'un effet d'éclatement de faisceau. La collecte des particules chargées du faisceau est satisfaisante. La « Faraday cup », à l'ouverture de 30 mm de diamètre, est adaptée à la mesure de courant. Un écart de l'ordre de 1 % est visible entre les mesures de courant à vide et les mesures où une feuille d'aluminium est exposée. Une estimation des protons perdus par interactions nucléaires a été estimée à 0,45 % correspondant à approximativement la moitié de cet écart. L'autre part de cet écart viendrait d'un effet systématique qui pourrait être induit par un déplacement spatial du faisceau venant faire varier l'angle solide de détection du photomultiplicateur. Cet effet statistique aurait pu être diminué en effectuant, après chaque série de mesures à une tension fixée, de nouvelles mesures dans les conditions de référence afin de prendre en compte les éventuelles variations du faisceau. Cependant, dans la pratique, ce n'est pas envisageable car cela impliquerait une augmentation considérable du temps de l'expérience.

En prenant en compte cet effet inférieur à 1,5 % et les erreurs systématiques comme celles venant de l'électromètre et des pertes de courants dans les câbles, nous pouvons conclure sur une incertitude globale de 2 % sur la mesure de courant à l'aide de la « Faraday cup ». Cette incertitude sera utilisée pour la détermination des incertitudes des mesures de section efficace.

Un travail similaire reste à faire pour les deutons et les particules alpha.

## 2.4. La validation du dispositif de mesure de courant avec la « Faraday cup » à travers les courbes de section efficace dites de référence.

La méthode de mesure de courant à l'aide de la « Faraday cup » permet d'obtenir des valeurs de section efficace en s'affranchissant de la dépendance aux réactions moniteurs. Dans cette partie, les résultats sur les réactions moniteurs obtenus par la méthode absolue sont présentés.

### 2.4.1. Une réaction moniteur avec des protons

La courbe de section efficace moniteur est celle de la réaction  ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x){}^{62}\text{Zn}$ , figure 3.17.

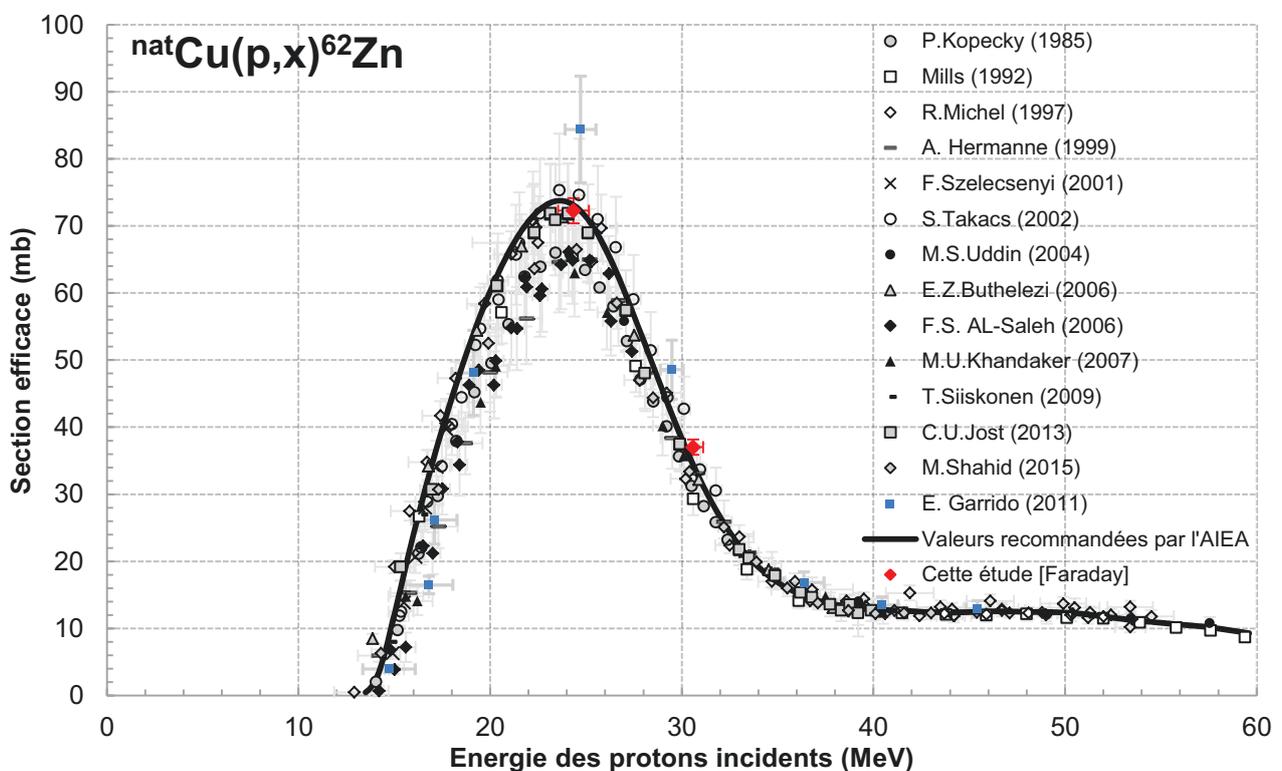


Figure 3.17 - Sections efficaces de la réaction moniteur  ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(p,x){}^{62}\text{Zn}$  [31], [32], [35]–[46].

De nombreuses mesures ont été faites pour cette réaction cependant il y a de grands écarts de résultats dans la région du pic de la courbe. La courbe en noire est la courbe de référence proposée par l'AIEA. En bleu, les valeurs acquises par E. Garrido (2011) [32]. Les résultats de cette étude, en rouge, sont en accord avec les données disponibles dans la littérature et avec la courbe de section efficace dite de référence. Les incertitudes sur les valeurs de sections efficaces de cette étude sont comprises entre 2,4 % et 5,3 %.

### 2.4.2. Une réaction moniteur avec des deutons

Durant cette thèse, de nombreuses expériences ont été réalisées à l'aide de faisceaux de deutons, cela a permis d'acquérir plus de valeurs de section efficace de réactions moniteurs que dans les parties précédentes, voir figure 3.18.

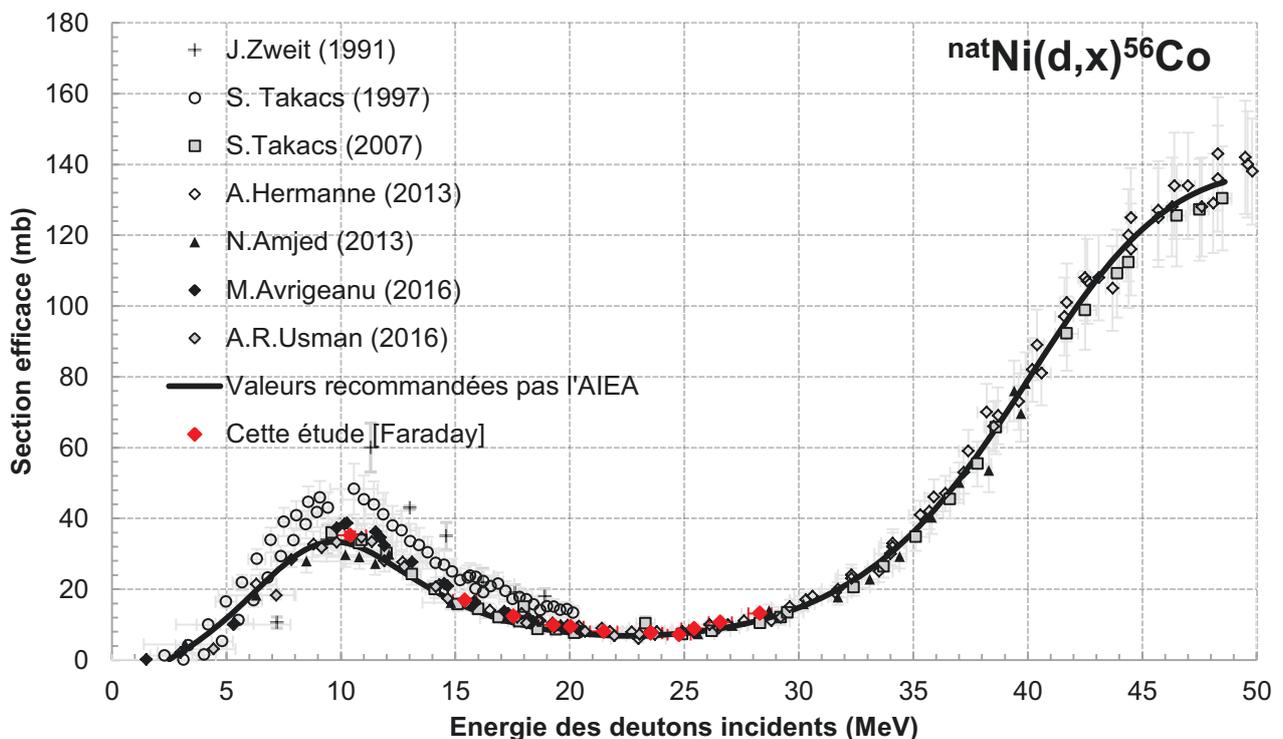


Figure 3.18 - Sections efficaces de la réaction moniteur  ${}^{\text{nat}}\text{Ni}(d,x){}^{56}\text{Co}$  [31], [47]–[50], [75], [102].

La courbe en noire est la section efficace recommandée par l'AIEA. Les points de S. Takacs (1997) et de J. Zweit (1991) sont plus élevés que les autres points expérimentaux. Les autres données disponibles dans la littérature sont en accords entre elles et avec la courbe de valeurs recommandées par l'AIEA. Les résultats de cette étude, en rouge, s'accordent avec cette courbe et les autres données expérimentales. Les incertitudes associées aux valeurs acquises dans cette étude sont de l'ordre de 4 %.

### 2.4.3. Une réaction moniteur avec des particules alpha

Sur la figure 3.19, les résultats obtenus pour la réaction moniteur  ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(a,x){}^{67}\text{Ga}$  sont présentés.

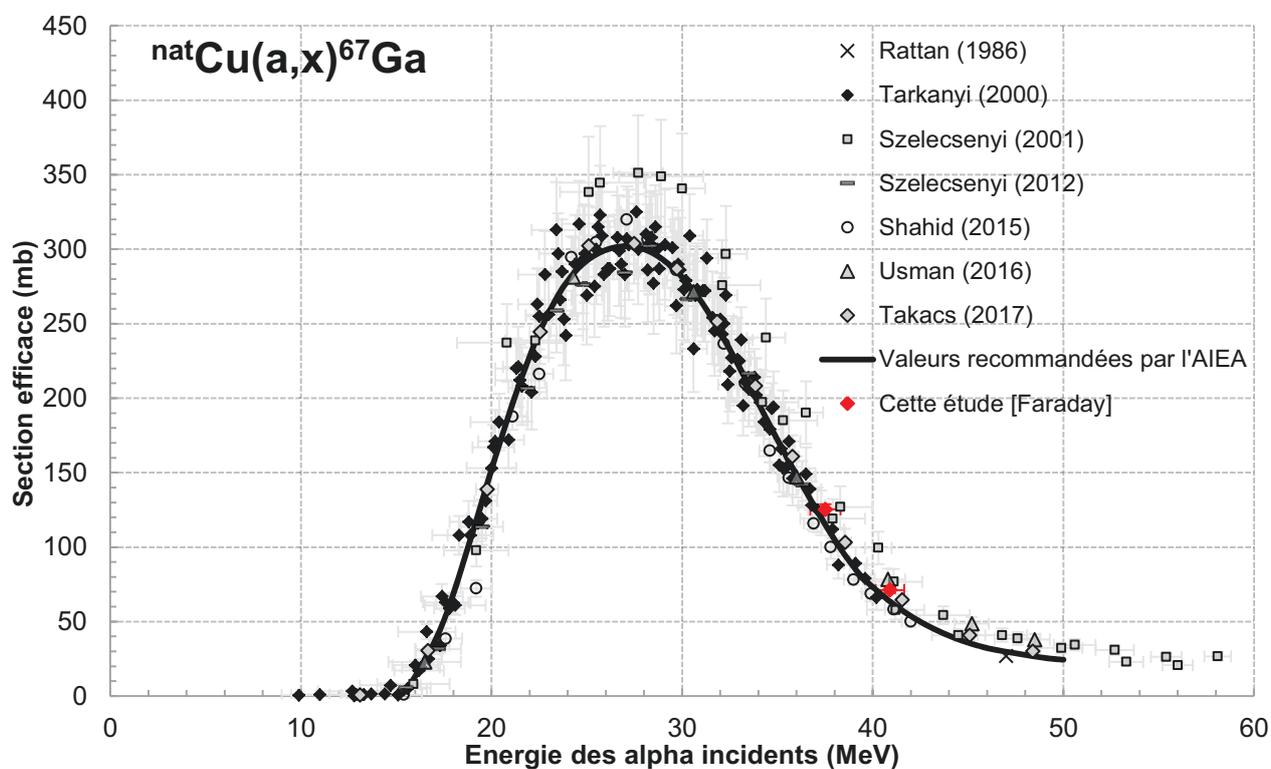


Figure 3.19 – Sections efficaces de la réaction  ${}^{\text{nat}}\text{Cu}(a,x){}^{67}\text{Ga}$  [31], [36], [51]–[56].

Le tracé noir sur ce graphique est la courbe dite de référence proposée par l'AIEA. Dans la région du pic 24-32 MeV, les données expérimentales montrent des disparités mais les incertitudes associées à ces valeurs sont grandes ce qui rend ces mesures compatibles entre elles. Les résultats de cette étude sont en accords avec les autres données disponibles dans la littérature et avec la courbe de section efficace recommandée par l'AIEA.

## 3. Les conclusions du chapitre

L'objectif de ce chapitre était de détailler la détermination du flux de projectiles, un paramètre intervenant dans le calcul de la section efficace et qui peut avoir une influence importante sur les incertitudes finales. Il existe plusieurs méthodes pour déterminer les sections efficaces, une méthode relative s'affranchissant de la mesure du flux de projectiles mais dépendant de la connaissance d'une section efficace de référence et une méthode absolue mesurant le flux de projectiles via la mesure du nombre de charges qui a traversé le stack. La méthode relative utilise des réactions

moniteurs dont la section efficace est connue et une validation a été réalisée pour un certain nombre d'entre elles sous l'égide de l'AIEA. Nous les avons utilisées dans les expériences. Cette méthode donne de bons résultats mais les valeurs de section efficace des réactions moniteurs possèdent des incertitudes élevées de l'ordre de 10 %. Les sections efficaces ainsi déterminées ont alors de grandes incertitudes. La deuxième méthode a pour but de diminuer l'incertitude induite par la réaction moniteur en mesurant l'intensité faisceau à l'aide d'une « Faraday cup ». Cette « Faraday cup » a été étudiée lors d'expériences et l'incertitude associée à son utilisation avec un faisceau de protons, a été déterminée à 2 %. Des mesures de sections efficaces moniteurs ont été effectuées avec ce nouveau dispositif et montrent un bon accord avec les valeurs de la littérature validant le bon fonctionnement de notre dispositif.



# Chapitre IV. La production du $^{197m}\text{Hg}$ sur de l'or avec un faisceau de deutons

<b>1. LE RADIONUCLEIDE <math>^{197m}\text{Hg}</math>.....</b>	<b>78</b>
1.1. L'INTERET DU $^{197m}\text{Hg}$ .....	78
1.2. LES VOIES DE PRODUCTION DU $^{197m}\text{Hg}$ .....	79
1.2.1. Les voies de production avec des protons .....	80
1.2.2. Les voies de production avec des particules alpha .....	81
1.2.3. Les voies de production avec des deutons .....	82
<b>2. LES MESURES DE SECTIONS EFFICACES DE PRODUCTION <math>^{197}\text{Au}(D,X)^{197m}\text{Hg}</math>.....</b>	<b>83</b>
2.1. LES EXPERIENCES « STACKED FOILS » .....	83
2.2. LA DETERMINATION DES POINTS DE MESURES EN ENERGIE .....	84
2.3. LA MESURE D'ACTIVITE DES FEUILLES IRRADIEES .....	86
2.4. LA MESURE D'ACTIVITE DU $^{48}\text{V}$ .....	89
2.5. LE CALCUL DE LA SECTION EFFICACE DES NOYAUX A L'ETAT FONDAMENTAL .....	90
<b>3. LES RESULTATS .....</b>	<b>93</b>
3.1. LA REACTION MONITEUR : $^{NAT}\text{Ti}(D,X)^{48}\text{V}$ .....	93
3.2. LES REACTIONS D'INTERET : $^{197}\text{Au}(D,2N)^{197g}\text{Hg}$ & $^{197m}\text{Hg}$ .....	95
3.3. LA PRODUCTION DE CONTAMINANTS .....	97
3.3.1. Le radionucléide $^{195m}\text{Hg}$ .....	98
3.3.2. Le radionucléide $^{196m2}\text{Au}$ .....	99
3.3.3. Les radionucléides $^{196g}\text{Au}$ & $^{196m1}\text{Au}$ .....	100
3.3.4. Le radionucléide $^{198m}\text{Au}$ .....	101
3.3.5. Le radionucléide $^{198g}\text{Au}$ .....	103
3.4. L'ESTIMATION DE L'ACTIVITE PRODUITE EN CIBLE EPAISSE .....	103
<b>4. CONCLUSION DU CHAPITRE .....</b>	<b>104</b>

# 1. Le radionucléide $^{197m}\text{Hg}$

## 1.1. L'intérêt du $^{197m}\text{Hg}$

Le  $^{197g}\text{Hg}$  est un isotope radioactif du mercure qui décroît par capture électronique vers le  $^{197}\text{Au}$  qui est stable. Nous pouvons produire le  $^{197}\text{Hg}$  dans un état métastable, il est alors noté  $^{197m}\text{Hg}$ . Un extrait de la charte des nucléides centrée sur le  $^{197}\text{Hg}$  est présenté en figure 4.1. Dans ces deux états, les noyaux sont constitués du même nombre de protons et de neutrons. Le noyau métastable possède un surplus d'énergie sous forme d'excitation interne. On dit qu'il est dans un état excité. Ce noyau va libérer cet excès d'énergie par conversion interne (transfert de l'énergie excédentaire à un électron du cortège électronique), transition interne (émission gamma) et capture électronique (transformation d'un proton en neutron en utilisant un électron du cortège électronique) jusqu'à retrouver son état fondamental. Dans le cas de la transition interne, plusieurs photons sont émis. La décroissance d'un noyau excité vers son état fondamental peut être très rapide (<1 ns) comme très lente ( $^{186m}\text{Re}$  a un temps de demi vie de  $2.10^5$  années).

Z	$^{195}\text{Pb}$ ≈15.0 M ε: 100.00%	$^{196}\text{Pb}$ 37 M α ± 3.0E-5% ε	$^{197}\text{Pb}$ 8.1 M ε: 100.00%	$^{198}\text{Pb}$ 2.4 H ε: 100.00%	$^{199}\text{Pb}$ 90 M ε: 100.00%	$^{200}\text{Pb}$ 21.5 H ε: 100.00%	$^{201}\text{Pb}$ 9.33 H ε: 100.00%	$^{202}\text{Pb}$ 52.5E+3 Y ε: 100.00%	$^{203}\text{Pb}$ 51.92 H ε: 100.00%
81	$^{194}\text{Tl}$ 33.0 M ε: 100.00% α < 1.0E-7%	$^{195}\text{Tl}$ 1.16 H ε: 100.00%	$^{196}\text{Tl}$ 1.84 H ε: 100.00%	$^{197}\text{Tl}$ 2.84 H ε: 100.00%	$^{198}\text{Tl}$ 5.3 H ε: 100.00%	$^{199}\text{Tl}$ 7.42 H ε: 100.00%	$^{200}\text{Tl}$ 26.1 H ε: 100.00%	$^{201}\text{Tl}$ 3.0421 D ε: 100.00%	$^{202}\text{Tl}$ 12.31 D ε: 100.00%
80	$^{193}\text{Hg}$ 3.80 H ε: 100.00%	$^{194}\text{Hg}$ 444 Y ε: 100.00%	$^{195}\text{Hg}$ 10.53 H ε: 100.00%	$^{196}\text{Hg}$ STABLE 0.15%	$^{197}\text{Hg}$ 64.14 H ε: 100.00%	$^{198}\text{Hg}$ STABLE 0.07%	$^{199}\text{Hg}$ STABLE 18.87%	$^{200}\text{Hg}$ STABLE 23.10%	$^{201}\text{Hg}$ STABLE 13.18%
79	$^{192}\text{Au}$ 4.94 H ε: 100.00%	$^{193}\text{Au}$ 17.65 H ε: 100.00%	$^{194}\text{Au}$ 38.02 H ε: 100.00%	$^{195}\text{Au}$ 186.01 D ε: 100.00%	$^{196}\text{Au}$ 6.1669 D ε: 03.00% β-: 7.00%	$^{197}\text{Au}$ STABLE 100%	$^{198}\text{Au}$ 2.6941 D β-: 100.00%	$^{199}\text{Au}$ 3.139 D β-: 100.00%	$^{200}\text{Au}$ 48.4 M β-: 100.00%
78	$^{191}\text{Pt}$ 2.83 D ε: 100.00%	$^{192}\text{Pt}$ STABLE 0.782%	$^{193}\text{Pt}$ 50 Y ε: 100.00%	$^{194}\text{Pt}$ STABLE 32.86%	$^{195}\text{Pt}$ STABLE 33.78%	$^{196}\text{Pt}$ STABLE 25.21%	$^{197}\text{Pt}$ 19.8915 H β-: 100.00%	$^{198}\text{Pt}$ STABLE 7.38% 2β-	$^{199}\text{Pt}$ 30.80 M β-: 100.00%
	113	114	115	116	117	118	119	120	N

Figure 4.1 - Extrait de la charte des nucléides centrée sur le  $^{197}\text{Hg}$  [1].

Les propriétés du noyau  $^{197}\text{Hg}$ , états fondamental et métastable, sont données dans le tableau 4.1. Nous pouvons voir que le  $^{197m}\text{Hg}$  émet principalement des photons gamma de 134 keV à une intensité de 33 %. Il possède les caractéristiques permettant son utilisation en imagerie TEMP.

Radionucléide	Temps de demi-vie	Mode de décroissance	Principales émissions gamma énergie (intensité)
$^{197m}\text{Hg}$	23,8 h	IT 91,4 %	134,0 keV (33 %)
		CE 8,6 %	279,0 keV (6 %)
$^{197g}\text{Hg}$	64,1 h	CE 100%	77,3 keV (18,7 %)

Table 4.1 - Propriétés physiques des noyaux de  $^{197g}\text{Hg}$  et  $^{197m}\text{Hg}$  [17].

Le  $^{197m}\text{Hg}$  est un radionucléide qui est étudié depuis des années. Il a été utilisé dans les années 60-70 pour effectuer des scanners de reins, de la rate ou du cerveau [57]. Son utilisation a été arrêtée par la suite et il a été remplacé par le  $^{99m}\text{Tc}$  car le marquage au bromo-mercure-hydroxy-propane (BMPH) cause des dégâts sur les érythrocytes (globules rouges) lors des scanners de la rate [58].

Des études sur la production des isomères  $^{197g,m}\text{Hg}$  ont été faites pour plusieurs réactions : alpha ou  $^3\text{He}$  sur du platine naturel [59], [60], protons sur de l'or naturel [61]–[66] ou deutons sur l'or [64], [67]–[70]. L'étude de ces voies de production est approfondie dans la partie suivante.

La production du mercure pouvant se faire sur de l'or, l'utilisation de nanoparticules d'or pourrait être envisagée. Les nanoparticules d'or sont biocompatibles et non toxiques pour le corps humain. Elles sont facilement synthétisables et leur taille peut être choisie entre 2 et 500 nm. Il est également possible de leur donner la forme souhaitée (sphère, tige, tube, fil, ruban...). Pour une taille inférieure à celle d'une cellule humaine,  $\sim 70 \mu\text{m}$ , les nanoparticules peuvent être internalisées et interagir avec les différentes parties du milieu. On parle d'interaction intracellulaire. Les interactions extracellulaires peuvent également être considérées. [71]. Les nanoparticules d'or pourraient être irradiées pour produire le  $^{197m}\text{Hg}$  et ensuite l'acheminé dans la région souhaitée afin d'effectuer une imagerie TEMP.

## 1.2. Les voies de production du $^{197m}\text{Hg}$

Dans cette partie, nous allons étudier les différentes voies de production afin de déterminer quelle peut être la voie permettant une production optimisée du  $^{197m}\text{Hg}$ .

### 1.2.1. Les voies de production avec des protons

Le  $^{197m}\text{Hg}$  peut être produit avec des protons à partir d'une feuille d'or naturel ou de mercure naturel. Les données de sections efficaces expérimentales disponibles dans la littérature pour ces réactions sont présentées dans la figure 4.2.

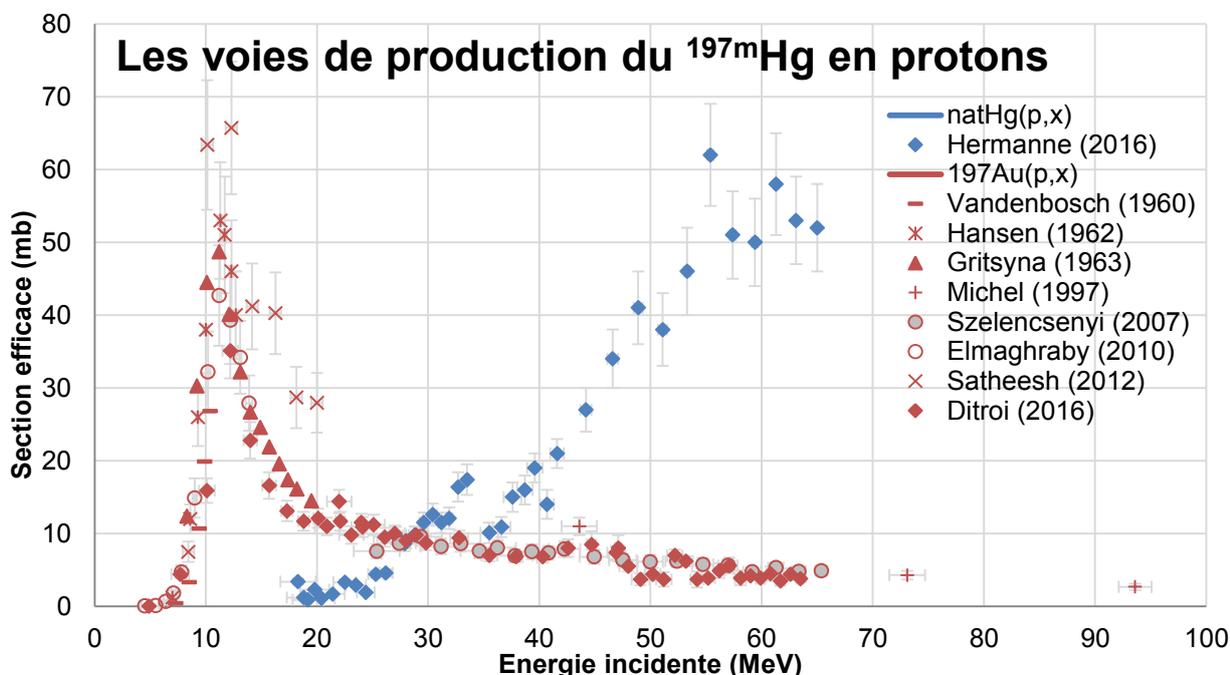


Figure 4.2 - Sections efficaces des réactions produisant le  $^{197m}\text{Hg}$  avec des protons.

- $^{\text{nat}}\text{Hg}(p,x)^{197m}\text{Hg}$

D'après les valeurs expérimentales, le maximum de la section efficace est d'environ 60 mb pour une énergie de protons de 60 MeV. Le mercure naturel possède 6 isotopes ce qui va impliquer une production de contaminants peu contrôlée sur ces noyaux. De plus, la cible étant composée du même élément que le radionucléide d'intérêt, sa séparation par extraction chimique n'est pas possible. Cette réaction ne semble pas idéale pour la production exclusive de  $^{197m}\text{Hg}$ .

- $^{197}\text{Au}(p,x)$

La production du  $^{197m}\text{Hg}$  peut être envisagée sur une cible naturelle d'or. L'or a, entre autres, l'avantage d'être composé d'un seul isotope stable réduisant le nombre de réactions produisant les contaminants. De plus, après irradiation, il est possible d'extraire le mercure de l'or par voie sèche car la température d'évaporation du mercure est beaucoup plus faible que celle de l'or, 357 °C devant 2856 °C à pression atmosphérique [67]. Les données de sections efficaces expérimentales disponibles

dans la littérature sont présentées dans la figure 4.2. Nous pouvons remarquer un maximum autour de 60 mb pour une énergie d'environ 12 MeV. La production par cette voie peut être envisagée avec les accélérateurs actuels qui produisent le  $^{18}\text{F}$  (protons, 20 MeV).

### 1.2.2. Les voies de production avec des particules alpha

Dans cette partie, les voies de production avec un faisceau de particules alpha vont être étudiées. Les sections efficaces des réactions sont présentées dans la figure 4.3.

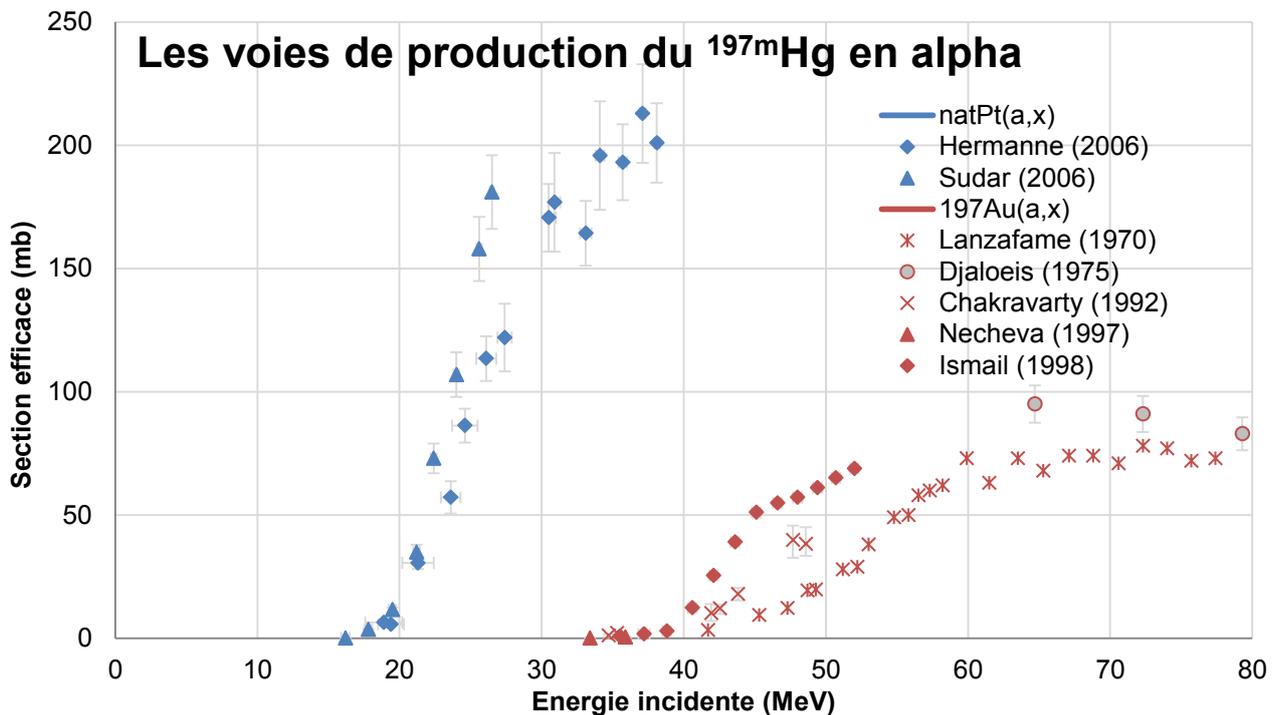


Figure 4.3 - Sections efficaces des réactions produisant le  $^{197m}\text{Hg}$  avec des particules alpha.

