



FR0104030

I.P.N. - 91406 ORSAY CEDEX

institut de physique nucléaire
CNRS - INP3 UNIVERSITÉ PARIS - SUD



Gestion INIS
Doc. Enreg. le 13/11/2000
N° TRN .F.R.O.1.0.4.0.3.0

15 septembre 00

IPNO T 00 08

THESE

**Etude de la Production de Faisceaux Riches en
Neutrons par Fission Induite par Neutrons Rapides**

Christophe LAU

Doctorat de l'Université PARIS 7

32 / 08

UNIVERSITE PARIS 7 – DENIS DIDEROT
UFR de Physique

Année 2000

THESE

pour l'obtention du Diplôme de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS 7

SPECIALITE : PHYSIQUE ET TECHNOLOGIE DES
GRANDS INSTRUMENTS

présentée et soutenue publiquement
par

Christophe LAU

le 15 septembre 2000

Titre :

*Etude de la Production de Faisceaux Riches en Neutrons par
Fission Induite par Neutrons Rapides*

Directeur de thèse :

Monsieur A.C. Mueller

JURY

Monsieur	C. Bourgeois	
Monsieur	S. Brandenburg	
Monsieur	D. Guerreau	Rapporteur
Monsieur	J. Lettry	Rapporteur
Monsieur	F. Vannucci	Président

Remerciements

Le travail présenté dans cette thèse a été effectué au sein de la division accélérateur de l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay.

Je souhaite remercier Monsieur S. Galès pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire ainsi que pour ses encouragements pour le projet de R&D PARRNe.

Je remercie particulièrement les personnes qui ont eut la gentillesse d'accepter de faire partie du jury de thèse. Merci à Monsieur F. Vannucci pour avoir accepté de présider le jury et merci à Messieurs C. Bourgeois et S. Brandenburg pour avoir bien voulu examiner mes travaux. Que Messieurs D. Guerreau et J. Lettry trouvent ici l'expression de ma gratitude pour avoir assuré avec soin l'écriture des rapports malgré un emploi du temps très chargé.

Je remercie chaleureusement Alex Mueller qui a dirigé ma thèse, pour toutes les discussions que nous avons eu, ses conseils et ses encouragements.

Que tous les membres du groupe source d'ions trouvent dans ces quelques lignes l'expression de ma reconnaissance et de ma sympathie. C'est au sein de ce groupe que j'ai quotidiennement travaillé durant ces trois dernières années. Merci à O. Bajeat, E. Cottereau, T. Desvignes, M. Ducourtieux, S. Essabaa, L. Kotfila, H. Lefort, J. Obert, J.C. Potier J.C. Putaux et C. Vogel.

Notamment j'exprime toute ma profonde gratitude à E. Cottereau pour le soin particulier qu'elle a mis à corriger mon manuscrit et à suivre mes travaux.

Une gratitude toute aussi profonde est exprimée à J. Obert pour m'avoir encadré avec tant de chaleur et d'enthousiasme au cours des réalisations de toutes nos expériences. Cette thèse n'aurait pu être réalisée sans lui.

Je remercie également toute l'équipe du SPR de l'IPN d'Orsay pour leur bienveillance et leur disponibilité au cours de nos nombreux échanges. Merci à F. Clapier, N. Pauwels et J. Proust.

Toute ma reconnaissance est également adressée à l'équipe de physicien du projet PARRNe dont j'ai apprécié la présence pendant les périodes d'expérience en ligne. Merci notamment à D. Guillemaud-Mueller, S. Kandri-Rody, F. Leblanc, I. Lhenry, F. Pougheon, B. Roussière, J. Sauvage, J.A. Scarpaci, O. Sorlin, C. Stodel et D. Verney. J'exprime une reconnaissance particulière à C. Donzaud, F. Ibrahim et C.F. Liang pour l'attention qu'ils ont apportée à ce manuscrit et leur nombreux conseils.

J'exprime aussi ma reconnaissance à toute l'équipe de l'accélérateur Tandem d'Orsay mené par D. Gardès pour leur implication dans ce projet de R&D.

Je remercie également tous les membres de la division accélérateur et particulièrement J. Arianer, F. Launay et B. Launé qui m'ont fait part de leur grande expérience avec bienveillance.

Mes remerciements sont adressés à mesdames les bibliothécaires pour leur aide dynamique et efficace. Je n'aurai pu rassembler toute l'information bibliographique nécessaire sans elles. Je remercie aussi M. Baichi, G. Bordier, D. Camel et S. Hubert pour leur disponibilité et les informations données sur les propriétés de l'uranium à haute température.

J'exprime également ma reconnaissance à tous les collaborateurs au projet PARRNe que j'ai pu rencontré. Je remerciement tout particulièrement M.G. Saint-Laurent, A.C.C. Villari, du GANIL, L. Lebreton et J. Vervier du CRC de Louvain-la-Neuve, P. Dendooven et G. Lhersonneau que j'ai rencontrés à l'université de Jyväskylä.

Mes remerciements sont aussi adressés à mesdames du service impression pour avoir très aimablement mis tous leurs efforts afin de me fournir dans l'urgence les exemplaires nécessaires.

Enfin, que les personnes qui habitent mon quotidien et que je ne saurais tous nommer trouvent également dans ces dernières lignes l'expression de ma gratitude.

Table des Matières

1. Introduction	1
2. Production de Noyaux Riches en Neutrons	4
2.1 La fission	4
2.1.1 mécanisme de base de la fission	4
2.1.2 différentes méthodes de production de fragments de fission	5
2.1.2.1 fission de ^{235}U induite par des neutrons thermiques	6
2.1.2.2 fission induite par des protons de haute énergie : ISOLDE	7
2.1.2.3 fission induite par des ions lourds	8
2.1.2.4 fission induite par des rayons γ	8
2.2 Fission de ^{238}U induite par des neutrons rapides : PARRNe	9
2.2.1 principe	9
2.2.2 le projet de R&D PARRNe	10
2.3 Caractéristiques de la fission induite par des neutrons	11
2.3.1 comparaison de différents noyaux de fission	11
2.3.2 choix de l'énergie des neutrons incidents	12
2.3.2.1 section efficace de la fission de ^{238}U	12
2.3.2.2 distribution en masse des fragments de fission	13
2.3.2.3 émission de neutrons secondaires	15
2.3.2.4 premières conclusions	15
2.4 Génération de neutrons	16
2.4.1 choix du faisceau incident	16
2.4.1.1 comparaison deuton – proton	16
2.4.1.2 théorie élémentaire des processus de production de neutrons par des deutons	18
2.4.2 étude de convertisseur	19
2.4.2.1 nature du convertisseur	19
2.4.2.2 contraintes technologiques	20
2.4.2.3 fenêtres minces	22
2.4.3 caractéristiques du flux de neutrons	22
2.4.3.1 rendement du flux de neutrons	23
2.4.3.2 distribution en énergie du flux de neutrons	24
2.4.3.3 distribution angulaire du flux de neutrons	24

2.5	Nombre de fissions induites dans une cible	25
2.5.1	épaisseur équivalente	25
2.5.2	nombre de fissions	26
3.	<i>PARRNe 0 : Une expérience de Faisabilité</i>	28
3.1	Objectifs	28
3.2	Dispositif expérimental	28
3.3	Résultats PARRNe 0	29
3.4	Estimation des taux de production dans la cible	30
3.5	Conclusion	32
4.	<i>Développements de Cibles</i>	33
4.1	Caractérisation d'une cible épaisse	33
4.1.1	aspects généraux	33
4.1.2	élévation en température de la cible par l'énergie de la fission	34
4.1.3	action des neutrons sur la structure de la cible	36
4.2	Cible UC_x	37
4.2.1	propriétés du carbure d'uranium	38
4.2.2	mise au point d'une cible UC _x	38
	4.2.2.1 <i>R&D à ISOLDE pour obtenir une cible à relâchement rapide</i>	38
	4.2.2.2 <i>description de la fabrication</i>	39
4.2.3	relâchement d'une cible UC _x	40
	4.2.3.1 <i>diffusion</i>	40
	4.2.3.2 <i>désorption</i>	43
4.3	Réalisation de l'ensemble cible UC₀	44
4.3.1	système de chauffage de la cible	45
	4.3.1.1 <i>le graphite dense comme résistance électrique</i>	45
	4.3.1.2 <i>Développement du résistor</i>	45
	4.3.1.3 <i>durée de vie du four</i>	48
4.3.2	ensemble cible	49
4.4	Cible ²³⁸U Liquide	49
4.4.1	propriétés physiques de l'uranium à l'état liquide	50
	4.4.1.1 <i>tension de vapeur</i>	50
	4.4.1.2 <i>densité</i>	52
	4.4.1.3 <i>viscosité</i>	53

4.4.1.4	<i>tension superficielle</i>	55
4.4.2	réactions chimiques de l'uranium liquide avec le gaz résiduel	59
4.4.2.1	<i>combinaison avec l'azote</i>	59
4.4.2.2	<i>combinaison avec l'oxygène</i>	59
4.4.2.3	<i>combinaison avec le carbone</i>	59
4.4.2.4	<i>interaction avec l'hydrogène</i>	60
4.4.3	études de creuset	60
4.4.3.1	<i>creuset en nitrure de bore</i>	61
4.4.3.2	<i>creuset tribocor</i>	62
4.4.3.3	<i>creuset en yttria (Y₂O₃)</i>	62
4.5	Réalisation de l'ensemble cible de 250 g d'uranium	64
4.5.1	géométrie du creuset	64
4.5.2	four pour U liquide	64
4.5.3	ensemble cible	65
4.6	Processus de relâchement	65
4.6.1	diffusion dans un milieu liquide stagnant	66
4.6.2	mouvements de convection	67
4.6.3	transfert de masse en surface	70
4.6.4	interactions chimiques entre l'uranium liquide et les éléments produits	72
4.7	Comparaison du relâchement entre UC_x et U liquide	72
5.	Le Dispositif PARRNe 1	74
5.1	Présentation du dispositif	74
5.1.1	description	74
5.1.2	définition de la tubulure de transport	75
5.1.2.1	<i>conductance de la tubulure de PARRNe 1</i>	76
5.1.2.2	<i>vide résiduel le long de la tubulure</i>	77
5.1.2.3	<i>caractérisation du temps de transport dans la tubulure</i>	78
5.2	Expérimentation d'un cible d'uranium liquide de 20 g	80
5.2.1	conditions d'irradiation	80
5.2.2	résultats	83
5.3	Etude en fonction de l'énergie à l'aide du dispositif PARRNe 1	87

6. Installation de la Ligne PARRNe 2	90
6.1 Ensemble source d'ions	90
6.1.1 tube transfert	90
6.1.2 source d'ions Nier-Bernas	91
6.1.2.1 paramètres de la chambre source	93
6.1.2.2 paramètres d'extraction de la source	94
6.1.2.3 propriétés optiques du faisceau obtenu	95
6.2 Le séparateur d'isotopes	96
6.3 Premiers faisceaux	99
6.3.1 système d'acquisition	99
6.3.2 résultats obtenus avec une cible UC _x	101
6.3.2.1 conditions d'irradiation	101
6.3.2.2 résultats	103
6.3.3 résultats préliminaires obtenus avec une cible liquide	108
6.3.3.1 conditions d'irradiation	108
6.3.3.2 résultats préliminaires	109
7. Conclusion	113
Annexe 1 : Reproduction semi-empirique du flux neutronique basé sur le modèle de Serber	116
Bibliographie	121

Notations et Symboles Utilisés

c_0 : vitesse de la lumière dans le vide	299 792 458 m/s
e : charge élémentaire	$1,6 \cdot 10^{-19}$ C
g : accélération gravitationnelle	$9,80 \text{ m/s}^2$ (au niveau de la mer)
h : constante de Planck	$6,626 \cdot 10^{-34}$ J.s
k_B : constante de Boltzmann	$1,380 \cdot 10^{-23}$ J.K ⁻¹
p : impulsion de l'ion considéré	
q : nombre de charge de l'ion considéré	
E : énergie	
M : masse molaire (en u.m.a. pour les applications numériques)	
N_A : nombre d'Avogadro	$6,02 \cdot 10^{23}$ particules/mol
R_g : constante des gaz	$8,31451$ J/K/mol
T : température	
ϵ_0 : permittivité du vide	$8,854 \cdot 10^{-12}$ F/m
ρ : densité	
ρ_c : rayon de courbure	
σ_{SB} : constante de Stefan-Boltzmann	$5,670 \cdot 10^{-8}$ W.m ⁻² .K ⁻⁴

1. Introduction

Le noyau atomique peut se décrire comme un assemblage de protons et de neutrons. Le nombre et le rapport de ces nucléons conditionnent les propriétés structurales du noyau. Les noyaux exotiques dont la proportion de neutrons et de protons diffère de celle des noyaux stables, constituent un sujet de recherche de très grande actualité. Ils permettent d'étendre les modèles de structure nucléaire pour des noyaux éloignés de la stabilité [Dob 96]. Des expériences contemporaines révèlent des phénomènes inattendus (halos de neutrons dans les noyaux légers comme le lithium 11, effondrement des effets de couche pour les nombres magiques 20, 28, 40 par exemple, rôle de la déformation pour stabiliser le noyau [Mot 95], existence de noyaux super-lourds par effets de couches et de déformation...). Disposer de faisceaux de noyaux riches en neutrons intéressent plusieurs autres disciplines dont l'astrophysique et l'étude physico-chimique des éléments super-lourds.

A titre d'exemple, l'astrophysique nucléaire indique qu'un grand nombre de chaînes de réaction de nucléosynthèse mettent en jeu des noyaux radioactifs riches en neutrons [Hen 97]. Dans ce contexte, les faisceaux d'ions riches en neutrons post-accélérés représentent un outil unique pour étudier ces noyaux et leurs réactions. Dans la recherche de noyaux super-lourds, le succès du modèle en couche à reproduire les nombres magiques pour les noyaux naturels, mène à envisager l'existence dans la région des masses élevées, d'îlots de noyaux stabilisés par des effets de couches. Les récentes mises en évidence de l'existence de noyaux $Z = 110$, 111 et 112 à GSI [Hof 96], peut être $Z = 114$ à Doubna [Oga 99], sont un premier pas dans l'étude de la structure des noyaux de cette région. Actuellement, la production directe de tels super-lourds s'obtient par l'interaction d'un faisceau d'ions stables de masse intermédiaire. Par exemple, le ^{86}Kr a été utilisé sur des cibles de ^{208}Pb ou de ^{209}Bi pour la recherche de $Z = 118$ [Nin 99]. Cependant les produits de fusion-évaporation ainsi obtenus présentent une déficience en neutrons. Des faisceaux riches en neutrons, par exemple $^{90-94}\text{Kr}$, permettraient de gagner grandement en section efficace [Smo 97-99]. Comme les sections efficaces de production ne dépassent pas quelques nanobarns, voire des picobarns dans le cas des noyaux les plus lourds, une production suffisante de noyaux super-lourds demande au moins des intensités de faisceaux d'une dizaine de nanoampères, soit 10^{11} particules/s.

Les thèmes de recherche évoqués nécessitent la réalisation d'une grande variété de faisceaux d'isotopes riches en neutrons qui doivent de plus présenter des intensités aussi élevées que possible. D'une façon générale, cet intérêt marqué pour les faisceaux de noyaux exotiques s'exprime clairement au travers des expériences récemment engagées [Mue 99]. Actuellement, les deux techniques de base pour produire des faisceaux d'isotopes radioactifs sont la séparation d'isotopes en ligne et la fragmentation en vol.

Dans la fragmentation en vol, des ions lourds de plus de 30 MeV/nucléon se fragmentent sur une cible qui est suffisamment mince pour que l'énergie perdue par les fragments soit généralement inférieure à $\Delta E/E = 10\%$. Les fragments radioactifs produits ont une vitesse

voisine de celle des projectiles et sont triés par un spectromètre électromagnétique. Cette méthode offre l'avantage d'observer les noyaux produits indépendamment de leurs propriétés chimiques. De plus, le temps de transit dans les spectromètres étant de l'ordre de la microseconde, des ions de très courte période peuvent être observés [ENAM 98]. Toutefois, les faisceaux radioactifs ainsi produits présentent de grandes dispersions en angle et en énergie. Ils ne peuvent pas donc être ralentis à des énergies voisines de la barrière coulombienne sans une importante dégradation de leur intensité. De plus, l'augmentation de l'intensité de faisceaux radioactifs est essentiellement conditionnée par l'intensité du faisceau primaire I_0 en raison de l'utilisation inhérente de cibles minces. Avec des intensités de faisceaux secondaires n'excédant généralement pas l'ordre de $10^{-4} I_0$, la production de faisceaux secondaires de plus de 10^8 particules/s s'avère actuellement peu probable.