- $^{nat}\text{Pt}(a,x)$

Les particules alpha ayant un Z plus élevée que les protons, une cible de platine peut être utilisée pour produire le  $^{197m}\text{Hg}$ . Cependant, le platine naturel possède 4 isotopes stables ce qui ne permet pas de contrôler la production des contaminants comme l'ensemble des isotopes stable de mercure. Les valeurs de section efficace expérimentales montrent un potentiel maximum autour des 200 mb pour des particules alpha de 38 MeV.

- $^{nat}\text{Au}(a,x)$

Nous avons discuté des avantages que présente une cible d'or, extraction chimique par voie sèche et composition monoisotopique. La production du mercure sur l'or avec des particules alpha est envisageable. Cependant, les isotopes du thallium vont être produit formant des générateurs de mercure. Il est possible de palier à cette problématique en effectuant une extraction chimique juste après l'irradiation. Les données de section efficace pour cette réaction montrent de grands écarts entre elles présentant un maximum de 75 mb sur une large plage en énergie 60-80 MeV.

### 1.2.3. Les voies de production avec des deutons

Les données expérimentales de sections efficaces des différentes voies de production du  $^{197m}\text{Hg}$  avec des deutons sont présentées dans la figure 4.4.

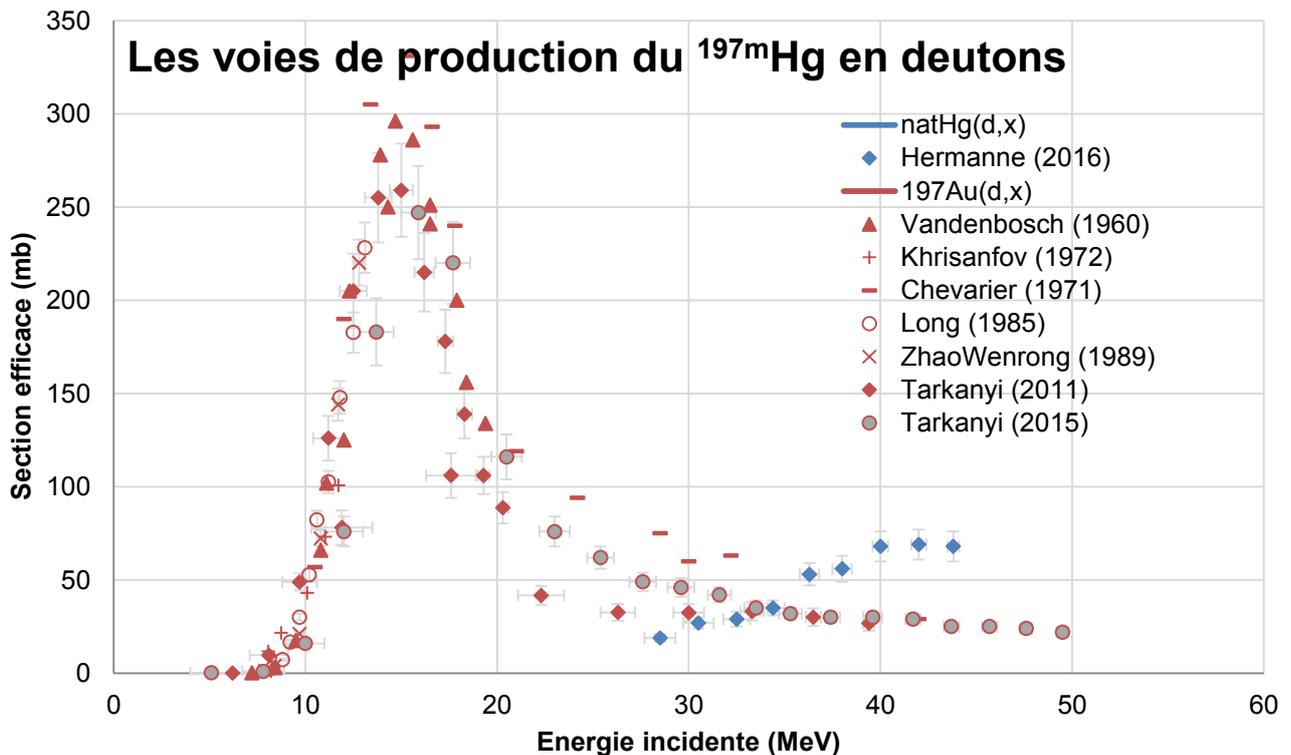


Figure 4.4 - Sections efficaces des réactions produisant le  $^{197m}\text{Hg}$  avec des deutons.

- $^{nat}\text{Hg}(d,x)$

Il est possible de produire le  $^{197m}\text{Hg}$  sur une cible de mercure. Cependant, comme discuté précédemment, le mercure est composé du même élément que le radionucléide d'intérêt excluant la possibilité de le récupérer par extraction chimique. De plus, la cible

étant composé de 6 isotopes stables, la production de contaminants va être difficile à contrôler. Cette réaction ne semble pas idéale pour la production exclusive du  $^{197m}\text{Hg}$ .

- $^{\text{nat}}\text{Au}(d,x)$

Nous connaissons maintenant les avantages d'une cible d'or : composition monoisotopique et extraction du mercure par voie sèche. Les données expérimentales de section efficace indiquent un maximum autour des 300 mb pour une énergie d'approximativement 15 MeV. Ces valeurs montrent, comparées à la voie par protons, la possibilité de produire une plus grande quantité de  $^{197m}\text{Hg}$  pour une cible identique. Nous voyons donc l'intérêt de cette réaction par rapport aux autres réactions. De plus, les données expérimentales présentent de grands écarts entre elles ce qui a également motivé l'apport de nouvelles valeurs précises de sections efficaces.

## 2. Les mesures de sections efficaces de production $^{197}\text{Au}(d,x)^{197m}\text{Hg}$

### 2.1. Les expériences « stacked foils »

Une campagne de 6 mesures de sections efficaces a été effectuée auprès du cyclotron C70 du GIP ARRONAX durant laquelle la technique des « stacked foils » a été utilisée (cf. chapitre II partie 2). Les mesures de flux ont été effectuées par deux méthodes : avec la « Faraday cup » permettant une mesure précise du flux et avec des réactions moniteurs permettant le contrôle du bon déroulement des expériences. Pour réaliser cette dernière, le choix de la réaction moniteur s'est porté sur la réaction  $^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x)^{48}\text{V}$  [31].

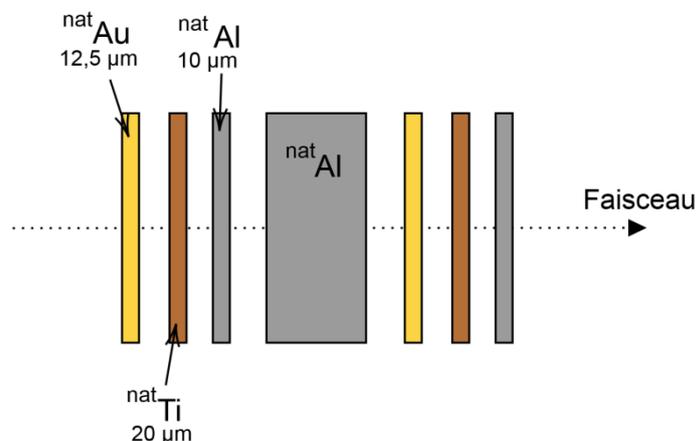


Figure 4.5 - Configuration d'un "stack" lors des expériences  $^{197m}\text{Hg}$ .

Chaque « stack » était constitué de deux motifs identiques composés chacun d'une feuille d'or pur à 99,99 % (12,5  $\mu\text{m}$ ), de titane (10  $\mu\text{m}$ ) et d'aluminium (10  $\mu\text{m}$ ), présenté en figure 4.5. Entre ces motifs, une cible épaisse d'aluminium (300-900  $\mu\text{m}$ ) était placée de façon à adapter l'énergie du faisceau. La figure 4.6 ci-dessous montre un stack sur son support motorisé. La première feuille visible sur la photo est une des feuilles d'or.

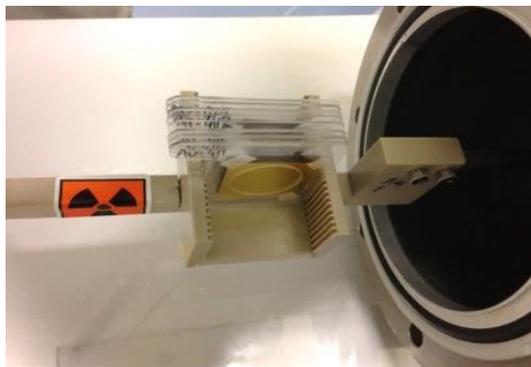


Figure 4.6 - Photo d'un stack sur son support motorisé.

Avant chaque irradiation, le faisceau est réglé à l'aide d'une feuille d'alumine. Son enveloppe doit être inscrite dans un cercle de 1cm de diamètre afin d'assurer une bonne mesure du courant à l'aide de la « Faraday cup ».

L'objectif des irradiations était d'avoir un faisceau d'environ 50 nA pendant une heure. Le nombre de charges mesurées, pendant chaque expérience, est présenté dans le tableau 4.2.

Energie faisceau (MeV)	Temps d'irradiation	Nombre de charges mesurées ( $\mu\text{C}$ )	Courant moyen calculé (nA)
16,0	1 h	186,0 $\pm$ 3,7	51,7
17,7	1 h	182,4 $\pm$ 3,6	50,7
20,5	1 h	236,2 $\pm$ 4,7	65,6
27,0	1 h	175,1 $\pm$ 3,5	48,6
30,7	1 h	172,6 $\pm$ 3,4	47,9
33,0	1 h	186,3 $\pm$ 3,7	51,7

Table 4.2 - Caractéristiques d'irradiation pour la production de  $^{197\text{m}}\text{Hg}$ .

## 2.2. La détermination des points de mesures en énergie

La campagne de mesures correspond à une série de 6 expériences récapitulées ci-dessous. Le fournisseur des feuilles nous donne leur épaisseur avec une incertitude de

15 %. Cette incertitude est trop élevée pour notre expérience. Pour y pallier, avant l'expérience, leur épaisseur est recalculée (cf. chap II partie 3). Une fois ces valeurs acquises, l'énergie du faisceau au milieu de chaque feuille est déterminée (cf. chap II, partie 3).

Chaque feuille est ensuite placée entre deux diapositives, photo figure 4.7, puis intercalée sur le support dédié, photo figure 4.6. Une ouverture circulaire de 2 cm de diamètre est réalisée sur chaque diapositive.

Energie faisceau initiale (MeV)	Feuille	Epaisseur ( $\mu\text{m}$ )	Energie des particules (MeV)
16,0	Au	12,3	$15,7 \pm 0,5$
	Ti	9,8	$15,4 \pm 0,5$
	Au	12,2	$11,2 \pm 0,6$
	Ti	9,7	$10,8 \pm 0,6$
17,7	Au	12,4	$17,5 \pm 0,5$
	Ti	9,9	$17,2 \pm 0,7$
	Au	12,4	$13,4 \pm 0,6$
	Ti	10,0	$13,0 \pm 0,6$
20,5	Au	12,0	$20,3 \pm 0,5$
	Ti	19,2	$20,0 \pm 0,5$
	Au	12,1	$14,4 \pm 0,7$
	Ti	19,5	$13,9 \pm 0,7$
27,0	Au	12,2	$26,8 \pm 0,5$
	Ti	19,5	$26,5 \pm 0,5$
	Au	13,6	$18,9 \pm 0,7$
	Ti	19,2	$18,5 \pm 0,7$
30,7	Au	12,1	$30,5 \pm 0,5$
	Ti	19,5	$30,3 \pm 0,5$
	Au	12,5	$23,6 \pm 0,6$
	Ti	19,5	$23,3 \pm 0,6$
33,0	Au	12,0	$32,8 \pm 0,5$
	Ti	9,7	$32,6 \pm 0,5$
	Au	12,6	$28,5 \pm 0,6$
	Ti	9,7	$28,2 \pm 0,6$

Table 4.3 - Les valeurs des épaisseurs des feuilles calculées et l'énergie des particules traversant chacune d'elle.

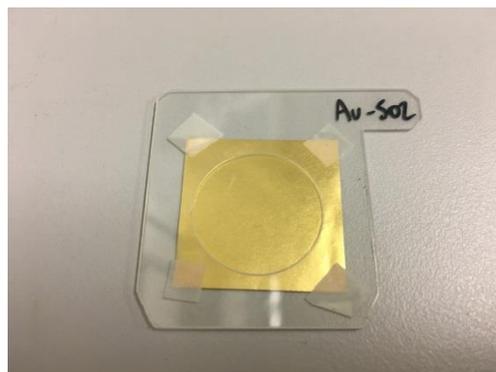


Figure 4.7 – Photo d'une feuille d'or intercalée entre deux diapositives.

### 2.3. La mesure d'activité des feuilles irradiées

Après irradiation, les feuilles restent dans la casemate pendant environ 15 heures, comme mentionné chapitre II partie 5.3.3. Cela permet de laisser décroître les radionucléides au temps de demi-vie (très) court ( $<1$  h). Un trop grand nombre de photons gamma impliquerait aussi un temps mort élevé pendant l'acquisition du spectre. De plus, cela permet de limiter l'exposition des expérimentateurs aux rayonnements lors de la récupération des cibles.

L'ensemble des raies formées sur le spectre est analysé et un inventaire des radionucléides produits est effectué. Cette analyse est présentée dans le tableau 4.4 qui liste les raies gamma détectées dans une feuille d'or irradiée par un faisceau de deutons de 27 MeV. Le spectre acquis est présenté en figure 4.8. Lors des interactions des particules sur la cible, des noyaux vont être excités et vont ensuite émettre des rayons X propres à l'élément (émission en fonction du Z). Ces émissions sont utilisées dans la technique d'analyse PIXE [73], [74]. Elles sont notées X suivi de l'élément dans le tableau. Un spectre a été acquis sans échantillon placé devant la tête de détection pour déterminer le spectre du bruit de fond, c'est-à-dire les raies gamma et X issues du dispositif expérimental et de la radioactivité naturelle. Elles sont notées « Bdf ».

Sous forme de gaz dans les conditions normales de pression et de température, le  $^{222}\text{Rn}$  est l'un des principaux contributeurs de la radioactivité naturelle. Il fait indirectement partie de la radioactivité naturelle tellurique car il est issu de la décroissance de  $^{238}\text{U}$ . Le  $^{222}\text{Rn}$  (3,8 j) n'est pas visible sur le spectre car il n'émet qu'un seul gamma à 511 keV à une intensité de 0,07 %. Ce gamma, émis à très faible intensité, est alors mélangé avec les photons gamma issus des annihilations positon/électron. Par contre, il décroît vers le  $^{214}\text{Bi}$  (19,9 min) qui émet des photons gamma visibles sur les spectres, comme indiqué dans le tableau 4.4.

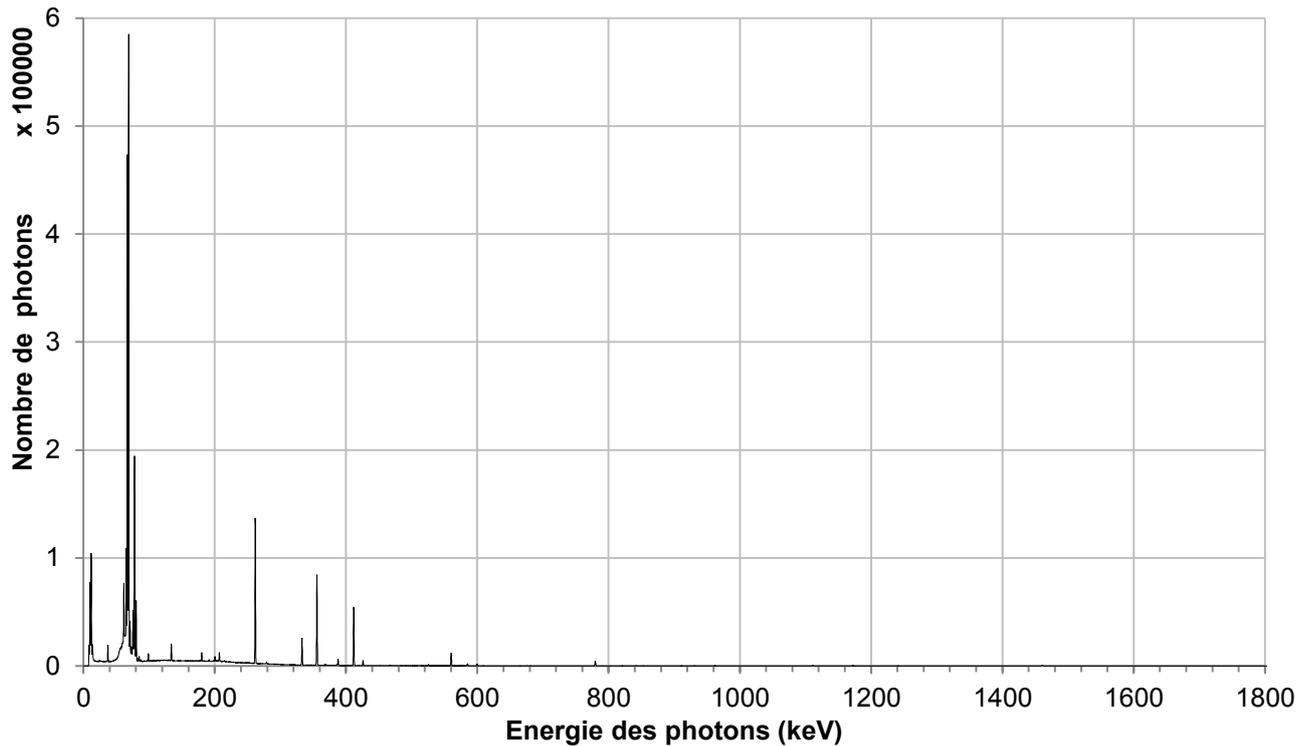


Figure 4.8 - Spectre acquis à partir d'une feuille de  $^{\text{nat}}\text{Au}$  irradiée par un faisceau de deuton de 27 MeV.

Les photons gamma utilisés pour l'identification et la mesure d'activité des radionucléides sont donnés dans le tableau 4.5. Deux états métastables du  $^{196}\text{Au}$  ont des temps de demi-vie qui ne sont pas extrêmement courts. Dans ce cas, ils sont classés par ordre croissant d'énergie d'excitation,  $^{196\text{m}1}\text{Au}$  (8,1 s)  $E_{\text{ex},1} = 84$  keV et  $^{196\text{m}2}\text{Au}$  (9,6 h)  $E_{\text{ex},2} = 595$  keV. L'acquisition du spectre, présenté dans le tableau 4.4, a été effectuée dans le but d'analyser les radionucléides à temps de demi-vie long (>10 h), les radionucléides à temps de demi-vie court ne sont potentiellement plus visibles, c'est le cas de  $^{196\text{m}2}\text{Au}$ . Un comptage court est réalisé préalablement pour ces radionucléides de demi-vie courte.

Energie de la raie (keV)	Source identifiée	Energie de la raie (keV)	Source identifiée
13,9	Bdf	452,0	<sup>195m</sup> Hg
37,3	<sup>195m</sup> Hg/ <sup>195m</sup> Pt	467,3	<sup>195m</sup> Hg
57,1	<sup>195m</sup> Hg	510,9	Bêta +
61,5	<sup>195m</sup> Hg/ <sup>195g</sup> Hg	525,8	<sup>195m</sup> Hg
65,2	X Pt	549,4	<sup>195m</sup> Hg
67,0	X Au	560,2	<sup>195m</sup> Hg
68,9	X Hg	575,5	<sup>195m</sup> Hg
71,0	X Hg	578,9	<sup>195m</sup> Hg
72,9	Bdf	585,1	<sup>195g</sup> Hg
75,6	Bdf	599,7	<sup>195g</sup> Hg
77,8	<sup>197g</sup> Hg	609,3	Bdf <sup>214</sup> Bi
80,3	X Hg	665,6	<sup>195m</sup> Hg
82,7	X Hg	675,8	<sup>198g</sup> Au
84,9	Bdf	680,8	<sup>195m</sup> Hg
87,5	Bdf	693,3	<sup>195m</sup> Hg
97,2	<sup>198m</sup> Au	698,0	<sup>195m</sup> Hg
98,9	<sup>195</sup> Au/ <sup>195m</sup> Pt	727,3	<sup>195m</sup> Hg
129,8	<sup>195</sup> Au/ <sup>195m</sup> Pt	754,9	<sup>195m</sup> Hg
133,9	<sup>197m</sup> Hg	779,8	<sup>195g</sup> Hg
172,3	<sup>195m</sup> Hg	821,1	<sup>195g</sup> Hg
180,1	<sup>195g</sup> Hg/ <sup>198m</sup> Au	841,3	<sup>195g</sup> Hg
191,3	<sup>197g</sup> Hg	853,1	<sup>195m</sup> Hg
200,3	<sup>195g</sup> Hg	911,1	<sup>195g</sup> Hg
204,1	<sup>198m</sup> Au	930,9	<sup>195g</sup> Hg
207,1	<sup>195g</sup> Hg	961,9	<sup>195m</sup> Hg
215,0	<sup>198m</sup> Au	968,9	Bdf
238,6	<sup>195m</sup> Pt	1021,5	<sup>195g</sup> Hg
261,8	<sup>195m</sup> Hg/ <sup>195g</sup> Hg	1027,6	<sup>195m</sup> Hg
279,0	<sup>197m</sup> Hg/ <sup>195m</sup> Hg	1091,4	<sup>195g</sup> Hg
333,0	<sup>196g</sup> Au	1111,0	<sup>195g</sup> Hg
351,9	Bdf <sup>214</sup> Bi	1120,3	Bdf <sup>214</sup> Bi
355,7	<sup>196g</sup> Au	1172,5	<sup>195g</sup> Hg
368,4	<sup>195m</sup> Hg	1241,1	<sup>195m</sup> Hg
388,0	<sup>195m</sup> Hg	1377,7	Bdf
411,8	<sup>198g</sup> Au	1460,9	Bdf <sup>40</sup> K
419,1	<sup>195m</sup> Hg	1592,6	Bdf <sup>214</sup> Bi
425,9	<sup>196g</sup> Au	1764,6	Bdf
439,5	<sup>195g</sup> Hg		

Table 4.4 – Les identifications des sources formant les pics sur un spectre acquis avec une feuille d'or qui a été irradiée par un faisceau de deuton de 27 MeV.

Radionucléide	$T_{1/2}$	Voie(s) de réaction	$E_{\text{seuil}}$ (MeV)	Gamma utilisés pour la mesure d'activité keV (%)
$^{197m}\text{Hg}$	23,8 h	(d,2n)	3,9	134,0 (33) 279,0 (6)
$^{197g}\text{Hg}$	64,1 h	(d,2n)	3,6	191,4 (0,6)
$^{195m}\text{Hg}$	41,6 h	(d,4n)	19,7	388,0 (2,1) 560,3 (7)
$^{195g}\text{Hg}$	10,5 h	(d,4n)	19,5	779,8 (7)
$^{198m}\text{Au}$	2,3 j	(d,p)	0	97,2 (69,3) 204,1 (40,8) 214,8 (77)
$^{198g}\text{Au}$	2,7 j	(d,p)	0	411,8 (96)
$^{196m2}\text{Au}$	9,6 h	(d,t)	2,4	147,8 (43)
		(d,n+d)	8,7	168,4 (7,6)
		(d,2n+p)	11,0	188,3 (37,4)
				285,5 (4,3) 316,2 (2,9)
$^{196g}\text{Au}$	6,1669 j	(d,t)	1,8	355,7 (87)
		(d,n+d)	8,1	
		(d,2n+p)	10,4	

Table 4.5 – Les radionucléides produits par la réaction  $^{197}\text{Au}(d,x)$ , leur(s) voie(s) de réaction(s) et l'énergie seuil associée [1].

## 2.4. La mesure d'activité du $^{48}\text{V}$

Dans cette série de mesures, la réaction moniteur  $^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x)^{48}\text{V}$  a été choisie. Cependant, lors de ces interactions, le  $^{48}\text{Sc}$  va lui aussi être produit. La problématique est qu'ils émettent des photons gamma de mêmes énergies comme le montre le tableau 4.6.

Radionucléide	Période radioactive	Energie gamma (keV)	Intensité (%)
$^{48}\text{V}$	16,0 j	944,1	7,8
		<b>983,5</b>	100,0
		<b>1312,1</b>	97,5
		2240,4	2,4
$^{48}\text{Sc}$	43,7 h	175,4	7,5
		<b>983,5</b>	100,1
		1037,6	97,6
		1212,9	2,4
		<b>1312,1</b>	100,1

Table 4.6 - Caractéristiques des photons gamma émis lors de la décroissance  $^{48}\text{V}$  et  $^{48}\text{Sc}$  [1].

Afin d'obtenir uniquement l'activité du  $^{48}\text{V}$  produit, il est nécessaire de prendre en compte ces énergies communes. Pour cela, plusieurs méthodes sont possibles pour déduire l'activité du  $^{48}\text{V}$ .

La première méthode est de calculer l'activité du  $^{48}\text{V}$  à l'aide des émissions des photons gamma qui ne sont pas émis par le  $^{48}\text{Sc}$ . Pour cela, nous pouvons utiliser l'émission à 944 keV (7,8 %). Les photons de 2240 keV ne font pas partie de la plage d'étalonnage du détecteur.

Une autre méthode est de déterminer l'activité du  $^{48}\text{Sc}$  grâce à la raie de 1037,6 keV (97,6 %) qui n'est pas alimentée par la décroissance du  $^{48}\text{V}$  et ensuite extraire la contribution du  $^{48}\text{Sc}$  des raies communes.

Et la dernière méthode, celle choisie dans cette étude, consiste à jouer sur les périodes radioactives. Après un temps d'attente suffisamment long, au bout de 10 périodes radioactives d'un noyau, sa population est diminuée d'un facteur supérieur à 1000. Dans notre cas, nous considérons la contribution du  $^{48}\text{Sc}$  après 19 jours comme négligeable par rapport à celle du  $^{48}\text{V}$ . De son côté, la population de  $^{48}\text{V}$  aura diminué d'un peu plus de la moitié de la population de  $^{48}\text{V}$ .

## 2.5. Le calcul de la section efficace des noyaux à l'état fondamental

Nous souhaitons obtenir la section efficace d'un noyau dans son état fondamental sachant que sa population est alimentée par la décroissance d'un état métastable. Pour simplifier l'écriture, nous appelons B l'état fondamental qui est alimenté par la décroissance de A l'état métastable et décroît vers C qui est stable [ $A \rightarrow B \rightarrow C$ ].

Pour obtenir la section efficace de la réaction produisant B, il est nécessaire d'obtenir le nombre de noyaux venant exclusivement de celle-ci. Pendant l'acquisition d'un spectre,

des noyaux de B venant de la décroissance de A vont induire des photons gamma collectés supplémentaires dans le spectre et donc une surestimation de l'activité produite.

D'après la démonstration chapitre II partie 5.4.1, la relation entre le nombre de photons gamma mesurés dans le spectre et l'activité d'un radionucléide A au début de l'acquisition ( $t = 0$ ) est :

$$N_{A,\text{gamma collectés}}^x = A t_0 \frac{\varepsilon^x \cdot I_A^x \cdot (1 - e^{-\lambda_A t_{LT}})}{\lambda_A} \quad (4.1)$$

$$N_{A,\text{gamma collectés}}^x = N_{A,\text{noyaux}}(t = 0) \cdot \varepsilon_A^x \cdot I_A^x \cdot (1 - e^{-\lambda_A t_{LT}})$$

Où  $N_{\text{gamma collectés}}^x$  est le nombre de gamma détectés à l'énergie x,  $\varepsilon$  est l'efficacité du détecteur pour un gamma x,  $I$  l'intensité du gamma x du radionucléide A,  $N_{A,\text{noyaux}}$  est le nombre de noyaux du radionucléide A.

Dans notre cas, le nombre de noyaux de B à  $t = 0$  est la somme des noyaux venant de l'irradiation et de ceux venant de la désintégration de A :

$$N_B(t = 0) = N_{\text{irr},B,\text{prod}} e^{-\lambda_B t_d} + N_{B \leftarrow A}(t = 0) \quad (4.2)$$

Où  $N_{\text{irr},B,\text{prod}}$  est le nombre de noyaux de B produits présents à la fin de l'irradiation,  $t_d$  est le temps « délai » entre la fin de l'irradiation et le début du comptage et  $N_{B \leftarrow A}$  est le nombre de noyaux de B venant de la décroissance de A. Les décroissances des noyaux durant l'irradiation sont négligées car le temps d'irradiation est très faible devant les temps de demi-vie. Ce dernier terme est déterminé par l'équation de Bateman à 2 corps :

$$N_{B \leftarrow A}(t = 0) = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} \cdot N_{A0} \cdot r_{AB} \cdot (e^{-\lambda_A t_d} - e^{-\lambda_B t_d}) \quad (4.3)$$

Où  $N_{B \leftarrow A}$  est le nombre de noyaux de B venant de A,  $N_{A0}$  est le nombre de noyaux de A à la fin de l'irradiation,  $r_{AB}$  est le rapport d'embranchement de la décroissance de A vers B.

Lors de l'acquisition du spectre, la population de A continue de décroître vers B puis C. Il est nécessaire de le prendre en compte. Connaissant la population de A au début du

comptage ( $t=0$ ), nous pouvons déterminer à l'aide de l'équation de Bateman à 3 corps la population de C :

$$N_C(t_{LT}) = N_{A0} \cdot \lambda_A \cdot \lambda_B \cdot r_{AB} \cdot r_{BC} \cdot \left[ \frac{e^{-\lambda_A t_{LT}}}{(\lambda_B - \lambda_A) \cdot (\lambda_C - \lambda_A)} + \frac{e^{-\lambda_B t_{LT}}}{(\lambda_A - \lambda_B) \cdot (\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{e^{-\lambda_C t_{LT}}}{(\lambda_C - \lambda_A) \cdot (\lambda_C - \lambda_B)} \right] \quad (4.4)$$

Où  $r_{BC}$  est le rapport d'embranchement de B vers C.

Dans notre cas, nous considérons C comme stable ce qui conduit à l'équation :

$$N_C(t_{LT}) = N_{A0} \cdot \lambda_A \cdot \lambda_B \cdot r_{AB} \cdot r_{BC} \cdot \left[ \frac{1}{\lambda_A \cdot \lambda_B} - \frac{e^{-\lambda_A t_{LT}}}{\lambda_A (\lambda_B - \lambda_A)} - \frac{e^{-\lambda_B t_{LT}}}{\lambda_B (\lambda_A - \lambda_B)} \right] \quad (4.5)$$

La population de C traduit le nombre de noyaux qui ait décru de B et donc qui ont été comptés par le détecteur. En termes de nombre de photons gamma collectés :

$$N_{C, \text{gamma collectés}}^x = N_C(t_{LT}) \cdot \varepsilon_B^x \cdot I_B^x \quad (4.6)$$

Où  $N_{C, \text{gamma collectés}}$  est le nombre de photons gamma détectés de la décroissance de B vers C pendant la mesure venant initialement de A. Il faut donc soustraire ce nombre de gamma détectés au pic pour la détermination de la population de B à  $t=0$ .

$$N_B(t=0) = \frac{N_{B, \text{gamma collectés tot}} - N_{C, \text{gamma collectés}}^x}{\varepsilon_B^x \cdot I_B^x \cdot (1 - e^{-\lambda_B t_{LT}})} \quad (4.7)$$

Nous obtenons donc la population de B à la fin de l'irradiation venant exclusivement de la réaction :

$$N_{\text{irr}, B_{\text{prod}}} = e^{\lambda_B t_d} \cdot \left[ \frac{N_{B, \text{gamma collectés tot}}^x - N_{C, \text{gamma collectés}}^x}{\varepsilon_B^x \cdot I_B^x \cdot (1 - e^{-\lambda_B t_{LT}})} - N_{B \leftarrow A}(t=0) \right] \quad (4.8)$$

Ce qui nous donne la relation finale :

$$N_{\text{irr}, B_{\text{prod}}} = e^{\lambda_B t_d} \cdot \left[ \frac{N_{B, \text{gamma collectés tot}}^x - N_{C, \text{gamma collectés}}^x}{\varepsilon_B^x \cdot I_B^x \cdot (1 - e^{-\lambda_B t_{LT}})} - \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} \cdot N_{A0} \cdot r_{AB} \cdot (e^{-\lambda_A t_d} - e^{-\lambda_B t_d}) \right] \quad (4.9)$$

Nous cherchons désormais à déterminer l'incertitude liée à ce calcul. Nous négligeons les incertitudes liées aux constantes de décroissance et celles liées aux temps ( $t_d$ ,  $t_{LT}$ ). Par la loi générale de propagation des incertitudes, on obtient :

$$\begin{aligned}
 \sigma^2(N_{\text{irr},B_{\text{prod}}}) = & \left( \frac{\partial N_{\text{irr},B_{\text{prod}}}}{\partial N_{B,\text{gamma collectés tot}}} \sigma(N_{B,\text{gamma collectés tot}}) \right)^2 \\
 & + \left( \frac{\partial N_{\text{irr},B_{\text{prod}}}}{\partial N_{c,\text{gamma collectés}}^x} \sigma(N_{c,\text{gamma collectés}}^x) \right)^2 + \left( \frac{\partial N_{\text{irr},B_{\text{prod}}}}{\partial \varepsilon_B^x} \sigma(\varepsilon_B^x) \right)^2 \\
 & + \left( \frac{\partial N_{\text{irr},B_{\text{prod}}}}{\partial I_B^x} \sigma(I_B^x) \right)^2 + \left( \frac{\partial N_{\text{irr},B_{\text{prod}}}}{\partial N_{A0}} \sigma(N_{A0}) \right)^2 \\
 & + \left( \frac{\partial N_{\text{irr},B_{\text{prod}}}}{\partial \Gamma_{AB}} \sigma(\Gamma_{AB}) \right)^2
 \end{aligned} \tag{4.10}$$

### 3. Les résultats

#### 3.1. La réaction moniteur : $^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x)^{48}\text{V}$

Lors des expériences, le flux de particules est calculé à partir d'une mesure absolue et relative du courant ce qui implique que la section efficace moniteur peut être déterminée à partir du flux mesuré. La réaction  $^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x)^{48}\text{V}$  a été choisie car la section efficace de cette réaction possède un pic sur une gamme d'énergie similaire à celle de la réaction d'intérêt ce qui permet de facilement contrôler un éventuel décalage en énergie et en amplitude. Le temps de demi-vie de (16 j) n'implique pas le besoin d'une mesure rapide au spectromètre. Les résultats obtenus pour cette campagne de mesures appelée «  $^{197m}\text{Hg}$  » (en rouge) sont donnés dans le graphique de la figure 4.9.

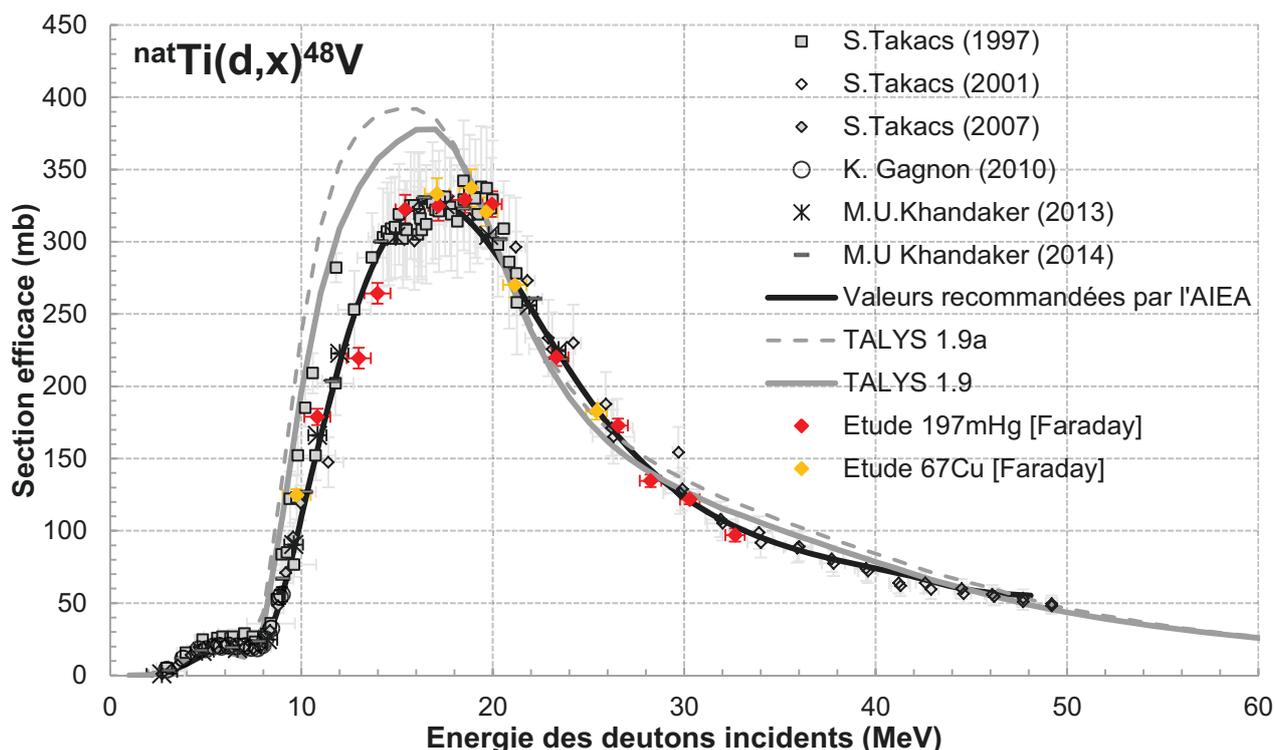


Figure 4.9 - Sections efficaces de la réaction  ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x){}^{48}\text{V}$  [31], [46], [50], [74]–[77].

Les valeurs obtenues pour la réaction moniteur sont en accord avec la courbe de section efficace dite de référence de l'AIEA et également en accord avec les différentes valeurs expérimentales disponibles dans la littérature. Cela montre que le dispositif fonctionne comme souhaité et nous rassure sur la fiabilité des résultats que nous avons obtenus.

Nous pouvons cependant discuter plus localement de l'allure tracée par les points de cette étude comparée à celle de l'AIEA. Nous pouvons voir dans la gamme 18-20 MeV que le pic semble se situer légèrement plus haut que les valeurs recommandées. Les points se situant dans la gamme d'énergie 10-14 MeV montrent des écarts en amplitude mais en prenant en compte l'incertitude en énergie, ces données sont en accord avec la section efficace recommandée par l'AIEA et les valeurs expérimentales de la littérature. Pour une énergie donnée, ces différences de valeurs de sections efficaces vont impliquer des différences entre les valeurs de sections efficaces obtenues avec la Faraday et les sections efficaces obtenues à partir des valeurs recommandées de la réaction moniteur.

En ce qui concerne TALYS, les résultats des versions par défaut et ajustée ont été ajoutés. La combinaison de modèles par défaut définit mieux dans ce cas l'allure de la courbe particulièrement la forme du pic. Par contre, les deux versions sont décalées en énergie et n'ont pas la bonne amplitude.

### 3.2. Les réactions d'intérêt : $^{197}\text{Au}(d,2n)^{197g}\text{Hg}$ & $^{197m}\text{Hg}$

Nous allons désormais nous intéresser aux résultats obtenus pour les réactions  $^{197}\text{Au}(d,2n)^{197g}\text{Hg}$  &  $^{197m}\text{Hg}$ . Deux types de valeurs sont présentées dans la figure 4.10 : celles obtenues avec la réaction moniteur, notées « Moniteur » en vert, et celles obtenues avec la mesure de courant, notées « Faraday » en rouge.

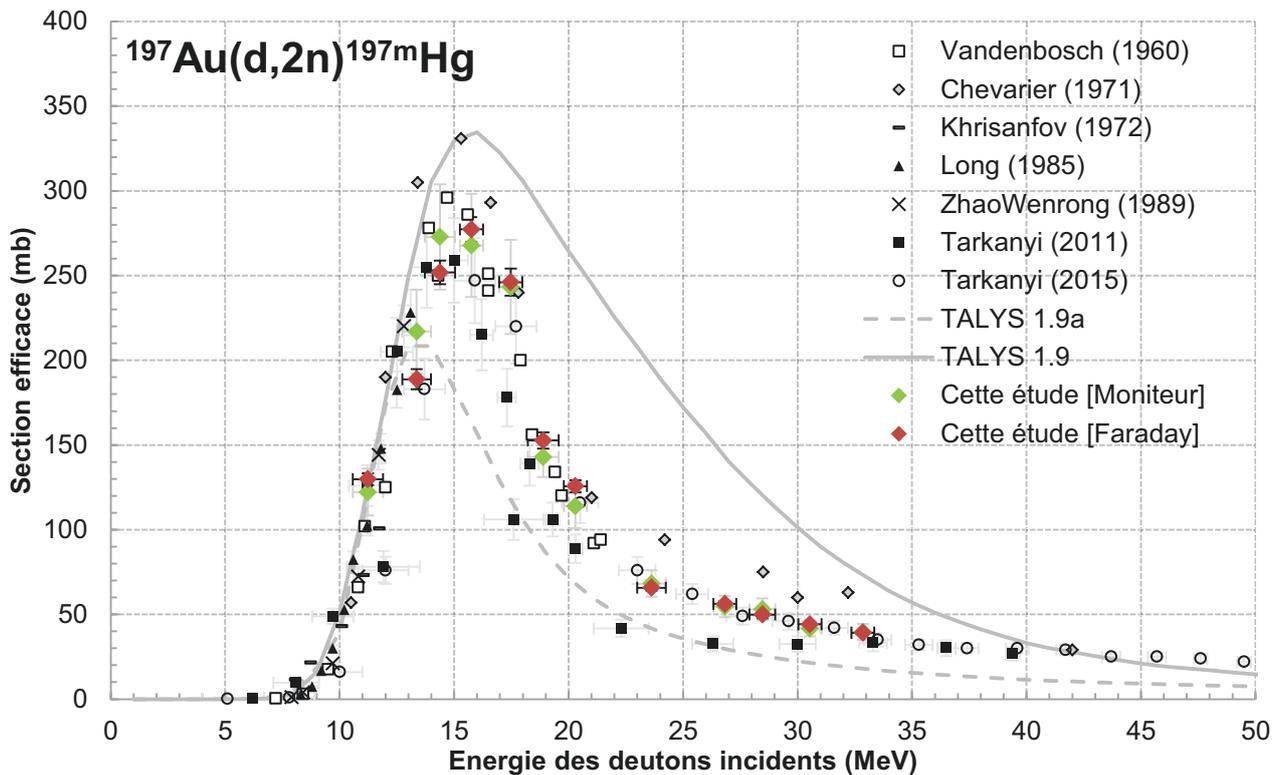


Figure 4.10 - Sections efficaces de production de la réaction  $^{197}\text{Au}(d,2n)^{197m}\text{Hg}$  [64], [67]–[70].

Les valeurs acquises par les deux méthodes sont en accord entre elles. Les différences sont liées aux écarts de mesure du flux que nous pouvons voir à travers la section efficace moniteur dans la partie précédente 3.1. Cela correspond aux points dans la région des 14 MeV et des 18-20 MeV. Les valeurs de la section efficace moniteur étant plus élevées dans la région des 14 MeV impliquent alors des résultats « moniteur », en vert, plus élevés. Le raisonnement s'applique également pour la gamme 18-20 MeV avec cette fois ci des valeurs plus faibles. Les incertitudes liées aux valeurs acquises par la méthode absolue sont, comme prévues, plus faibles (2,6 - 4,3 %) que celles liées à la méthode relative (8,3 – 12,1 %). Les valeurs de cette étude sont en accord avec les données expérimentales disponibles dans la littérature à l'exception de certaines sections des séries de mesures, Tarkanyi (2011) et Chevarier (1971). Cependant les incertitudes des valeurs Chevarier (1971) n'étant pas données, il est difficile de voir dans quelle mesure il y a désaccord entre les résultats. Nous pouvons voir que la série

Tarkanyi (2011) se décompose en deux séries de mesures « stacked foils » 5-20 MeV et 17-40 MeV. Sur la deuxième série, les valeurs sont en désaccord sur la gamme 17-32 MeV avec celles de cette étude et avec la série Tarkanyi (2015).

Les courbes de section efficace calculées par TALYS avec les combinaisons de modèles par défaut et ajustés montrent un grand écart entre elles. L'allure de la TALYS 1.9a semble être celle qui définit le mieux la section efficace mais présente tout de même un grand écart d'amplitude par rapport aux valeurs expérimentales.

La section efficace de la réaction  $^{197}\text{Au}(d,2n)^{197g}\text{Hg}$  est présentée sur la figure 4.11 et a été obtenue à l'aide du calcul de la partie 2.5 de ce chapitre.

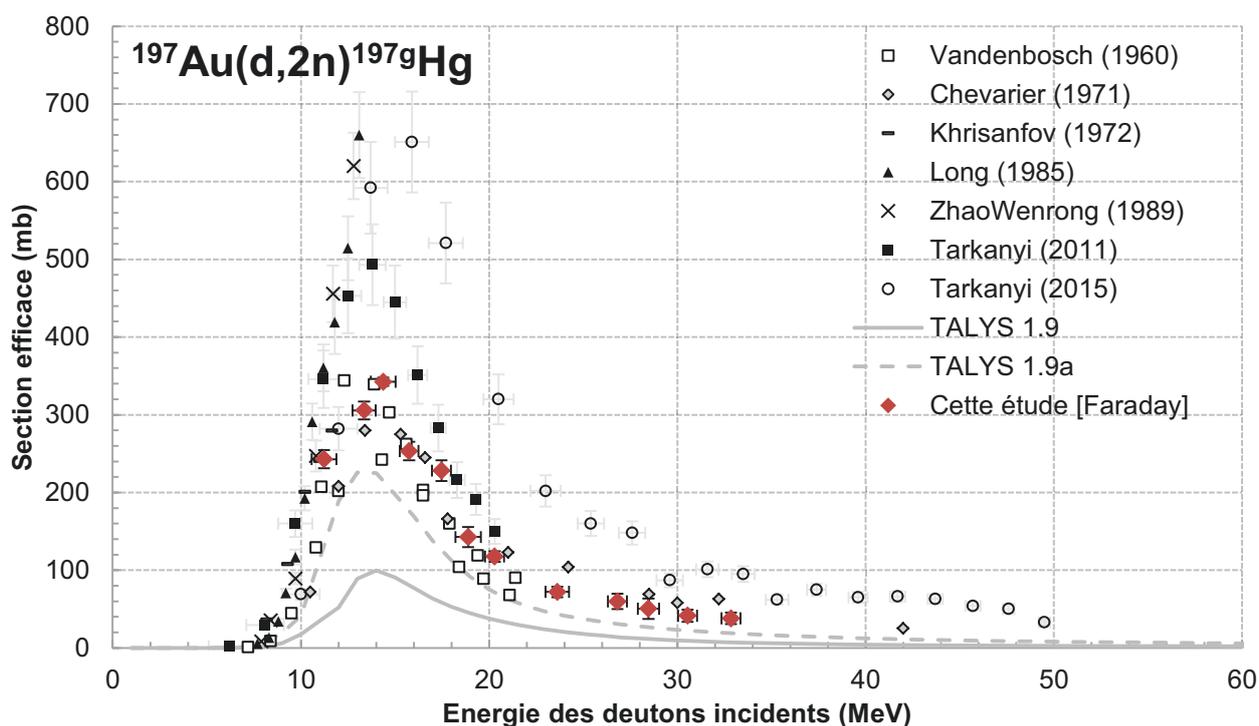


Figure 4.11 - Sections efficaces de la réaction  $\text{Au}^{197}(d,2n)\text{Hg}^{197g}$  [64], [67]–[70].

Nous pouvons voir de grands écarts d'amplitude entre les données expérimentales. Les résultats de cette étude sont en accord avec Vandenbosch (1960) et Chevarier (1971) et semblent être dans la continuité de la série de Khrisanfov (1972). Nous avons vu que la série de données Tarkanyi (2011) se décomposait en deux séries de mesures stacked foils. Cependant, pour cette réaction, aucune valeur de section efficace n'est donnée pour la série 17-40 MeV de Tarkanyi (2011). Les résultats pour la gamme d'énergie 5-20 MeV de Tarkanyi (2011) sont deux fois plus élevés que ceux obtenus dans cette étude. Les résultats, du même auteur, Tarkanyi (2015), étaient en accord avec ceux de cette étude pour la réaction produisant le  $^{197m}\text{Hg}$  mais ne le sont plus pour la réaction produisant le  $^{197g}\text{Hg}$ . C'est également le cas avec les séries Long (1985) et ZhaoWenrong (1989). Les données du même auteur Tarkanyi (2011 et 2015) ne sont pas en accord entre elles. Ces différences ne sont pas toujours facile à expliquer, soit

parce que l'article n'est pas accessible soit parce que la méthode de la prise en compte de la décroissance isomérique n'est pas détaillée.

### 3.3. La production de contaminants

Les contaminants les plus préjudiciables sont les isotopes du mercure car comme il n'est pas possible de les séparer par extraction chimique, ils vont avoir un impact sur l'activité spécifique du produit final. L'impact de ces contaminants est moins préjudiciable dans le cas des nanoparticules d'or car il n'y a pas d'étape de radio-marquage et donc l'activité spécifique est moins contraignante.

Afin de limiter leur présence dans le produit final, il est possible de jouer sur les temps de demi-vie permettant d'attendre la décroissance de radionucléides avant d'effectuer la séparation chimique. En regardant le tableau 4.7, nous pouvons voir que ce critère limitant ne peut s'appliquer qu'au radionucléide  $^{199m}\text{Hg}$  car les temps de demi-vie des autres radionucléides sont plus longs ou du même ordre de grandeur que celui du  $^{197m}\text{Hg}$ . Cependant, le  $^{199m}\text{Hg}$  décroît vers le  $^{199g}\text{Hg}$  à 100 % ce qui ne réduit pas le nombre d'isotopes de mercure. Le temps n'est donc pas un critère permettant de réduire la présence de contaminants.

Hg	195	195m	196	197	197m	198	199	199m
Temps de demi-vie	10,5 h	41,6 h	stable	64,1 h	<b>23,8 h</b>	stable	stable	42,7 min

Table 4.7 - Les temps de demi-vie des isotopes du mercure [1].

Une autre méthode consiste à limiter la production de contaminants en choisissant convenablement la gamme d'énergie d'irradiation. L'énergie seuil de la réaction produisant le  $^{195}\text{Hg}$  est de 19,5 MeV. En choisissant un faisceau d'une énergie inférieure à 19,5 MeV, nous pouvons donc éviter de produire des contaminants radioactifs et donc obtenir un produit final dont l'activité vient exclusivement du  $^{197m}\text{Hg}$  et  $^{197g}\text{Hg}$ .

Nous avons vu que nous pouvons éviter la production de  $^{195}\text{Hg}$  cependant des irradiations ont été faites pour des énergies supérieures à 20 MeV, il a alors été mesuré et des valeurs de sections efficaces ont été calculées.

Dans une optique d'obtenir exclusivement du  $^{197}\text{Hg}$ , les isotopes de l'or ne font pas partie des contaminants mais ces radionucléides ont émis leur gamma lors de l'acquisition des spectres. Ils ont donc été analysés et les sections efficaces des réactions les produisant ont été obtenues. Les résultats pour les états métastables ont été obtenus par la méthode absolue et relative quant à ceux des états fondamentaux la

méthode utilisée est celle présentée dans la partie 2.5 de ce chapitre. L'ensemble des résultats est discuté à la fin de cette partie.

### 3.3.1. Le radionucléide $^{195m}\text{Hg}$

Les valeurs de sections efficaces obtenues à partir des mesures avec la Faraday et par la réaction moniteur sont présentées dans le graphique de la figure 4.12. Nous pouvons voir que les résultats de cette étude sont en accord avec les données Chevarier (1971) sur toute la gamme en énergie. Des écarts sont visibles entre les données Tarkanyi (2011) et les résultats de cette étude déduits à partir de la mesure de la Faraday dans la région du pic. Les résultats obtenus à partir de la réaction moniteur possèdent des incertitudes de l'ordre de 12 % et sont de ce fait en accord avec les données Tarkanyi (2015). L'ensemble des données est en accord sur la gamme d'énergie 20-28 MeV. Les incertitudes associées aux valeurs de sections efficaces obtenues à l'aide de la mesure de la Faraday sont de l'ordre de 2,8 %.

Les simulations TALYS, avec les deux combinaisons de modèles, donnent une allure de section efficace ne correspondant pas à celle dessinée par l'ensemble des valeurs expérimentales. Cette allure semble décrire deux mécanismes prenant place à des énergies différentes ce qui n'est pas visualisé dans les valeurs expérimentales et que nous n'arrivons pas à identifier du point de vue de la physique nucléaire car la réaction en jeu est (d,4n).

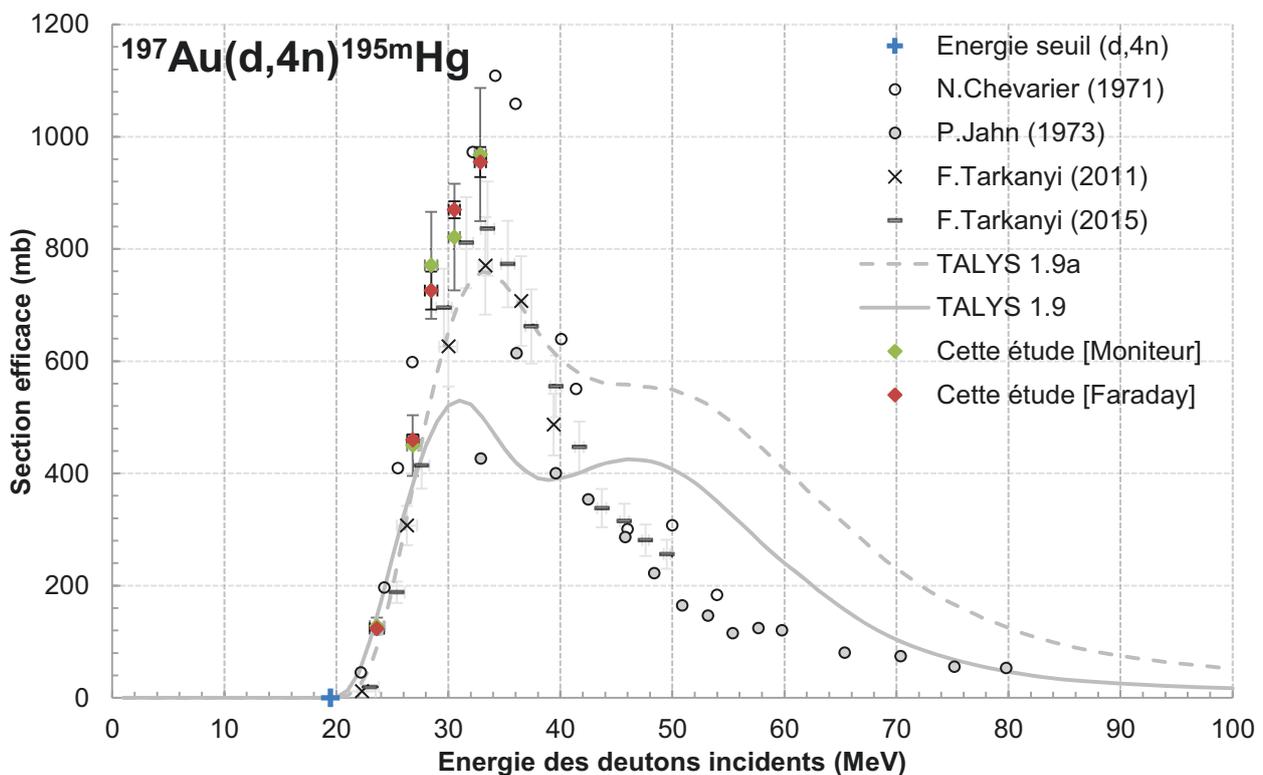


Figure 4.12 - Sections efficaces de la réaction  $^{197}\text{Au}(d,4n)^{195m}\text{Hg}$  [67], [68], [70], [78].

### 3.3.2. Le radionucléide $^{196m2}\text{Au}$

Le radionucléide  $^{196m2}\text{Au}$  a été mesuré et des valeurs de sections efficaces ont été calculées. Elles sont présentées dans la figure 4.13 avec les énergies seuils des réactions (d,t), (d,n+d) et (d,2n+p). Le  $^{196m2}\text{Au}$  n'a pas toujours été détecté, vraisemblablement à cause de la faible section efficace que semble montrer la série Tarkanyi (2015) impliquant une faible production de ce radionucléide.

Les données disponibles dans la littérature y sont également présentées. Les valeurs de cette étude obtenues par les deux méthodes sont en accord. Les incertitudes des sections efficaces calculées par la réaction moniteur sont comprises dans la gamme 11,6-12,7 % et celles obtenues par la mesure de la Faraday sont comprises dans 2,2-5,7 %. Les résultats calculés à partir de la mesure de la Faraday sont en accord avec Tarkanyi (2015) et Tarkanyi (2011) jusqu'à 32 MeV. Les sections efficaces calculées à partir de la réaction moniteur, en vert, sont en accord avec l'ensemble des sections efficaces dû aux plus grandes incertitudes.

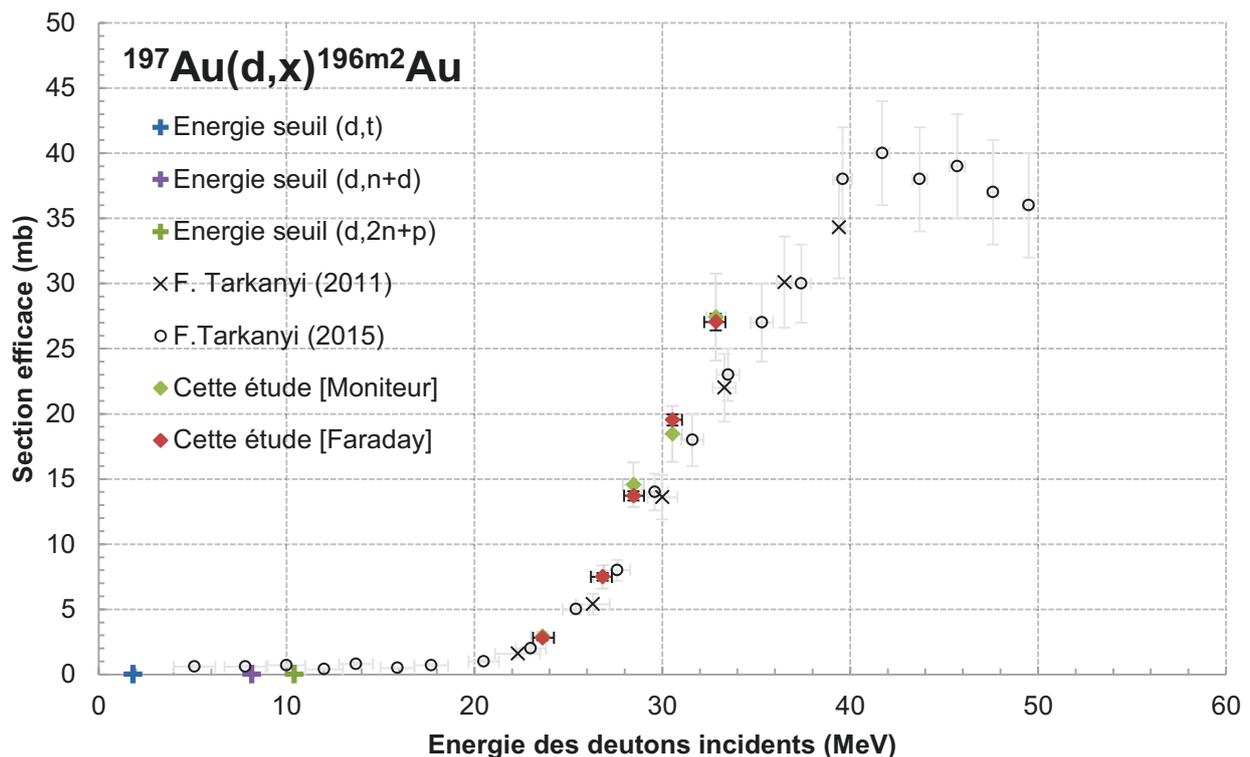


Figure 4.13 - Sections efficaces de la réaction  $^{197}\text{Au}(d,x)^{196m2}\text{Au}$  [68], [70].

Les modélisations TALYS ajoutées dans la figure 4.14 montrent des sections efficaces largement plus élevées ne permettant pas de distinguer correctement les séries de données expérimentales. C'est pour cette raison qu'elles ont été ajoutées sur une nouvelle figure.

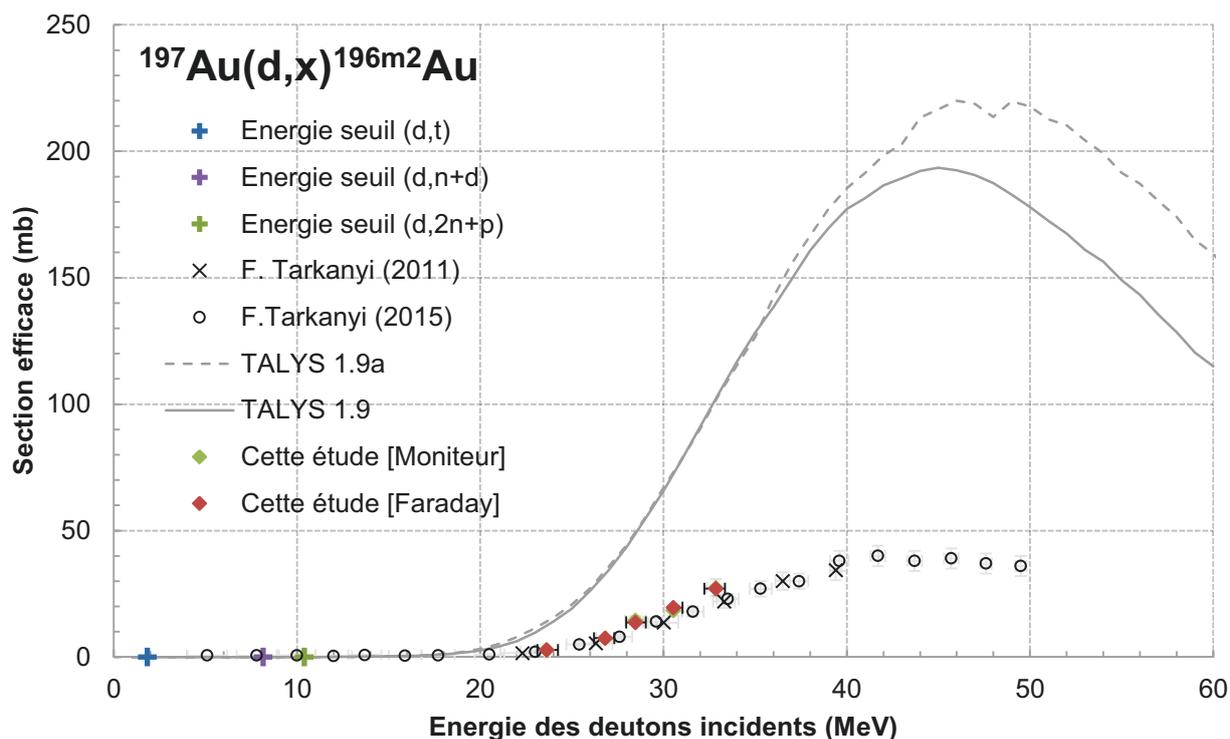


Figure 4.14 - Sections efficaces de la réaction  $^{197}\text{Au}(d,x)^{196m2}\text{Au}$  [68], [70].