La séparation d'isotopes en ligne (ISOL) consiste à connecter directement à une cible de production irradiée par un faisceau primaire, une source d'ions suivie d'un séparateur d'isotopes électromagnétique. Le faisceau extrait de la source d'ions possède une énergie de quelques dizaines à quelques centaines de keV. Grâce à ses qualités de faisceaologie, il peut être transporté et accéléré à des énergies plus élevées avec peu de pertes. Contrairement à la fragmentation en vol, la séparation d'isotopes en ligne permet l'utilisation d'une cible de production épaisse. Elle permet donc de produire des faisceaux exotiques beaucoup plus intenses. Par conséquent, cette technique paraît adaptée pour le développement de faisceaux à intensités élevées d'isotopes radioactifs plus proche de la vallée de stabilité. C'est elle que nous considérerons dans toute la suite de la thèse.

La fission induite d'un noyau lourd, notamment l'uranium, est un mécanisme particulièrement intéressant pour produire des noyaux riches en neutrons. Différentes particules peuvent induire la fission. Néanmoins avec l'utilisation de particules chargées, toute la puissance du faisceau incident est déposée de façon localisée dans la cible de production. La dissipation de cette chaleur est problématique dans la mesure où la cible doit être maintenue à haute température pour un relâchement rapide des produits de fission. D'où l'idée d'induire la fission par des neutrons. Des neutrons thermiques, issus d'un réacteur nucléaire, pourraient être utilisés (base de l'installation TRISTAN [McC 75] et du projet PIAFE [Vig 96] qui est maintenant repris par le projet MAFF en cours de réalisation à Munich [MAF 00]). Dans l'optique de développer des faisceaux riches en neutrons auprès de n'importe quel accélérateur, il a été choisi d'utiliser plutôt des neutrons rapides. Un flux dense et dirigé de neutrons rapides peut en effet s'obtenir en arrêtant dans un convertisseur refroidi un faisceau d'ions de forte puissance.

Pour atteindre des taux de fission suffisamment élevés, les seuls paramètres optimisables sont l'intensité du faisceau incident et l'épaisseur de la cible. Cependant, un taux de production élevé ne suffit pas à l'obtention d'intensités élevées de faisceaux exotiques. En effet, les noyaux riches en neutrons ont en général une durée de vie d'autant plus courte que leur nombre de neutrons excédentaire est grand. Leur relâchement de la cible et leur effusion jusqu'à la source d'ions doivent avoir une durée qui soit réduite autant que possible. Ensuite la source d'ions doit

ioniser avec une efficacité élevée les noyaux radioactifs d'intérêt. Afin de déterminer pour ce procédé de production les conditions technologiques les plus favorables à l'obtention de faisceaux intenses d'isotopes riches en neutrons, l'IPN d'Orsay a mis en place le programme de R&D PARRNe (**P**roduction d'**A**tomes **R**adioactifs **R**iches en **N**eutrons). C'est dans le cadre de ce programme que s'est déroulé cette thèse. Elle s'articule autour de trois directions : l'ensemble cible-source d'ions, la participation à l'étude et à la construction du séparateur d'isotopes en ligne PARRNe 2 et la contribution à l'analyse des résultats obtenus au cours de diverses expériences.

La présentation de ces différents travaux de R&D débutera par une étude des conditions optimales pour produire des isotopes riches en neutrons dans une cible d'uranium (chapitre 2). Cette étude servira de base à notre programme de R&D. La possibilité de développer ce programme auprès du Tandem de l'IPN d'Orsay a été démontrée par l'expérience de mesure des taux induits au sein de la cible : PARRNe 0 (chapitre 3). Le chapitre 4 traitera des développements d'ensemble cibles. Pour irradier les cibles mises en œuvre, nous avons développé deux dispositifs : PARRNe 1 et PARRNe 2. Le chapitre 5 présentera le dispositif PARRNe 1 qui a notamment permis d'expérimenter des cibles à différentes énergies de faisceau primaire. Le chapitre 6 décrira le séparateur d'isotopes en ligne PARRNe 2.

2. Production de Noyaux Riches en Neutrons

La fission d'un noyau lourd tel que l'uranium est un processus exoénergétique qui produit des isotopes riches en neutrons. L'énergie nécessaire pour la provoquer peut être apportée par diverses particules. Après avoir introduit le mécanisme de fission et différentes méthodes pour l'induire à un taux élevé, les caractéristiques propres à la fission induite par des neutrons rapides et l'étude des conditions optimales de production dans une cible seront traitées avec la présentation du programme de R&D PARRNe.

2.1 La fission

2.1.1 mécanisme de base de la fission

Historiquement, le processus de fission fut découvert en 1938 avec la fission induite par des neutrons, de ^{235}U en deux noyaux de masse intermédiaire [Hah 39-Mei 39].

Le mécanisme général de la fission est bien décrit par le modèle semi-classique de la goutte liquide. Dans cette image de goutte liquide, le noyau subit deux influences antagonistes : l'interaction forte attractive qui s'exprime comme une tension superficielle tendant à minimiser la surface du noyau, à laquelle s'oppose l'interaction coulombienne répulsive. La cohésion du noyau dépend alors de sa déformation. En calculant la variation de l'énergie potentielle du noyau lourd en fonction de sa déformation à partir d'un état initial sphérique, il apparaît une configuration appelée le point selle où la répulsion coulombienne égale en intensité la tension superficielle [Van 73]. L'apport d'énergie nécessaire pour atteindre cette configuration est par définition la barrière de fission. Le point selle est un point d'équilibre instable au delà duquel la déformation se poursuit à mesure que l'énergie potentielle du système diminue jusqu'à la rupture en deux fragments : le point de scission. Un noyau composé résultant de l'interaction d'un neutron avec un noyau lourd, possède un excès d'énergie égal à l'énergie cinétique du neutron dans le centre de masse plus l'énergie de liaison de ce neutron. La fission est induite lorsque cette énergie d'excitation suffit à déformer le noyau composé jusqu'au point selle. Ce modèle de la goutte liquide, s'il décrit bien le processus général, ne permet pas de représenter suffisamment bien la dynamique de la scission, notamment la distribution asymétrique des fragments [Bar 93, Van 73]. Celle-ci ne peut s'expliquer que par la prise en compte de corrections quantiques ; les noyaux les plus stables, à couches fermées (autour de $Z = 50$, $N = 82$ entre autres), sont les plus produits à faible énergie d'excitation.

Pour certains noyaux dits fissiles comme les noyaux ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu , la fission peut être provoquée par des neutrons thermiques. D'autres noyaux lourds comme ^{238}U , ne peuvent fissionner qu'à une énergie seuil des neutrons beaucoup plus élevée. Ces noyaux présentent donc une barrière de fission. La fission « spontanée » a été observée pour quelques

noyaux transuraniens, mais elle prend un temps infiniment long pour les noyaux plus légers. Par exemple, la demi-vie partielle du ^{230}Th dépasse $1,5 \cdot 10^{17}$ ans pour la fission spontanée [Wil 64].

En raison de la courbure de la vallée de stabilité vers la région $N > Z$ pour les masses les plus élevées, la fission donne des fragments excédentaire en neutrons. Ces noyaux produits, instables, se désintègrent généralement par émission β^- . Lorsque l'énergie d'excitation déposée dans le noyau père est faible, seuls deux ou trois neutrons sont évaporés lors de la fission. D'où l'intérêt de la fission à basse énergie pour produire les noyaux les plus exotiques.

L'énergie de liaison par nucléon étant la plus élevée pour les masses intermédiaires (environ 8,5 MeV/A comparé à 7,3 MeV pour ^{238}U), la fission d'un noyau lourd est un processus exoénergétique qui libère environ 200 MeV d'énergie. Cette énergie de fission se répartit principalement, sous forme d'énergie cinétique, entre les deux fragments formés. Dans la cible ces deux fragments sont fortement ionisés et déposent toute leur énergie au bout d'un parcours de quelques microns (7 μm dans l'uranium métal).

2.1.2 différentes méthodes de production de fragments de fission

La fission d'un noyau lourd peut être induite par différentes particules incidentes, soit par des neutrons thermiques dans le cas des noyaux fissiles comme ^{235}U , soit par des particules plus énergétiques. Le nombre d'ions riches en neutrons produit en sortie d'un séparateur se déduit de la relation (2.1).

$$d_i N = \sigma L \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_3 \quad (2.1)$$

Le nombre d'ions produit par unité de temps ($d_i N$) est égale au produit de la section efficace de production (σ), de la luminosité (L), de l'efficacité de relâchement de la cible à la source d'ions (ϵ_1), de l'efficacité d'ionisation de la source (ϵ_2) et de la transmission du séparateur (ϵ_3).

Le produit σL donne la production des noyaux exotiques dans la cible et le produit $\epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_3$ traduit les pertes qui surviennent au cours des différents processus. La section efficace de production est entièrement déterminée par la nature des particules interagissantes et par l'énergie des projectiles. Pour obtenir des nombres de fissions suffisamment élevés, les seuls paramètres effectivement optimisables sont l'intensité du faisceau incident et la quantité de noyaux de fission par unité de surface. Le produit de ces deux paramètres est définie comme la luminosité.

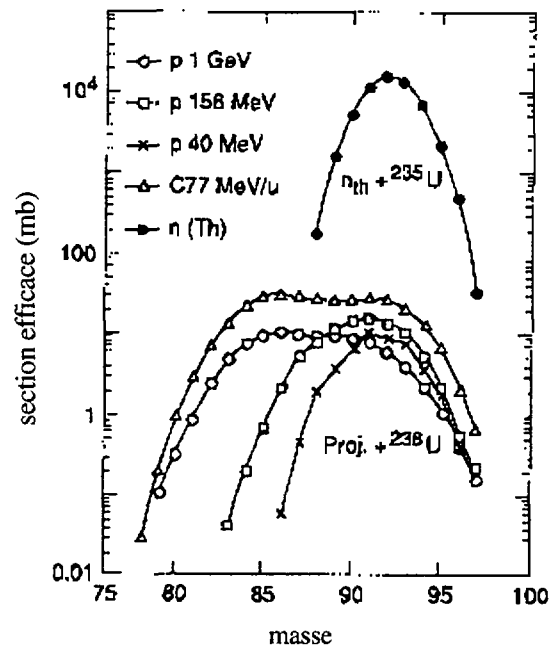


Figure II.1 : sections efficaces de production d'isotopes de Rb (mb) pour différents processus de fission [Rav 94]. Pour certaines masses, la section efficace de production par des neutrons thermiques sur ^{235}U peut dépasser jusqu'à trois ordres de grandeur celles par des particules rapides sur ^{238}U .

Les deux méthodes principalement explorées jusqu'à présent utilisent comme projectiles des neutrons thermiques et des protons rapides (fig. II.1). Cependant d'autres méthodes prospectives comme la fission induite par des ions lourds ou la photofission font l'objet d'études prometteuses.

2.1.2.1 fission de ^{235}U induite par des neutrons thermiques

La fission de ^{235}U par des neutrons thermiques fut exploitée dès 1951 avec la première ligne ISOL installée auprès du cyclotron de Copenhague [Kof 51]. Par la suite, d'autres lignes de type ISOL furent installées auprès de réacteurs à neutrons pour produire des isotopes radioactifs. La référence [McC 75] décrit TRISTAN et d'autres installations analogues. Dans l'optique de produire des faisceaux intenses de noyaux radioactifs riches en neutrons, le projet PIAFE (Production, Ionisation, Accélération de Faisceaux Exotiques), aujourd'hui abandonné, a pris naissance au début des années 90. Il visait à produire des noyaux exotiques au sein du réacteur de l'ILL (Institut Laue-Langevin) à Grenoble, dans une région de flux neutronique élevé, environ $3 \cdot 10^{13}$ neutrons/cm²/s [Vig 96]. Avec une cible contenant 4 g de ^{235}U sous forme de grains de UC_2 uniformément répartis dans une matrice poreuse en graphite, le nombre de réactions s'élevait à environ 10^{14} fissions/s.

Ce nombre de fissions libère une puissance de 3 kW, ce qui porte la cible vers 2400°C. En fait, les productions estimées n'étaient pas limitées par les flux de neutrons disponibles, mais plutôt par des considérations de technologie et de sûreté. Notamment, le conteneur de la cible

doit à la fois résister au flux de neutrons et à une entrée d'air accidentelle ou une fuite d'eau de refroidissement. Pour cela, le matériau envisagé était le rhénium ($T_{\text{FUSION}}=3180^{\circ}\text{C}$) dont les propriétés mécaniques ne sont pas altérées par réaction de carburation avec le graphite de la cible, contrairement au tungstène [Fru 97].

Le conteneur en rhénium était doté d'un trou de 2 mm de diamètre dans l'axe de la cible pour l'échappement des produits de fission vers la source d'ions. La position de celle-ci à proximité de la cible minimise le temps de transfert, ce qui favorise la production des ions de courte durée de vie. Toutefois, seule l'utilisation de sources d'ions pouvant résister aux très fortes radiations de neutrons et de rayons γ est alors envisageable.

Une installation similaire au projet PIAFE nommée MAFF (Munich Accelerator for Fission Fragments) est en cours d'élaboration. Elle sera implantée auprès du nouveau réacteur FRM-2 actuellement en construction à Munich [MAF 00]. MAFF prévoit pour l'isotope d'intérêt ^{82}Ge ($N = 50$), des intensités pouvant atteindre $2 \cdot 10^{10}$ isotopes/s [Hab 97].

2.1.2.2 *fission induite par des protons de haute énergie : ISOLDE*

ISOLDE au CERN a pour vocation la production de faisceaux exotiques au moyen de protons de haute énergie. Les expériences en ligne débutèrent en 1967 avec un séparateur électromagnétique d'isotopes [Kje 70] installé auprès du synchro-cyclotron SC du CERN qui fournissait alors des protons de 600 MeV. Les protons de haute énergie sont des projectiles efficaces dans la mesure où leur grande distance d'arrêt dans la matière permet d'utiliser des cibles épaisses jusqu'à 300 g/cm^2 [Bjo 86]. La grande variété de faisceaux radioactifs est obtenue par des réactions de spallation ou de fission sur des cibles dont la nature est judicieusement choisie. La spallation induite par des particules de haute énergie est efficace pour produire des noyaux déficients en neutrons. La fission de ^{238}U ou de ^{232}Th est utilisée pour obtenir les isotopes riches en neutrons.

Afin de réduire le temps de relâchement, la cible doit être portée à haute température. Cette température est limitée d'une part par le taux d'évaporation de la cible qui doit correspondre au domaine de pression dans lequel la source d'ions peut fonctionner. D'autre part, la cible doit maintenir ses performances dans le temps et sous les effets de l'irradiation du faisceau de grande énergie. Le développement de cibles à relâchement rapide et à durée de vie longue a depuis toujours animé les efforts de R&D de l'équipe ISOLDE. D'une façon sommaire nous pouvons distinguer deux classes de cibles particulièrement performantes qui ont été mises au point : les cibles solides poreuses réfractaires et les cibles métalliques à l'état liquide.

Après la fermeture du SC, ISOLDE a été réinstallé auprès du Booster du Proton-Synchrotron au début des années 90. Cet autre accélérateur fournit actuellement des faisceaux pulsés de protons de 1 et 1,4 GeV avec un courant moyen de 2 à 4 μA [Kug 92]. Ainsi ISOLDE fournit les faisceaux les plus intenses de fragments de fission, avec des intensités atteignant 10^9 isotopes/ μC pour les plus produits des isotopes de manganèse [Let 97], et d'alcalins rubidium et césium [Eve 98].

Pour une augmentation des productions de plus d'un ordre de grandeur, l'inconvénient majeur inhérent à l'utilisation de particules chargées comme projectile est la forte puissance déposée dans la cible au cours du ralentissement des ions, notamment en fin de parcours dans le pic de Bragg. Cet échauffement réduit la durée de vie de la cible sous faisceau. A titre d'exemple, pour les carbures d'uranium portés à 2200°C, les performances de la cible atteignent un maximum après 18 h environ, cette durée correspondant à la fin du dégazage provoqué par l'interaction des protons incidents. Ensuite la cible garde ce rendement élevé pendant trois à quatre jours. Au cours des quatre à six jours suivant, le rendement décroît graduellement d'un ordre de grandeur en raison de l'évaporation de la cible et de la corrosion environnante qui en résulte [Rav 96].