### 3.3.3. Les radionucléides $^{196g}\text{Au}$ & $^{196m1}\text{Au}$

Une fois la contribution des radionucléides de  $^{196m2}\text{Au}$  déterminée, nous pouvons calculer la section efficace de la réaction produisant le  $^{196g}\text{Au}$ . Cependant, comme nous avons vu précédemment, il y a également la contribution du  $^{196m1}\text{Au}$  qui n'a pu être calculée à cause de son temps de demi-vie trop court (8,1 s). La section efficace obtenue concerne alors les réactions cumulées  $^{197}\text{Au}(d,x)^{196g+196m1}\text{Au}$ . Elle est présentée en figure 4.15.

Il existe peu de données expérimentales disponibles dans la littérature. Celles présentées concernent les énergies autour de 10 MeV. Nous pouvons voir que les valeurs obtenues dans cette étude sont en accord avec celles disponibles dans la littérature. Pour les valeurs inférieures à 22 MeV, la contribution du  $^{196m2}\text{Au}$  n'a pas pu être calculée car non détectable. Si le  $^{196m2}\text{Au}$  n'a pas une activité suffisamment élevée pour être détecté, nous considérons alors que sa contribution dans la mesure d'activité du  $^{196g}\text{Au}$  est négligeable car le temps de demi-vie du  $^{196g}\text{Au}$  (6,2 j) est très supérieur à celui du  $^{196m2}\text{Au}$  (9,6 h).

Les modélisations TALYS ont été réalisées avec deux combinaisons de paramètres. Dans les deux cas, les sections efficaces des  $^{197}\text{Au}(d,x)^{196g}\text{Au}$  et  $^{197}\text{Au}(d,x)^{196m1}\text{Au}$  ont été calculées. Ensuite, elles ont été sommées pour obtenir la section efficace cumulée. Elles sont présentées dans la figure 4.15. Nous pouvons voir que jusqu'à 20 MeV, la section efficace n'est pas bien décrite, un mécanisme ne semble pas avoir été pris en

compte sur cette gamme d'énergie (peut-être la réaction  $(d,n+d)$ ). Au-delà, les sections efficaces modélisées sont bien décrites si nous les comparons avec les valeurs de cette étude. TALYS utilisant les paramètres dit ajustés s'accorde particulièrement bien avec les données de cette étude à partir de 25 MeV.

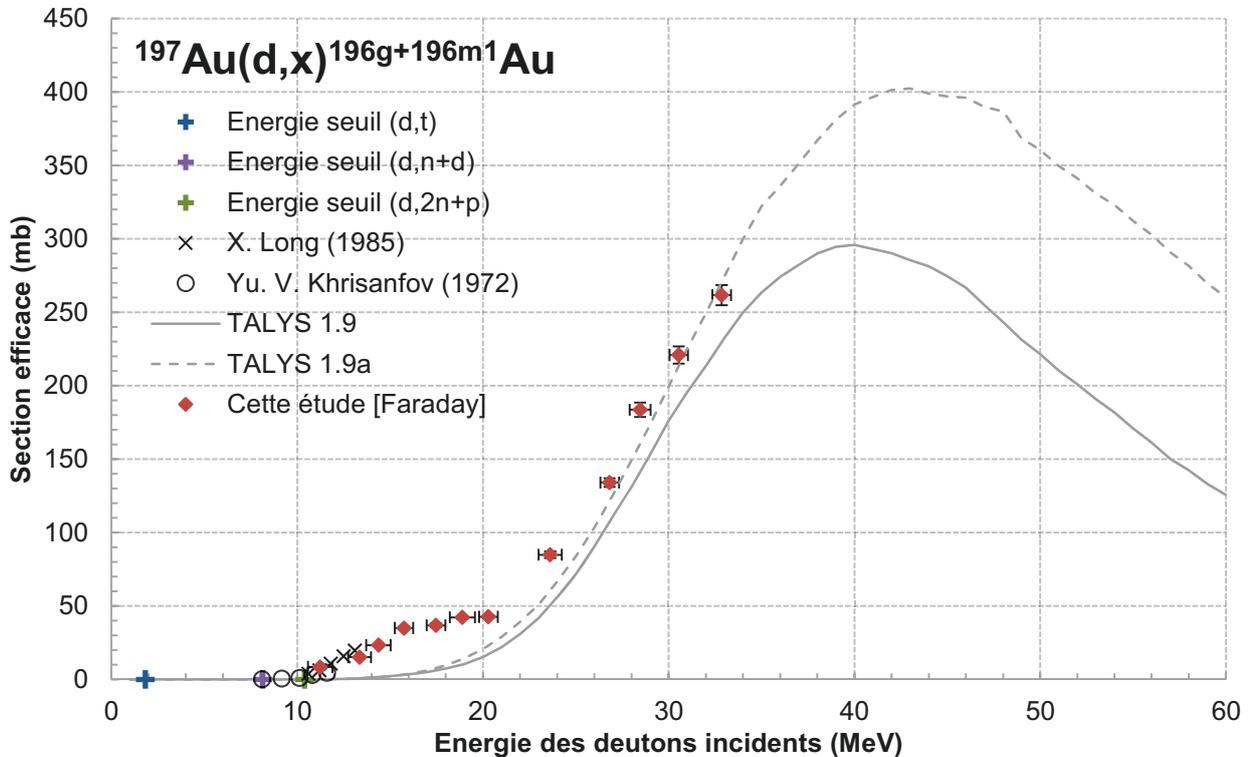


Figure 4.15 - Sections efficaces de la réaction  $^{197}\text{Au}(d,x)^{196g+196m1}\text{Au}$  [40].

### 3.3.4. Le radionucléide $^{198m}\text{Au}$

La réaction  $^{197}\text{Au}(d,p)^{198m}\text{Au}$ , possédant une énergie seuil à 0,0 MeV, a été mesurée dans les expériences. Les valeurs de la section efficace obtenues par les deux méthodes de mesure du flux de particules sont données dans la figure 4.16. Nous pouvons voir que ces résultats sont en accords entre eux. Des données expérimentales sur cette réaction sont disponibles dans la littérature et sont présentées sur ce graphique. Les données de Tarkanyi (2011) sur la gamme d'énergie 10-20 MeV sont en accord avec les valeurs acquises dans cette étude. Par contre, comme discuté plus tôt, il n'y a pas la série de données Tarkanyi (2011) sur la gamme 17-40 MeV. Une autre série de données du même auteur (2015) est présentée et donne des valeurs en désaccord avec celles de cette étude et ses précédentes mesures.

Les modélisations TALYS ont été effectuées et sont ajoutées dans la figure 4.17. Comme pour la réaction  $^{197}\text{Au}(d,x)^{196m2}\text{Au}$ , la section efficace calculée par TALYS semble être largement surestimée. De plus, l'allure de la section efficace ne semble pas correspondre avec celle dessinée par les valeurs de cette étude.

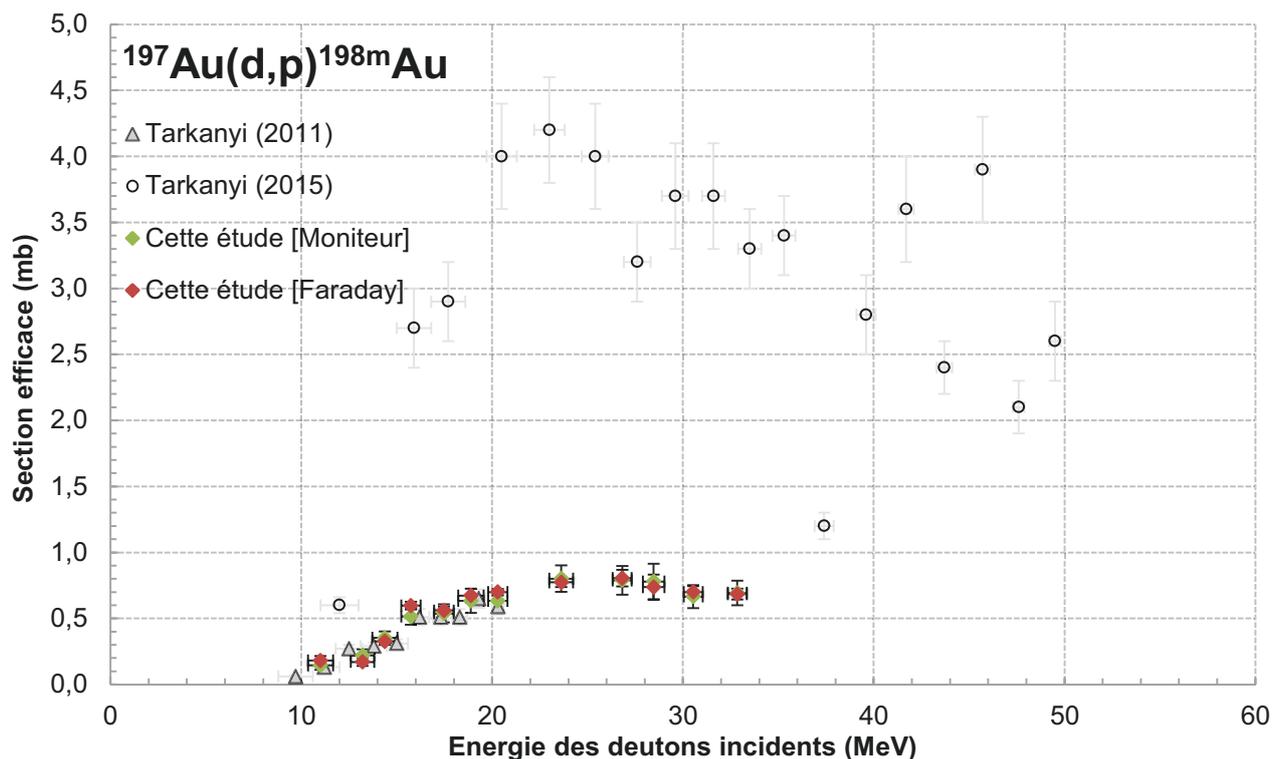


Figure 4.16 - Sections efficaces de la réaction  $^{197}\text{Au}(d,p)^{198m}\text{Au}$  [68], [70].

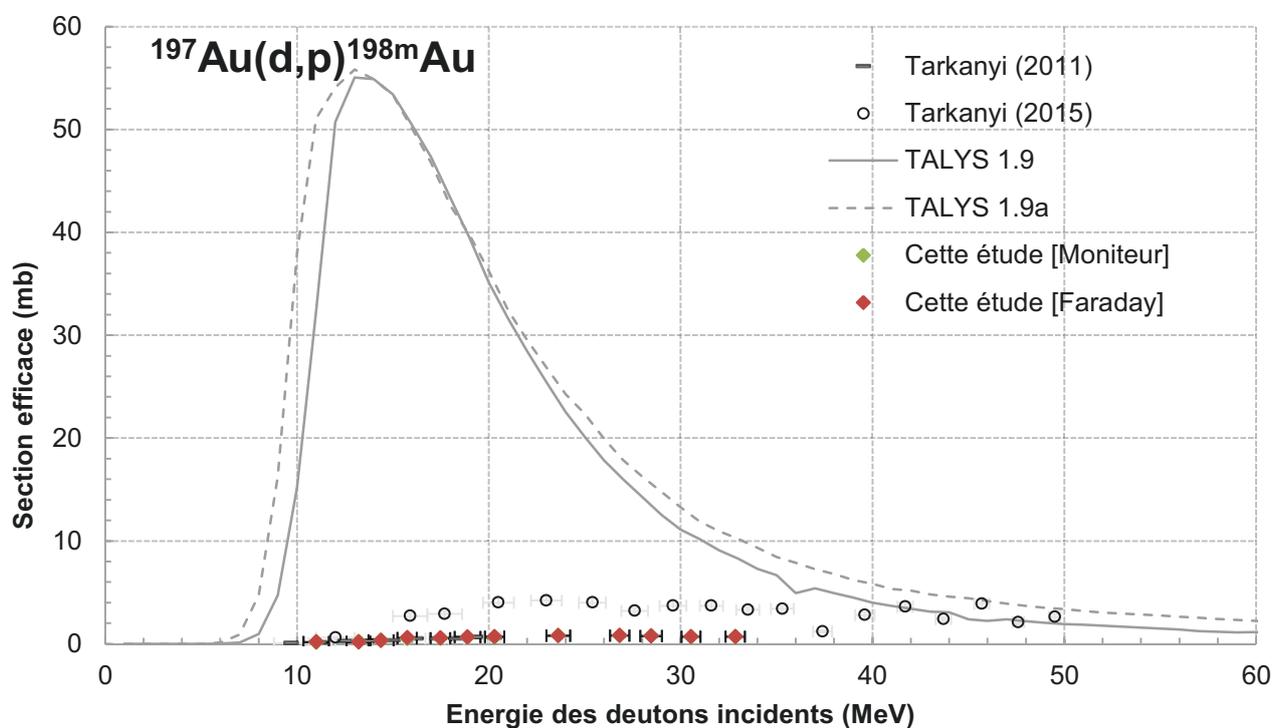


Figure 4.17 - Sections efficaces de la réaction  $^{197}\text{Au}(d,p)^{198m}\text{Au}$  avec les simulations TALYS [68], [70].

### 3.3.5. Le radionucléide $^{198g}\text{Au}$

Dans cette partie, une fois la contribution des décroissances de  $^{198m}\text{Au}$  déterminée, les valeurs de la section efficace ont été calculées pour la réaction  $^{197}\text{Au}(d,p)^{198g}\text{Au}$ . Elles sont présentées dans la figure 4.18. Les résultats de cette étude sont en accord avec les données expérimentales Baron (1963) et Jahn (1973). Ils sont décalés en énergie et/ou en amplitude par rapport à Tarkanyi (2015). Les modélisations de TALYS sous-estiment dans ce cas la section efficace de la réaction et semblent être décalée en énergie.

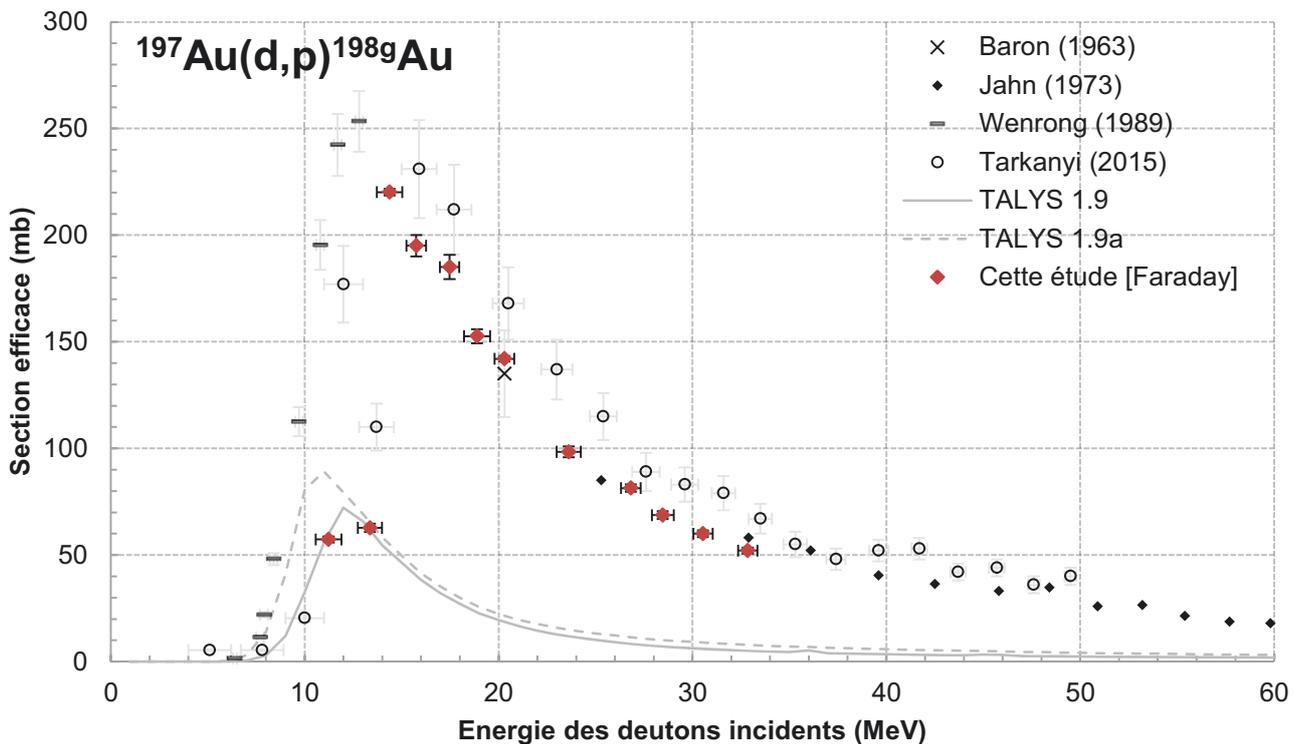


Figure 4.18 - Sections efficaces de la réaction  $^{197}\text{Au}(d,x)^{198g}\text{Au}$  [70], [78].

### 3.4. L'estimation de l'activité produite en cible épaisse

Dans l'objectif d'établir une production à plus grande échelle de  $^{197m}\text{Hg}$ , un calcul de rendement permet d'estimer la quantité d'activité qui peut être produite. La section efficace de production étant déterminée, il est désormais possible de faire un calcul de rendement TTY, comme discuté dans la partie 8 du chapitre II. Ci-dessous, la figure 4.19, donne la courbe de rendement calculée à partir de l'ensemble de la section efficace.

Nous avons vu que l'énergie seuil de la réaction produisant le  $^{195g,m}\text{Hg}$  est de 19,5 MeV. Dans l'optique d'éviter sa production, nous pouvons fixer l'énergie incidente des deutons à 19 MeV. L'énergie des deutons en sortie de l'or est définie à 11 MeV,

couvrant ainsi l'ensemble du pic de la section efficace de la réaction produisant le  $^{197m}\text{Hg}$ . De plus, nous pouvons voir sur la figure 4.19, l'intérêt de choisir cette énergie minimale, le gain d'activité est minime pour une plus grande gamme d'énergie. Une cible d'or de 0,19 mm permet, pour des deutons de 19 MeV, d'avoir un dépôt d'énergie de 8 MeV. L'activité produite est alors estimée à  $43 \text{ MBq}\cdot\mu\text{A}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$  pour 1 heure d'irradiation avec un faisceau de  $1 \mu\text{A}$  d'intensité et une pureté de cible de 99,9 %.

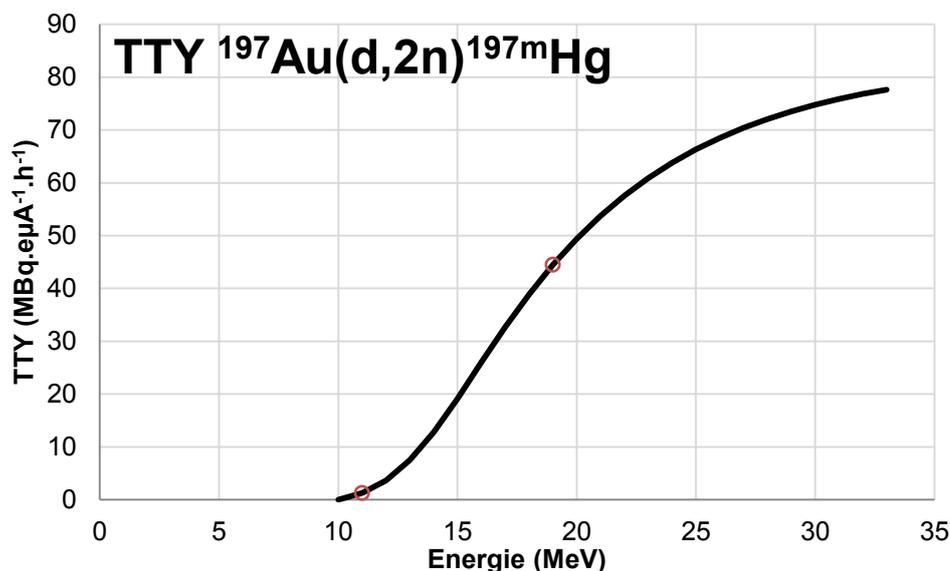


Figure 4.19 - Courbe de rendement pour la réaction  $^{197}\text{Au}(d,x)^{197m}\text{Hg}$ . En rouges, les points définissant la gamme d'énergie sélectionnée.

## 4. Conclusion du chapitre

Nous avons vu que le  $^{197m}\text{Hg}$  possède des caractéristiques physiques intéressantes pour une application dans l'imagerie médicale. Sa production peut être aisément envisagée à partir de l'interaction de deutons avec l'or. Dans le cas où nous souhaiterions exclusivement utiliser les émissions du  $^{197m}\text{Hg}$ , l'or offre des avantages pour l'extraction du mercure. D'un autre côté, les nanoparticules d'or ouvrent des perspectives à son utilisation.

Les valeurs de section efficace ont été obtenues par un calcul relatif avec des feuilles moniteurs et par un calcul absolu à l'aide d'une « Faraday cup ». Ces résultats sont en accord entre eux ce qui montre la cohérence des mesures du dispositif de mesure de courant. Les incertitudes associées aux valeurs de sections efficaces « Faraday » sont plus faibles que celles liées à la méthode relative « Moniteur » comme attendu. Les différentes données dans la littérature présentent certaines disparités. Les résultats obtenus s'accordent bien avec les valeurs d'autres équipes mais malheureusement les différences ne sont pas toujours explicables à cause d'un manque de détails dans la littérature associée.

Les valeurs de la section efficace aux incertitudes réduites viennent s'ajouter aux données publiées dans la littérature. Elles pourront aider à contraindre les modèles théoriques qui cherchent à reproduire les sections efficaces de production.

Le  $^{197m}\text{Hg}$  pourrait venir s'ajouter à l'ensemble des isotopes disponibles pour la réalisation d'un diagnostic ce qui permettrait d'apporter plus de possibilités en imagerie nucléaire.



# Chapitre V. La production de $^{67}\text{Cu}$ sur une cible enrichie en $^{70}\text{Zn}$

<b>1. LE RADIONUCLEIDE <math>^{67}\text{Cu}</math></b> .....	<b>108</b>
1.1. L'INTERET DU $^{67}\text{Cu}$ .....	108
1.2. LES VOIES DE PRODUCTION DU $^{67}\text{Cu}$ .....	109
1.2.1. Les voies de production avec des protons .....	110
1.2.2. Les voies de production avec des particules alpha .....	114
1.2.3. Les voies de production avec des deutons .....	116
<b>2. LES MESURES DE SECTIONS EFFICACES DE PRODUCTION <math>^{70}\text{Zn}(\text{D},\text{X})^{67}\text{Cu}</math></b> .....	<b>118</b>
2.1. LA FABRICATION DES CIBLES .....	118
2.2. LES EXPERIENCES DE « STACKED FOILS » .....	122
2.2.1. Les irradiations.....	122
2.2.2. La détermination des points de mesure en énergie .....	123
2.2.3. La mesure d'activité des feuilles irradiées .....	125
2.2.4. L'extraction des valeurs de sections efficaces du $^{67}\text{Cu}$ et prise en compte de la pollution de $^{67}\text{Ga}$ .....	128
2.2.5. La mesure d'activité du $^{48}\text{V}$ .....	129
<b>3. LES RESULTATS</b> .....	<b>130</b>
3.1. LA REACTION D'INTERET $^{70}\text{Zn}(\text{D},\text{X})^{67}\text{Cu}$ .....	130
3.2. LA PRODUCTION DE CONTAMINANTS .....	131
3.2.1. Le radionucléide $^{67}\text{Ga}$ .....	132
3.2.2. Le radionucléide $^{61}\text{Cu}$ .....	133
3.2.3. Le radionucléide $^{66}\text{Ni}$ .....	134
3.3. L'ESTIMATION DE L'ACTIVITE PRODUITE EN CIBLE EPAISSE .....	135
<b>4. CONCLUSIONS DU CHAPITRE</b> .....	<b>136</b>

## 1. Le radionucléide $^{67}\text{Cu}$

### 1.1. L'intérêt du $^{67}\text{Cu}$

Le  $^{67}\text{Cu}$  est un radionucléide qui possède des propriétés physiques intéressantes pour des applications thérapeutiques. L'ensemble de ces propriétés est présenté dans la table 5.1. Il est émetteur bêta- d'énergie maximum comprise entre 350 et 600 keV ce qui correspond à un parcours des électrons d'environ 3 mm dans l'eau [80]. Cette gamme d'énergie, comparable à celle du  $^{177}\text{Lu}$  actuellement utilisé en radiothérapie interne vectorisée, n'étant pas très élevée permet un traitement localisé et limite la dose reçue par les tissus sains environnants. Le  $^{67}\text{Cu}$  a un temps de demi-vie de 61,8 h ce qui est convenable pour une utilisation thérapeutique. Les détecteurs de l'imagerie TEMP fonctionnent de manière optimale avec des photons gamma compris dans une gamme d'énergie 100-400 keV. Le  $^{67}\text{Cu}$  émet des photons gamma, particulièrement le plus intense à 184,6 keV, dans cette gamme d'énergie sans émettre de gamma plus énergétiques qui viendraient dégrader la résolution de l'image. Il offre alors la possibilité d'effectuer de l'imagerie TEMP en parallèle de la thérapie ce qui permet un suivi de la diffusion et de la répartition du  $^{67}\text{Cu}$ .

Radionucléide	$T_{1/2}$	Décroissance	Gamma keV (%)	$E_{\text{moy}}$ bêta- (keV)	$E_{\text{max}}$ bêta- (keV)	Intensité (%)
$^{67}\text{Cu}$	61,8 h	bêta -	91,3 (7,0)	121	377	57
			93,3 (16,1)	154	468	22
			184,6 (48,7)	189	562	20

Table 5.1 - Les propriétés physiques du  $^{67}\text{Cu}$ , données extraites de NuDat 2.7 [1].

Le cuivre étant un élément très répandu, sa chimie est bien connue. D'autres isotopes du cuivre ont été identifiés comme pouvant être utilisés pour des applications médicales. Des recherches avancées sont menées sur le  $^{64}\text{Cu}$  car il possède des propriétés convenant à de l'imagerie TEP (émetteur bêta+) et pourrait être utilisé dans des applications thérapeutiques (émetteur bêta-) [80]–[82]. Le  $^{61}\text{Cu}$ , au temps de demi-vie de 3,3 h, est un émetteur bêta+ pouvant être utilisé en imagerie TEP pour le diagnostic [83], [84]. Des études ont également été faites sur le  $^{60}\text{Cu}$  et  $^{62}\text{Cu}$  émetteurs bêta+ pour une utilisation en imagerie TEP [83]–[85]. Leur période radioactive est courte ( $^{60}\text{Cu}$  23,7 min,  $^{62}\text{Cu}$  9,7 min), ce qui demande de les produire sur place. Le  $^{62}\text{Cu}$  peut être obtenu de manière indirecte à travers l'utilisation du générateur  $^{62}\text{Zn}/^{62}\text{Cu}$  (9,2 h/9,7 min). Cependant la période de 9h rend ce générateur peu attractif par rapport au  $^{64}\text{Cu}$  (12,7 h). Ce large panel d'isotopes du cuivre en imagerie TEP offre une approche

théranostique au  $^{67}\text{Cu}$ . Ainsi en utilisant la paire d'isotopes  $^{64}\text{Cu}/^{67}\text{Cu}$ , il est possible d'identifier les patients répondeurs et d'assurer le suivi de la thérapie.

La figure 5.1 présente la partie de la charte des nucléides centrée sur la région du  $^{67}\text{Cu}$  [1]. Nous pouvons voir de nombreux isotopes stables dans cette région ce qui laisse penser que de nombreuses réactions sont envisageables pour la production du  $^{67}\text{Cu}$ .

Z	$^{65}\text{Ga}$ 15.2 M $\epsilon$ : 100.00%	$^{66}\text{Ga}$ 9.49 H $\epsilon$ : 100.00%	$^{67}\text{Ga}$ 3.2617 D $\epsilon$ : 100.00%	$^{68}\text{Ga}$ 67.71 M $\epsilon$ : 100.00%	$^{69}\text{Ga}$ STABLE 60.108%	$^{70}\text{Ga}$ 21.14 M $\beta^-$ : 99.59% $\epsilon$ : 0.41%	$^{71}\text{Ga}$ STABLE 39.892%	$^{72}\text{Ga}$ 14.10 H $\beta^-$ : 100.00%	$^{73}\text{Ga}$ 4.86 H $\beta^-$ : 100.00%
30	$^{64}\text{Zn}$ $\geq 7.0\text{E}20$ Y 49.17% 2 $\epsilon$	$^{65}\text{Zn}$ 243.93 D $\epsilon$ : 100.00%	$^{66}\text{Zn}$ STABLE 27.73%	$^{67}\text{Zn}$ STABLE 4.04%	$^{68}\text{Zn}$ STABLE 18.45%	$^{69}\text{Zn}$ 56.4 M $\beta^-$ : 100.00%	$^{70}\text{Zn}$ $\geq 2.3\text{E}+17$ Y 0.61% 2 $\beta^-$	$^{71}\text{Zn}$ 2.45 M $\beta^-$ : 100.00%	$^{72}\text{Zn}$ 46.5 H $\beta^-$ : 100.00%
29	$^{63}\text{Cu}$ STABLE 69.15%	$^{64}\text{Cu}$ 12.701 H $\epsilon$ : 61.50% $\beta^-$ : 38.50%	$^{65}\text{Cu}$ STABLE 30.85%	$^{66}\text{Cu}$ 5.120 M $\beta^-$ : 100.00%	$^{67}\text{Cu}$ 61.83 H $\beta^-$ : 100.00%	$^{68}\text{Cu}$ 30.9 S $\beta^-$ : 100.00%	$^{69}\text{Cu}$ 2.85 M $\beta^-$ : 100.00%	$^{70}\text{Cu}$ 44.5 S $\beta^-$ : 100.00%	$^{71}\text{Cu}$ 19.4 S $\beta^-$ : 100.00%
28	$^{62}\text{Ni}$ STABLE 3.6348%	$^{63}\text{Ni}$ 101.2 Y $\beta^-$ : 100.00%	$^{64}\text{Ni}$ STABLE 0.9255%	$^{65}\text{Ni}$ 2.5175 H $\beta^-$ : 100.00%	$^{66}\text{Ni}$ 54.6 H $\beta^-$ : 100.00%	$^{67}\text{Ni}$ 21 S $\beta^-$ : 100.00%	$^{68}\text{Ni}$ 29 S $\beta^-$ : 100.00%	$^{69}\text{Ni}$ 11.4 S $\beta^-$ : 100.00%	$^{70}\text{Ni}$ 6.0 S $\beta^-$ : 100.00%
27	$^{61}\text{Co}$ 1.649 H $\beta^-$ : 100.00%	$^{62}\text{Co}$ 1.50 M $\beta^-$ : 100.00%	$^{63}\text{Co}$ 27.4 S $\beta^-$ : 100.00%	$^{64}\text{Co}$ 0.30 S $\beta^-$ : 100.00%	$^{65}\text{Co}$ 1.16 S $\beta^-$ : 100.00%	$^{66}\text{Co}$ 209 MS $\beta^-$ : 100.00% $\beta^-n$	$^{67}\text{Co}$ 329 MS $\beta^-$ : 100.00% $\beta^-n$	$^{68}\text{Co}$ 99 MS $\beta^-$ : 100.00% $\beta^-n$	$^{69}\text{Co}$ 180 MS $\beta^-$ : 100.00% $\beta^-n$
	34	35	36	37	38	39	40	41	N

Figure 5.1 - La région du  $^{67}\text{Cu}$  sur la charte des nucléides [1].