2.1.2.3 fission de ^{238}U induite par des ions lourds

Le GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) accélère des ions lourds comme ^{12}C ou ^{40}Ar complètement épluchés jusqu'à des énergies de l'ordre de 100 MeV/nucléon. Les intensités peuvent maintenant atteindre 8 eμA (microampères électriques) pour le ^{12}C et conduisent à envisager l'utilisation de tels faisceaux pour produire des radioéléments riches en neutrons. Cette opportunité s'avère d'autant plus pertinente que les sections efficaces de fission de ^{238}U obtenues avec ^{12}C à 77 MeV/nucléon sont dans la plupart des cas plus élevées que celles obtenues avec des protons ayant jusqu'à 24 GeV d'énergie incidente [dSS 82].

Ce gain est attribué à la taille du projectile qui favorise à la fois le nombre de collisions dans la cible et le processus de fission par un transfert de moment angulaire plus important.

Cependant, l'inconvénient majeur de l'utilisation des ions lourds multichargés réside dans l'accentuation sensible des effets de pertes d'énergie. En effet, la distance d'arrêt des ions lourds est beaucoup plus courte que celle des protons (1,73 g/cm² pour ^{12}C à 900 MeV dans du carbone [Ric 72] à comparer à 315 g/cm² pour un proton [Bar 64]), ce qui limite la densité de puissance que l'on peut déposer dans la cible. Pour dissiper de fortes intensités de faisceau primaire, il faut une cible de structure adaptée, une cible liquide (chapitre 4) ou encore une cible analogue à celle de SPIRAL [Mau 98].

Par ce processus, les productions estimées atteindraient 10⁷ à 10⁸ isotopes/s [Rav 94].

2.1.2.4 fission induite par des rayons γ

La section efficace de la fission induite par des rayons γ présente une résonance GDR (Giant Dipole Resonance) [Cal 80]. Pour ^{238}U cette résonance atteint 0,16 barn pour des photons de 15 MeV et décroît bien en dessous de 0,02 barn pour des énergies inférieures à 7 MeV ou supérieures à 25 MeV.

Le maximum de la section efficace de photofission de ^{238}U , à la résonance GDR, est presque un ordre de grandeur en dessous de celle induite par des neutrons rapides. Celui de ^{235}U n'est inférieur que d'environ un facteur quatre. Toutefois, ces faibles valeurs de section efficace peuvent être compensées si l'on parvient à produire des flux de γ plus intenses que les flux de neutrons rapides. Un tel flux de γ pourrait être un rayonnement de freinage (bremsstrahlung)

issu de l'arrêt d'un faisceau intense d'électrons dans la matière. Comme le propose W.T. Diamond [Dia 99], ce faisceau serait produit par un linac de grande puissance dont le coût est moins élevé que celui d'un linac à protons ou deutons de haute énergie. De cette façon, un faisceau de 3 mA d'électrons d'environ 30 MeV (100 kW) induirait des nombres de réaction pouvant atteindre $5 \cdot 10^{13}$ fission/s dans une cible de ^{235}U et $2 \cdot 10^{13}$ fission/s avec une cible de ^{238}U . Une version à étudier consiste à arrêter le faisceau d'électrons directement dans la cible de fission pour produire les γ . Un balayage du faisceau sur une cible de grande surface réduira la densité de puissance.

Le laboratoire de Doubna envisage une installation de ce type. Des nombres de fission de $1,5 \cdot 10^{11}$ fission/s sont anticipés [Oga 00]. L'IPN d'Orsay testera également ce mode de production. Une expérience avec un dispositif du projet PARRNe est en effet envisagée auprès de l'accélérateur à électrons du laser à électrons libres CLIO [CLI 89]. Cependant, c'est pour explorer une autre méthode que le programme PARRNe s'est jusqu'à présent développé : la fission induite par des neutrons rapides.

2.2 Fission de ^{238}U induite par des neutrons rapides : PARRNe

2.2.1 principe

Dans la mesure où la cible de production doit être maintenue à haute température pour relâcher rapidement les noyaux de fission, celle-ci ne peut supporter le dépôt de puissance localisé apporté par un faisceau d'ions de forte intensité. Afin de contourner ce problème inhérent à l'usage de projectiles chargés, une solution proposée par J.A. Nolen [Nol 93], consiste à irradier la cible avec un flux de neutrons rapides.

En effet, les neutrons n'interagissent qu'à travers des interactions nucléaires avec la cible. Un flux dirigé de neutrons rapides peut être obtenu par le break-up d'un faisceau de deutons dans un convertisseur. Il est possible d'utiliser des faisceaux de deutons très intenses car le refroidissement du convertisseur permet de dissiper la puissance déposée (fig. II.2).

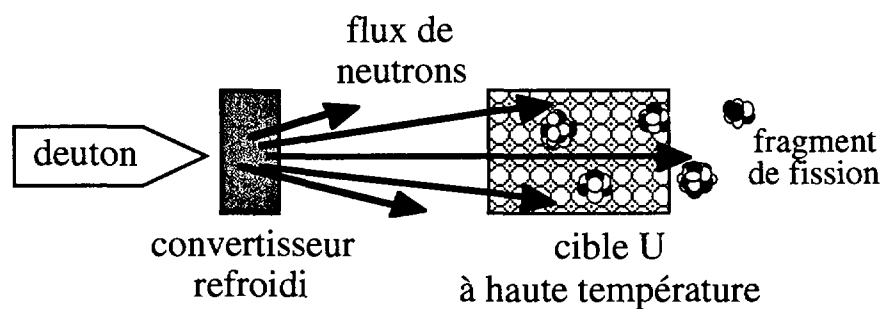


Figure II.2 : principe de production par des neutrons rapides

Ce mode de production permet donc de découpler le problème d'avoir à dissiper de fortes puissances de faisceaux primaires et celui du contrôle de la température de la cible.

D'après des estimations théoriques utilisant le code LAHET [Rid 99], des productions de l'ordre de 10^9 isotopes/s seraient accessibles avec 30 μ A de deutons à 200 MeV dans une cible de 140 g de ^{238}U .

D'après un calcul de modélisation qui reproduit les distributions en masse pour la fission induite par des protons et des neutrons de 20 à 60 MeV [Rub 98], les neutrons, comparés aux protons, donneraient beaucoup plus de fragments très riches en neutrons. Notons que ces calculs obtenus pour des protons tendent à surestimer les récentes mesures effectuées auprès du cyclotron de Louvain-la-Neuve en Belgique [Fra 98-Kru 00]. A part cela, de récentes mesures montrent que la distribution des isotopes de Ni et de Sn obtenue avec des neutrons de 20 MeV d'énergie moyenne est décalée de deux neutrons supplémentaires par rapport celle obtenue avec des protons de 25 MeV [Lhe 00].

Quoi qu'il en soit, l'utilisation de protons de moins de 100 MeV n'est pas efficace dans une cible épaisse en raison de leur faible parcours (inférieur à 5 cm dans le graphite et à 1 cm dans l'uranium métal).

2.2.2 le projet de R&D PARRNe

En partant de ce principe de production, l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay a décidé de lancer le projet de R&D PARRNe. Son objectif est de déterminer les conditions les plus favorables à la production de faisceaux riches en neutrons intenses. Le projet démarra avec une expérience de faisabilité, PARRNe 0, avec un faisceau de deutons de 20 MeV disponible auprès du Tandem d'Orsay.

A la suite des résultats obtenus, cette R&D s'est poursuivie par le développement de cibles à haute température. L'étape suivante, avec le développement du dispositif PARRNe 1, a été de mesurer les gaz rares riches en neutrons sortant de la cible. Ce dispositif transportable a permis de réaliser également des expériences auprès du cyclotron de Louvain-la-Neuve (Belgique) et du cyclotron supraconducteur AGOR de KVI (Pays Bas). Nous avons ainsi étudié les productions de gaz rares riches en neutrons en fonction de différentes énergies de deutons incidents, 10 à 130 MeV, et de différents convertisseurs, Be, C et U. Ces expériences furent réalisées dans le cadre du programme européen SPIRAL II. Ce programme vise à étendre le projet SPIRAL à GANIL, pour le moment consacré aux seuls faisceaux déficients en neutrons, à des faisceaux riches en neutrons. Parallèlement une étude du flux neutronique a été réalisée au Tandem d'Orsay et auprès d'AGOR à KVI dans le cadre du même programme.

Afin de produire des faisceaux isotopiques injectables dans un accélérateur, un séparateur d'isotopes de type ISOL, PARRNe 2, a été implanté au Tandem d'Orsay. Il a pu être installé en un an grâce à un important travail collectif. Les développements spécifiques aux sources d'ions et au transfert rapide de la cible vers la source sont testés sur cette ligne.

Les résultats recueillis par PARRNe seront de première utilité pour la réalisation d'installations dotées de faisceaux intenses de deutons comme l'envisage le projet SPIRAL II,

celui du Argonne National Laboratory [ANL 95] (actuellement intégré dans RIA [RIA 00]) ou le projet SPES du Laboratoire National de Legnaro [LNL 99].

Les différentes étapes de ces travaux de R&D auxquels j'ai pu participer seront développées dans les chapitres suivants. Analysons auparavant les caractéristiques de cette méthode de production (fig. II.2) : la fission induite par des neutrons rapides et la génération d'un flux dirigé de ces neutrons, afin de déterminer les conditions optimales de production.

2.3 Caractéristiques de la fission induite par des neutrons

2.3.1 comparaison de différents noyaux de fission

Bien que pour des raisons d'approvisionnement nos expériences furent entièrement réalisées avec de l' ^{238}U , il y a un intérêt à savoir si l'utilisation d'une cible lourde d'une autre nature peut offrir des productions sensiblement meilleures dans le but de réaliser une installation d'exploitation. Les sections efficaces des isotopes 232, 233, 234, 235, 236 et 238 de l'uranium pour des neutrons rapides de 10 à 100 MeV sont comparables avec des maxima situés vers 2 barn (fig. II.3) [Les 94]. Parmi ces isotopes ^{238}U possède le plus de neutrons.

Les neutrons secondaires de fission ont une énergie moyenne de 2 MeV. Comme le plus souvent le neutron secondaire de ^{238}U n'est pas assez énergétique pour induire la fission d'un autre noyau de ^{238}U [Bus 85], une réaction en chaîne ne peut pas être engendrée, contrairement aux noyaux fissiles. Par conséquent, la production de noyaux radioactifs dans une cible de ^{238}U est entièrement contrôlée par le faisceau primaire.

L'irradiation par des neutrons rapides de cibles épaisses contenant des noyaux fissiles exige de prendre soigneusement en considération le risque de produire des réactions en chaîne. L'utilisation d'une cible d'uranium très enrichie : 20% de ^{238}U et 80% de ^{235}U a été théoriquement étudiée ; un calcul de criticité réalisé à l'aide du code MCNP [Bri 93] estime le coefficient de multiplication effectif $k_{\text{eff}} \sim 0,9$ ($k_{\text{eff}} = 1$ dans un réacteur en régime stable [Bus 85] et le régime est surcritique pour $k_{\text{eff}} > 1$) alors que $k_{\text{eff}} \sim 0,1$ pour ^{238}U pur. Une telle cible enrichie donnerait 70 fois plus de fission qu'une cible de ^{238}U pur mais la distribution des isotopes riches en neutrons se rapprocherait de la vallée de stabilité [Rid 98].

L'usage d'un transuranien fissile au delà de l'uranium : ^{239}Pu , ^{241}Pu ... est pratiquement impossible. De tels éléments, en plus d'être soumis à des restrictions légales pour des quantités de l'ordre du gramme, présentent un comportement défavorable à la réalisation de cible à haute température. Le bas point de fusion, $T_{\text{FUSION}}[\text{Pu}] = 640^\circ\text{C}$, et la pression de vapeur élevée n'assurerait pas la stabilité nécessaire d'une cible en carbure à cause des migrations [Sto 67]. La pression de vapeur élevée défavorise aussi la mise au point d'une cible liquide à haute température.

Quant au thorium, l'isotope de durée de vie suffisante pour faire usage de cible et qui a le plus de neutrons, est l'isotope naturel ^{232}Th . Bien que possédant moins de neutrons que l' ^{238}U ,

$^{232}_{90}\text{Th}$ a l'avantage de ne pas former de noyau fissile par activation par des neutrons. Il a été d'ailleurs utilisé à ISOLDE au CERN en parallèle avec des cibles d'uranium de même structure poreuse [Eve 98].

En conclusion, l' ^{238}U se présente bien comme un des meilleurs noyaux cibles pour la fission induite par des neutrons rapides. Par conséquent, dans le cadre de ce travail, nous ne considérerons que cet élément.

2.3.2 choix de l'énergie des neutrons incidents

2.3.2.1 section efficace de la fission de ^{238}U

Des mesures de section efficace de la fission de ^{238}U induite par des neutrons de 1 à 22 MeV ont été publiées dès la fin des années cinquantes [Hem 58]. V.P. Eismont *et al.* [Eis 96] étendent ces mesures dans la gamme de 20 à 215 MeV. J.P. Lestone et A. Gavron [Les 94] publient des mesures réalisées de 3 à 100 MeV sur 233 à 236 , ^{238}U à Los Alamos (WNR) (fig. II.3). Les mesures pour ^{238}U obtenues dans ces deux laboratoires sont tout à fait comparables dans la gamme commune d'énergie de neutrons. On observe que la section efficace de fission de ^{238}U augmente jusqu'aux environs de 40 MeV d'énergie neutrons et commence à diminuer régulièrement pour des énergies supérieures (fig. II.3). La forme d'escalier de la courbe de ^{238}U s'explique par l'ouverture de nouveaux canaux de fission (^{237}U vers 6 MeV, ^{236}U vers 12 MeV).

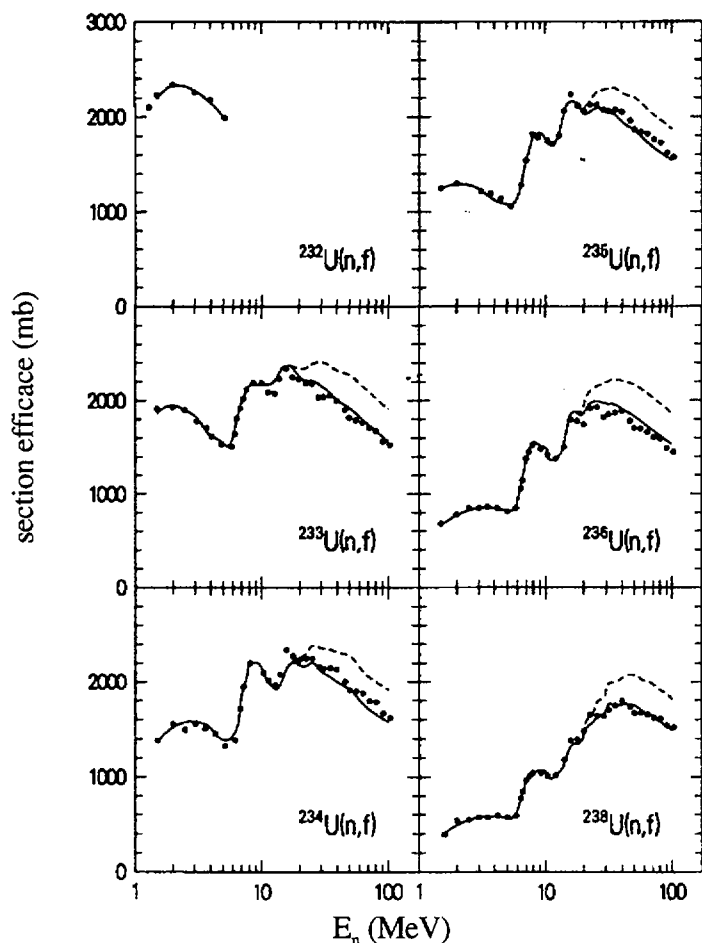


Figure II.3 : sections efficaces de fission (mb) en fonction de l'énergie des neutrons incidents (MeV) pour divers isotopes d'uranium. Les points correspondent aux mesures et les traits en pointillés à un calcul [Les 94].

La baisse de la section efficace de fission de ^{238}U pour des neutrons de plus de 40 MeV suggère pour la réalisation de faisceaux de deutons à forte intensité, une limite supérieure en énergie à environ 100 MeV. Pour confirmer cette limite, il convient de connaître l'augmentation du rendement neutronique avec l'énergie des deutons (§ 2.4). De plus, l'énergie optimum du faisceau d'ions primaire dépend du type de noyau que l'on souhaite produire.

2.3.2.2 distribution en masse des fragments de fission

Aux basses énergies d'excitation, la fission a grande tendance à donner des fragments de masse inégale ; la fission est asymétrique. Les figures II.4 et II.5 montrent des distributions en masse à différentes énergies de neutrons : de 1,5 à 14 MeV sur la figure II.4 [Nag 78] et de 10 à 60 MeV sur la figure II.5 [Rub 98]. A mesure que l'énergie des neutrons incidents augmente, le trou entre les deux pics autour des masses 95 et 135 de la fission asymétrique se comble : la fission symétrique s'accroît. De plus, à partir d'environ 10 MeV la fission suprasymétrique dont les fragments sont de masse très inégale, autour de $A=60$ et $A=160$, se manifeste de plus en plus. En augmentant l'énergie, ce sont les régions des masses de la fission

symétrique et superasymétrique qu'on tend à davantage peupler. Il en résulte une distribution moins sélective des fragments de fission.

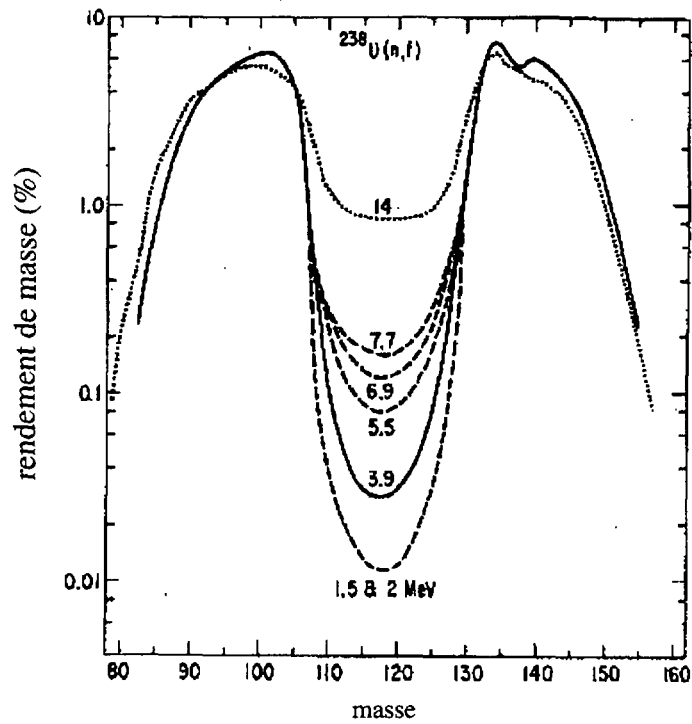


Figure II.4 : rendement de masse (%) pour la fission de ^{238}U induite par des neutrons de 2 à 14 MeV [Nag 78]

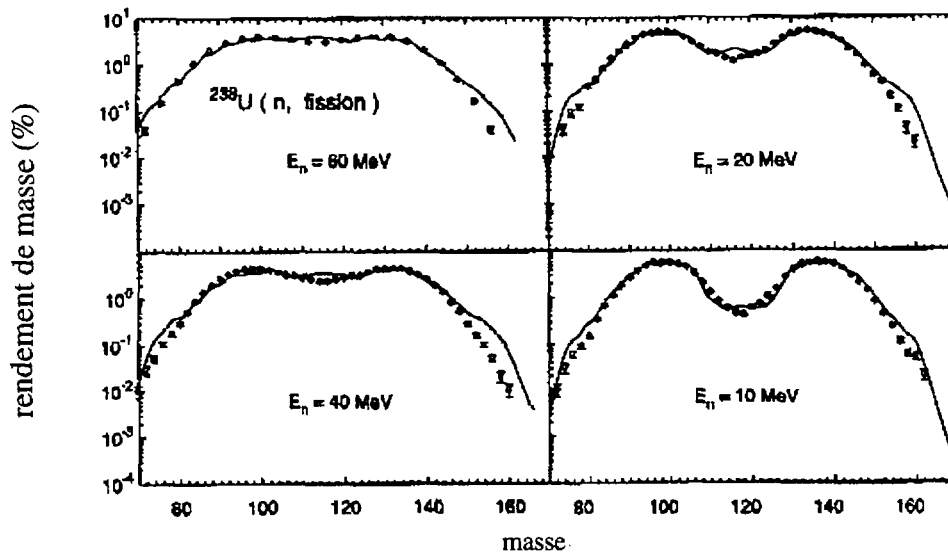


Figure II.5 : rendement de masse (%) pour la fission de ^{238}U induite par des neutrons de 10 à 60 MeV [Rub 98]

2.3.2.3 émission de neutrons secondaires

Les deux fragments résultant de la scission du noyau composé évaporent des neutrons dits secondaires ou neutrons de post-scission. Le nombre de neutrons évaporés dépend directement de la quantité d'énergie emmagasinée par les fragments au point de scission. Pour ^{238}U et des neutrons incidents de l'ordre du MeV, le nombre de neutrons secondaires vaut en moyenne 2,8 neutrons [Jam 69]. Ce nombre moyen croît légèrement avec l'énergie du neutron incident. Si l'on recherche les noyaux les plus riches en neutrons, l'énergie incidente doit être limitée de façon à induire une fission transmettant aux fragments une énergie d'excitation aussi faible que possible. D'après la simulation réalisée par M. Mirea, l'énergie neutronique optimale pour produire les fragments les plus excédentaires en neutrons ne dépasse pas la vingtaine de MeV pour ^{238}U [Mir 98]. Des estimations de I.C. Gomes et J.A. Nolen mènent à la même conclusion pour les éléments Kr, Rb, Xe et Cs [Gom 98].

2.3.2.4 premières conclusions

Finalement un compromis reste donc à trouver entre une grande section efficace de fission et une faible évaporation de neutrons.

Si, parmi les fragments de la fission asymétrique, des noyaux fortement excédentaires en neutrons sont recherchés, l'énergie optimum des neutrons ne devrait pas dépasser une vingtaine de MeV. La référence [LBNL] donne les distributions isotopiques des fragments de fission obtenue avec des neutrons de 14 MeV. Les sections efficaces isotopiques pour le rubidium sont illustrées par la figure II.6. D'après la comparaison des figures II.1 et II.6, les isotopes de rubidium les plus produits par neutrons rapides ont une section efficace supérieure à celle obtenue par des protons de 1 GeV d'environ un facteur trois.

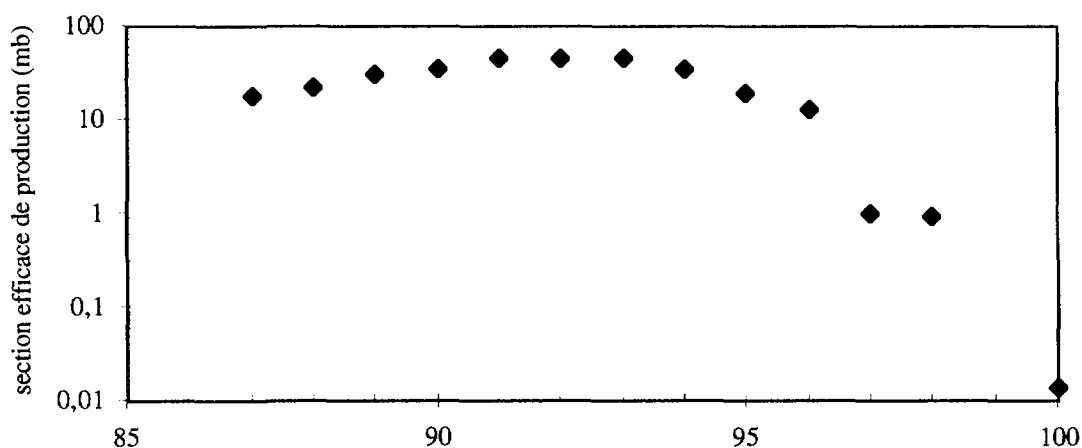


Figure II.6 : sections efficaces de production d'isotopes de Rb (mb) obtenu par la fission de ^{238}U induite par des neutrons de 14 MeV (rendements isotopiques dans [LBNL]).

Ces données sont comparables aux sections efficaces isotopiques de fission basse énergie d'excitation (autour de 12 MeV) fournies par C. Donzaud *et al.* pour plus de 250 isotopes [Don 98]. Les sections efficaces mesurées les plus élevées sont de l'ordre de quelques dizaines de mb.

Si la production de noyaux autour de $A = 115$ et de noyaux légers ($A = 60$) ou lourds ($A = 160$) est recherchée, des énergies de plusieurs dizaines de MeV sont alors nécessaires. Plus l'énergie incidente des neutrons augmente, plus les radioéléments produits sont variés.

Les expériences PARRNe 1, réalisées avec des faisceaux de deutons de 10 à 130 MeV ont eu pour but de déterminer la gamme d'énergie optimale du faisceau (chapitre 5).

2.4 Génération de neutrons

Un flux de neutrons rapides s'obtient par l'interaction d'un faisceau de particules chargées dans un bloc de matière : le convertisseur. Comme les neutrons ne subissent pas de ralentissement électromagnétique ils ne sont pas arrêtés dans le convertisseur. Ils conservent une certaine mémoire cinétique du faisceau incident (§ 2.4.1.2 fig. II.8).

Le flux de neutrons rapides qui conditionne le nombre de fissions induites dans la cible de production se caractérise par son intensité et ses distributions en angle et en énergie.

Le flux de neutrons doit présenter une faible ouverture angulaire. En effet, les contraintes technologiques imposant une certaine distance entre le convertisseur et la cible de fission, le flux de neutrons à travers cette cible décroît à mesure que la dispersion angulaire s'élargit. Il y a donc lieu de distinguer le flux de neutrons émergent du convertisseur de celui traversant effectivement la cible.

Comme la section efficace de la fission induite par des neutrons de ^{238}U ne présente pas de résonance (fig. II.4), une certaine dispersion en énergie est acceptable.

Avec une faible dispersion angulaire et une énergie moyenne adaptée, le flux doit évidemment être aussi intense que possible. Après avoir justifié le choix de la nature des projectiles incidents et celle du convertisseur, l'évolution des caractéristiques du flux en fonction de l'énergie incidente sera traitée.

2.4.1 choix du faisceau incident

2.4.1.1 comparaison deuton-proton

La recherche de sources intenses de neutrons rapides, dans la seconde partie du XX^{ème} siècle, a été motivée par la radiothérapie neutronique et le besoin de développer des matériaux résistants aux radiations pour des réacteurs de fusion. Dans ce contexte, les expérimentations réalisées ont donné lieu à une bibliographie abondante.

Dans le cadre de la neutronthérapie, dont les travaux se focalisent principalement sur la production de neutrons aux alentours de 10 MeV, les projectiles de proton, deuton et α ont été comparés expérimentalement à 24 MeV [Lon 81].

La stabilité du noyau α doublement magique le rend quelque peu « inerte » aux interactions nucléaires. Son rendement neutronique est un ordre de grandeur en dessous de ceux obtenus avec les deux autres projectiles et l'énergie neutronique moyenne n'est que de 4 MeV.

Dans la comparaison entre les protons et les deutons, il apparaît que le flux de neutrons obtenu avec les deutons est meilleur sur les trois points cités. La distribution angulaire est plus étroite (notamment grâce aux neutrons de stripping qui sont dirigés autour de la direction incidente), l'énergie moyenne des neutrons émergeant est supérieure de plus de 2 MeV et le rendement neutronique est supérieur d'un facteur quatre. Avec un cyclotron, l'énergie des protons est deux fois plus élevée que celle des deutons pour une rigidité magnétique donnée. Toutefois même dans une telle configuration, le rendement à 0° obtenu avec les protons à 48 MeV demeure comparable à celui des deutons et l'énergie neutronique moyenne n'est qu'un peu plus élevée. Récemment, D. Ridikas a approfondi à l'aide des codes LAHET et MCNP, cette comparaison pour des énergies plus élevées, jusqu'à 1 GeV [Rid 99]. Cette comparaison est étendue à plusieurs types de convertisseurs. L'avantage d'utiliser des deutons par rapport aux protons pour la production de neutrons rapides, est confirmée sur les trois points cités (fig. II.7 pour la comparaison en rendement total).

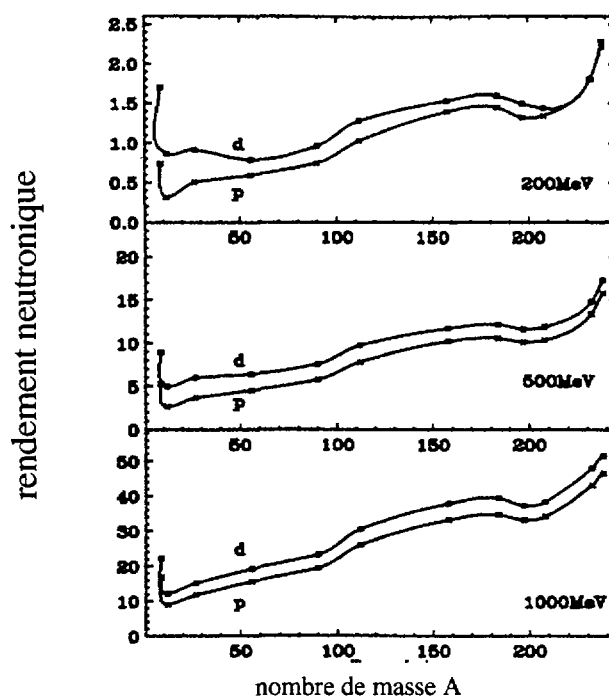


Figure II.7 : Rendements neutroniques estimés (en nombre de neutrons par projectile incident) en fonction du nombre de masse A du convertisseur pour des protons et des deutons de 200, 500 et 10^3 MeV [Rid 99].

Pour des protons de très haute énergie, la production de neutrons par spallation devient importante. Il est envisagé actuellement de réaliser des accélérateurs de haute intensité avec des

puissances de faisceau de protons pouvant dépasser des megawatts dans le contexte de la transmutation de déchets nucléaires, des études de la matière condensée, d'irradiateurs et de la production de neutrinos et de muons. Un tel accélérateur aux alentours du GeV pourrait également être très intéressant pour les faisceaux exotiques intenses. Cependant, dans le cadre de cette thèse où l'énergie des faisceaux utilisés est limitée, nous ne considérerons que les deutons.

2.4.1.2 théorie élémentaire des processus de production de neutrons par des deutons

Lorsqu'un faisceau de deutons dans la gamme du MeV traverse une cible, les neutrons rapides créés résultent essentiellement de trois processus (fig. II.8).

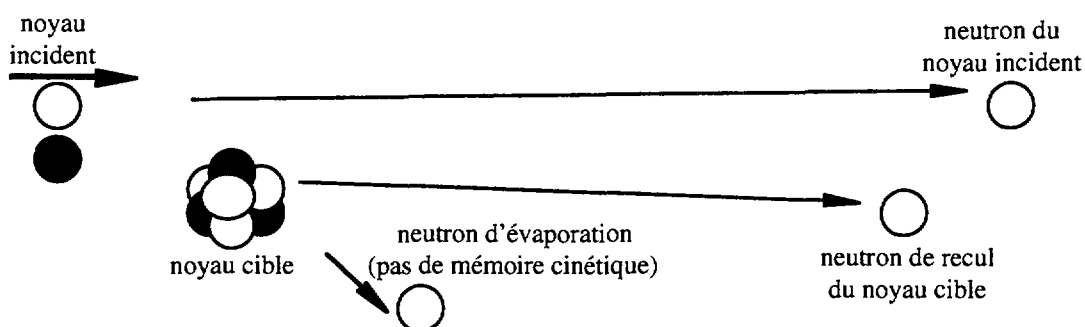


Figure II.8 : mécanismes de production des neutrons

- A longue portée (plusieurs fois le rayon nucléaire), le deuton peut être dissocié par interaction de son proton avec le champ coulombien du noyau cible [Dan 47, Gol 63]. La dissociation par champ coulombien est relativement faible par rapport au stripping pour les convertisseurs de faible Z auxquels nous nous intéressons. Avec des deutons de 200 MeV sur une cible de Be, elle donne environ quatre fois moins de neutrons que le stripping avec une section efficace estimée à $2 \cdot 10^{-5} Z^2$ b [Dan 47]. A des énergies de deutons de plusieurs dizaines de MeV, le processus est négligeable devant les interactions nucléaires avec des convertisseurs légers [Gra 77]. Il devient néanmoins dominant pour des convertisseurs de numéro atomique $A > 20$ [Sch 67].

- Lorsque le deuton passe sous incidence rasante du noyau cible, il peut être dépouillé d'un de ces 2 nucléons. Ce processus connu sous le nom de « stripping » tire sa grande importance et ses caractéristiques de la liaison très lâche entre les 2 nucléons : 1,1 MeV/A d'énergie de liaison alors que pour les autres noyaux stables l'énergie de liaison est d'environ 8 MeV/A. Le neutron issu du stripping poursuit sa course peu dévié de la direction incidente, et son énergie avoisine la moitié de l'énergie du deuton incident : $E_d/2$ [Ser 47]. Le modèle de Serber reproduit les résultats expérimentaux pour des deutons de l'ordre de la centaine de MeV et des cibles minces et donne en première approximation, l'allure des distributions en angle et en énergie pour des deutons de l'ordre de 50 MeV et des cibles épaisses [Meu 75].