## 1.2. Les voies de production du $^{67}\text{Cu}$

Les premiers critères permettant le choix de la réaction sont la section efficace de la réaction produisant le radionucléide d'intérêt, la co-production de contaminants et les potentielles problématiques autour de la réalisation de la cible. Le choix de la particule incidente est un critère majeur mais dans un objectif de recherche avec un cyclotron offrant un large panel de particules, ce critère est moins impactant. L'étude est menée au sens large dans le choix du projectile. La mise en évidence de réactions d'intérêts impliquant des particules, autres que les protons, pourrait étendre l'intérêt pour les accélérateurs multi-particules.

Pour chacune des voies de réactions explorées, nous avons extraits les valeurs expérimentales de sections efficaces disponibles dans les bases de données expérimentales. Nous avons aussi déterminé, les potentiels contaminants pouvant être produits. Les contaminants les plus préjudiciables sont les isotopes du cuivre car comme il n'est pas possible de les séparer par extraction chimique, ils vont avoir un impact sur l'activité spécifique du produit final. Outre les isotopes de cuivre stables pour

lesquels il n'y a pas de données disponibles, les isotopes du cuivre, les plus contraignants sont ceux possédant un temps de demi-vie supérieur ou de l'ordre de celui d'intérêt. Dans le tableau 5.2, les périodes radioactives de l'ensemble des isotopes du cuivre, accessibles par les combinaisons projectile/cible/énergie disponibles au GIP ARRONAX, sont présentées. Nous pouvons voir dans ce tableau que le principal contaminant dans la production du  $^{67}\text{Cu}$  est le  $^{64}\text{Cu}$ .

Cu	60	61	62	63	64	65	66	67	68	68m	69
Temps de demi-vie	23,7 min	3,3 h	9,7 min	stable	12,7 h	stable	5,1 min	<b>61,8 h</b>	30,9 s	3,7 min	2,9 min

Table 5.2 - Les temps de demi-vie des isotopes du cuivre [7].

### 1.2.1. Les voies de production avec des protons

Les voies de production avec un faisceau de protons sont explorées. L'utilisation de cibles composées de zinc ou de gallium permet la production du  $^{67}\text{Cu}$  à partir de protons.

- **La réaction  $^{\text{nat}}\text{Zn}(p,x)$**

La réaction  $^{\text{nat}}\text{Zn}(p,x)^{67}\text{Cu}$  a pour avantage d'utiliser une cible naturelle et un faisceau de protons. La cible et ce faisceau sont des éléments répandus ce qui facilite la mise en place de la production par cette voie de réaction. Cependant le  $^{\text{nat}}\text{Zn}$  est composé de 5 isotopes stables ce qui va impliquer la production de nombreux isotopes de cuivre notamment le  $^{63,64,65}\text{Cu}$ . De plus, le  $^{67}\text{Cu}$  n'est produit qu'à partir du  $^{68}\text{Zn}$  et du  $^{70}\text{Zn}$  représentant moins de 20% de la composition de la cible ce qui implique une faible production de  $^{67}\text{Cu}$ . Enfin, la valeur de la section efficace est faible (maximum autour de 2 mb) comme on peut le voir sur la figure 5.2 à partir des données disponibles dans la littérature [86].

- **La réaction  $^{68}\text{Zn}(p,x)$**

La production de  $^{67}\text{Cu}$  à partir d'une cible enrichie apporte des avantages :

- Le  $^{67}\text{Cu}$  peut être produit en plus grande quantité.
- Il est plus facile de contrôler la production de contaminants puisque la cible n'est composée majoritairement que d'un seul isotope.

Plusieurs données de sections efficaces sont disponibles dans la littérature [87]–[89] et sont présentées dans la figure 5.2. L'énergie seuil de la réaction  $^{68}\text{Zn}(p,2p)^{67}\text{Cu}$  est de

10,1 MeV. Le maximum de la section efficace s'approche de 10 mb pour une énergie autour des 50 MeV. Avec cette voie, la production de  $^{64}\text{Cu}$  ne pourra pas être évitée. Les énergies seuils des différentes réactions produisant le  $^{64}\text{Cu}$  sont présentées dans le tableau 5.3. Cette problématique de co-production s'applique également pour le  $^{63}\text{Cu}$  et le  $^{65}\text{Cu}$  mais elle est difficile à quantifier (seule l'utilisation de code de calculs comme TALYS peut permettre une estimation de cette production de cuivre stable).

Réaction	Energie seuil (MeV)
$^{68}\text{Zn}(p,n+\alpha)^{64}\text{Cu}$	7,9
$^{68}\text{Zn}(p,d+t)^{64}\text{Cu}$	25,7
$^{68}\text{Zn}(p,n+p+t)^{64}\text{Cu}$	28,0
$^{68}\text{Zn}(p,2n+^3\text{He})^{64}\text{Cu}$	28,8
$^{68}\text{Zn}(p,n+2d)^{64}\text{Cu}$	32,1
$^{68}\text{Zn}(p,2n+p+d)^{64}\text{Cu}$	34,3
$^{68}\text{Zn}(p,3n+2p)^{64}\text{Cu}$	36,6

Table 5.3 - Tableau des réactions  $^{68}\text{Zn}(p,x)^{64}\text{Cu}$  et de leur énergie seuil.

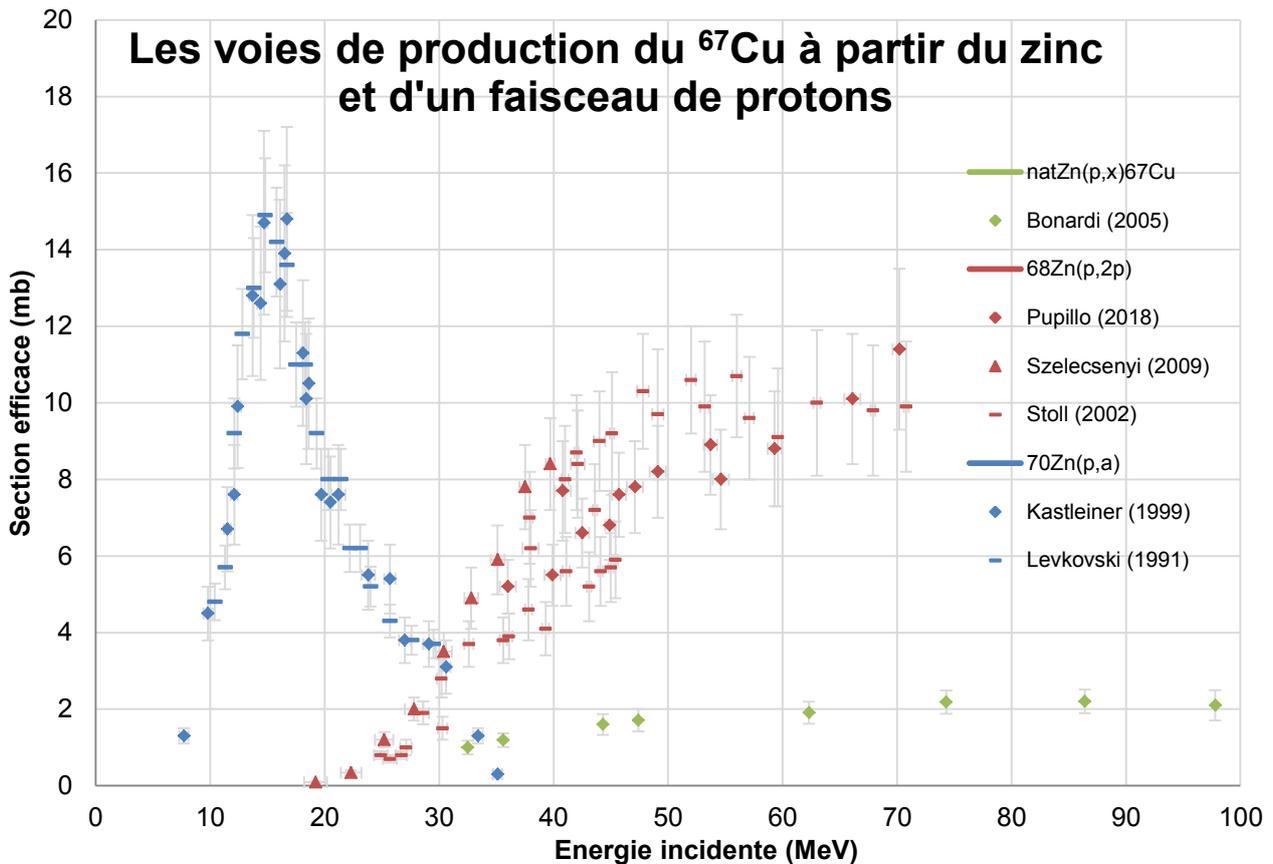


Figure 5.2 - Sections efficaces des voies de production du  $^{67}\text{Cu}$  à partir du zinc et d'un faisceau de protons [40], [86]–[89].

- **La réaction  $^{70}\text{Zn}(p,x)$**

Comme pour la réaction précédente, la cible enrichie apporte un meilleur taux de production que la cible de zinc naturelle et permet de contrôler la production de contaminants. La section efficace de cette réaction est présentée en figure 5.2 à partir des données expérimentales disponibles dans la littérature [36]. A basse énergie, c'est la voie de production (p, $\alpha$ ) qui est majoritaire. Quand l'énergie augmente, les autres voies de production (p,pt), (p,2d) et (2,p2n) vont intervenir. Ces valeurs montrent un maximum de section efficace à 15 mb pour une énergie de 16 MeV. L'énergie seuil de la réaction produisant le  $^{64}\text{Cu}$  étant 23,8 MeV, il sera possible d'éviter la production de  $^{64}\text{Cu}$  en irradiant la cible avec des protons d'énergie inférieure à cette valeur. De plus, la production de  $^{63}\text{Cu}$  sera limitée ou nulle ( $E_{\text{seuil}} = 31,8$  MeV). La production de  $^{65}\text{Cu}$  ( $E_{\text{seuil}} = 13,8$  MeV) est en revanche possible. Le principal inconvénient de cette voie de production réside dans la faible abondance naturelle du  $^{70}\text{Zn}$  (0,6%) qui implique un prix élevé du matériau enrichi.

Grâce au recyclage du matériau cible, il est possible de réduire l'impact financier de la cible sur la production. La faible abondance naturelle du  $^{70}\text{Zn}$  amène aussi la présence résiduelle d'autres isotopes de zinc dans le matériau enrichi, comme le  $^{68}\text{Zn}$ , ce qui entraîne une production marginale de contaminants. Plus le taux d'enrichissement utilisé est important, plus l'impact sera faible.

- **La réaction  $^{69}\text{Ga}(p,x)$**

La réaction  $^{69}\text{Ga}(p,3p)^{67}\text{Cu}$  peut être envisagée mais la section efficace est très faible malgré la cible enrichie en gallium. La série de données expérimentales disponibles est donnée figure 5.3 [90]. De plus, la production de  $^{64}\text{Cu}$  est difficile à limiter car les énergies seuils des réactions s'étalent sur une large gamme d'énergie, tableau 5.4.

Réaction	Energie seuil (MeV)
$^{69}\text{Ga}(p,d+\alpha)^{64}\text{Cu}$	12,3
$^{69}\text{Ga}(p,n+p+\alpha)^{64}\text{Cu}$	14,6
$^{69}\text{Ga}(p,t+^3\text{He})^{64}\text{Cu}$	26,9
$^{69}\text{Ga}(p,p+d+t)^{64}\text{Cu}$	32,4
$^{69}\text{Ga}(p,n+d+^3\text{He})^{64}\text{Cu}$	33,2
$^{69}\text{Ga}(p,2n+2p+t)^{64}\text{Cu}$	34,7
$^{69}\text{Ga}(p,2n+p+^3\text{He})^{64}\text{Cu}$	35,5
$^{69}\text{Ga}(p,3d)^{64}\text{Cu}$	36,5
$^{69}\text{Ga}(p,n+p+2d)^{64}\text{Cu}$	38,8
$^{69}\text{Ga}(p,2n+2p+d)^{64}\text{Cu}$	41,0
$^{69}\text{Ga}(p,3n+3p)^{64}\text{Cu}$	43,3

Table 5.4 - Les réactions  $^{69}\text{Ga}(p,x)^{64}\text{Cu}$  et leur énergie seuil.

- La réaction  $^{71}\text{Ga}(p,x)$

La production de  $^{67}\text{Cu}$  par la réaction  $^{71}\text{Ga}(p,x)$  montre une section efficace faible d'après la série de données [90]. Le maximum semble se situer autour de 2 mb sur une gamme d'énergie étalée. L'utilisation de cette réaction n'est pas adaptée à la production de  $^{67}\text{Cu}$ .

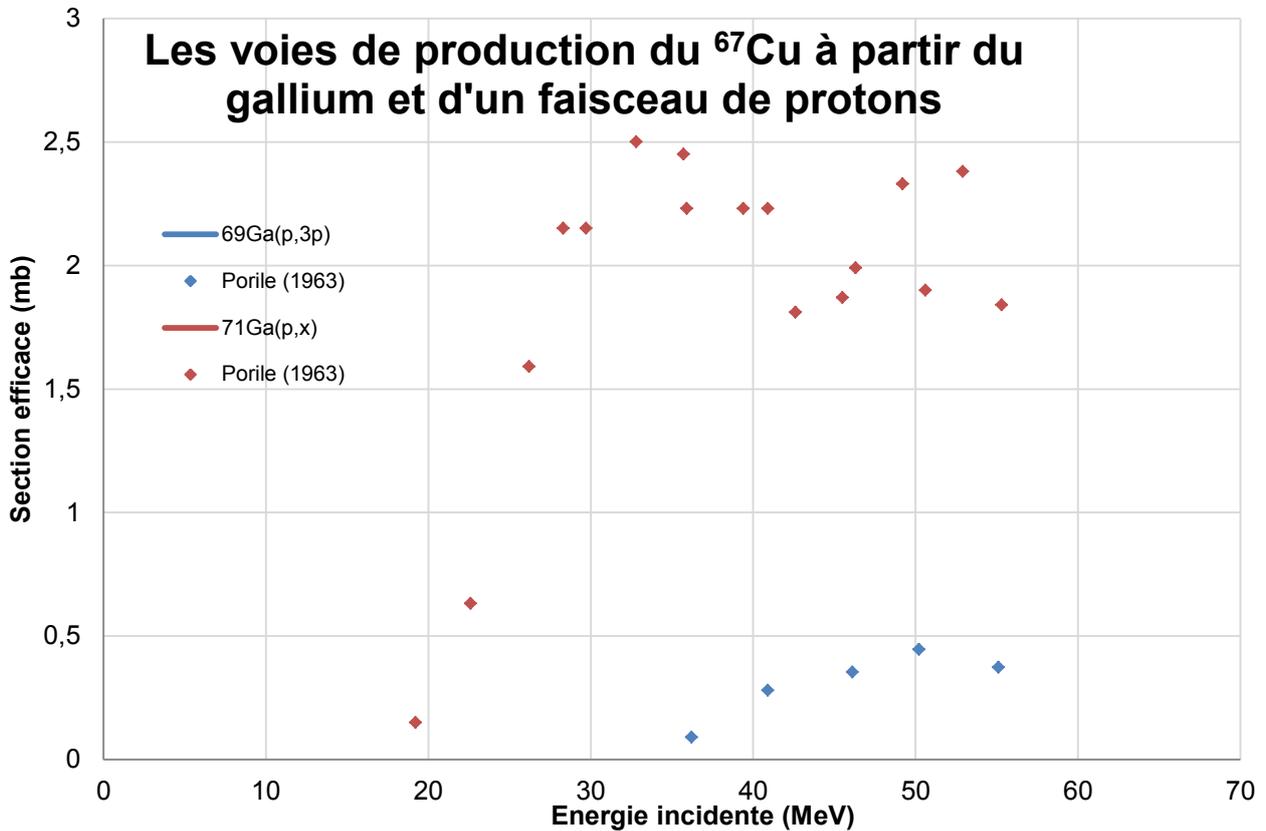


Figure 5.3 - Sections efficaces des voies de production du  $^{67}\text{Cu}$  à partir du gallium et d'un faisceau de protons [90].

- La réaction  $^{\text{nat}}\text{Ga}(p,x)$

La réaction  $^{\text{nat}}\text{Ga}(p,x)$  a pour avantage d'avoir lieu dans une cible de gallium naturelle. La section efficace de cette réaction n'a pas de données expérimentales disponibles mais il est possible de sommer les sections efficaces des réactions sur les cibles enrichies en gallium pondérées par l'abondance isotopique à l'état naturel. Les valeurs de sections efficaces obtenues sont faibles et les inconvénients énoncés pour la réaction  $^{69}\text{Ga}(p,x)^{64}\text{Cu}$  s'appliquent aussi pour cette réaction.

### 1.2.2. Les voies de production avec des particules alpha

- La réaction  ${}^{\text{nat}}\text{Ni}(\alpha, x)$

Le  ${}^{67}\text{Cu}$  peut être produit à partir du nickel naturel avec un faisceau d'alpha en raison de la présence du  ${}^{64}\text{Ni}$ . Le nickel naturel possède 5 isotopes stables ce qui va impliquer la coproduction de contaminants tel que le  ${}^{64}\text{Cu}$ . De plus, le  ${}^{64}\text{Ni}$  a une abondance isotopique naturelle de 0,9 % ce qui va largement limiter la production de  ${}^{67}\text{Cu}$ . Nous pouvons voir l'impact de cette abondance sur la graphique 5.4 qui présente la section efficace de la réaction  ${}^{\text{nat}}\text{Ni}(\alpha, x){}^{67}\text{Cu}$  et  ${}^{64}\text{Ni}(\alpha, p){}^{67}\text{Cu}$ .

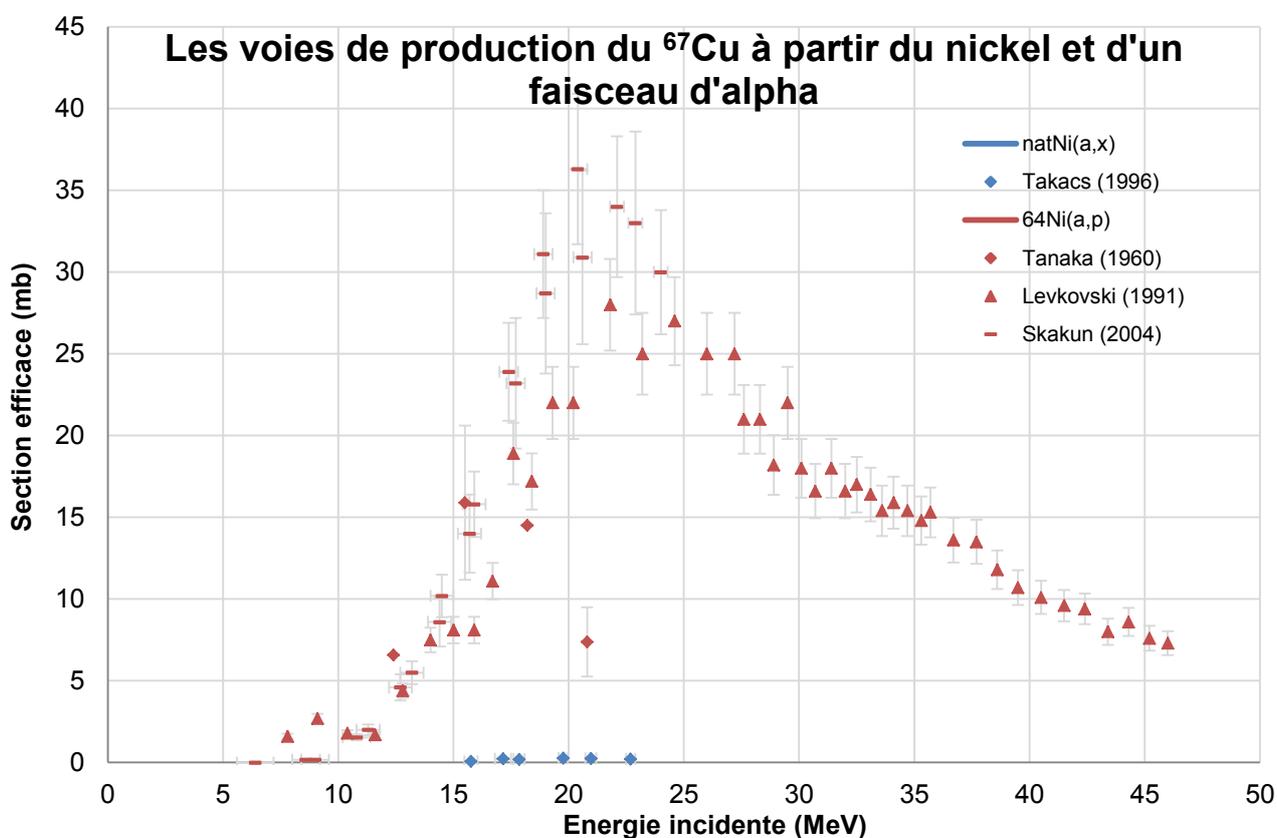


Figure 5.4 - Sections efficaces des voies de production du  ${}^{67}\text{Cu}$  à partir du nickel et d'un faisceau d'alpha [40], [91], [92].

- La réaction  ${}^{64}\text{Ni}(\alpha, x)$

L'utilisation d'une cible enrichie de  ${}^{64}\text{Ni}$  permet la production de  ${}^{67}\text{Cu}$  via la réaction  ${}^{64}\text{Ni}(\alpha, p){}^{67}\text{Cu}$ . Il existe des données expérimentales de sections efficaces pour cette réaction qui couvrent une grande partie de la gamme d'énergie de la section efficace et donne un maximum aux alentours de 35 mb à une énergie de 22 MeV. L'énergie seuil de la réaction  ${}^{64}\text{Ni}(\alpha, p)$  est à 4,9 MeV et pour la réaction  ${}^{64}\text{Ni}(\alpha, n+t){}^{64}\text{Cu}$ , l'énergie seuil est à 23,7 MeV ce qui permet d'envisager d'optimiser la production de  ${}^{67}\text{Cu}$  tout en

limitant la production de  $^{64}\text{Cu}$ . Cette réaction,  $^{64}\text{Ni}(\alpha,p)^{67}\text{Cu}$ , est une voie d'intérêt pour la production de  $^{67}\text{Cu}$  et elle a été explorée par le passé. Son principal inconvénient réside dans la nécessité d'utiliser des matériaux enrichis en  $^{64}\text{Ni}$  qui est relativement cher compte tenu de sa faible abondance isotopique à l'état naturel (0,9%). Ceci peut être limité par la mise en place d'une technique de recyclage du matériau cible.

- **Les réactions  $^{\text{nat}}\text{Cu}(\alpha,x)$  et  $^{65}\text{Cu}(\alpha,x)$**

Le cuivre naturel composé du  $^{63}\text{Cu}$  et du  $^{65}\text{Cu}$  peut permettre de produire le  $^{67}\text{Cu}$  avec un faisceau d'alpha interagissant avec les noyaux de  $^{65}\text{Cu}$ . Outre le fait que, la section efficace de la réaction  $^{65}\text{Cu}(\alpha,2p)$  est faible [93], l'utilisation comme cible d'un isotope du même élément que l'isotope d'intérêt mène à des faibles activités spécifiques du produit final ce qui n'est en général pas compatible avec une utilisation médicale.

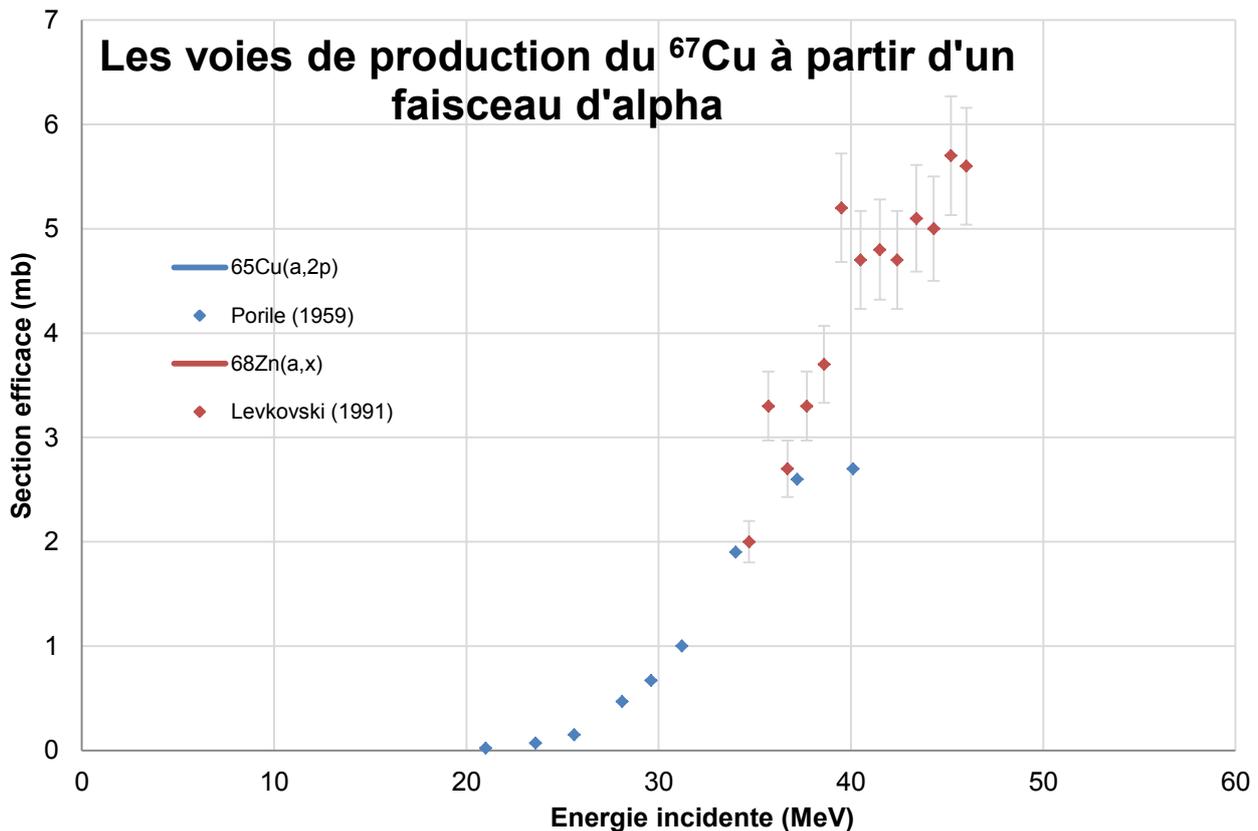


Figure 5.5 - Sections efficaces des voies de production du  $^{67}\text{Cu}$  à partir d'un faisceau d'alpha [40], [93].

- **La réaction  $^{\text{nat}}\text{Zn}(\alpha,x)$**

Malgré la possible production du  $^{67}\text{Cu}$  sur 4 des 5 isotopes stables sur zinc, la coproduction de contaminants va être difficile à contrôler et va impliquer une valeur de l'activité spécifique faible.

- **La réaction  $^{68}\text{Zn}(\alpha,x)$**

L'énergie seuil de la réaction  $(\alpha,p+\alpha)$  produisant le  $^{67}\text{Cu}$  est de 10,6 MeV. Une série de données de section efficace de la réaction  $^{68}\text{Zn}(\alpha,x)^{67}\text{Cu}$  est présentée en figure 5.5. Ces valeurs de sections efficaces sont de l'ordre de 5 mb dans une gamme d'énergie de 45 MeV. De plus, il y a la production de contaminants car l'énergie seuil de la réaction  $^{68}\text{Zn}(\alpha,x)^{64}\text{Cu}$  est de 29,2 MeV et celle de la réaction  $^{68}\text{Zn}(\alpha,x)^{65}\text{Cu}$  est de 18,7 MeV. Il sera donc difficile d'éviter leur production.

### 1.2.3. Les voies de production avec des deutons

- **La réaction  $^{\text{nat}}\text{Zn}(d,x)$**

Comme pour les précédentes particules, la cible de  $^{\text{nat}}\text{Zn}$  ne permet pas de contrôler la production des isotopes du cuivre. Ils ne peuvent pas être séparés chimiquement. Cette réaction est alors exclue de l'étude.

- **Les réactions à partir d'une cible enrichie en zinc**

Ces cibles concernent les isotopes  $^{67}\text{Zn}$ ,  $^{68}\text{Zn}$  et  $^{70}\text{Zn}$  avec lesquels il est possible de produire le  $^{67}\text{Cu}$ . Le tableau 5.5 donne l'énergie seuil des réactions produisant les isotopes de cuivre pour ces cibles enrichies de zinc. Dans l'objectif de limiter la production des isotopes du  $^{67}\text{Cu}$ , l'intérêt d'une cible enrichie en  $^{70}\text{Zn}$  prend tout son sens. Cela conduit à une énergie seuil nulle pour la production de  $^{67}\text{Cu}$  et des énergies seuils de plusieurs dizaines de MeV pour les isotopes de cuivre les plus contraignants.

Cibles	$^{63}\text{Cu}$ (MeV)	$^{64}\text{Cu}$ (MeV)	$^{65}\text{Cu}$ (MeV)	$^{67}\text{Cu}$ (MeV)
$^{67}\text{Zn}$	7,9	0	0	2,1
$^{68}\text{Zn}$	18,5	10,3	0,1	4,6
$^{70}\text{Zn}$	34,6	26,4	16,2	0

Table 5.5 - Les réactions seuils pour la production d'un isotope du cuivre sur une cible enrichie de zinc.

Les données expérimentales de section efficace disponibles dans la littérature sont présentées dans la figure 5.6. En orange, une série de données apporte des valeurs sur la gamme d'énergie 10-20 MeV de la section efficace de la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$ . Cette valeur haute à 25 mb pour une énergie de 19 MeV correspond à une valeur importante comparativement aux autres voies de productions discutées jusqu'à

maintenant. De plus, la forme de la courbe et les énergies seuils des réactions, voir tableau 5.6, laissent penser que le maximum n'est potentiellement pas atteint à 20 MeV. L'objectif de notre étude a été d'approfondir nos connaissances sur la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$  en complétant les mesures de sections efficaces.