- Dans le cas d'une interaction nucléon-nucléon, un neutron de recul peut s'échapper du noyau cible. De plus, le noyau composé après l'impact peut disposer de suffisamment d'énergie pour évaporer des nucléons de basse énergie [Sky 62]. Les neutrons de recul produits par interaction nucléaire sont rapides et leur énergie dépend de la valeur du Q de la réaction dont ils sont issus (par exemple [Lon 81]). Leur production est du même ordre que celle par stripping mais leurs distributions en énergie et en angle sont sensiblement plus larges. Quant aux neutrons d'évaporation, leur énergie moyenne est de l'ordre de quelques MeV [Sky 62]. Leur distribution angulaire est beaucoup plus isotrope et une estimation de leur contribution basée sur une méthode de Monte Carlo a été réalisée par K. Shin *et al.* [Shi 84, Nak 84].

2.4.2 étude de convertisseurs

L'utilisation de convertisseurs épais arrêtant totalement le faisceau incident donne les meilleurs rendements neutroniques [Lon 81]. De plus, cela permet d'arrêter en grande partie les protons résultant des interactions.

2.4.2.1 nature du convertisseur

Différents convertisseurs ont été expérimentés avec un faisceau de deutons afin de comparer le flux de neutrons émergent ; des données existent pour des deutons de 15 MeV [All 51] et de 50 MeV [Sch 67] sur des convertisseurs de numéro atomique $Z=4$ (Be) jusqu'à $Z=79$ (Au).

Le rendement baisse sensiblement à mesure que Z augmente (fig. II.9). Cela s'explique par la diminution du nombre de noyaux cibles dans le convertisseur d'un facteur 11 entre ${}^4\text{Be}$ et ${}^{79}\text{Au}$.

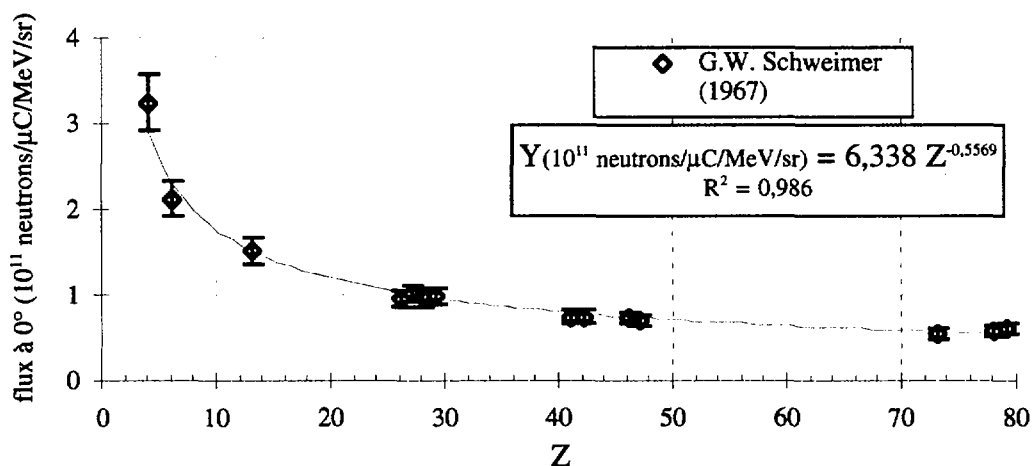


Figure II.9 : Flux de neutrons rapides $12 < E_n < 28$ MeV dans la direction incidente (noté Y) en unité de 10^{11} neutrons/ $\mu\text{C}/\text{MeV}/\text{sr}$ obtenu avec des deutons de 50 MeV sur différents convertisseurs [Sch 67].

De plus, la distribution angulaire tend à s'élargir pour Z croissant (fig. II.10) à cause de l'accentuation des déviations par diffusion coulombienne.

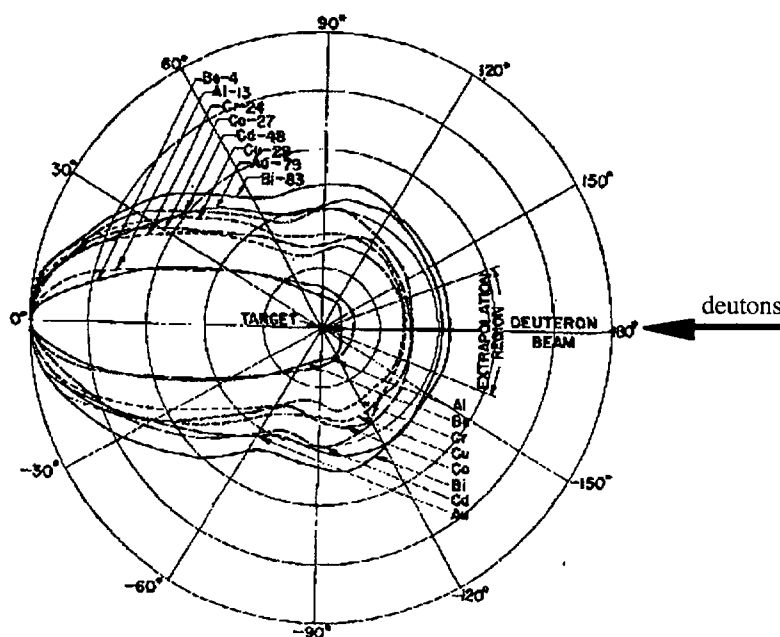


Figure II.10 : Distribution angulaire de neutrons de plus d'1 MeV produits par des deutons de 15 MeV sur diverses cibles épaisses [All 51].

Afin d'obtenir le meilleur rendement ainsi qu'une faible dispersion angulaire du flux de neutrons, il y a donc intérêt à chercher des convertisseurs de faible numéro atomique.

Une comparaison des cibles légères ${}^3\text{Li}$, ${}^4\text{Be}$ montre que les rendements avec le Li sont à peine meilleurs dans la gamme $14 \text{ MeV} \leq E_d \leq 40 \text{ MeV}$ [Gra 77]. Le deutérium et le tritium ne constituent pas des convertisseurs efficaces à l'état gazeux ([Sto 83] pour des énergies incidentes de quelques MeV). De plus, la conception de tels convertisseurs à l'état liquide demande un investissement technologique extrêmement important.

2.4.2.2 contraintes technologiques

Le convertisseur doit également pouvoir résister au bombardement d'un faisceau de deutons aussi intense que possible. Il convient donc d'estimer pour les développements futurs, la limite de la puissance incidente que peut absorber un tel convertisseur. Avec un cyclotron, la production d'un faisceau de $100 \mu\text{A}$ de deutons à 100 MeV (par exemple à GANIL) est actuellement envisageable. Nous avons observé à l'aide de la simulation IDEAS élaborée par la société SDRC, les effets thermiques induits par un faisceau intense de deutons de 100 MeV dans un convertisseur solide refroidit.

Le convertisseur cylindrique de 1,5 cm de diamètre et de 3,5 cm de long est inséré entre deux coquilles métalliques parcourues par une nappe d'eau. Il reçoit un faisceau de 1 cm de diamètre. La puissance déposée dans le pic de Bragg est simulée par un disque de 1,5 mm d'épaisseur dans lequel toute la puissance incidente est uniformément déposée (fig. II.11). Bien que ce système de refroidissement n'ait pas été optimisé, le code indique qu'au sein d'un convertisseur en graphite chauffé par un faisceau de $100 \mu\text{A}$ (10 kW), la température ne dépasse pas 2500°C .

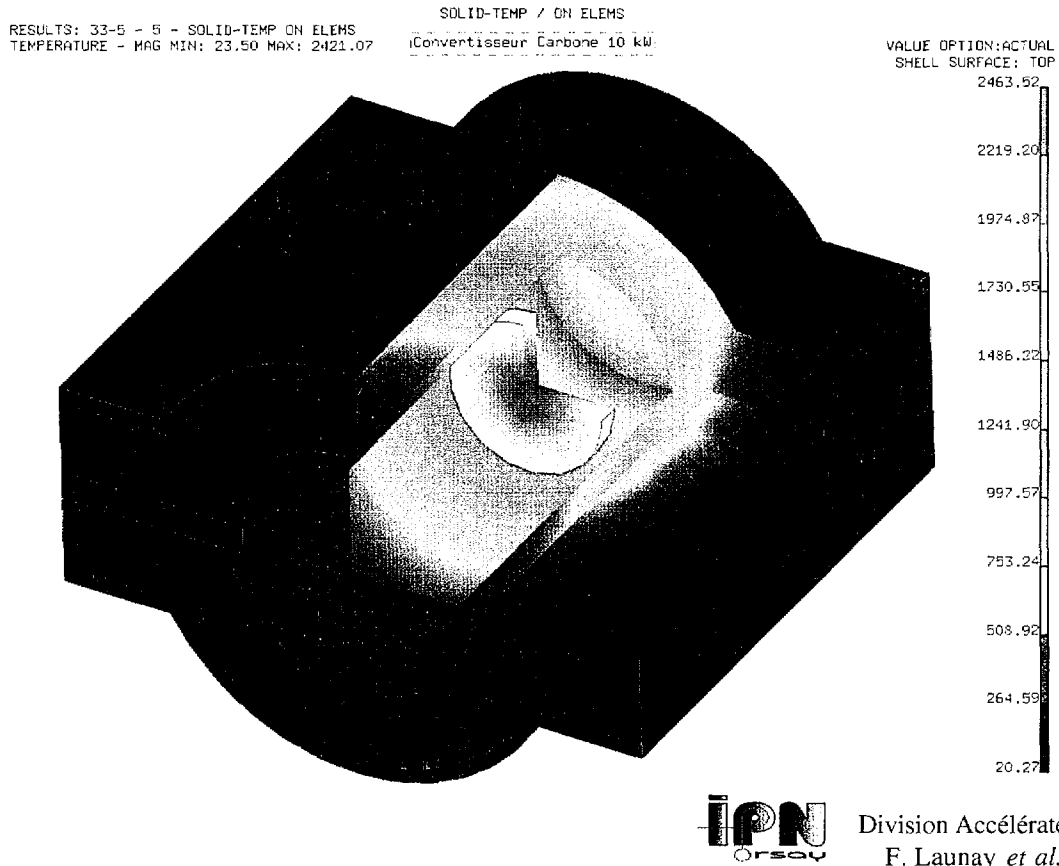


Figure II.11 : répartition thermique dans un convertisseur en graphite chauffé par un faisceau incident de 1 cm de diamètre et de 10 kW. La puissance déposée dans le pic de Bragg est simulée par un disque de 1,5 mm d'épaisseur dans lequel toute la puissance incidente est uniformément déposée.

Ces distributions thermiques couplées à la distribution des vitesses dans la nappe d'eau montrent aussi les améliorations possibles : augmentation du diamètre du convertisseur, présence de chicanes dans le circuit d'eau...

Pour un convertisseur en béryllium dans cette même configuration, la puissance limite est inférieure à 6 kW en raison de son point de fusion à 1278°C. Afin de pouvoir dissiper des puissances beaucoup plus élevées, il est envisageable d'agrandir le diamètre du faisceau incident. Cela impliquerait toutefois un agrandissement des dimensions de la cible qui est défavorable au relâchement rapide des produits de fission. Il faudrait donc rechercher une configuration d'irradiation optimum pour la dissipation de puissance dans le convertisseur et le relâchement de la cible.

Les conditions de refroidissement du convertisseur sont restreintes par la proximité de la cible de fission portée à haute température. En effet, la distance convertisseur-cible doit être réduite au mieux afin d'avoir un flux neutronique à travers la cible le plus efficace. Dans ce contexte, l'usage d'un convertisseur en graphite s'avère préférable (chapitre 5). Le rendement neutronique devrait d'autre part être amélioré en remplaçant un convertisseur graphite ordinaire (masse volumique $\sim 1,8 \text{ g/cm}^3$) par un graphite dense ($\sim 2,2 \text{ g/cm}^3$).

Pour des convertisseurs sous forme de flux de lithium liquide, la dissipation de puissance du mégawatt est envisageable mais demande des investissements de plusieurs millions de francs [IFM 00]. Bien que des intensités pouvant atteindre la centaine de μA soient techniquement envisagées pour les générations d'accélérateurs à venir, de tels courants, inaccessibles actuellement, sont loin de ceux utilisés dans le cadre de cette thèse.

2.4.2.3 fenêtres minces

Pour des raisons de sécurité lors des expériences, le vide de la ligne délivrant le faisceau primaire doit être isolé de celui du dispositif expérimental. L'enceinte à vide contenant le convertisseur doit donc présenter une fenêtre mince là où passe le faisceau de deutons de sorte que ce dernier ne perde pas trop d'énergie. C'est pourquoi une fenêtre mince en inox de 5/100 mm a été réalisée. En effet, bien que le dural AU4G : Al ~95%, Cu ~4% et Mg ~1%, ait un pouvoir d'arrêt sensiblement moindre que celui de l'inox : 70% Fe, ~15% Ni, ~10% Cr, ~2% Mo et ~2% Mn (fig. II.12), il est techniquement délicat de réaliser et de maintenir près d'un convertisseur chauffé par le faisceau incident, une fenêtre en dural d'une telle épaisseur.

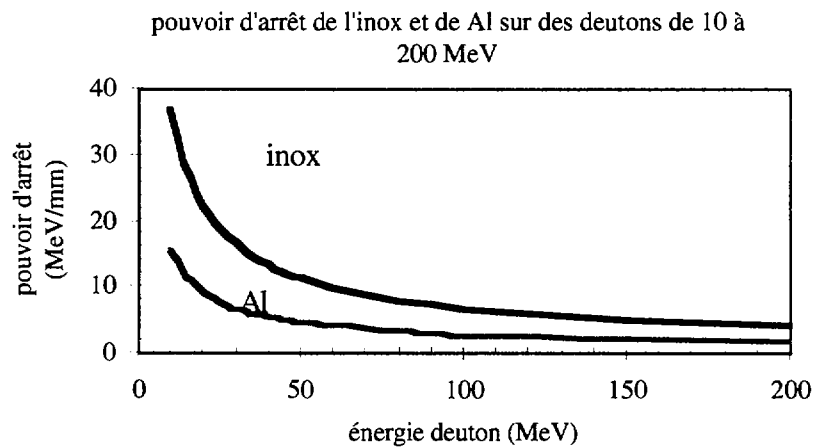


Figure II.12 : Pouvoir d'arrêt de l'aluminium (comparable à celui du dural) et de l'inox (comparable à celui du fer) pour des deutons de 10 à 200 MeV [Wil 66 – TRIM]

Afin de déterminer l'épaisseur des convertisseurs à utiliser, ainsi que le pouvoir d'arrêt des divers éléments irradiés tels les fenêtres minces, une table basée sur la formule de Bethe modifiée empiriquement [Will 66], a été utilisée. Ces valeurs sont confirmées par le code de calcul : « TRIM » [TRIM].

2.4.3 caractéristiques du flux de neutrons

L'équipe de physiciens de l'IPN d'Orsay engagé dans le projet PARRNe a réalisé des mesures de flux de neutrons en utilisant des deutons de 17, 20 et 28 MeV [Mén 99] au Tandem d'Orsay. Des mesures à plus hautes énergies ont été réalisées à K.V.I. dans le cadre de la

collaboration européenne SPIRAL II [Pau 00a], complétant ainsi les données intermédiaires figurant dans la littérature (§ 2.4.3). Un code de calcul basé sur le modèle de Serber, a été réalisé par M. Mirea afin de reproduire au mieux les distributions expérimentales en angle et en énergie obtenues dans la gamme d'énergie incidente considérée [Mir 99-Mén 99] (annexe 1).

2.4.3.1 rendement du flux de neutrons

Le rendement de neutrons augmente avec l'énergie des deutons E_d . Dans la direction incidente, les rendements expérimentaux de neutrons rapides ($E_n \geq 2$ MeV), avec un convertisseur de Be, peuvent être reproduits pour $15 \leq E_d \leq 200$ MeV par la fonction [Pau 00a] :

$$Y_{Be}(0^\circ) = 10,1 \cdot 10^6 E_d^{2,9} \quad E_d < 15 \text{ MeV} \quad (2.2)$$

$$Y_{Be}(0^\circ) = 3,4 \cdot 10^7 E_d^{2,5} \quad 15 \leq E_d \leq 50 \text{ MeV} \quad (2.3)$$

$$Y_{Be}(0^\circ) = \left(\frac{928,3}{1 + \exp[0,053(98 - E_d)]} - 6,89 \right) 10^{10} \quad 50 < E_d \leq 200 \text{ MeV} \quad (2.4)$$

Les rendements sont exprimées en n/sr/ μ C et E_d est exprimé en MeV. Sur la figure II.13, ces rendements avec le béryllium sont comparés à ceux mesurés avec un convertisseur de carbone. Le rendement du convertisseur en graphite tend à rejoindre celui en béryllium à mesure que l'énergie des deutons augmente. Avec des deutons de 20 MeV, le rendement d'un convertisseur en graphite est environ 50% celui d'un convertisseur béryllium et avoisine 80% à 160 MeV.