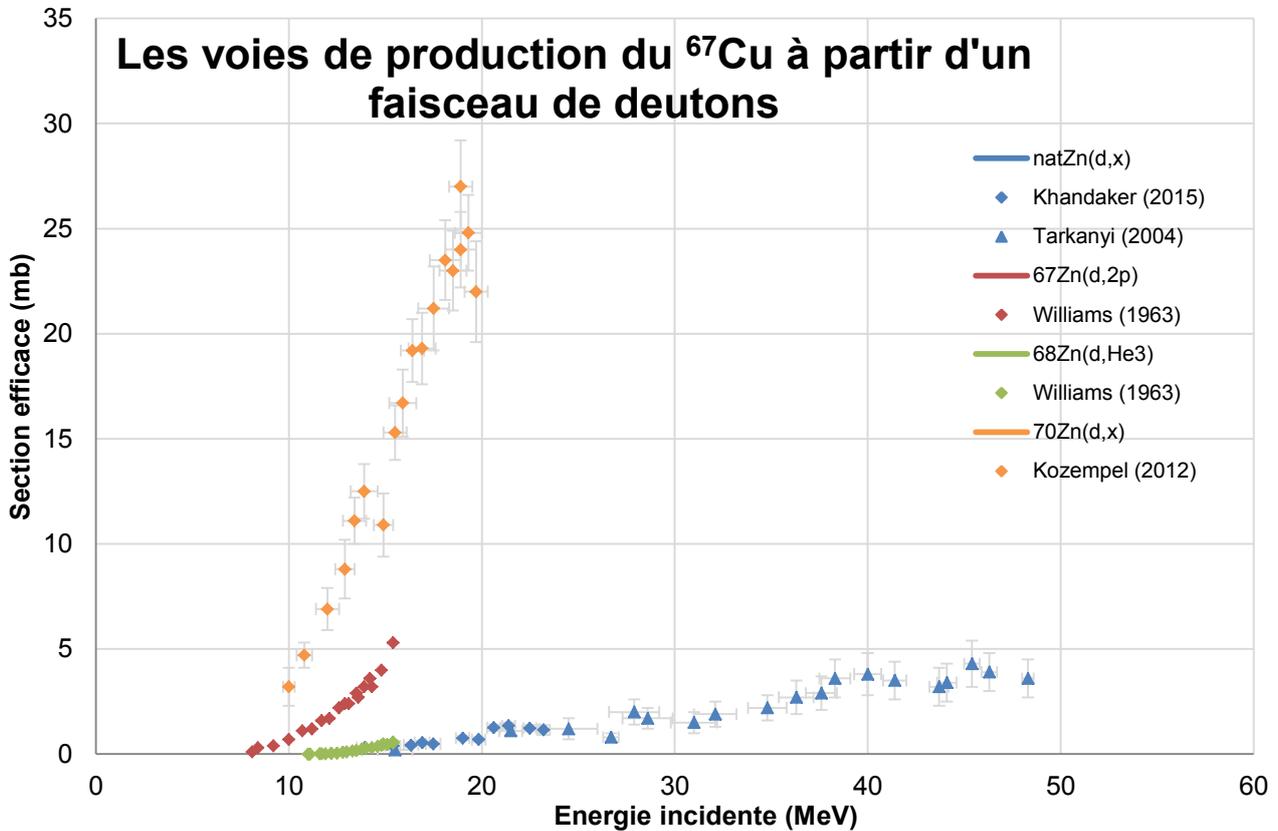


Figure 5.6 - Sections efficaces des voies de production du  $^{67}\text{Cu}$  à partir d'un faisceau de deutons [94]–[98].

Réaction	Energie seuil (MeV)
$^{70}\text{Zn}(d,n+a)^{67}\text{Cu}$	0,0
$^{70}\text{Zn}(d,d+t)^{67}\text{Cu}$	17,7
$^{70}\text{Zn}(d,n+p+t)^{67}\text{Cu}$	19,9
$^{70}\text{Zn}(d,2n+^3\text{He})^{67}\text{Cu}$	20,8
$^{70}\text{Zn}(d,n+2d)^{67}\text{Cu}$	24,1
$^{70}\text{Zn}(d,2n+p+d)^{67}\text{Cu}$	26,4
$^{70}\text{Zn}(d,3n+2p)^{67}\text{Cu}$	28,7

Table 5.6 - Les réactions  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$  et leur énergie seuil.

L'inconvénient majeur de ce choix de réaction est le prix du  $^{70}\text{Zn}$  car il n'est présent qu'à 0,6 % à l'état naturel (environ 14 € le mg pour une quantité de 500 mg). Cependant, dans une vision de production industrielle, ce coût est à mettre en regard des autres coûts comme par exemple celui du temps faisceau. De plus, cette matière

première peut être recyclée et réutilisée après extraction du  $^{67}\text{Cu}$ . Par exemple dans le cas du  $^{64}\text{Ni}$ , le rendement de recyclage est supérieur à 90 % ce qui permet une réutilisation du matériau cible (jusqu'à 10 fois).

Le  $^{70}\text{Zn}$  est disponible sous forme de poudre métallique. Le choix de la méthode de fabrication des cibles de  $^{70}\text{Zn}$  s'est porté sur l'électrodéposition.

## 2. Les mesures de sections efficaces de production $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$

Notre objectif consiste à compléter les mesures de sections efficaces de production du  $^{67}\text{Cu}$  via la réaction de deutons sur une cible de  $^{70}\text{Zn}$  en utilisant la technique des « stacked foils » sur une gamme en énergie allant de 35 MeV (maximum disponible avec le C70 du GIP ARRONAX) jusqu'à une quinzaine de MeV (pour assurer le recouvrement avec les données existantes). Cela nous permettra d'identifier la position du maximum de la section efficace et ainsi d'optimiser les paramètres de production.

### 2.1. La fabrication des cibles

Le  $^{70}\text{Zn}$  enrichi est disponible uniquement sous forme de poudre métallique auprès de fournisseur de matériaux enrichis. Nous avons pris le  $^{70}\text{Zn}$  avec le taux d'enrichissement disponible le plus élevé, 97,5 %. La composition isotopique de  $^{70}\text{Zn}$  acquis est présentée dans le tableau 5.7.

Isotope	$^{64}\text{Zn}$	$^{66}\text{Zn}$	$^{67}\text{Zn}$	$^{68}\text{Zn}$	$^{70}\text{Zn}$
Concentration (%)	0,1	0,1	0,1	2,2	97,5

Table 5.7 - Les concentrations des isotopes composant la poudre métallique d'après le certificat d'analyse donné par le fournisseur.

Nous pouvons voir la présence importante de  $^{68}\text{Zn}$  dans la poudre métallique ce qui implique des pollutions potentielles, dont il faudra tenir compte, lors de l'analyse. L'interaction de deutons sur le  $^{68}\text{Zn}$  peut amener la production de  $^{67}\text{Ga}$  ( $E_{\text{seuil}} = 14,6$  MeV) et de  $^{64}\text{Cu}$  ( $E_{\text{seuil}} = 10,3$  MeV) qui ne sont pas formés dans notre gamme d'énergie par l'interaction avec le  $^{70}\text{Zn}$  ( $E_{\text{seuil},^{67}\text{Ga}} = 30,8$  MeV et  $E_{\text{seuil},^{64}\text{Cu}} = 26,4$  MeV). Le  $^{64}\text{Cu}$  sera présent dans le produit final tandis que le  $^{67}\text{Ga}$  émet des photons gamma qui interfèrent avec les photons gamma issus de la décroissance du  $^{67}\text{Cu}$ , voir table 5.8, et peuvent fausser les résultats. L'analyse spectrométrique du  $^{67}\text{Cu}$  et  $^{67}\text{Ga}$  est discuté en partie 2.2.4 de ce chapitre.

Radionucléide	$T_{1/2}$	Gamma émis keV (%)
$^{67}\text{Cu}$	61,8 h	91,3 (7,0)
		93,3 (16,1)
		184,6 (48,7)
		300,2 (0,8)
		393,5 (0,2)
$^{67}\text{Ga}$	78,3 h	91,3 (3,1)
		93,3 (38,8)
		184,6 (21,4)
		300,2 (16,6)
		393,5 (4,56)

Table 5.8 - Mise en évidence des émissions gamma communes entre le  $^{67}\text{Cu}$  et  $^{67}\text{Ga}$ .

Pour réaliser les cibles nécessaires à notre expérience de « stacked foils », nous avons utilisé la technique d'électrodéposition. Elle permet d'obtenir un dépôt de quelques  $\mu\text{m}$  sur une feuille support qui sera par la suite placée dans le « stack ». La technique d'électrodéposition du Zn est connue et maîtrisée par les équipes du GIP ARRONAX et de Subatech. Des études sur la production du  $^{67}\text{Cu}$  par la réaction  $^{68}\text{Zn}(p,2p)$  ont été menées au GIP ARRONAX dans lesquelles la fabrication de cibles de  $^{68}\text{Zn}$  par électrodéposition a été réalisée [32], [100], [101]. Nous avons utilisé cette méthodologie pour le  $^{70}\text{Zn}$ .

#### Description de la méthode d'électrodéposition du Zn :

##### **La préparation de l'électrolyte**

Pour dissoudre la poudre du  $^{70}\text{Zn}$ , nous avons utilisé de l'acide nitrique. Comme la solution finale doit contenir le sulfate de zinc avec un minimum de trace de nitrate venant de l'acide nitrique, nous avons utilisé la procédure de préparation suivante :

- Dissolution des poudres du  $^{70}\text{Zn}$  avec de l'acide nitrique à une concentration de 5 mol/L.
- Evaporation à sec de la solution sur une plaque chauffante à 250 °C ; une journée suffit à tout évaporer. Les poudres de nitrate de zinc hydraté sont ainsi obtenues.
- Dissolution des poudres avec de l'acide sulfurique à une concentration de 5 mol/L.
- Evaporation à sec de la solution sur une plaque chauffante à 350 °C (la température d'ébullition de l'acide sulfurique est à 337 °C). Les poudres obtenues sont maintenant du sulfate de zinc.

- Rinçage de la poudre avec de l'eau distillée ultra-pure afin de s'assurer qu'il n'y est plus de traces de nitrate.
- Evaporation à sec de la solution sur une plaque chauffante à 150 °C.
- Dissolution du résidu avec une solution d'acide sulfurique de pH égal à 2. Le volume est calculé en fonction de la masse du zinc pour obtenir une concentration finale de 15 g/L.

### La technique d'électrodéposition

Le but de l'électrodéposition est d'obtenir une couche de dépôt sur un support appelé substrat. La technique repose sur des réactions d'oxydoréduction contrôlées par une différence de potentiel. Pour cela, une anode et une cathode sont en contact avec une solution appelée électrolyte contenant le  $^{70}\text{Zn}$ . Le cation métallique  $\text{Zn}^{2+}$ , appelé l'oxydant (Ox), et le métal Zn, appelé le réducteur (Red), forment le couple rédox (Red/Ox). L'oxydant est par définition un récepteur d'électrons et le réducteur un donneur d'électrons. Ainsi la différence de potentiel  $E$  entre ces électrodes va engendrer, à la cathode, une réduction des cations de zinc à l'interface entre la solution et le substrat pour obtenir un dépôt de zinc sur le substrat selon l'équation suivante :



L'électrolyte contient non seulement les cations métalliques de zinc mais également des molécules d'eau. Ces molécules, en milieu acide, réduisent tout comme  $\text{Zn}^{2+}$  à la cathode pour produire des gaz de dihydrogène selon l'équation :



Pendant l'électrodéposition, 2 réductions ont lieu simultanément  $\text{Zn}^{2+}$  et  $\text{H}^{+}$  mais en jouant sur les paramètres de l'électrodéposition tels que le potentiel  $E$  appliqué entre l'anode et la cathode, la concentration en  $\text{Zn}^{2+}$  dans la solution, la température, le pH de la solution et la vitesse d'agitation de la solution, il est possible d'avantager la réduction de  $\text{Zn}^{2+}$  et ainsi d'obtenir un dépôt de Zn de qualité.

### L'électrodéposition du $^{70}\text{Zn}$ sur une feuille de $^{\text{nat}}\text{Ni}$

Les préparations chimiques et les électrodépositions ont été réalisées au GIP ARRONAX par T. Sounalet membre de l'équipe PRISMA au laboratoire Subatech. Des études sur le substrat à utiliser ont été effectuées pour ces expériences car il ne doit

pas être sensible à l'acidité de la solution, doit être suffisamment rigide et convenir aux expériences. Les contraintes liées aux expériences sont les suivantes :

- Le substrat doit avoir peu d'influence sur la dégradation du faisceau c'est-à-dire être considéré comme une feuille mince afin de garantir la collecte intégrale du faisceau par la Faraday en limitant l'effet de « straggling » angulaire.
- Les radionucléides produits dans le substrat ne doivent pas être identiques à ceux produits dans le dépôt de  $^{70}\text{Zn}$  et ne doivent pas émettre des photons gamma pouvant perturber les analyses de spectrométrie gamma.

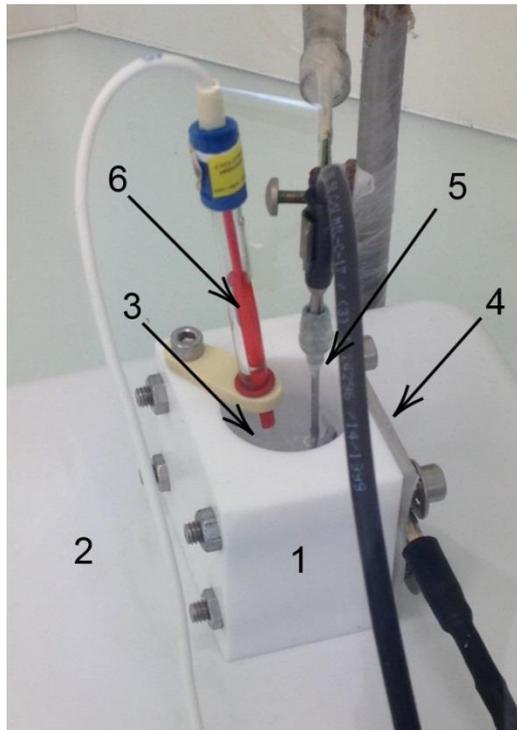


Figure 5.7 - Photo du dispositif d'électrodéposition.

Notre choix du support s'est porté sur des feuilles de  $^{nat}\text{Ni}$ . Ci-dessus en figure 5.7, une photo du dispositif d'électrodéposition est présentée. La cellule (1) posée sur une plaque chauffante (2) contient la solution électrolytique (3). La cathode (4) qui est une feuille de nickel est connectée à la solution par une ouverture carrée de 20x20mm. La feuille est attachée contre le support à l'aide d'une plaque visée permettant la connexion à l'alimentation et l'étanchéité du dispositif. L'anode (5) est plongée dans la solution pour établir les réactions d'oxydo-réduction. Une électrode de référence  $\text{Ag}/\text{AgCl}$  saturée en  $\text{KCl}$  (6) est ajoutée permettant la mesure du potentiel ainsi que son contrôle durant l'électrodéposition. (Électrodéposition à potentiel constant)

La densité de courant appliquée est de  $20 \text{ mA}/\text{cm}^2$ . La solution est maintenue à une température de  $30 \text{ }^\circ\text{C}$ . Le pH de la solution est de 2. Une fois tous les paramètres fixés et maintenus, c'est le temps d'électrodéposition qui va fixer l'épaisseur du dépôt. Pour

être autour d'une dizaine de  $\mu\text{m}$ , une durée de dépôt de 30 min est nécessaire. Une photo d'un dépôt est présentée sur la figure 5.8. La précision de l'épaisseur est un paramètre important, c'est la raison pour laquelle elle est remesurée avant utilisation. La méthode et les résultats sont donnés dans la partie 2.2.2 de ce chapitre.



Figure 5.8 – A gauche, une photo d'un dépôt de  $^{70}\text{Zn}$  sur une feuille de  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  et à droite une photo d'un « stack » avec en première position le  $^{70}\text{Zn}$  électrodéposé.

## 2.2. Les expériences de « stacked foils »

### 2.2.1. Les irradiations

Le « stack » a été construit sous forme de deux motifs constitués d'une feuille de  $^{\text{nat}}\text{Ni}+^{70}\text{Zn}$  et d'une feuille « catcher » d'aluminium de  $10\ \mu\text{m}$ . Entre ces motifs, une feuille de dégradeur d'une épaisseur de plusieurs centaines de  $\mu\text{m}$  a été placée permettant d'obtenir un écart d'énergie incidente de plus ou moins  $5\ \text{MeV}$ . En plus, une feuille de titane d'une surface identique au dépôt de  $^{70}\text{Zn}$  a été ajoutée permettant un contrôle du faisceau après irradiation à travers la réaction moniteur  $^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x)^{48}\text{V}$ . Un schéma d'un « stack » est présenté dans la figure 5.9.

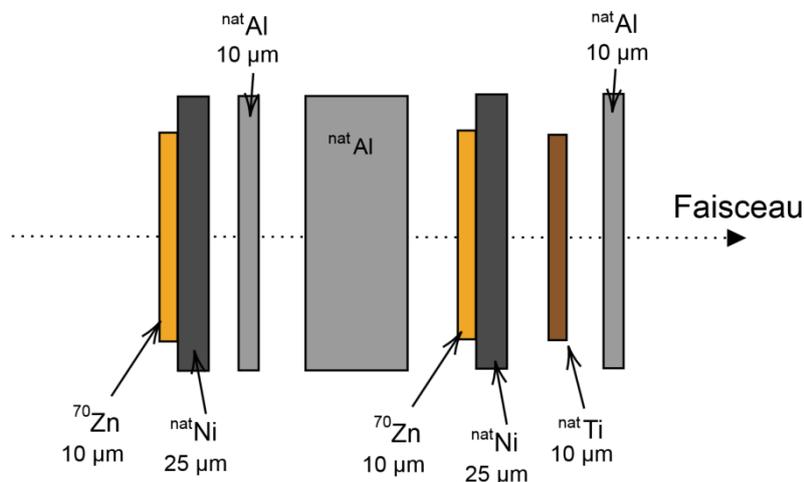


Figure 5.9 - La configuration d'un "stack" lors des expériences  $^{67}\text{Cu}$ .

Les irradiations se sont déroulées au près du cyclotron C70 du GIP ARRONAX. Un ensemble de 6 irradiations a été réalisé dans les conditions d'irradiation, récapitulées dans le tableau 5.9. Avant chaque irradiation, le faisceau est réglé à l'aide de la feuille d'alumine. Son enveloppe doit être inscrite dans un cercle de 1 cm de diamètre afin d'assurer l'exposition de l'ensemble des feuilles et pour garantir la collection totale des particules du faisceau par la Faraday.

Energie faisceau (MeV)	Temps d'irradiation	Nombre de charges mesurées ( $\mu\text{C}$ )	Courant moyen calculé à partir du nombre de charges (nA)
27,0	1 h	$205,7 \pm 4,1$	57,1
16,0	1 h	$199,8 \pm 3,9$	55,5
24,0	1 h	$190,3 \pm 3,8$	39,6
25,3	1 h	$177,0 \pm 3,5$	49,2
24,0	1 h	$156,7 \pm 3,1$	43,5
28,7	1 h	$180,0 \pm 3,6$	50,0

Table 5.9 - Caractéristiques d'irradiation pour la production de  $^{67}\text{Cu}$ .

### 2.2.2. La détermination des points de mesure en énergie

Les épaisseurs des feuilles ont été mesurées comme décrit dans le chapitre II, partie 4. Pour l'épaisseur des dépôts de  $^{70}\text{Zn}$  sur le  $^{\text{nat}}\text{Ni}$ , les feuilles de nickel sont pesées avant et après le dépôt. Ensuite, la surface du dépôt est calculée. Pour le calcul de l'épaisseur des dépôts, nous faisons l'hypothèse d'un dépôt homogène. La détermination de la surface de  $^{70}\text{Zn}$  est effectuée à l'aide du scanner et du logiciel ImageJ. Le nickel et le zinc étant sur des tons de gris similaire, il est difficile d'établir un contour du dépôt par traitement automatique des couleurs de l'image. Le découpage du contour du dépôt a donc été fait à la main. De ce découpage un nombre de pixels est déterminé. En utilisant la surface de la feuille de nickel comme référence, la surface du dépôt est calculée, les valeurs sont présentées dans le tableau 5.10. Une fois les épaisseurs déterminées, l'énergie du faisceau traversant chaque feuille et l'incertitude associée sont calculées, méthode décrite chapitre II partie 3.

Energie faisceau initiale (MeV)	Epaisseur du dépôt de $^{70}\text{Zn}$ ( $\mu\text{m}$ )	Energie des particules dans le dépôt (MeV)
27,0	11,3	$26,9 \pm 0,5$
	8,3	$22,2 \pm 0,6$
16,0	7,8	$15,9 \pm 0,5$
	6,6	$11,0 \pm 0,7$
24,0	24,0	$23,9 \pm 0,5$
	10,0	$18,1 \pm 0,6$
25,3	13,7	$25,2 \pm 0,5$
	14,3	$19,7 \pm 0,6$
24,0	11,9	$23,9 \pm 0,5$
	15,1	$20,5 \pm 0,6$
28,7	11,2	$28,6 \pm 0,5$
	8,2	$25,8 \pm 0,5$

Table 5.10 - Les valeurs d'énergie faisceau, épaisseurs des dépôts de  $^{70}\text{Zn}$  et l'énergie traversant le  $^{70}\text{Zn}$ .

Afin de s'assurer la répétabilité du découpage de l'image, j'ai effectué 8 fois les contours du dépôt et de la feuille de nickel. La surface du dépôt est alors calculée ce même nombre de fois, les valeurs sont rapportées dans le tableau 5.11. L'écart type de l'ensemble de ces résultats représente 0,5 % de la moyenne des surfaces calculées. Cela montre que, malgré un traitement d'image « à la main », les résultats obtenus restent similaires.

	Nombre de pixels comptés pour la feuille de nickel	Nombre de pixels comptés pour le dépôt	Surface de la feuille de nickel ( $\text{mm}^2$ )	Surface calculée du dépôt ( $\text{mm}^2$ )
	1385877	627823	629,6	285,2
	1401317	633007	629,6	284,4
	1404667	642235	629,6	287,9
	1400725	629630	629,6	283,0
	1398493	629183	629,6	283,3
	1394036	629887	629,6	284,5
	1399387	631996	629,6	283,9
	1398214	630590	629,6	283,9
Moyenne M	1397840	631794		284,6
Ecart type $\sigma$	5701,7	4517,9		1,5
$\sigma/M$ (%)	0,4	0,7		0,5

Table 5.11 – Les valeurs de la surface d'une feuille de  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  et du dépôt de  $^{70}\text{Zn}$  pour estimer la répétabilité des mesures.

### 2.2.3. La mesure d'activité des feuilles irradiées

Après irradiation, les feuilles sont laissées pour quelques heures en décroissance afin de diminuer l'activité manipulée par les expérimentateurs et de façon à avoir un faible temps mort lors de l'acquisition des spectres. Ensuite, les feuilles sont mises à compter sur le spectromètre gamma. La méthode utilisée est décrite dans le chapitre II partie 5.3.3. Chacune des raies visibles sur les spectres est associée à une source bien identifiée. Un exemple est présenté dans le tableau 5.12 pour une feuille de  $^{70}\text{Zn}+^{\text{nat}}\text{Ni}$  qui a été irradiée par un faisceau de deutons de 24 MeV. Ces valeurs sont issues du spectre présenté en figure 5.10. La présence du  $^{214}\text{Bi}$  a été discutée dans le chapitre précédent dans la partie 2.3 ainsi que la notation « Bdf ».

Une fois les radionucléides identifiés, les bibliothèques d'émetteurs gamma permettant la détermination de leur activité sont créées. Les raies gamma utilisées pour ces bibliothèques sont décrites dans le tableau 5.13.

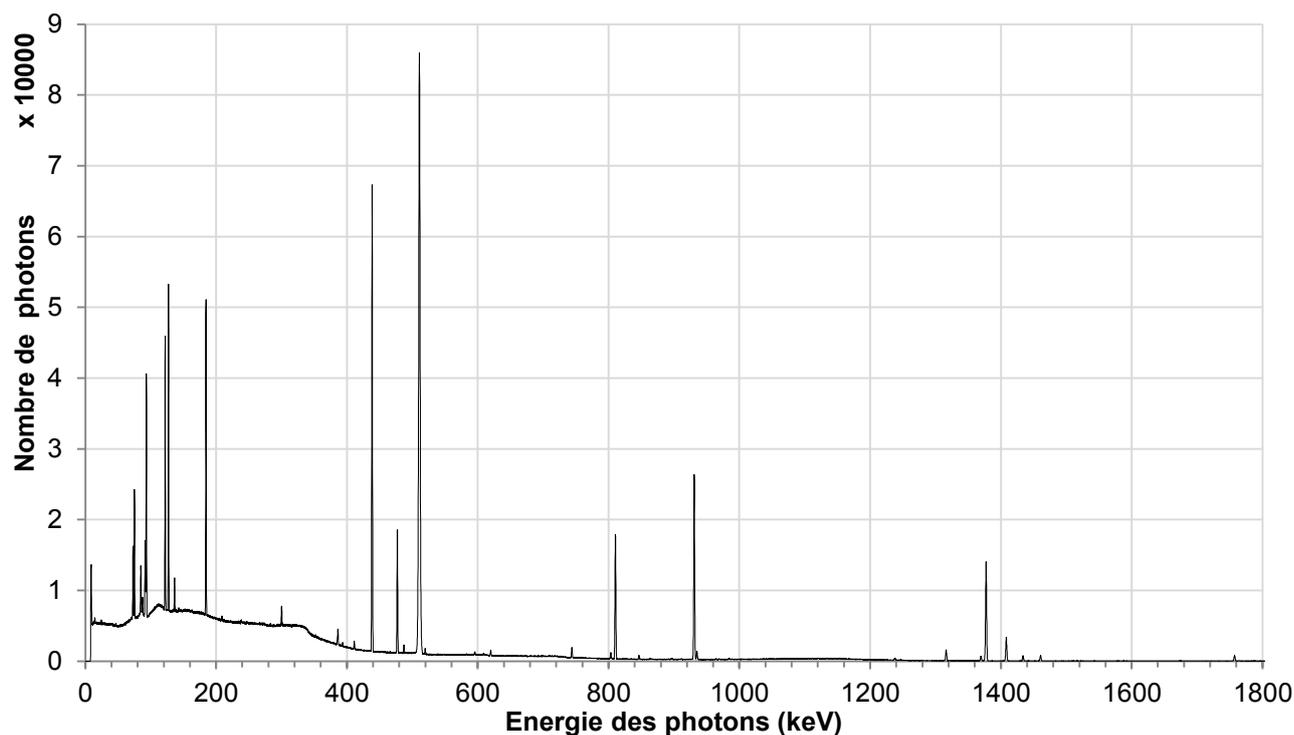


Figure 5.10 - Spectre acquis à partir d'une feuille de  $^{70}\text{Zn}+^{\text{nat}}\text{Ni}$  irradiée par un faisceau de deuteron de 24 MeV.

Energie de la raie (keV)	Source identifiée	Energie de la raie (keV)	Source identifiée
14,7	Bdf	619,9	$^{71\text{m}}\text{Zn}$
72,9	Bdf	744,0	$^{52}\text{Mn}$
75,1	Bdf	803,5	$^{55}\text{Co}$
84,9	Bdf	810,6	$^{58}\text{Co}$
87,5	Bdf	827,1	$^{55}\text{Co}$
91,4	$^{67}\text{Cu}/^{67}\text{Ga}$	846,6	$^{56}\text{Co}$
93,4	$^{67}\text{Cu}/^{67}\text{Ga}$	897,1	$^{56}\text{Co}$
122,1	$^{57}\text{Co}$	911,0	Bdf
127,2	$^{57}\text{Ni}$	931,1	$^{55}\text{Co}$
136,4	$^{57}\text{Co}$	935,3	$^{52}\text{Mn}$
184,5	$^{67}\text{Cu}/^{67}\text{Ga}$	984,3	$^{55}\text{Co}$
208,9	$^{67}\text{Cu}/^{67}\text{Ga}$	1238,1	$^{56}\text{Co}$
300,2	$^{67}\text{Cu}/^{67}\text{Ga}$	1316,3	$^{55}\text{Co}$
386,2	$^{71\text{m}}\text{Zn}$	1369,5	$^{55}\text{Co}$
393,4	$^{67}\text{Cu}/^{67}\text{Ga}$	1377,3	$^{57}\text{Ni}$
411,3	$^{55}\text{Co}$	1408,2	$^{55}\text{Co}$
438,5	$^{69\text{m}}\text{Zn}$	1433,8	$^{52}\text{Mn}$
477,1	$^{55}\text{Co}$	1460,6	Bdf $^{40}\text{K}$
487,2	$^{71\text{m}}\text{Zn}$	1674,5	$^{58}\text{Co}$
510,8	Bêta +	1757,3	$^{57}\text{Ni}$
519,7	$^{55}\text{Co}$	1764,3	Bdf $^{214}\text{Bi}$
595,8	$^{71\text{m}}\text{Zn}$	1771,0	$^{56}\text{Co}$
609,2	Bdf $^{214}\text{Bi}$		

Table 5.12 - Identification des sources formant les pics sur un spectre acquis avec une feuille de  $^{70}\text{Zn}+^{\text{nat}}\text{Ni}$  qui a été traversée par un faisceau de deuteron de 24 MeV.

Radionucléide	$T_{1/2}$	Gamma utilisés pour la mesure d'activité keV (%)
$^{67}\text{Cu}$	61,8 h	91,3 (7,0)
		93,3 (16,1)
		184,6 (48,7)
		300,2 (0,8)
		393,5 (0,2)
$^{67}\text{Ga}$	78,3 h	91,3 (3,1)
		93,3 (38,8)
		184,6 (21,4)
		300,2 (16,6)
		393,5 (4,56)
$^{61}\text{Cu}$	3,4 h	282,9 (12,2)
		373,0 (2,1)
		588,6 (1,2)
		656,0 (10,8)
		908,6 (1,1)
$^{56}\text{Co}$	77,2 j	1185,2 (3,7)
		846,77 (100)
		1037,84 (14,0)
		1238,2 (67,6)
		1360,215 (4,3)
$^{58}\text{Co}$	70,9 j	1771,35 (15,7)
		810,8 (99,0)
		744,2 (90)
		935,5 (94,5)
		1434,1 (100)
$^{52}\text{Mn}$	5,6 j	411,9 (1,1)
		477,2 (20,2)
		803,4 (1,9)
		931,3 (75,0)
		1316,4 (7,1)
$^{55}\text{Co}$	17,5 h	1369,7 (2,9)
		1408,4 (16,9)
		122,06 (85,6)
		136,5 (10,7)
		127,2 (16,7)
$^{57}\text{Ni}$	35,6 h	1377,6 (81,7)
		1757,5 (5,7)
		386,28 (91,4)
$^{71\text{m}}\text{Zn}$	4,0 h	487,3 (61,2)
		596,0 (27,5)
		620,2 (55,8)
		439,6 (94,8)
$^{69\text{m}}\text{Zn}$	13,8 h	

Table 5.13 - Les émissions gamma des radionucléides utilisées pour la détermination de leur activité [1].

### 2.2.4. L'extraction des valeurs de sections efficaces du $^{67}\text{Cu}$ et prise en compte de la pollution de $^{67}\text{Ga}$

Nous avons vu, en partie 2.1, que la présence du  $^{68}\text{Zn}$  dans la poudre métallique de  $^{70}\text{Zn}$  implique la production de  $^{67}\text{Ga}$ . Comme rappelé dans le tableau précédent 5.13, le  $^{67}\text{Ga}$  et le  $^{67}\text{Cu}$  émettent des gamma aux mêmes énergies mais avec des rapports d'embranchement différents. Souhaitant déterminer la section efficace de la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$  uniquement, l'activité de chacun de ces radionucléides doit être différenciée. Le  $^{67}\text{Ga}$  et le  $^{67}\text{Cu}$  possédant des temps de demi-vie similaire, la méthode par décroissance n'est alors pas applicable. Pour prendre en compte la contribution du  $^{67}\text{Ga}$  lors de l'analyse des spectres, un système à deux équations est établi (5.1) [100], [101]. Ces équations mettent en lien le nombre total de gamma collectés,  $N_{\text{TOT}}$ , un pic (ici, 184 keV et 300 keV) et le nombre de gamma collectés venant de chaque acteur.

$$\begin{cases} N_{\text{TOT}}^{184} = N_{67\text{Cu}}^{184} + N_{67\text{Ga}}^{184} \\ N_{\text{TOT}}^{300} = N_{67\text{Cu}}^{300} + N_{67\text{Ga}}^{300} \end{cases} \quad (5.1)$$

D'après l'équation démontrée chapitre II partie 5.4.1, les équations deviennent :

$$\begin{cases} N_{\text{TOT}}^{184} = k_1 \text{Act}(^{67}\text{Cu}) + k_2 \text{Act}(^{67}\text{Ga}) \\ N_{\text{TOT}}^{300} = k_3 \text{Act}(^{67}\text{Cu}) + k_4 \text{Act}(^{67}\text{Ga}) \end{cases} \quad (5.2)$$

$$\text{Avec } k_i^x = \frac{\varepsilon_i^x I_i^x (1 - e^{-\lambda_i t_{\text{LT}}})}{\lambda_i}$$

Où  $i$  définit le radionucléide,  $x$  la raie gamma,  $\varepsilon$  l'efficacité du détecteur,  $I$  l'intensité de l'émission gamma,  $\lambda$  la constante radioactive et  $t_{\text{LT}}$  le temps d'acquisition.

En exprimant en termes d'activité, ce qui est cherché, le système d'équations s'écrit :

$$\begin{cases} \text{Act}(^{67}\text{Cu}) = \frac{1}{k_1 k_4 - k_2 k_3} (k_4 N_{\text{TOT}}^{184} - k_2 N_{\text{TOT}}^{300}) \\ \text{Act}(^{67}\text{Ga}) = \frac{1}{k_1 k_4 - k_2 k_3} (k_1 N_{\text{TOT}}^{300} - k_3 N_{\text{TOT}}^{184}) \end{cases} \quad (5.3)$$

Les activités du  $^{67}\text{Cu}$  et  $^{67}\text{Ga}$  sont déterminées à partir des équations en (5.3). Les incertitudes associées à ce calcul d'activité ont été établies suivant l'équation suivante :

$$\sigma(\text{Act}) = \sum_j \frac{\partial \text{Act}}{\partial y_j} \sigma(y_j) \quad (5.4)$$

Où  $y$  représente les différents paramètres intervenant dans chaque équation (5.3).

Les activités du  $^{67}\text{Cu}$  et  $^{67}\text{Ga}$  sont alors déterminées et ont permis d'établir les résultats exposés dans la partie 3 de ce chapitre. Les incertitudes associées aux valeurs de sections efficaces calculées par cette méthode dans cette étude sont de l'ordre de 5,6 %.

### 2.2.5. La mesure d'activité du $^{48}\text{V}$

Lors de ces expériences, une feuille de titane a été ajoutée au « stack » dans laquelle a lieu la réaction moniteur  $^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x)^{48}\text{V}$ . Elle a été découpée et placée de façon à avoir une surface identique à celle du dépôt de  $^{70}\text{Zn}$  ce qui permet avec la mesure de section efficace moniteur de s'assurer que l'expérience s'est bien déroulée. Si le dépôt n'est pas traversé par la totalité du faisceau car trop large, cela sera également le cas pour la feuille titane. Cette éventualité sera ainsi identifiée grâce à la réaction moniteur.

Lors des irradiations des feuilles de titane, le  $^{48}\text{V}$  est produit mais aussi le  $^{48}\text{Sc}$ . Nous avons vu dans le chapitre IV partie 2.4 les problèmes de pollution du  $^{48}\text{Sc}$  (émetteurs de gamma aux mêmes énergies). La méthode utilisée pour obtenir ces valeurs est identique et les mesures ont été faites dans les mêmes conditions (attente de 19 jours pour décroissance de la grande majorité du  $^{48}\text{Sc}$ ). Les résultats sont présentés dans la figure 5.11 en jaune.

Nous pouvons voir que ces données sont en accord avec les résultats obtenus dans les expériences précédentes, en rouge sur le graphique. Elles sont aussi en accord avec les différentes valeurs expérimentales disponibles dans la littérature. L'accord de ces données montre que les feuilles et les dépôts ont été traversés par l'intégralité du faisceau. L'accord est globalement bon avec la section efficace moniteur recommandée par l'AIEA. Cependant, un écart existe dans la région du pic à 19 MeV entre la courbe et les données de cette étude. Cet écart pourrait venir d'un manque de données expérimentales et de précisions lorsque la courbe de l'AIEA, qui n'est pas un ajustement, a été définie. TALYS avec les paramètres par défaut semble donner cette allure du pic mais est décalé en énergie et ne possède pas la bonne amplitude.

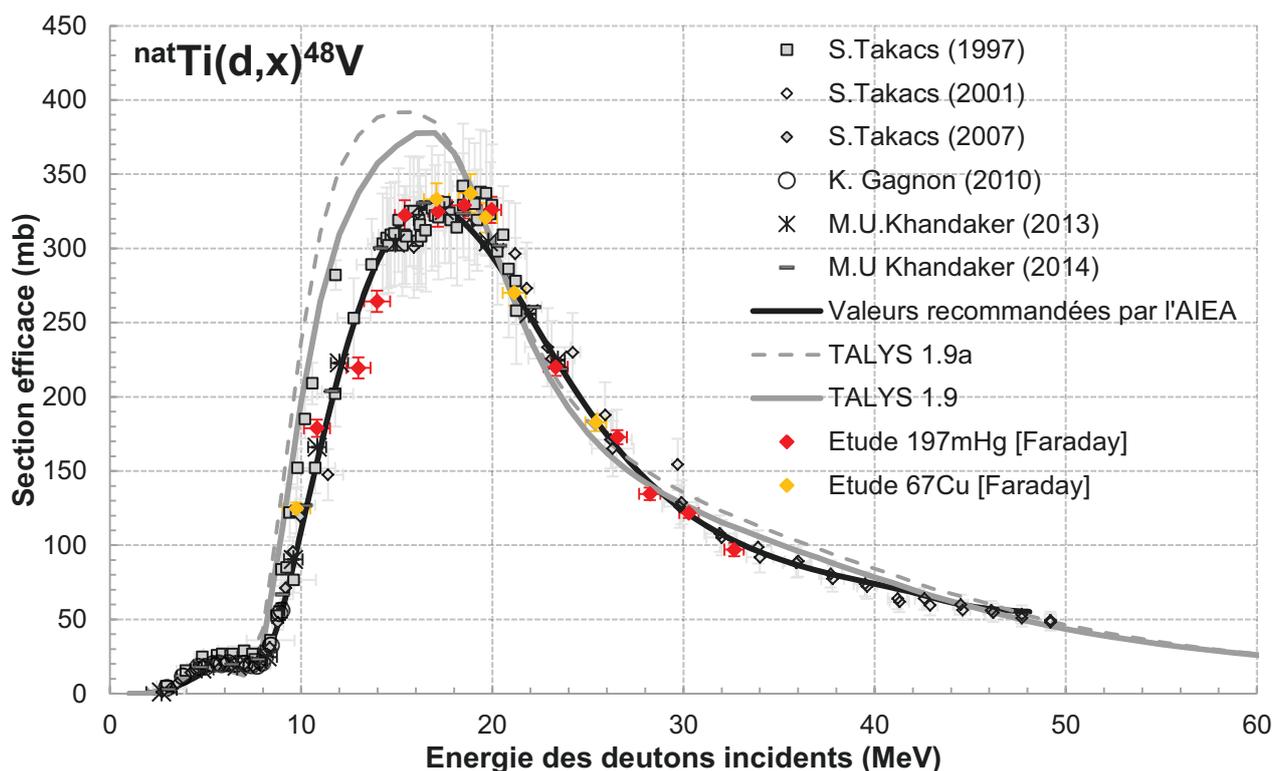


Figure 5.11 - Sections efficaces de la réaction  ${}^{\text{nat}}\text{Ti}(d,x){}^{48}\text{V}$  [31], [46], [50], [74]–[77].

### 3. Les résultats

#### 3.1. La réaction d'intérêt ${}^{70}\text{Zn}(d,x){}^{67}\text{Cu}$

Le graphique de section efficace de la réaction d'intérêt  ${}^{70}\text{Zn}(d,x){}^{67}\text{Cu}$  est présenté dans la figure 5.12 ci-dessous. Les résultats, en rouge, ont été obtenus par la méthode absolue, à l'aide de la Faraday, méthode développée dans le chapitre III partie 2.1. Il existe une série de données disponible dans la littérature, J. Kozempel (2012). Les valeurs de cette étude sont en accord avec les siennes. Ces résultats viennent compléter la section efficace et donnent une estimation du maximum autour de 30 mb pour une énergie de 23 MeV. Dans une optique de production à grande échelle de  ${}^{67}\text{Cu}$ , le pic étant étalé en énergie cela incite à utiliser une cible épaisse capable de faire passer l'énergie du faisceau de 26 MeV (~20 mb) à 16 MeV (~20 mb). Cette gamme d'énergie est choisie arbitrairement et est donnée comme une première estimation de ce qui peut être fait.

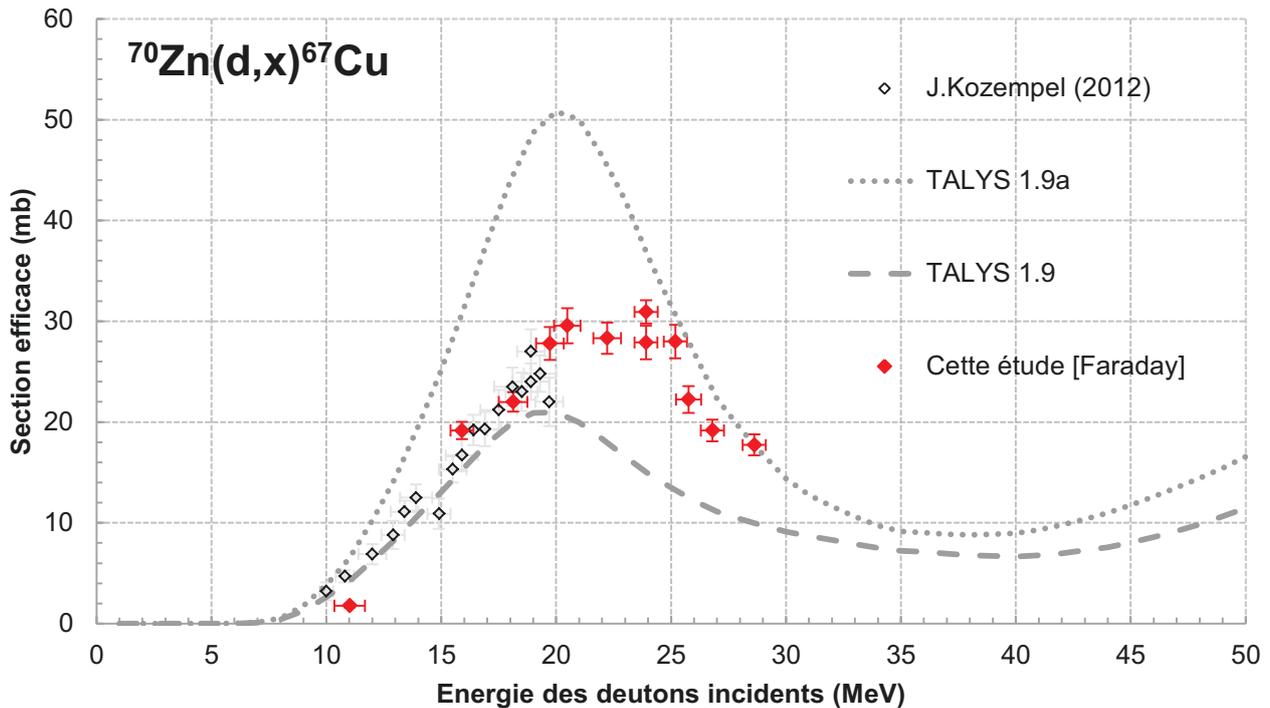


Figure 5.12 - Sections efficaces de la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$  [98].

Les valeurs de sections efficaces pour la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$  ont été calculées à partir du code TALYS sous sa version par défaut et « ajusté ». Les données expérimentales et les courbes montrent un décalage en énergie. Pour les deux versions utilisées, les valeurs de section efficace ne sont pas correctes mais les valeurs expérimentales sont incluses entre ces courbes. TALYS permet de donner un ordre de grandeur de la section efficace dans le cas où il y a peu de valeurs expérimentales mais les modèles ont encore besoin d'être affinés.

### 3.2. La production de contaminants

Dans cette partie, nous allons discuter de la production des contaminants. Des résultats sur ceux qui ont pu être mesurés vont être exposés et nous allons chercher à déterminer comment limiter leur production.

Les contaminants les plus préjudiciables sont les isotopes du cuivre car, comme il n'est pas possible de les séparer par extraction chimique, ils vont avoir un impact sur l'activité spécifique du produit final. Il est possible de limiter leur production en choisissant convenablement l'énergie des particules incidentes et/ou en les laissant décroître. Pour ce dernier paramètre, les temps de demi-vie des isotopes du cuivre sont donnés dans le tableau 5.2.

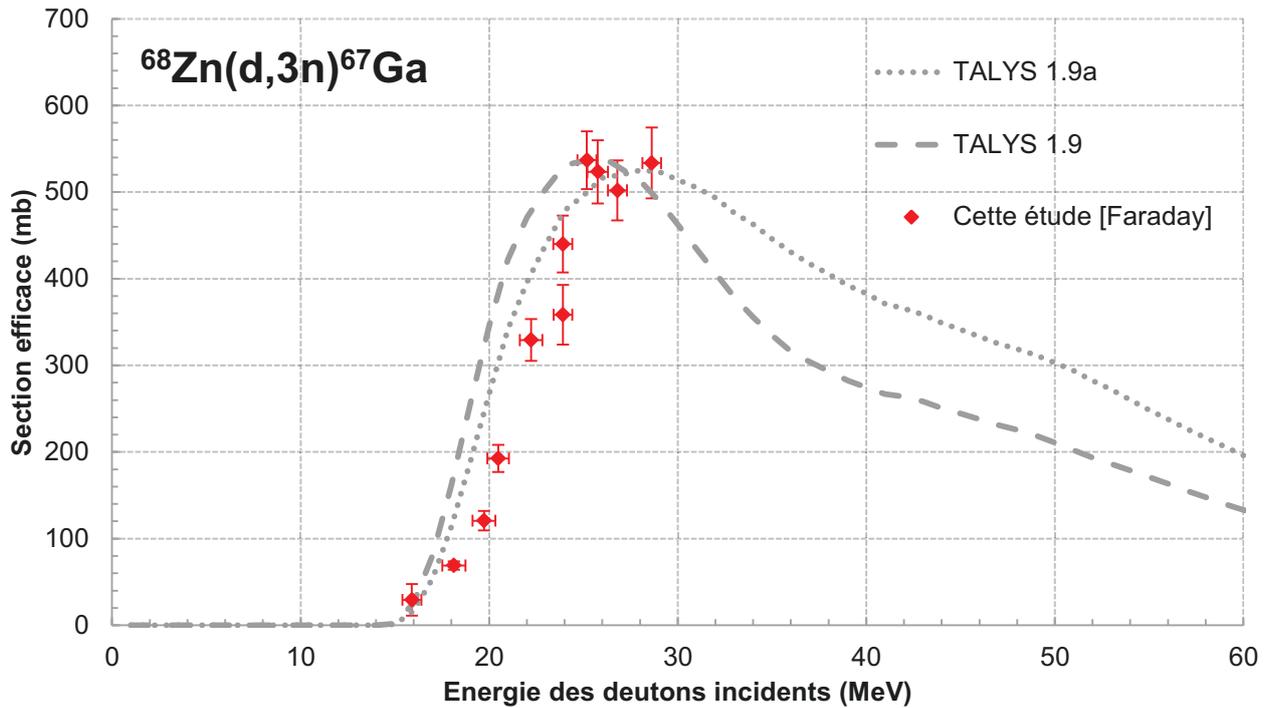
Nous pouvons voir que les isotopes exposés dans ce tableau possèdent des temps de demi-vie très faibles devant celui du  $^{67}\text{Cu}$ . Après sa production, un temps d'attente de 51 min (10 périodes du  $^{66}\text{Cu}$ ) précédant l'extraction chimique du cuivre permettrait de

diminuer de plus de 1000 fois la population de ces isotopes. Cependant, le  $^{65}\text{Cu}$  est stable et le  $^{64}\text{Cu}$  ne possède pas un temps de demi-vie aussi court. Le  $^{65}\text{Cu}$  étant stable, sa présence n'a pas de répercussions de radioprotection mais va impacter l'activité spécifique du  $^{67}\text{Cu}$ . Leur production peut être limitée en choisissant la bonne gamme d'énergie. Les énergies seuils des réactions produisant le  $^{65}\text{Cu}$  et  $^{64}\text{Cu}$  sont 16,2 MeV et 26,4 MeV respectivement. Au regard de la section efficace de la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$ , la production de  $^{65}\text{Cu}$  ne pourra pas être empêchée mais nous pouvons choisir une énergie inférieure à 26 MeV pour ne pas produire de  $^{64}\text{Cu}$ . De plus, le  $^{64}\text{Cu}$  peut également être produit dans la feuille de  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  et sur le  $^{68}\text{Zn}$  ce qui implique qu'il y a trois voies de réactions supplémentaire  $^{62}\text{Ni}(d,\gamma)$ ,  $^{64}\text{Ni}(d,2n)$  et  $^{68}\text{Zn}(d,\alpha 2n)$  avec les énergies seuils 0 MeV, 4,8 MeV et 10,3 MeV respectivement. Malgré cela, le  $^{64}\text{Cu}$  n'a pas été détecté. Cela est lié à la fois à une probable faible production et à cause de sa faible émission de gamma (1346 keV à 0,5%).

### 3.2.1. Le radionucléide $^{67}\text{Ga}$

Si nous souhaitons obtenir exclusivement le  $^{67}\text{Cu}$ , le radionucléide  $^{67}\text{Ga}$  ne fait pas parti des contaminants car une extraction chimique permettrait de s'en acquitter. De plus, en choisissant une cible avec une abondance plus faible en  $^{68}\text{Zn}$  c'est-à-dire avec une cible hautement enrichie en  $^{70}\text{Zn}$ , il n'y aura quasiment plus production de  $^{67}\text{Ga}$  car, comme vu précédemment, l'énergie seuil de la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,5n)^{67}\text{Ga}$  est à 30,8 MeV. Cependant, il implique des complications sur l'analyse spectrométrique du  $^{67}\text{Cu}$ . Des données de sections efficaces de la réaction  $^{68}\text{Zn}(d,3n)^{67}\text{Ga}$  ont été acquises et sont présentées sur graphique en figure 5.13. Il n'existe pas de données sur cette réaction dans la littérature. Les résultats de cette étude, en rouge, sont présentés avec les valeurs calculées par le code TALYS sous deux versions. Nous pouvons voir qu'il y a une cohérence sur les valeurs du maximum de la section efficace entre les résultats de TALYS et ceux de cette étude. La section efficace est relativement élevée ce qui implique, malgré une concentration en  $^{68}\text{Zn}$  de 2,2 %, une production d'activité non négligeable de  $^{67}\text{Ga}$ . Pour ces deux combinaisons de modèles, les courbes TALYS semblent avoir la bonne amplitude sur cette gamme d'énergie. La version de TALYS dite « ajustée » semble être moins décalée en énergie.

Nous pouvons cependant nous poser la question de la co-production de  $^{67}\text{Cu}$  par la réaction  $^{68}\text{Zn}(d,x)$ . Une série de données de section efficace existe et donne des résultats d'au maximum 0,5 mb. Ces valeurs étant très basse et avec une présence à hauteur de 2,2 %, la production de  $^{67}\text{Cu}$  par la réaction  $^{68}\text{Zn}(d,x)$  est négligée.

Figure 5.13 - Sections efficaces de la réaction  $^{68}\text{Zn}(d,3n)^{67}\text{Ga}$ .

### 3.2.2. Le radionucléide $^{61}\text{Cu}$

La feuille support du dépôt est une feuille de  $^{\text{nat}}\text{Ni}$ , ce qui implique la production d'isotopes du cuivre. Dans la perspective d'obtenir exclusivement du  $^{67}\text{Cu}$ , la feuille support doit alors être différente. Elle pourrait être une feuille d'argent par exemple [32], [88], [100], [101].

La réaction  $^{\text{nat}}\text{Ni}(d,x)^{61}\text{Cu}$  a eu lieu et le radionucléide  $^{61}\text{Cu}$  (3,4h) a été détecté lors des comptages courts effectués peu de temps après l'irradiation. Cette réaction est une réaction moniteur dont l'IAEA propose une courbe de section efficace. Les autres isotopes du cuivre n'ont pas été détectés car ils possèdent des temps de demi-vie très courts. Les résultats de sections efficaces de la réaction  $^{\text{nat}}\text{Ni}(d,x)^{61}\text{Cu}$  sont présentés, en rouge, dans la figure 5.14 et ont été obtenus à l'aide de la mesure de courant par la Faraday.

Les résultats obtenus sont en accord avec les différentes données expérimentales disponibles dans la littérature et avec la courbe de l'IAEA. Un grand nombre de mesures a été fait à plus de 10 MeV mais cela n'inclut pas le pic. Autour de la région du pic, 7 MeV, une grande dispersion est visible entre les données. Nous pouvons très rapidement apercevoir le point à plus haute énergie, très haut avec de grandes incertitudes, cela vient d'un comptage tardif. Le  $^{61}\text{Cu}$  était à la limite de pouvoir être détecté c'est-à-dire que trop peu de gamma ont été détectés. L'échantillon aurait pu être placé plus près de la tête de détection mais le  $^{61}\text{Cu}$  n'est pas le seul radionucléide présent dans la feuille ce qui aurait impliqué un temps mort élevé. Cependant, les

incertitudes associées à cette mesure sont en accord avec les autres données expérimentales et la courbe de l'AIEA. L'ensemble des résultats obtenus pour cette réaction montre que les mesures de cette étude sont correctes.

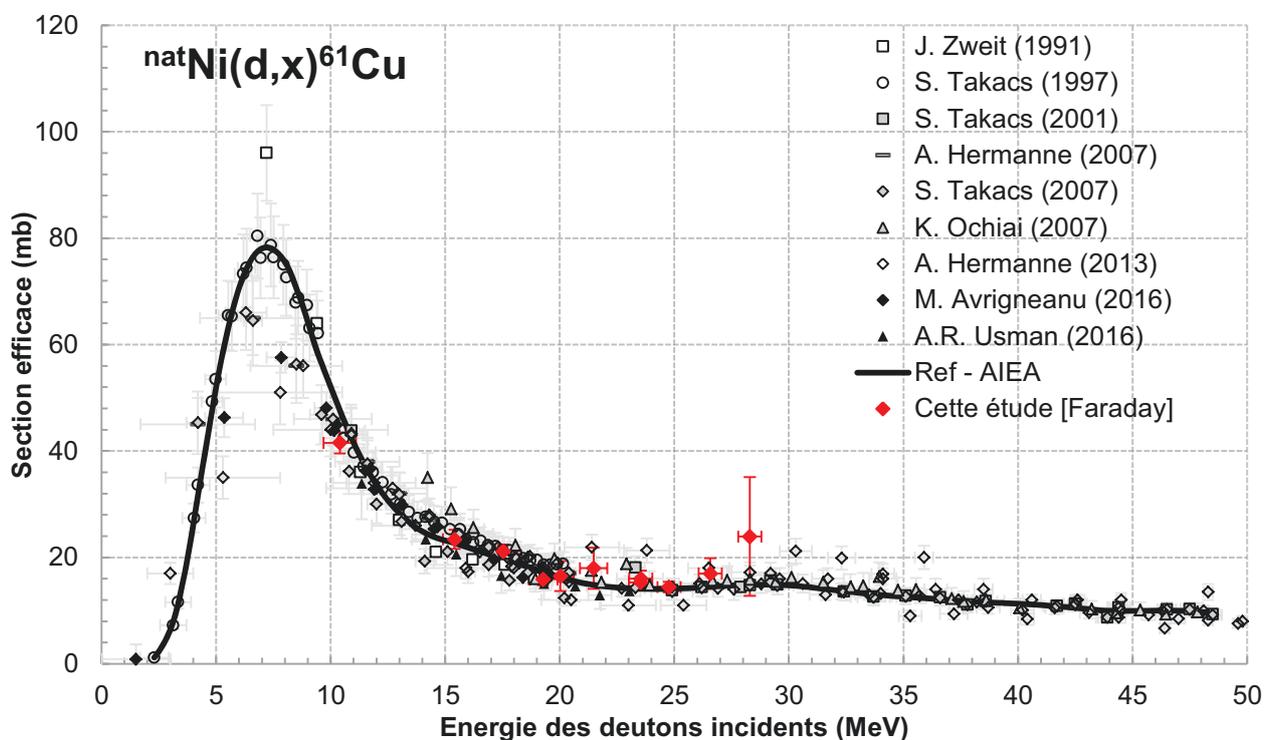


Figure 5.14 - Sections efficaces de la réaction  ${}^{\text{nat}}\text{Ni}(d,x){}^{61}\text{Cu}$  [40], [46], [47], [49], [50], [74], [75], [102].

### 3.2.3. Le radionucléide ${}^{66}\text{Ni}$

Lors de l'interaction des deutons sur la cible de  ${}^{70}\text{Zn}$ , le radionucléide  ${}^{66}\text{Ni}$  va être produit. L'énergie seuil le produisant est de 6,1 MeV. La problématique du radionucléide  ${}^{66}\text{Ni}$  (54,6 h) est qu'il est un générateur de  ${}^{66}\text{Cu}$  (5,1 min). Nous avons vu précédemment que nous souhaitons attendre 51 min pour grandement diminuer les populations des isotopes du cuivre à vie très courte mais cela ne pourra pas se faire si un noyau père est présent. Afin de s'affranchir de cette alimentation par décroissance, nous pouvons envisager de doubler l'extraction chimique du cuivre. Une première après irradiation afin de se séparer des noyaux pères et une deuxième après 51 min après décroissance des radionucléides à vie très courtes. Ainsi, nous nous affranchissons de l'impact des noyaux pères sur la pureté de l'échantillon final.

Le  ${}^{66}\text{Ni}$  est un radionucléide qui n'émet pas de gamma lors de sa décroissance. Il ne peut donc pas être analysé au spectromètre gamma. Il est indirectement accessible via les émissions de  ${}^{66}\text{Cu}$ .

### 3.3. L'estimation de l'activité produite en cible épaisse

Dans un objectif de produire le  $^{67}\text{Cu}$  en grande quantité par la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$ , il est possible d'estimer l'activité produite par un calcul de rendement. A partir des données expérimentales disponibles, J.Kozempel (2012) et celles de cette étude, la courbe de rendement est tracée en figure 5.15. Les détails de la méthode ont été décrits dans le chapitre II partie 7.

Nous avons vu que le pic de la section efficace de la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$  est étalé et correspond à un maximum aux alentours de 30 mb. En regardant les productions des isotopes de cuivre, nous avons vu que le principal contaminant était le  $^{64}\text{Cu}$  produit à partir de 26,4 MeV. En considérant le  $^{65}\text{Cu}$  comme non contraignant car stable, la gamme d'énergie sélectionnée pour estimer l'activité produite de  $^{67}\text{Cu}$  est de 16-26 MeV. Cette gamme d'énergie correspond à une épaisseur de  $^{70}\text{Zn}$  de 576  $\mu\text{m}$ .

En fixant l'intensité faisceau à 1  $\mu\text{A}$ , une heure d'irradiation et une pureté de cible à 99,99%, l'estimation de l'activité produite sur la gamme d'énergie 16-26 MeV est de 6,4 MBq. La courbe de rendement obtenue à partir des valeurs expérimentales est présentée dans la figure 5.14.

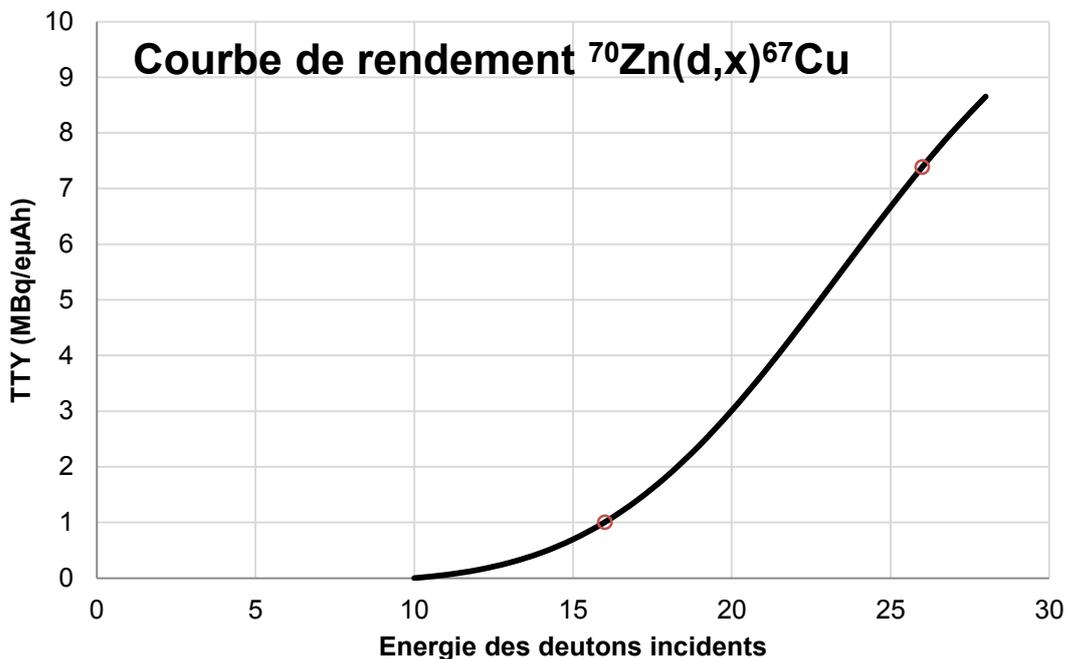


Figure 5.15 - Courbe de rendement pour la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$  avec les points en rouge délimitant la gamme d'énergie sélectionnée.

## 4. Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à la production de  $^{67}\text{Cu}$  qui est un radionucléide prometteur pour la thérapie bêta-. L'étude concerne la réaction utilisant des deutons et une cible enrichie de  $^{70}\text{Zn}$ . Cette réaction a suscité notre intérêt grâce à des valeurs hautes de section efficace devant celles des autres réactions et la possibilité de contrôler la production de  $^{64}\text{Cu}$ . De plus, il existe une seule série de données de cette section efficace et elle ne forme que la première partie de la courbe de la section efficace. L'objectif a été de déterminer la région du maximum et de compléter cette section efficace afin de faire une estimation de l'activité qui peut être produite.

Les feuilles de  $^{70}\text{Zn}$  n'existant pas à l'achat, une problématique de fabrication de cible adaptée aux expériences « stacked foils » s'est posée. La solution retenue a été l'électrodéposition sur des feuilles de  $^{\text{nat}}\text{Ni}$ . Cette technique a bien fonctionné et a permis de mesurer les valeurs de section efficace de la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$ . Les résultats de cette étude s'accordent bien avec les valeurs de J. Kozempel (2012) dans la plage où elles sont présentes. Une autre problématique liée à la pureté de la cible a été soulevée. En effet, le  $^{68}\text{Zn}$  étant présent à 2,2 %, la production de  $^{67}\text{Ga}$  par la réaction  $^{68}\text{Zn}(d,x)$ , émetteur de gamma aux mêmes énergies que ceux du  $^{67}\text{Cu}$ , a été prise en compte. Une cible enrichie en  $^{70}\text{Zn}$  avec une plus grande pureté pourrait permettre de s'affranchir de cette problématique.

D'autres résultats ont été acquis notamment pour des réactions moniteurs. Les valeurs obtenues s'accordent bien avec les différentes données expérimentales disponibles dans la littérature et avec les courbes recommandées par l'AIEA. Cela montre la fiabilité des résultats obtenus. Ces nouvelles données pourront également permettre d'affiner localement les courbes moniteurs. Nous avons vu que les modélisations de TALYS donnent une estimation convenable pour la réaction  $^{68}\text{Zn}(d,3n)^{67}\text{Ga}$  ce qui est moins le cas pour la réaction  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$ . Les mesures de cette étude permettent d'étendre les bases de données de section efficace. Elles peuvent aussi venir contraindre les modèles théoriques comme ceux inclus dans TALYS.

# Chapitre VI. Etude de la valorisation des produits de fission

---

Pour des raisons de confidentialité, cette étude ne sera pas présentée dans ce manuscrit de thèse.