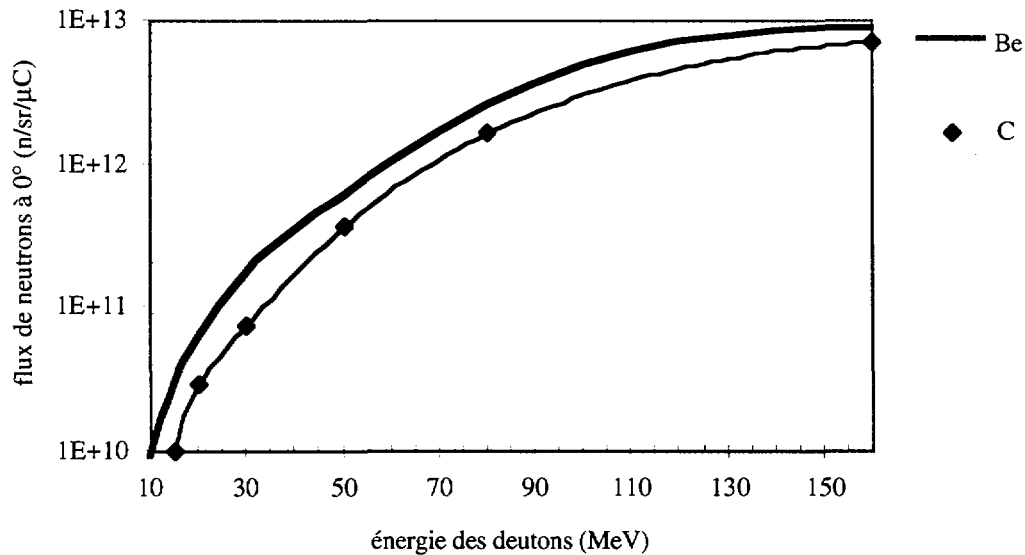


Figure II.13 : comparaison des rendements neutroniques à 0° (en n/sr/ μ C) des convertisseurs en Be et en C. Les mesures pour le carbone viennent de [Meu 75] (16, 33 et 50 MeV), de [Mén 99] (19 et 28 MeV) et de [Pau 00a] (80 et 160 MeV). La courbe pour le béryllium est donnée par les équations (2.2), (2.3) et (2.4).

Le rendement neutronique à 0° pour le convertisseur en graphite peut être reproduit par la fonction polynomiale (rendement en n/sr/ μ C et E_d en MeV) :

$$Y_c(0^\circ) = 7,7829 \cdot 10^2 E_d^5 - 7,2442 \cdot 10^4 E_d^4 + 2 \cdot 10^8 E_d^3 + 7 \cdot 10^9 E_d^2 + 2 \cdot 10^{11} E_d - 10^{12} \quad (2.5)$$

2.4.3.2 distribution en énergie du flux de neutron

L'énergie moyenne des neutrons à 0° augmente avec celle des deutons suivant la loi [Gra 77] :

$$\text{pour } 20 \leq E_d \leq 50 \text{ MeV} \quad E_{n, \text{MOY}}(0^\circ) = 0,4 E_d \quad (2.6)$$

En première approximation, la distribution en énergie est centrée vers $0,4 E_d$ avec une largeur à mi-hauteur d'environ 10 MeV pour $20 \leq E_d \leq 30$ MeV [Mén 99]. Toutefois la distribution s'élargit à mesure que croît l'énergie incidente et son allure peut être approchée par l'équation du modèle transparent de Serber [Ser 47] (annexe 1).

Avec des deutons de 50 MeV, l'énergie moyenne des neutrons peut être empiriquement décrit, pour $0 \leq \theta \leq 30^\circ$, par :

$$E_n(\text{MeV}) = 19,8 - 0,14 \theta^\circ \quad (2.7)$$

L'énergie moyenne ne diminue que de 14% entre l'angle d'incidence et 20° .

2.4.3.3 distribution angulaire du flux de neutrons

Les mesures réalisées entre 15 et 200 MeV permettent de déduire la largeur à mi-hauteur des distributions angulaires à ces énergies (tableau II.1). L'allure de ces distributions est donnée par le modèle de Serber (annexe 1, relation A1.1).

énergie des deutons (MeV)	largeur à mi-hauteur ($^\circ$)	référence
16	34	[Meu 75]
33	24	[Meu 75]
50	20	[Meu 75]
80	17	[Pau 00a]
160	12	[Pau 00a]
200	9	[Hel 47]

Tableau II.1 : largeur à mi-hauteur des distributions angulaires de neutrons à différentes énergies de deutons incidents.

L'évolution de la largeur à mi-hauteur proportionnelle à $1/(E_d)^{1/2}$ prédite par le modèle de Serber est donc approximativement confirmée entre 15 et 200 MeV (annexe 1).

$$\Delta\theta_{1/2} = 137^\circ / (E_{d[\text{MeV}]})^{1/2} \quad (2.8)$$

2.5 Nombre de fissions induites dans une cible

A partir de la connaissance du flux neutronique dans la direction incidente et de ses distributions en angle et en énergie, il faut estimer le nombre de fissions induites dans la cible de production. Ainsi, un programme a été développé par M. Mirea *et al.* [Mir 99] : FICNeR (Fission Induite dans une Cible par des Neutrons Rapides). Il permet d'estimer ces rendements de fission en fonction de la nature du convertisseur et de l'énergie des deutons ainsi que de la géométrie de l'ensemble convertisseur-cible.

Afin d'obtenir la distribution angulaire de neutrons émergeant du convertisseur, le modèle de Serber est utilisé en décomposant le convertisseur en une série de cibles minces. Un terme traduisant les diffusions coulombiennes multiples des deutons dans la cible épaisse est ajouté. Le modèle de Serber permet aussi de traiter la distribution angulaire des neutrons de reculs rapides. Le rapport entre la contribution des neutrons de stripping et celle des neutrons de recul se déduit en reproduisant les spectres neutroniques expérimentaux.

Pour quantifier l'efficacité d'interaction de ce flux avec la cible de fission, le programme calcul l'épaisseur équivalente défini au paragraphe suivant. Puis le nombre de fissions induites dans la cible est estimé avec les sections efficaces calculées en fonction de l'énergie neutronique.

2.5.1 épaisseur équivalente

Pour traduire la dépendance de la configuration géométrique de la cible par rapport au convertisseur, le parcours d'un neutron dans la cible est tout d'abord calculé en fonction de son angle d'incidence. Ce parcours est moyenné en fonction de la distribution angulaire des neutrons et de la disposition géométrique de la cible vis-à-vis du convertisseur. Dans cette hypothèse, le nombre de fissions induites par le flux de neutrons est donc proportionnel à l'épaisseur équivalente :

$$L_m = r_m \rho_{[U]} \quad (2.9)$$

r_m : le parcours moyenné à travers la cible sur la distribution angulaire des neutrons

$\rho_{[U]}$: la concentration en ^{238}U de la cible.

En effet, à l'échelle de cibles de quelques dizaines de cm de dimensions, le neutron qui ne subit pas de ralentissement électromagnétique, a une probabilité d'interagir d'autant plus grande qu'il parcourt de la matière.

L'intérêt de placer le convertisseur aussi près que possible est mis en évidence sur la figure II.14. Le nombre de fissions augmente avec l'énergie incidente car la distribution angulaire est plus large à faible énergie de deutons. Avec ce programme, on pourra définir les dimensions optimales d'une cible en observant la variation de l'épaisseur équivalente, proportionnelle au rendement de fission, en fonction de la longueur, du diamètre...

Le chapitre 5 présentera des expériences PARRNe 1 permettant de valider ce programme.

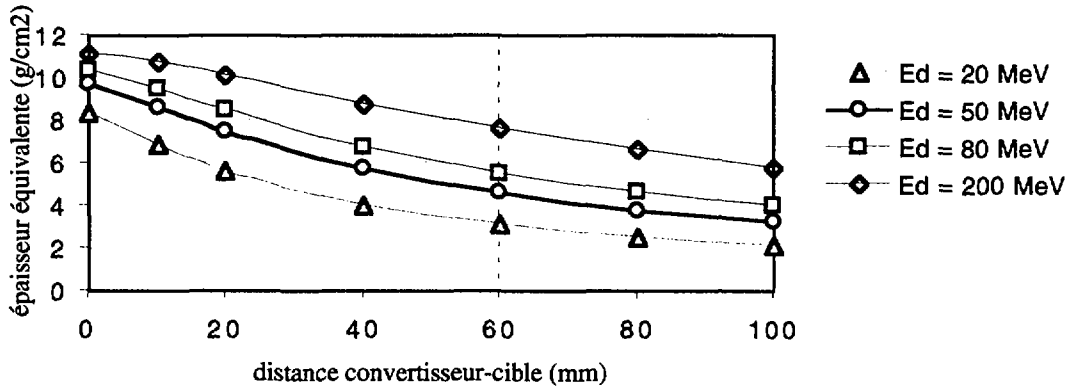


Figure II.14 : estimation de la variation de l'épaisseur équivalente (proportionnelle au nombre de fission) en fonction de la distance convertisseur-cible pour un faisceau de deutons de diamètre 5 mm et une cible (UC_x) cylindrique de diamètre 14 mm et de longueur 50 mm.

2.5.2 nombre de fission

Une fois l'épaisseur équivalente déterminée, la connaissance des sections efficaces de fission [Eis 96] et de la distribution en énergie des neutrons nous permet d'estimer N_f : le nombre de fissions induites par deuton incident :

$$N_f = \frac{N_t L_m}{M_U} \frac{\int_0^{E_d} \sigma_f(E) D(E) dE}{\int_0^{E_d} D(E) dE} \quad (2.10)$$

N_t : nombre total de neutrons émis à l'avant par deuton incident, obtenu en intégrant la distribution angulaire des neutrons sur les angles avants (annexe 1).

L_m : épaisseur équivalente.

$\sigma_f(E)$: section efficace de fission induite par des neutrons.

$D(E)$: distribution en énergie du flux de neutrons à 0° .

M_U : masse de l'uranium (u.m.a.).

L'équation (2.10) ne prend pas en compte la variation de la distribution en énergie avec l'angle d'incidence. Comme l'énergie des neutrons diminue à mesure que l'on s'écarte de la

direction d'incidence le code tend à surestimer le nombre de fissions pour les géométries d'irradiation où la cible intercepte une grande partie du flux incident.

La figure II.15 donne les nombres de fissions obtenus en fonction de l'énergie incidente des deutons pour une cible cylindrique dans une configuration proche de celles des expériences PARRNe 1 réalisées à différentes énergies de deutons (chapitre 5). Puisque dans cette configuration la cible est essentiellement traversée par des neutrons à 0° , un calcul approché a été réalisé en guise de comparaison (fig. II.15). Il se déduit directement des flux de neutrons mesurés à 0° (équations 2.2, 2.3 et 2.4) en prenant comme section efficace de fission les valeurs obtenues aux énergies de neutrons de $0,4 E_d$ (équation 2.5).

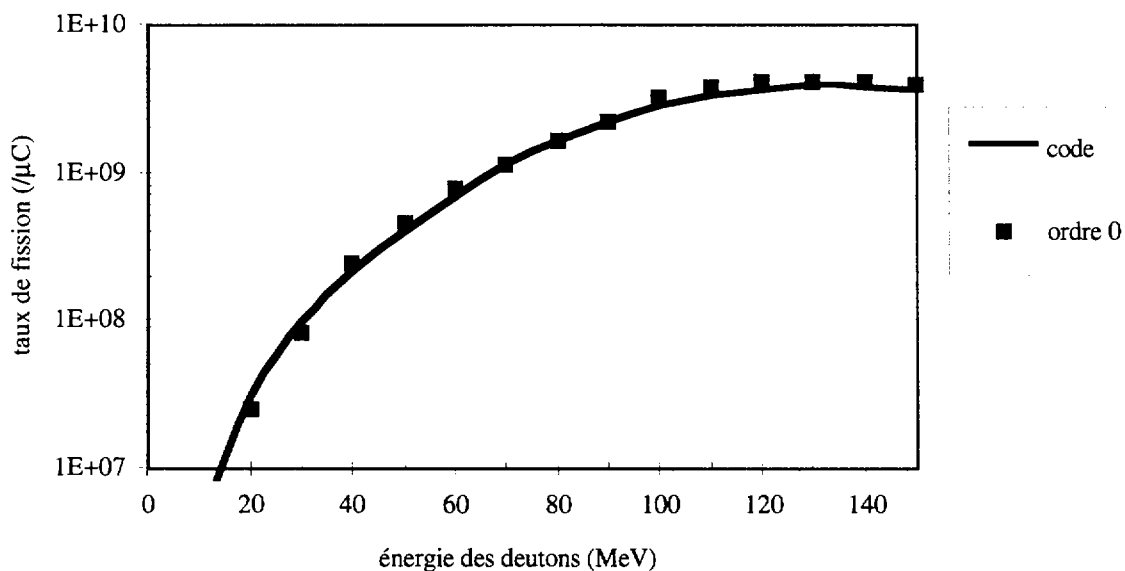


Figure II.15 : Nombre de fissions induites en fonction de l'énergie des deutons incidents dans une cible de carbure d'uranium. La cible (1,4 cm de diamètre et 5 cm de long contient 3 g/cm^3 de ^{238}U) est distante de 8 cm d'un convertisseur Be. Les points représentent un calcul déduit des mesures de flux de neutrons à 0° .

Le calcul à l'ordre 0 qui néglige à la fois la distribution des neutrons en angle et en énergie reproduit les résultats du code dans la configuration d'irradiation étudiée où la cible est essentiellement traversée par des neutrons à 0° .

La baisse du nombre de fissions induites à partir de 130 MeV résulte de la combinaison de trois facteurs. Premièrement le flux neutronique à 0° amorce une saturation à partir de 130 MeV (fig. II.13). Deuxièmement la section efficace de fission diminue pour des neutrons de plus de 40 MeV (fig. II.3). Troisièmement, l'augmentation de l'épaisseur du convertisseur avec l'énergie des deutons recule le point moyen d'émission des neutrons.

Finalement, rappelons qu'à mesure que l'énergie des projectiles augmente, la distribution en masse des fragments de fission s'élargit. Par conséquent la production d'un type d'isotope riche en neutrons ne croît pas nécessairement avec le nombre de fissions. De plus, on s'attend pour des énergies de neutrons de plus de 20 MeV à une évaporation neutronique accrue des fragments produits, ce qui limite le nombre de noyaux très riches en neutrons (§ 2.3.4).

3. PARRNe 0 : Une Expérience de Faisabilité

3.1 Objectifs

Les estimations théoriques à partir du code LAHET se basaient sur un faisceau de l'ordre de 100 kW afin d'obtenir entre 10^{11} et 10^{12} noyaux riches en neutrons par seconde, pour les isotopes les plus produits [ANL 95]. Elles demandaient l'organisation d'un programme de R&D afin de pouvoir vérifier la faisabilité technologique.

Il n'était pas nécessaire d'avoir d'entrée de jeu un puissant faisceau de deutons de haute énergie pour démarrer ce programme de R&D, d'autant plus que l'énergie optimale d'irradiation demeurait mal connue. Disposant d'un accélérateur Tandem à l'IPN d'Orsay capable de fournir des deutons d'une vingtaine de MeV, il s'agissait de savoir si les productions induit à de telles énergies donneraient suffisamment de radioéléments pour servir de support. En effet l'expérimentation de cibles épaisses d'uranium qui constitue le véritable enjeu technique peut être réalisée à des puissances moindres. A l'initiative de F. Clapier *et al.*, une expérience de faisabilité au Tandem d'Orsay, a été mise au point : PARRNe 0.

3.2 Dispositif expérimental

L'expérience consiste à irradier par des neutrons issus de l'arrêt de 100 nA de deutons à 20 MeV dans un convertisseur en graphite, une cible de ^{238}U d'1 mm d'épaisseur et de 3 cm de diamètre (fig. III.1). La cible est placée à 7 cm du convertisseur.