## L'objectif et la méthodologie

L'objectif de cette étude était la valorisation des produits de fission issus du cycle électronucléaire pour des applications médicales. L'idée était de produire, à partir des produits de fissions, des radionucléides pouvant être utilisés dans des applications médicales. Un inventaire des produits fissions a été réalisé et a servi de base d'étude. Une région d'étude, correspondant aux radionucléides pouvant être produit avec un accélérateur du type C70 identique à celui d'ARRONAX, a été établie. Les radionucléides dans la région d'étude pouvant être utilisés en médecine nucléaire ont été identifiés en appliquant des critères sur les périodes radioactives et les types de radiations émises. Pour les isotopes sélectionnés, nous avons ensuite réalisé l'étude des voies de production de ces radionucléides. Elle a été élargie à l'activation neutronique pour certains candidats retenus. Pour chacune des voies de réaction présentant un intérêt, l'étude de la coproduction de contaminants a été effectuée. Ainsi, une gamme d'énergie a été établie sur la base de l'optimisation de la production et la limitation de la production de contaminants. Dans certain cas, des solutions permettant d'améliorer l'activité spécifique du produit final sont proposées. Elles sont basées sur l'étude des temps de demi-vie des contaminants et sur leurs propriétés chimiques (séparation chimique). Une fois la gamme d'énergie définie, une estimation de l'activité pouvant être produite a été calculée par la méthode TTY. Les réactions ont été comparées entre elles suivant différents critères : de ciblerie, du choix des particules incidentes et de leur énergie, de la coproduction de contaminants, des éventuelles problématiques autour de l'activité spécifique et de l'estimation de l'activité pouvant être produite.



## Conclusion et perspectives

L'intérêt des radionucléides dans les applications médicales a été présenté. Leur production doit être optimisée c'est-à-dire qu'il faut limiter la production de contaminants tout en maximisant la production du radionucléide d'intérêt. Plusieurs voies de réaction peuvent être utilisées en général pour la production et il faut arbitrer entre l'amplitude des sections efficaces, le choix de la combinaison cible/projectile, l'énergie de la particule incidente... La bonne connaissance des sections efficaces permet de définir le mode de production optimal d'un radionucléide.

Dans ces études, des mesures de sections efficaces de production ont été effectuées. Pour cela, la technique des « stacked foils » a été utilisée. Deux méthodes permettant de déduire le flux de particules ont été appliquées ; l'une d'elle utilisant des feuilles moniteurs et l'autre mesurant l'intensité du faisceau de particules. La première nécessite la connaissance d'une réaction moniteur et de ce fait, la précision des mesures dépend des incertitudes sur les valeurs de la section efficace moniteur, souvent supérieure à 10%. La deuxième méthode s'affranchit de cette dépendance grâce à l'utilisation d'une cage de Faraday instrumentée pour la mesure du courant faisceau. Elle permet alors de réduire l'incertitude associée à la mesure du flux de particules incidentes et donne des valeurs de sections efficaces avec une incertitude inférieure à 5%. Cette cage de Faraday a fait l'objet d'une étude approfondie afin de déterminer les paramètres de fonctionnement optimaux. Le bon fonctionnement de la cage de Faraday a été démontré. Cette étude réalisée principalement pour les protons doit être étendue à l'ensemble des particules disponibles à ARRONAX. Cette méthode dite absolue a permis la mesure de sections efficaces de réactions parmi lesquelles celles de réactions moniteurs. Les résultats obtenus sont en accord avec les courbes dites de référence, recommandées par l'AIEA.

Les radionucléides  $^{197m}\text{Hg}$  et  $^{67}\text{Cu}$  ont suscité notre intérêt. Des voies de productions alternatives ont été investiguées. L'utilisation d'un faisceau de deutons sur une cible parfois enrichie a montré des voies de réactions pertinentes permettant l'optimisation de la production du radionucléide d'intérêt et la limitation de la production des contaminants. Des mesures de sections efficaces de ces réactions ont été effectuées. Ces valeurs ont permis de montrer l'intérêt de la voie de production  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$ . La technique et les méthodes employées pour ces mesures pourront être réutilisées pour d'autres réactions dans l'avenir, notamment grâce aux faibles incertitudes des résultats obtenus.

Une étude sur la valorisation des produits de fission a été effectuée dans le but d'identifier l'intérêt d'utiliser les produits fission pour la production de radionucléides

pouvant avoir un intérêt médical. Dans une première étape, ces radionucléides ont été identifiés. Ensuite, les voies de réaction permettant la production des radionucléides d'intérêt à partir des produits de fission ont été déterminées. Des études similaires pourront être menées sur d'autres déchets générés par la filière électronucléaire.

## Bibliographie

- [1] “Chart of Nuclides from National Nuclear Data Center (NNDC).” [Online]. Available: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>.
- [2] Z. RANDA and K. SVOBODA, “Excitation functions and yields of the ( d , p ) reactions on natural molybdenum for deuteron energies less than 13 MeV,” *J. Inorg. Nucl. Chem.*, vol. 38, no. 12, pp. 2121–2123, 1977.
- [3] A. Righetti *et al.*, “Usefulness of preoperative and postoperative Tc-99m (Sn)-pyrophosphate scans in patients with ischemic and valvular heart disease,” *Am. J. Cardiol.*, vol. 39, no. 1, pp. 43–49, 1977.
- [4] T. B. Bartel *et al.*, “F18-fluorodeoxyglucose positron emission tomography in the context of other imaging techniques and prognostic factors in multiple myeloma,” *Blood*, vol. 114, no. 10, pp. 2068–2076, 2009.
- [5] C. Parker, S. Nilsson, and D. Heinrich, “Alpha emitter radium-223 and survival in metastatic prostate cancer,” *new Engl. J. Med.*, 2013.
- [6] F. Kraeber-Bodéré *et al.*, “Tumor immunotargeting using innovative radionuclides,” *Int. J. Mol. Sci.*, vol. 16, no. 2, pp. 3932–3954, 2015.
- [7] P. D. Grimm, J. C. Blasko, J. E. Sylvester, R. M. Meier, and W. Cavanagh, “10-Year biochemical (prostate-specific antigen) control of prostate cancer with 125I brachytherapy,” *Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys.*, vol. 51, no. 1, pp. 31–40, 2001.
- [8] G. Borghede *et al.*, “Combined treatment with temporary short-term high dose rate iridium-192 brachytherapy and external beam radiotherapy for irradiation of localized prostatic carcinoma,” *Radiother. Oncol.*, vol. 44, no. 3, pp. 237–244, 1997.
- [9] World Nuclear Association, “Radioisotopes in Medicine,” 2019. [Online]. Available: <https://www.world-nuclear.org/information-library/non-power-nuclear-applications/radioisotopes-research/radioisotopes-in-medicine.aspx>.
- [10] J. L. M. Venselaar, P. H. van der Giessen, and W. J. F. Dries, “Measurement and calculation of the dose at large distances from brachytherapy sources : Cs-137, Ir-192, and Co-60,” *Med. physics, Int. J. Med. Phys. Res. Pract.*, vol. 23, no. 4, pp. 537–543, 1996.
- [11] F. Rösch, H. Herzog, and S. M. Qaim, “The beginning and development of the theranostic approach in nuclear medicine, as exemplified by the radionuclide pair 86 Y and 90 Y,” *Pharmaceuticals*, vol. 10, no. 2, pp. 1–28, 2017.
- [12] R. P. Baum and H. R. Kulkarni, “Theranostics: From molecular imaging using Ga-68 labeled tracers and PET/CT to personalized radionuclide therapy - the bad berka experience,” *Theranostics*, vol. 2, no. 5, pp. 437–447, 2012.

- [13] W. R. Leo, *Technique for Nuclear and Particle Physics Experiments*. Springer-Verlag, 2006.
- [14] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and M. D. Ziegler, Programme informatique, "SRIM: The stopping and range of ions in matter." version 2013.
- [15] IBA, W. Kleeven, and S. Zaremba, "Energy definition for extracted beams in the C70 cyclotron," communication interne, 2009.
- [16] H. Paradis, "Développement de la mesure par spectrométrie gamma en coïncidence," *hal Arch. thèse Dr.*, université Paris-Saclay, 2016.
- [17] S. Y. F. Chu, L. P. Ekström, and R. B. Firestone, "The Lund/LBNL Nuclear Data Search version 2.0, February 1999." [Online]. Available: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>.
- [18] J. Fitzgerald and J. C. Services's, Programme informatique, "Fitzpeaks Gamma Analysis Software version 3.66." .
- [19] J. K. Tuli, "Nuclear Wallet cards," *Brookhaven Natl. Lab.*, vol. 45, no. 2, pp. 179–180, 2011.
- [20] M. Sitarz, Programme informatique, "Radionuclide Yield Calculator (RYC) v2.0." 2018.
- [21] A.J. Koning and D. Rochman, "Modern Nuclear Data Evaluation With The TALYS Code System", *Nuclear Data Sheets* 113, 2012.
- [22] C. Duchemin, "Étude de voies alternatives pour la production de radionucléides innovants pour les applications médicales," *hal Arch. thèse Dr.*, université de Nantes, 2015.
- [23] A. Guertin *et al.*, "How nuclear data collected for medical radionuclides production could constrain nuclear codes," *EPJ Web Conf.*, vol. 146, p. 08008, 2017.
- [24] S. Watanabe, "High energy scattering of deuterons by complex nuclei," *Nucl. Phys.*, vol. 8, no. C, pp. 484–492, 1958.
- [25] Y. Han, Y. Shi, and Q. Shen, "Deuteron global optical model potential for energies up to 200 MeV," *Phys. Rev. C - Nucl. Phys.*, vol. 74, no. 4, pp. 1–11, 2006.
- [26] P. Demetriou, C. Grama, and S. Goriely, "Improved global  $\alpha$ -optical model potentials at low energies," *Nucl. Phys. A*, vol. 707, no. 1–2, pp. 253–276, 2002.
- [27] H. Gruppelaar, P. Nagel, and P. E. Hodgson, "Pre-equilibrium processes in nuclear reaction theory: the state of the art and beyond," *La Riv. Del Nuovo Cim. Ser. 3*, vol. 9, no. 7, pp. 1–46, 1986.
- [28] E. Gadioli and P. Hodgson, "Pre-equilibrium nuclear reactions," *Oxford Univ. Press*, 1992.

- [29] S. Hilaire, C. Lagrange, and A. J. Koning, "Comparisons between various width fluctuation correction factors for compound nucleus reactions," *Ann. Phys. (N. Y.)*, vol. 306, no. 2, pp. 209–231, 2003.
- [30] S. Goriely, S. Hilaire, and A. J. Koning, "Improved microscopic nuclear level densities within the Hartree-Fock-Bogoliubov plus combinatorial method," *Phys. Rev. C - Nucl. Phys.*, vol. 78, no. 6, pp. 1–14, 2008.
- [31] A. Hermanne *et al.*, "Reference Cross Sections for Charged-particle Monitor Reactions," *Nucl. Data Sheets*, vol. 148, pp. 338–382, 2018.
- [32] E. Garrido, "Production de radioisotopes: de la mesure de la section efficace à la production," *hal Arch. thèse Dr.*, université de Nantes, 2011.
- [33] F. Poirier *et al.*, "STUDIES AND UPGRADES ON THE C70 CYCLOTRON ARRONAX," *Proc. Cyclotrons2016*, pp. 235–237, 2016.
- [34] H. Kudo and K. Shima, "Energy spectra of secondary electrons induced by fast ions under channeling conditions," *Phys. Rev. B*, vol. 38, no. 1, pp. 38–44, 1988.
- [35] F. S. Al-Saleh, A. A. Al-Harbi, and A. Azzam, "Excitation functions of proton induced nuclear reactions on natural copper using a medium-sized cyclotron," *Radiochim. Acta*, vol. 94, no. 8, pp. 391–396, 2006.
- [36] M. U. Khandaker, M. S. Uddin, K. S. Kim, Y. S. Lee, and G. N. Kim, "Measurement of cross-sections for the (p, xn) reactions in natural molybdenum," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 262, no. 2, pp. 171–181, 2007.
- [37] T. Siiskonen *et al.*, "Excitation functions of proton-induced reactions in natCu in the energy range 7-17 MeV," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 67, no. 11, pp. 2037–2039, 2009.
- [38] M. Shahid, K. Kim, H. Naik, M. Zaman, S. C. Yang, and G. Kim, "Measurement of excitation functions in proton induced reactions on natural copper from their threshold to 43 MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 342, pp. 305–313, 2015.
- [39] P. Kopecky, "Proton Beam Monitoring via the in Copper," vol. 36, no. 8, pp. 657–661, 1985.
- [40] N. of N. R. D. C. (NRDC), "Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR)." [Online]. Available: <https://www.nndc.bnl.gov/exfor/exfor.htm>.
- [41] R. Michel *et al.*, "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. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 129, no. 2, pp. 153–193, 1997.

- [42] A. Hermanne, F. Szelecsenyi, M. Sonck, S. Takacs, F. Tarkanyi, and P. Van den Winkel, "New cross section data on  $^{68}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$  and  $(\text{nat})\text{Zn}(p, xn)^{67}\text{Ga}$  nuclear reactions for the development of a reference data base," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 240, no. 2, pp. 623–630, 1999.
- [43] F. Szelecsényi *et al.*, "Excitation function for the  $\text{natTi}(p,x)^{48}\text{V}$  nuclear process: Evaluation and new measurements for practical applications," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 174, no. 1–2, pp. 47–64, 2001.
- [44] S. Takács, F. Tárkányi, M. Sonck, and A. Hermanne, "New cross-sections and intercomparison of proton monitor reactions on Ti, Ni and Cu," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 188, no. 1–4, pp. 106–111, 2002.
- [45] M. S. Uddin, M. Hagiwara, F. Tarkanyi, F. Ditroi, and M. Baba, "Experimental studies on the proton-induced activation reactions of molybdenum in the energy range 22–67 MeV," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 60, no. 6, pp. 911–920, 2004.
- [46] E. Z. Buthelezi, F. M. Nortier, and I. W. Schroeder, "Excitation functions for the production of  $^{82}\text{Sr}$  by proton bombardment of  $\text{natRb}$  at energies up to 100 MeV," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 64, no. 8, pp. 915–924, 2006.
- [47] S. Takács, F. Tárkányi, B. Király, A. Hermanne, and M. Sonck, "Evaluated activation cross sections of longer-lived radionuclides produced by deuteron induced reactions on natural nickel," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 260, no. 2, pp. 495–507, 2007.
- [48] A. Hermanne, S. Takács, R. Adam-Rebeles, F. Tárkányi, and M. P. Takács, "New measurements and evaluation of database for deuteron induced reaction on Ni up to 50 MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 299, pp. 8–23, 2013.
- [49] N. Amjed, F. Tárkányi, F. Ditrói, S. Takács, and H. Yuki, "Activation cross-sections of deuteron induced reaction of natural Ni up to 40 MeV," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 82, pp. 87–99, 2013.
- [50] M. Avrigeanu *et al.*, "Deuteron-induced reactions on Ni isotopes up to 60 MeV," *Phys. Rev. C*, vol. 94, no. 1, pp. 1–16, 2016.
- [51] A. R. Usman, M. U. Khandaker, H. Haba, M. Murakami, and N. Otuka, "Measurements of deuteron-induced reaction cross-sections on natural nickel up to 24 MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 368, pp. 112–119, 2016.
- [52] F. Tárkányi *et al.*, "New experimental data, compilation and evaluation for the  $\text{natCu}(\alpha, x)^{66}\text{Ga}$ ,  $\text{natCu}(\alpha, x)^{67}\text{Ga}$  and  $\text{natCu}(\alpha, x)^{65}\text{Zn}$  monitor reactions," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 168, no. 2, pp. 144–168, 2000.

- [53] F. Szelecsényi, K. Suzuki, Z. Kovács, M. Takei, and K. Okada, "Alpha beam monitoring via nat Cu + alpha processes in the energy range from 40 to 60 MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 184, no. 4, pp. 589–596, 2001.
- [54] F. Szelecsényi, Z. Kovács, K. Nagatsu, K. Fukumura, K. Suzuki, and K. Mukai, "Investigation of direct production of  $^{68}\text{Ga}$  with low energy multiparticle accelerator," *Radiochim. Acta*, vol. 100, no. 1, pp. 5–11, 2012.
- [55] M. Shahid, K. Kim, G. Kim, M. Zaman, and M. Nadeem, "Measurement of excitation functions in alpha induced reactions on nat Cu," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 358, pp. 160–167, 2015.
- [56] A. R. Usman, M. U. Khandaker, H. Haba, N. Otuka, M. Murakami, and Y. Komori, "Production cross-sections of radionuclides from  $\alpha$ -induced reactions on natural copper up to 50 MeV," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 114, pp. 104–113, 2016.
- [57] Ivan S. Ciric, James L. Quinn, Paul C. Bucy "Mercury 197 and Technetium 99m brain Scans in the diagnosis of Non-Neoplastic Intracranial lesions" *Journal of Neurosurgery*, pp. 119–125.
- [58] W. J. MEREDITH and J. B. MASSEY, *Fundamental physics of radiology*, Third edit., pp. 417-419, 1977.
- [59] R. R. Armas, "Clinical studies with spleen-specific radiolabeled agents," *Semin. Nucl. Med.*, vol. 15, no. 3, pp. 260–275, 1985.
- [60] A. Hermanne, F. Tárkányi, S. Takács, Y. N. Shubin, and S. Kovalev, "Experimental determination of activation cross section of alpha-induced nuclear reactions on natPt," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 251, no. 2, pp. 333–342, 2006.
- [61] S. Sudár and S. M. Qaim, "Cross sections for the formation of  $\text{Hg}^{195\text{m,g}}$ ,  $\text{Hg}^{197\text{m,g}}$  and  $\text{Au}^{196\text{m,g}}$  in alpha and  $\text{He}^3$ -particle induced reactions on Pt: Effect of level density paramaters on the calculated isomeris cross sections ratio," *Phys. Rev. C*, vol. 73, no. 3, p. 034613, 2006.
- [62] T. Matzuk, "Neutron Production in Ag, Ta, Au, Pt and Pb by the Interaction of 7.5-14 MeV Protons" vol. 1, pp. 21–26, 1970.
- [63] G. Chodil, R. C. Jopson, H. Mark, C. D. Swift, R. G. Thomas, and M. K. Yates, "(p, n) and (p, 2n) cross sections of nine elements between 7.0 and 15.0 MeV" *Nucl. Phys.*, vol. 93, pp. 648–672, 1967.
- [64] E. K. Elmaghraby, K. F. Hassan, H. Omara, and Z. A. Saleh, "Production of the mercury-197 through proton induced reaction on gold," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 68, no. 9, pp. 1694–1698, 2010.

- [65] R. Vandenbosch and J.R. Huizenga, "Isomeric Cross-Section Ratios for Reactions Producing the Isomeric Pair Hg197,197m," *Phys. Rev.*, vol. 120, no. 4, 1960.
- [66] N. Poffé *et al.*, "Réactions ( p , xn ) induites dans l'or par des protons de 155 MeV," *Le J. Phys. et le radium*, vol. 21, p. 343, 1960.
- [67] L. F. Hansen, R. C. Jopson, H. Mark, and C. D. Swift, "Ta181(p, n)W181 and Au197(p, n)Hg197 excitation functions between 4 and 13 MeV," *Nucl. Phys.*, vol. 30, no. C, pp. 389–398, 1962.
- [68] N. Chevarier, A. Chevarier, and A. Demeyer, "Réactions induites sur l'or par des deutons de 10 à 70 MeV," *Le J. de Phys.*, vol. 32, p. 483, 1971.
- [69] F. Tárkányi *et al.*, "Activation cross-sections of deuteron induced nuclear reactions on gold up to 40MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 269, no. 12, pp. 1389–1400, 2011.
- [70] M. Walther *et al.*, "Theranostic mercury: 197(m)Hg with high specific activity for imaging and therapy," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 97, pp. 177–181, 2015.
- [71] F. Tárkányi, A. Hermanne, F. Ditrói, S. Takács, R. Adam Rebeles, and A. V. Ignatyuk, "New data on cross-sections of deuteron induced nuclear reactions on gold up to 50 MeV and comparison of production routes of medically relevant Au and Hg radioisotopes," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 362, pp. 116–132, 2015.
- [72] C. R. Patra, R. Bhattacharya, D. Mukhopadhyay, and P. Mukherjee, "Fabrication of Gold Nanoparticles for targeted therapy in pancreatic cancer," *Adv Drug Deliv Rev. PMC*, 62(3): 346–361, 2011.
- [73] A. Subercaze, A. Guertin, F. Haddad, C. Koumeir, V. Métivier, and N. Servagent, "Thick multi-layers analysis using high energy PIXE," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 406, pp. 104–107, 2017.
- [74] A. Subercaze, C. Koumeir, V. Métivier, N. Servagent, A. Guertin, and F. Haddad, "High energy PIXE: A tool to characterize multi-layer thick samples," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 417, pp. 41–45, 2018.
- [75] S. Takács, M. Sonck, B. Scholten, A. Hermanne, and F. Tárkányi, "Excitation functions of deuteron induced nuclear reactions on (nat)Ti up to 20 MeV for monitoring deuteron beams," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 48, no. 5, pp. 657–665, 1997.
- [76] S. Takács *et al.*, "New cross-sections and intercomparison of deuteron monitor reactions on Al, Ti, Fe, Ni and Cu," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 174, no. 3, pp. 235–258, 2001.

- [77] K. Gagnon, M. A. Avila-Rodriguez, J. Wilson, and S. A. McQuarrie, "Experimental deuteron cross section measurements using single natural titanium foils from 3 to 9 MeV with special reference to the production of  $^{47}\text{V}$  and  $^{51}\text{Ti}$ ," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 268, no. 9, pp. 1392–1398, 2010.
- [78] M. U. Khandaker, H. Haba, J. Kanaya, and N. Otuka, "Excitation functions of (d,x) nuclear reactions on natural titanium up to 24 MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 296, pp. 14–21, 2013.
- [79] P. Jahn, H. J. Probst, A. Djalois, W. F. Davidson, and C. Mayer-Böricke, "Measurement and interpretation of  $^{197}\text{Au}(d, xnyp)$  excitation functions in the energy range from 25 to 86 MeV," *Nucl. Physics, Sect. A*, vol. 209, no. 2, pp. 333–347, 1973.
- [80] NIST (National Institute of Standards and Technology), programme informatique en ligne, "Stopping Powers and Ranges for Electrons (estar)", <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html> .
- [81] C. Alliot *et al.*, "Is there an interest to use deuteron beams to produce nonconventional radionuclides?," *Radiother. Oncol.*, vol. 118, no. May, p. S49, 2016.
- [82] A. Obata *et al.*, "Production of therapeutic quantities of  $^{64}\text{Cu}$  using a 12 MeV cyclotron," *Nucl. Med. Biol.*, vol. 30, no. 5, pp. 535–539, 2003.
- [83] E. L. Hetherington, P. J. Sorby, and J. Camakaris, "The preparation of high specific activity copper-64 for medical diagnosis," *Int. J. Radiat. Appl. Instrumentation. Part*, vol. 37, no. 12, pp. 1242–1243, 1986.
- [84] D. W. McCarthy *et al.*, "High purity production and potential applications of copper-60 and copper-61," *Nucl. Med. Biol.*, vol. 26, no. 4, pp. 351–358, 1999.
- [85] R. Laforest, F. Dehdashti, J. S. Lewis, and S. W. Schwarz, "Dosimetry of  $^{60}/^{61}/^{62}/^{64}\text{Cu}$ -ATSM: A hypoxia imaging agent for PET," *Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging*, vol. 32, no. 7, pp. 764–770, 2005.
- [86] F. Dehdashti *et al.*, "In vivo assessment of tumor hypoxia in lung cancer with  $^{60}\text{Cu}$ -ATSM," *Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging*, vol. 30, no. 6, pp. 844–850, 2003.
- [87] M. L. Bonardi *et al.*, "Cross section studies on  $^{64}\text{Cu}$  with zinc target in the proton energy range from 141 down to 31 MeV," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 264, no. 1, pp. 101–105, 2005.
- [88] G. Pupillo, T. Sounalet, N. Michel, L. Mou, J. Esposito, and F. Haddad, "New production cross sections for the theranostic radionuclide  $^{67}\text{Cu}$ ," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 415, no. October 2017, pp. 41–47, 2018.

- [89] F. Szelecsényi, G. F. Steyn, S. G. Dolley, Z. Kovács, C. Vermeulen, and T. N. van der Walt, "Investigation of the  $^{68}\text{Zn}(p, 2p)^{67}\text{Cu}$  nuclear reaction: New measurements up to 40 MeV and compilation up to 100 MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 267, no. 11, pp. 1877–1881, 2009.
- [90] T. Stoll, S. Kastleiner, Y. N. Shubin, H. H. Coenen, and S. M. Qaim, "Excitation functions of proton induced reactions on  $^{68}\text{Zn}$  from threshold up to 71 MeV, with specific reference to the production of  $^{67}\text{Cu}$ ," *Radiochim. Acta*, vol. 90, no. 6, pp. 309–313, 2002.
- [91] N. T. Porile, S. Tanaka, H. Amano, M. Furukawa, S. Iwata, and M. Yagi, "Nuclear reactions of  $^{69}\text{Ga}$  and  $^{71}\text{Ga}$  with 13–56 MeV protons," *Nucl. Phys.*, vol. 43, no. C, pp. 500–522, 1963.
- [92] S. Takacs, F. Tarkanyi, and Z. Kovacs, "Excitation function of alpha-particle induced nuclear reactions on natural nickel," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B*, vol. 113, pp. 424–428, 1996.
- [93] Y. Skakun and S. M. Qaim, "Excitation function of the  $^{64}\text{Ni}(\alpha, p)^{67}\text{Cu}$  reaction for production of  $^{67}\text{Cu}$ ," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 60, no. 1, pp. 33–39, 2004.
- [94] N. T. Porile and D. L. Morrison, "Reactions of  $^{63}\text{Cu}$  and  $^{65}\text{Cu}$  with alpha particles," *Phys. Rev. journals Arch.*, vol. 116, no. 5, p. 1193, 1959.
- [95] M. U. Khandaker, H. Haba, M. Murakami, and N. Otuka, "Production cross-sections of long-lived radionuclides in deuteron-induced reactions on natural zinc up to 23 MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 346, pp. 8–16, 2015.
- [96] F. Tárkányi, S. Takács, F. Ditrói, A. Hermanne, M. Sonck, and Y. Shubin, "Excitation functions of deuteron induced nuclear reactions on natural zinc up to 50 MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 217, no. 4, pp. 531–550, 2004.
- [97] D. Williams and J. Irvine, "Nuclear excitation functions and thick-target yields:  $\text{Zn}+d$  and  $^{40}\text{Ar}(d, a)$ ," *Phys. Rev.*, vol. 130, no. 1, 2005.
- [98] D. Williams and J. Irvine, "Nuclear Excitation Functions:  $^{40}\text{Ar}$ ,  $^{68}\text{Zn}(d, \text{He}^3)$ ," *Phys. Rev.*, vol. 130, no. 1, pp. 256–264, 1963.
- [99] J. Kozempel, K. Abbas, F. Simonelli, A. Bulgheroni, U. Holzwarth, and N. Gibson, "Preparation of  $^{67}\text{Cu}$  via deuteron irradiation of  $^{70}\text{Zn}$ ," *Radiochim. Acta*, vol. 100, no. 7, pp. 419–423, 2012.
- [100] T. Sounalet, "Élaboration et optimisation de cibles dédiées à la production de radio-isotopes innovants pour la recherche médicale ( $^{67}\text{Cu}$ ,  $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ) au cyclotron ARRONAX," *Thèse Dr.*, 2014.
- [101] G. Pupillo, "Radioisotope production via accelerator for nuclear medicine applications," *Thèse Dr.*, p. 120, Ferrara university, 2013.

- [102] J. Zweit, A. M. Smith, S. Downey, and H. L. Sharma, "Excitation functions for deuteron induced reactions in natural nickel: Production of no-carrier-added  $^{64}\text{Cu}$  from enriched  $^{64}\text{Ni}$  targets for positron emission tomography," *Int. J. Radiat. Appl. Instrumentation. Part*, vol. 42, no. 2, pp. 193–197, 1991.

**Titre :** Isotopes radioactifs produits par voies non conventionnelles

**Mots clés :** applications médicales, section efficaces, faraday cup, mercure,  $^{197m}\text{Hg}$ , cuivre,  $^{67}\text{Cu}$

**Résumé :** La médecine nucléaire utilise des radionucléides pour le diagnostic et pour la thérapie. La tendance suivie par la médecine nucléaire est de s'adapter de plus en plus à chaque patient. Pour arriver à cet objectif, une large gamme de radionucléides doit être disponible pour répondre aux besoins des médecins. Une approche théranostique (thérapie et diagnostic) peut être mise en place dès la conception du médicament permettant d'orienter la médecine vers une médecine personnalisée.

Dans cette optique, des études de production de radionucléides innovants par voies non conventionnelles (faisceaux de deutons, matériaux cibles non usuels : cibles enrichies ou produits de fission) ont été menées durant cette thèse. Les voies de réaction  $^{197}\text{Au}(d,2n)^{197m}\text{Hg}$  et  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$  ont été identifiées comme intéressantes et des mesures de leur section efficace ont été effectuées. Des paramètres de production permettant de limiter la production de contaminants sont proposés et des courbes de rendement pour ces réactions d'intérêt ont été calculées.

Pour effectuer ces mesures de sections efficaces, un nouveau dispositif expérimental a été mis en place permettant la mesure directe du flux de particules. Une étude approfondie sur les conditions optimales de fonctionnement a été effectuée et une incertitude sur la mesure a été définie à 2%. Ce dispositif permet l'obtention de valeurs de sections efficaces avec des incertitudes amoindries comparés à la méthode, communément utilisée, des réactions moniteurs qui possèdent des incertitudes de l'ordre de 10%.

Une étude sur la possibilité de valoriser une partie des produits de fission légers du cycle électronucléaire a été explorée. En effet ces produits de fission peuvent être utilisés comme cible pour produire des radionucléides d'intérêt pour la médecine. Des noyaux, pouvant être créés à partir de ces produits de fission, ont été identifiés et leurs voies de production, à partir de la connaissance des sections efficaces, ont été étudiées dans le détail. Les courbes de rendement ont été calculées pour les voies de réaction reconnues comme potentiellement intéressantes/réalisables.

**Title :** Radioactive isotopes produced by unconventional means

**Keywords :** medical applications, cross sections, faraday cup, mercury,  $^{197m}\text{Hg}$ , copper,  $^{67}\text{Cu}$

**Abstract:** Nuclear medicine uses radionuclides for diagnosis and therapy. Nowadays, the nuclear medicine tends to adapt more efficiently to each patient. To achieve this goal, a wide range of radionuclides must be available for the physician's requirements. A theranostic approach (therapy and diagnosis) can be implemented from drug's design in order to guide medicine towards a personalised medicine.

In this sense, studies on the production of innovative radionuclides using unconventional pathways (deuteron beams, non-standard target materials: enriched targets or fission products) were conducted during this thesis. Reaction pathways  $^{197}\text{Au}(d,2n)^{197m}\text{Hg}$  and  $^{70}\text{Zn}(d,x)^{67}\text{Cu}$  were identified as relevant and their cross section were measured. The production parameters limiting the production of contaminants were proposed and yields were calculated for the highlighted reactions.

For the measurements of these cross sections, a new experimental device has been designed to directly measure the particle flow. An intensive study on the optimal operational conditions was performed by defining an uncertainty of measurements of 2%. This device allows obtaining cross-section values with diminished uncertainties in comparison with the commonly used method of monitor reactions which have uncertainties of the order of 10%.

The possibility of recovering light fission products from spent nuclear fuel was also explored. These fission products can be considered as a target to produce radionuclides of medical interest. Some nuclei, which can be created from these fission products, have been identified and their production pathways, based on their cross sections, have been studied in detail. The yield curves were calculated for the reaction paths were recognised as potentially interesting/feasible for this mean.