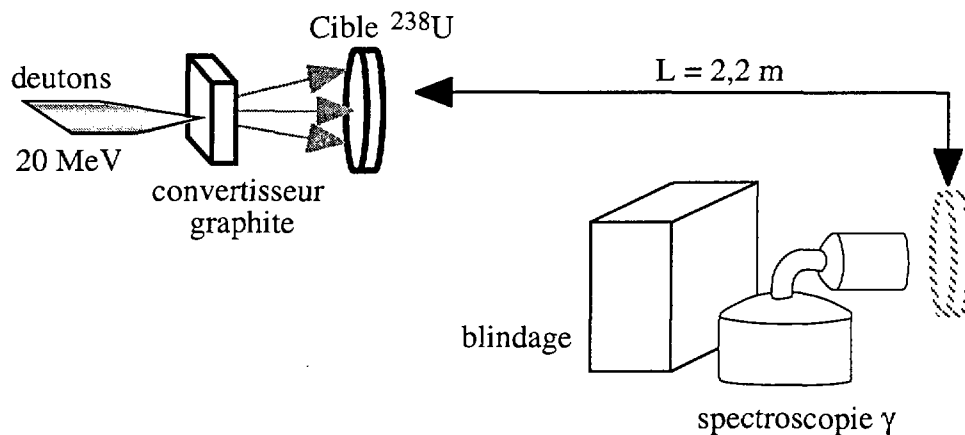


Figure. III.1 : schéma de principe du dispositif PARRNe 0

Après irradiation, la cible d'uranium est ensuite déplacée au point de détection par un système mécanique. Afin de pouvoir observer des produits de courte période, le temps de déplacement a pu être minimisé à 8 s. Un détecteur Ge (efficacité relative 18%) protégé par un blindage de béton permet d'identifier les produits de fission par spectroscopie γ .

3.3 Résultats PARRNe 0

Les spectres γ obtenus permettent d'identifier très distinctement plusieurs espèces radioactives avec un excédent de neutrons pouvant atteindre 10 pour Sb (tableau III.1). Les productions induites dans la cible sont comprises entre $6 \cdot 10^3$ et $5 \cdot 10^4$ isotopes par microcoulomb de faisceau de deutons et par gramme d'uranium. Pour calculer les productions, nous devons inclure l'effet d'atténuation des γ au sein même de la cible. Cette atténuation dans la matière s'accroît à mesure que l'énergie des photons baisse suivant la relation (3.1).

$$N_\gamma(x) = N_\gamma(0) e^{-\mu(E_\gamma) x} \quad (3.1)$$

$\mu(E_\gamma)$: coefficient linéaire d'atténuation (cm^{-1})

$N_\gamma(x)$: nombre de photons à la distance x du point d'émission

La relation (3.1) décrit un flux de photons provenant d'une source localisée à une profondeur définie de matière. Cependant, dans la cible d'uranium, les radioéléments sont produits dans la totalité du volume de la cible. L'effet d'atténuation est étalonnée expérimentalement en utilisant les différentes raies des descendants naturels de ^{238}U que sont $^{234\text{m}}\text{Pa}$ et ^{234}Th . L'activité de ces deux éléments : $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ($T_{1/2} = 1,17$ minutes) et ^{234}Th ($T_{1/2} = 24$ jours) est confondue (équilibre séculaire) avec celle de ^{238}U ($T_{1/2} = 4,5 \cdot 10^9$ ans) car leur période est négligeable devant celle du père. L'activité déduite de la raie la plus énergétique : celle de 1934 keV du $^{234\text{m}}\text{Pa}$ sert d'étalon car l'atténuation peut être négligée pour cette énergie. L'activité déduite des mesures des raies atténuées permet de déduire en fonction de l'énergie des photons, le facteur d'atténuation F défini par la relation (3.2).

$$A_{\text{réf}} = A(E_\gamma) F \quad (3.2)$$

$A_{\text{réf}}$: activité de la cible d'uranium

$A(E_\gamma)$: activité déduite de la mesure de l'intensité d'une raie d'énergie E_γ de $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ou ^{234}Th .

F : facteur d'atténuation qui permet de corriger l'activité déduite d'une mesure directe pour obtenir l'activité réelle $A_{\text{réf}}$

Pour la cible de 3 cm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur utilisée, l'expression du facteur d'atténuation déduite des différentes activités mesurées, s'écrit [Fer 97] :

$$F = F_0 + a e^{\left(\frac{-E_\gamma}{b}\right)} \quad (3.3)$$

où F_0 , a et b sont des paramètres de fit sans dimension :

$$F_0 = 1,23 \pm 0,06$$

$$a = 30 \pm 3$$

$$b = 60 \pm 5$$

Isotope	$T_{1/2}$	N_0 [10^6]	R [$10^3/\mu\text{C/g}$]
^{84}Se	3,1 min	1	6,9
^{86}Br	55,1 s	0,8	9,7
^{89}Kr	3,18 min	4,1	30
^{90}Kr	32,32 s	1,6	25
^{94}Sr	74 s	5,7	54,9
^{103}Tc	54,2 s	6,3	6,9
^{132}Sn	39,7 s	0,5	6,2
$^{132\text{m}}\text{Sb}$	2,8 min	3,4	25
^{133}Sb	2,5 min	3	23
$^{136\text{g}}\text{I}$	84 s	2,3	20,8
$^{136\text{m}}\text{I}$	45 s	0,8	9,7
^{137}Xe	39,7 min	6,6	45,2
^{139}Xe	39,5 s	1,4	20,1
^{140}Cs	63,7 s	3,8	39,6
^{144}La	40,9 s	2	27,8
^{145}Ce	2,98 min	3,7	26,4

Tableau III.1 : Mesures obtenues avec PARRNe 0. N_0 : nombre total de d'isotopes produits avec des deutons {100 nA, 20 MeV} sur un convertisseur en graphite et avec une cible de ^{238}U d'1 mm d'épaisseur. R : production par μC de deutons et par g d' ^{238}U [Cla 98].

Après cette correction, les mesures de production induits dans la cible figurent dans le tableau III.1. Les résultats ainsi obtenus permettent d'envisager la mise en place d'un travail de R&D pour optimiser la production de faisceaux intenses de noyaux exotiques à partir d'un faisceau de deutons d'une vingtaine de MeV.

3.4 Estimation des productions dans la cible

La littérature donne des rendements isotopiques par fission indépendants (sans filiation par décroissance radioactive) et cumulés (avec contribution par filiation) de noyaux pour la fission de ^{238}U induite par des neutrons de 14 MeV [LBNL]. En estimant le nombre de fission induit dans la cible de production avec les données du chapitre 2, nous pouvons déduire des productions indépendantes (sans contribution de la décroissance des parents) et cumulées (avec la contribution par décroissance) : $NO_{\text{IND.}}$ et $NO_{\text{CUM.}}$ pour les noyaux identifiés avec PARRNe 0. Le tableau III.2 compare ces productions avec celui mesuré : NO . Ce dernier doit s'approcher plus ou moins de $NO_{\text{IND.}}$ ou $NO_{\text{CUM.}}$ suivant l'importance de la contribution par filiation dans la production mesurée. Cette comparaison suppose que les rendements isotopiques obtenus dans

les conditions d'irradiation de PARRNe 0 soient identiques de ceux obtenus avec des neutrons de 14 MeV.

Pour des deutons de 20 MeV, l'énergie moyenne des neutrons vaut $E_n=8$ MeV (§ 2.4.3.2.) et avec 100 nA de courant, le flux émergeant du convertisseur dans la direction incidente vaut $2,9 \cdot 10^9$ neutrons/s/sr (relation 2.3). Si la source des neutrons est considérée comme ponctuelle, l'angle solide vu par la cible de 3 cm de diamètre vaut 0,24 sr à 7 cm. La section efficace de fission à 8 MeV est égale à 1 b [Hem 58, Les 94], ce qui donne un nombre de fission d'environ $5 \cdot 10^6$ s⁻¹ dans la cible d'uranium. Ce résultat se compare bien au nombre de $2,5 \cdot 10^6$ fission/s fourni par le code FICNeR (§ 2.5).

Isotope	T1/2	$N0_{IND.}$	$N0$ mesuré	$N0_{CUM.}$
⁸⁴ Se	3,1 mn	$5,1 \cdot 10^5$	10^6	$2,4 \cdot 10^6$
⁸⁶ Br	55,1 s	$2,5 \cdot 10^5$	$8 \cdot 10^5$	$3,1 \cdot 10^6$
⁸⁹ Kr	3,18 mn	$1,9 \cdot 10^6$	$4,1 \cdot 10^6$	$7,8 \cdot 10^6$
⁹⁰ Kr	32,32 s	$4,8 \cdot 10^6$	$1,6 \cdot 10^6$	$7,8 \cdot 10^6$
⁹⁴ Sr	74 s	$3,2 \cdot 10^6$	$5,7 \cdot 10^6$	$1,3 \cdot 10^7$
¹⁰³ Tc	54,2 s	$5,8 \cdot 10^3$	$6,3 \cdot 10^6$	$1,7 \cdot 10^7$
¹³² Sn	39,7 s	$4,9 \cdot 10^6$	$5 \cdot 10^5$	$5,1 \cdot 10^6$
^{132m} Sb	2,8 mn	$3,7 \cdot 10^6$	$3,4 \cdot 10^6$	$6,5 \cdot 10^6$
¹³³ Sb	2,5 mn	$8,9 \cdot 10^6$	$3 \cdot 10^6$	$1,1 \cdot 10^7$
^{136m} I	46 s	$3,6 \cdot 10^6$	$8 \cdot 10^5$	$3,7 \cdot 10^6$
¹³⁶ I	1,38 mn	$3,7 \cdot 10^6$	$2,3 \cdot 10^6$	$1,4 \cdot 10^7$
¹³⁷ Xe	3,83 mn	$3,2 \cdot 10^6$	$6,6 \cdot 10^6$	$1,8 \cdot 10^7$
¹³⁹ Xe	39,7 s	$8,6 \cdot 10^6$	$1,4 \cdot 10^6$	$1,4 \cdot 10^7$
¹⁴⁰ Cs	63,7 s	$2,4 \cdot 10^6$	$3,8 \cdot 10^6$	$1,6 \cdot 10^7$
¹⁴⁴ La	40,9 s	$5,5 \cdot 10^5$	$2 \cdot 10^6$	$1,2 \cdot 10^7$
¹⁴⁵ Ce	2,98 mn	$3,7 \cdot 10^4$	$3,7 \cdot 10^6$	$1,1 \cdot 10^7$

Tableau III.2 : Comparaison entre les productions $N0$ mesurées (tableau III.1) et les productions calculés $N0_{IND.}$ (rendements isotopiques indépendants) et $N0_{CUM.}$ (rendements cumulés). Le code FICNeR fourni le nombre de fission.

Avec les rendements indépendants, les productions sont reproduites pour les isotopes ^{132m}Sb et ¹³⁶I. Pour la majorité des isotopes : ⁸⁴Se ($T_{1/2} = 3,1$ mn), ⁸⁶Br ($T_{1/2} = 55,1$ s),

^{89}Kr ($T_{1/2} = 3,18 \text{ mn}$) ^{94}Sr ($T_{1/2} = 74 \text{ s}$), ^{103}Tc ($T_{1/2}=54,2 \text{ s}$), ^{137}Xe ($T_{1/2} = 3,83 \text{ mn}$),
 ^{140}Cs ($T_{1/2} = 63,7 \text{ s}$), ^{144}La ($T_{1/2} = 40,9 \text{ s}$) et ^{145}Ce ($T_{1/2}=3 \text{ mn}$), les productions sont compris entre $\text{NO}_{\text{IND.}}$ et $\text{NO}_{\text{CUM.}}$.

Toutefois, la distribution du rendement isotopique par fission donné pour des neutrons de 14 MeV diffère un peu de celui que nous obtenons avec des neutrons de 8 MeV d'énergie moyenne. Les mesures sont environ un facteur quatre en dessous de $\text{NO}_{\text{IND.}}$ pour les isotopes ^{90}Kr , ^{133}Sb , $^{136\text{m}}\text{I}$ et ^{139}Xe , alors qu'elles sont bien reproduites pour les isotopes ^{89}Kr , $^{132\text{m}}\text{Sb}$, ^{136}I et ^{137}Xe . Le noyau ^{132}Sn est aussi surestimé par les calculs.

3.5 Conclusion

Les productions d'isotopes radioactifs, obtenues dans des conditions non optimisées (distance convertisseur, diamètre de la cible...), sont suffisantes pour justifier le démarrage d'un programme de R&D basé sur ce mode de production. Ils sont comparables aux calculs réalisés avec des données pour des neutrons incidents de 14 MeV [LBNL].

Avec une cible d'uranium métallique de diamètre suffisamment petit de façon à pouvoir déterminer aisément le flux neutronique la traversant, et avec un système d'acquisition performant comme COMET (§ 6.3.1), des mesures de section efficace cumulées de production de fragments de fission sont également envisageables avec la configuration PARRNe 0. L'obtention d'une mesure de référence est une étape incontournable pour calibrer des codes de calculs.

Les résultats de PARRNe 0 concernent la production au sein même de la cible. Les développements qui vont suivre viseront à réaliser des cibles contenant d'avantage d'uranium. L'objectif principal consistera donc à développer une technologie favorisant au mieux la diffusion des produits de fission à travers ces cibles épaisses, afin d'en récupérer la plus grande quantité possible.

4. Développements de Cibles

4.1 Caractérisation d'une cible épaisse de production

Les cibles à développer doivent être épaisses afin d'exploiter au mieux le flux de neutrons incidents. Toutefois, plus le volume de la cible augmente, plus la sortie des isotopes radioactifs hors de la cible devient difficile, augmentant ainsi les pertes par décroissance radioactive. Le défi consiste à réaliser une cible de production épaisse capable de relâcher rapidement et en grand nombre les noyaux d'intérêt qu'elle contient. Le relâchement efficace des produits de fission exige une cible portée à haute température. Son optimisation pousse à atteindre les limites thermiques que peut tenir la cible, notamment pour la recherche de radioéléments de courte période. Ainsi, apparaît une problématique de physico-chimie à haute température. Commençons par présenter les traits d'une cible épaisse de production afin de souligner les aspects à considérer dans sa réalisation.

4.1.1 aspects généraux

Deux caractéristiques principales définissent une cible de production :

◇ Les isotopes radioactifs doivent sortir de la cible en un temps court par rapport à leur durée de vie. La vitesse de déplacement des isotopes augmentant avec la température du milieu, il est nécessaire de maintenir la cible à une température aussi élevée que possible. La structure de la cible ainsi que sa géométrie doivent aussi favoriser un relâchement rapide des noyaux produits. De plus, ce relâchement diffère selon la nature du radioélément. Cette sélectivité peut être d'origine physique avec la volatilité de l'élément, ou chimique à cause des réactions donnant des molécules de comportements physiques différents. Elle dépend des matériaux utilisés dans l'environnement de la cible et peut être modifiée par l'usage de procédés comme la fluoruration [Hof 80- Put 81-He1 92].

◇ La cible doit impérativement posséder dans les conditions expérimentales une bonne tenue au cours du temps afin de permettre des expériences de physique nécessitant des longs temps de comptage. De cette contrainte vient la limite supérieure du chauffage de la cible. La cible doit posséder une inertie chimique suffisante ainsi qu'un taux d'auto-évaporation assez faible durant le chauffage. Pour une cible solide, il est important de préserver sa structure poreuse qui favorise la diffusion des radio-isotopes. A l'étude de cette altération physico-chimique au cours du temps, s'ajoute celle des dommages dus à l'irradiation incidente.

4.1.2 élévation en température de la cible par l'énergie de la fission

Dans une configuration d'exploitation en ligne avec un faisceau primaire intense, le nombre de fissions induites dans la cible peut suffire à chauffer la cible à une température optimale au relâchement des isotopes radioactifs. Afin de quantifier ce chauffage, nous envisagerons quatre configurations possibles (tableau IV.1). Les deux premières considèrent un faisceau de deutons que pourrait fournir un prochain cyclotron dans le contexte du programme SPIRAL II. Les deux dernières considèrent un faisceau à forte intensité que pourrait produire l'accélérateur étudié dans le projet IFMIF [IFM 96]. L'implantation au GANIL d'un tel accélérateur a été récemment envisagée par E. Baron *et al.* [Bar 00]. La configuration B (cible de 3 kg d'uranium) peut être considérée comme une limite technologique car le volume de la cible devient défavorable à un relâchement efficace des noyaux de fission.

Configu- ration	Faisceau de deutons		Cible de carbure d'uranium			
	énergie (MeV)	intensité (μ A)	masse ^{238}U (g)	rayon (cm)	longueur (cm)	densité U (g/cm^3)
A	100	100	300	1,2	22	3
B	100	100	$3 \cdot 10^3$	2,5	26	6
C	40	10^5	30	0,7	7	3
D	40	10^5	300	1,2	22	3

Tableau IV.1 : configurations d'irradiation étudiées avec une cible cylindrique distante de 8 cm d'un convertisseur en graphite.

Le code FICNeR donne le flux de neutrons incident à 0° et le taux de fission induit dans les différentes cibles (tableau IV.2). Ces données sont comparables à celles déduites des mesures de flux de neutrons (§ 2.3.2 et fig. II.14). L'énergie libérée par la fission d'un noyau de ^{238}U induite par un neutron de quelques MeV est de 208 ± 4 MeV. De cette énergie, $193,9 \pm 0,8$ MeV peut être récupérée sous forme thermique [Jam 69]. Le reste est notamment emporté par les antineutrinos. La puissance de chauffage par fission s'obtient alors en considérant que toute l'énergie thermique récupérable est absorbée dans la cible (tableau IV.2). La répartition de cette puissance dans la cible peut être considérée comme uniforme dans la mesure où les neutrons rapides ne subissent pas de ralentissement électromagnétique.

A haute température, les échanges d'énergie par rayonnement sont beaucoup plus importants que ceux par conduction thermique, en particulier dans une configuration où les éléments chauffés ont un faible contact mécanique. La surface de la cible peut s'assimiler à du graphite et le conteneur qui l'enferme peut être fait en graphite. Considérons la cible entièrement enveloppée dans le conteneur. En fait, 5% de la surface de la cible rayonne hors du conteneur, vers le tube de transfert où doivent s'échapper les noyaux issus de la fission. L'équation générale décrivant le transfert radiatif d'une surface convexe S_1 (ici celle de la cible), vers une surface S_2 de forme quelconque, qui entoure la première, s'écrit [Hue 92] :

$$\Phi_1 = \int_0^{\infty} \frac{\epsilon_{\lambda 1} \epsilon_{\lambda 2} (\varphi_{\lambda 1}^0 - \varphi_{\lambda 2}^0)}{\epsilon_{\lambda 2} + \epsilon_{\lambda 1} (1 - \epsilon_{\lambda 2})} \frac{S_1}{S_2} d\lambda \quad (4.1)$$

l'indice 1 réfère à la surface opaque S_1 et l'indice 2 à la surface opaque S_2

Φ_1 : flux par unité de surface rayonné par la surface S_1 (la cible)

λ : longueur d'onde du rayonnement monochromatique considéré

$\epsilon_{\lambda i}$: émissivité spectrale à la longueur d'onde λ de la surface S_i ($i = 1$ ou 2)

$\varphi_{\lambda i}^0$: exitance monochromatique : c'est le flux monochromatique émis par la surface S_i considérée comme un corps noir.

L'expression de $\varphi_{\lambda i}^0$ est donnée par la loi de Planck :

$$\varphi_{\lambda i}^0 = \frac{2\pi h c_0^2 \lambda^{-5}}{\exp\left(\frac{h c_0}{\lambda k_B T}\right) - 1} \quad (4.2)$$

L'utilisation de la relation 4.1 suppose l'isotropie des propriétés radiatives. Une difficulté majeure liée au calcul de flux rayonné réside dans le manque de données expérimentales précises, notamment sur ϵ_{λ} en fonction de λ , dans la littérature [Tou 72].

De façon générale, l'émissivité totale ϵ qui est une valeur intégrale des émissivités spectrales ϵ_{λ} , varie beaucoup avec la température du fait de l'importante évolution de ϵ_{λ} avec λ et de $\varphi_{\lambda i}^0$ avec λ et T . Or, l'émissivité totale du carbone ϵ_C varie peu avec la température : de 0,7 à 0°C jusqu'à 0,8 à 3600°C [Lid 96]. De plus elle est proche de celle d'un corps noir. Nous négligerons donc pour développer le calcul cette faible variation. Par conséquent l'équation 4.1 s'écrit donc ($\epsilon_{\lambda} \sim \epsilon_C$) :

$$\Phi_1 \approx \frac{\epsilon_C^2}{\epsilon_C + \epsilon_C (1 - \epsilon_C)} \frac{S_1}{S_2} \sigma_{SB} (T_1^4 - T_2^4) \quad (4.3)$$

Φ_1 : flux par unité de surface rayonné par la surface S_1 (la cible)

ϵ_C : émissivité totale du carbone (0,8 à haute température [Lid 96])

T_1 : température de S_1 (cible) et T_2 : température de S_2 (conteneur)

En supposant que le gradient thermique entre la cible et le conteneur soit de 200°C, la température de la cible se déduit de la puissance de chauffage (tableau IV.2). Ce gradient thermique dépend des éléments environnant le conteneur cible.

Configu- ration	masse ^{238}U (g)	neutrons à 0° ($\text{sr}^{-1}.\text{s}^{-1}$)	taux de fissions (s^{-1})	Puissance de chauffage (W)	Température Cible ($^{\circ}\text{C}$)
A	300	10^{14}	$2 \cdot 10^{12}$	70	730
B	$3 \cdot 10^3$	10^{14}	$1 \cdot 10^{13}$	330	1350
C	30	10^{16}	$2 \cdot 10^{13}$	670	1750
D	300	10^{16}	$9 \cdot 10^{13}$	$3 \cdot 10^3$	3000

Tableau IV.2 : Température cible résultant du chauffage induit par la fission seule, dans les configurations envisagées.

A titre de comparaison, dans le cadre du projet PIAFE, le chauffage par réactions de fission d'une cible de dimensions analogues à la configuration C a été étudiée [Fru 97]. Cette cible qui est aussi en graphite avec 4 g de ^{235}U sous forme de carbure, reçoit un chauffage de 3 kW provenant de 10^{14} fissions/s. En considérant une géométrie à symétrie axiale et des émissivités totales de 0,8 pour le carbone et 0,35 pour le rhénium formant le conteneur, la température de la cible est estimée à 2400°C .

La température de la cible dépend fortement de son environnement. Ainsi, dans une configuration de type ISOLDE, une cible de UC_2 de 20 cm de long et de 2 cm de diamètre pourrait dissiper plusieurs kilowatts sans que sa température dépasse 2000°C [Eat 87].

En conclusion, dans des conditions d'exploitation en ligne, l'élévation en température par la fission doit être considérée dans la conception de la cible. Tant que la fission génère dans la cible une puissance inférieure à un kilowatt ($3 \cdot 10^{13}$ fissions/s), un chauffage extérieur demeure nécessaire. Pour des taux de fission supérieurs à $3 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$, la cible nécessite alors un système de refroidissement. La valeur précise de la température dépend des conditions d'échanges par rayonnement (état de surface et température des éléments recevant le rayonnement). Elle peut aussi être ajustée en modifiant les contacts mécaniques afin de favoriser plus ou moins les échanges par conduction.

4.1.3 action des neutrons sur la structure de la cible

Pour une cible solide, l'irradiation par des neutrons rapides qui génère des neutrons secondaires, des rayonnements γ et des fragments de fission énergiques, modifie la structure de la cible. L'énergie nécessaire pour chasser un atome hors de son site avoisine 25 eV. Les neutrons rapides diffusent dans la matière avec une section efficace pour des chocs élastiques de l'ordre de quelques barns ($\sigma = 8,3 \text{ b}$ dans l'uranium naturelle) et l'énergie qu'ils communiquent par diffusion élastique est généralement suffisamment élevée pour que les noyaux affectés deviennent des ions dont l'énergie dépasse substantiellement celles de liaison du réseau cristallin [Pas 60]. Toutefois, ces ions sont rapidement ralentis par interactions électromagnétiques.

Bien plus énergiques, les fragments de fission avec une énergie initiale de 40 à 100 MeV, parcourent moins de 10 μm dans les métaux lourds (6,7 μm dans le fer). Ils produisent une gerbe d'ions secondaires contenue dans un volume cylindrique de 10^4 distances interatomiques de long et de 50 distances interatomiques de rayon [Cot 56]. Dans ce volume de $7 \cdot 10^7$ noyaux, l'intégralité de l'énergie d'un fragment se dissémine en déplaçant environ $2,5 \cdot 10^4$ noyaux [Sei 49]. Pendant le temps de 10^{-12} s nécessaire à la propagation de cette énergie sur un plus grand nombre d'atomes, les noyaux au voisinage de la gerbe sont portés à quelques milliers de degrés et l'ensemble se comporte brièvement comme un liquide, ce qui permet une restructuration du milieu. En considérant que les noyaux déplacés en fin de cascade échappent à ce réarrangement, des $2,5 \cdot 10^4$ noyaux déplacés ne restent que $(2,5 \cdot 10^4)^{2/3} = 10^3$ [Pas 60]. Par conséquent, l'altération de la cible par irradiation de neutrons rapides, demeure limitée. De plus, elle s'accroît peu au cours de l'irradiation car une partie de l'énergie de fission sert à réarranger la structure. Rappelons aussi qu'en comparaison aux réactions induites par particules chargées, les réactions générées par les neutrons rapides sont beaucoup moins localisées.

Dans le cas d'une cible de métal fondu, les effets de l'irradiation se manifestent par des courants de convection. La vitesse de ces courants augmente avec l'importance des gradients thermiques. Cette agitation générale est plutôt un effet favorisant la diffusion rapide des radioéléments.

En conclusion, dans les conditions expérimentales envisageables, les dégâts sur la structure de la cible demeurent limités.

4.2 Cible UC_x

Afin de favoriser la cinétique des processus de diffusion et de désorption, la cible doit atteindre une température aussi élevée que possible. Une solution consiste à former avec l'uranium un composé réfractaire dont la structure doit favoriser le relâchement. On compte parmi les composés réfractaires pour l'uranium : les carbures, oxydes, borures, nitrures et siliciures. Le carbure d'uranium apparaît comme le plus adapté à la réalisation d'une cible épaisse [Rav 87-Cam 67]. En effet, les siliciures d'uranium les plus réfractaires fondent avant de dépasser 1700°C [Camp 67]. Les borures d'uranium généralement sous forme de cristaux très durs relâchent lentement les produits de fission et ne conviennent donc pas [Rav 87-Pas 61]. Quant au nitrure UN et à l'oxyde UO_2 qui fondent au delà de 2200°C , leur tension de vapeur à 2000°C est cependant mille fois plus élevée que celle du carbure d'uranium UC_2 [Mar 67].

L'utilisation du composé réfractaire sous forme de poudre permet d'obtenir un parcours minimum des fragments de fission dans le milieu solide [Fuj 81]. Les cibles de type UC_x se composent de grains microscopiques de carbure d'uranium mélangés dans de la poudre de graphite.

En conclusion, nous avons choisi des cibles UC_x pour engager nos travaux de R&D. Leur fabrication a été mise au point par ISOLDE au CERN (voir ci-dessous) et est maintenant disponible à l'IPN d'Orsay.

4.2.1 propriétés du carbure d'uranium

Les carbures d'uranium utilisés se présentent essentiellement sous les formes UC_2 et UC . Sous vide, leur température de fusion s'élève au dessus de $2350^\circ C$ [Lid 96] et leur basse tension de vapeur de l'ordre de 10^{-5} mbar à $2000^\circ C$ [Mar 67] leur procure une stabilité exceptionnelle à haute température. Une tension de vapeur de 10^{-5} mbar à $2300^\circ C$ fut mesurée avec une cible de type UC_x , composée de carbure d'uranium diluée dans une matrice de graphite [Hof 84].

Toutefois, des précautions sont à prendre pour un chauffage sous vide au delà de $1800^\circ C$. Ainsi, du tantale (couramment utilisé à haute température) ne peut contenir en contact direct du carbure d'uranium car à $2000^\circ C$ il est rongé en moins d'une heure. Dans la pratique seul l'usage d'un creuset en graphite permet une contenance prolongée [Car 78].

4.2.2 mise au point d'une cible UC_x

4.2.2.1 R&D à ISOLDE pour obtenir une cible à relâchement rapide

Pour un relâchement efficace l'utilisation de grains de carbure d'uranium aussi fins que possible s'impose. Cependant, d'une façon empirique il a été observé que les grains d'une poudre s'agglomèrent lorsque la température de chauffage dépasse environ la moitié du point de fusion. Ce grossissement des grains se traduit par une réduction de la porosité. De plus, cette détérioration s'amorce avec une vitesse inversement proportionnelle au cube du diamètre du grain. Ainsi le relâchement observé avec des grains de carbure d'uranium de $1,3 \mu m$ devient rapidement similaire à celui des grains de $20 \mu m$ à $2000^\circ C$ [Car 78]. Une taille de grain d'une dizaine de microns constitue donc une limite pratique. La dilution des grains de carbure dans une matrice poreuse de graphite, sous forme de poudre ou de fibre, permet d'éviter ce processus d'agglomération. Ainsi, le gain obtenu pour des isotopes de durée de vie inférieure à 10 s est meilleur à $2000^\circ C$ malgré la dilution de la concentration en uranium dans un rapport U/C de 10% [Car 78]. La concentration en masse d'uranium correspondante est de $2,3 g/cm^3$. De plus, la stabilité de cette cible est très satisfaisante puisqu'aucune détérioration visible n'a été constatée après 250 h sous faisceau à $2000^\circ C$ [Car 79]. Les procédés de fabrication d'ISOLDE ont été adaptés à l'IPN d'Orsay pour la réalisation et le développement de cibles dans le projet PARRNe.

4.2.2.2 description de la fabrication

Des différents procédés de fabrication de carbure d'uranium [Pas 61], la méthode la plus appropriée pour leur obtention sous forme de grains est la carburation de l'oxyde d'uranium. Elle consiste à chauffer sous vide un mélange poudreux de UO_2 et de graphite comprimés afin de transformer UO_2 en carbure d'uranium suivant les réactions :



La réaction s'amorce vers 1300°C . La proportion de UC par rapport à UC_2 dans la structure poreuse dépend de la température atteinte et de la proportion C/U correspondant à la composition du mélange.

La cible est composée de pastilles de 14 mm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur qui sont formées par une compression d'environ 8 tonnes/cm^2 du mélange poudreux. Ces pastilles placées dans un creuset en graphite adapté, subissent un cycle de chauffage pour réaliser la carburation et améliorer la tenue mécanique à haute température. Ce cycle se décompose en 3 étapes successives :

- ◇ 35 h d'un chauffage progressif jusqu'à 900°C pour dégazer la cible
- ◇ 80 h de chauffage entre 900°C et 1600°C au cours desquelles se produit la carburation
- ◇ 10 h de chauffage entre 1600°C et 2000°C pour achever le dégazage de la cible

Le seuil maximum de la pression résiduelle fixée à 10^{-4} mbar conditionne la durée des étapes de chauffage. Le départ de la carburation s'observe par une élévation de la pression résultant de la production de CO. Les carbures obtenus imprègnent les grains de graphite.

Le transfert des pastilles d' UC_x dans le conteneur cible s'effectue dans une hotte sous atmosphère inerte : un flux d'argon, car les poudres de UC_2 et UC sont pyrophoriques à température ambiante.

Les pastilles ainsi élaborées présentent une concentration en ^{238}U qui peut atteindre 3 g/cm^3 (rapport atomique U/C ~ 7). La taille des grains de graphite que nous utilisons est de $44 \mu\text{m}$ alors qu'elle est de $20 \mu\text{m}$ à ISOLDE [Car 79]. Dans nos expériences de production, de telles cibles sont restées opérationnelles pendant environ 3 jours à 2200°C . Une légère adhérence entre quelques pastilles de UC_x fut observée après l'expérience, néanmoins l'état des pastilles apparaissait satisfaisant pour un second usage en ligne. Afin de prévenir cette adhésion entre les pastilles, des fils de $0,02 \text{ mm}$ d'un tissu de graphite furent intercalés.

Notons pour conclure que, dans le but de diminuer les temps de relâchement, une cible de type UC_x a été élaborée par V.I. Tikhonov *et al.* [Bol 92-Eve 97] à partir de molécules de diphtalocyanine mixées avec de l'oxyde d'uranium. Bien qu'une telle cible possède une structure poreuse qui ne s'agglomère pas après plus de 100 h en ligne à 2300°C et qui offre un meilleur relâchement, sa faible concentration en uranium : $1,2 \text{ g/cm}^3$ limite les taux de production [Eve 97-Bol 92].

4.2.3 relâchement d'une cible UC_x

Trois processus interviennent dans le relâchement des radio-isotopes pour une cible solide réfractaire : la diffusion dans le grain solide, la diffusion intergranulaire et la désorption de la surface des grains cristallins. Les joints de grains constituent souvent des courts-circuits dans lesquels la diffusion de traceurs à des températures inférieures à la moitié du point de fusion est beaucoup plus rapide que dans le volume solide. Dans notre cas où la température de la cible tend vers celle du point de fusion, la diffusion en volume et aux joints de grains se confondent [Gui 84]. La caractérisation précise de ce processus demeure délicate tant du point de vue expérimentale que théorique. Néanmoins, nous pouvons considérer que la diffusion dans le joint de grain ne conditionne pas le relâchement à haute température.

Par conséquent, deux processus conditionnent effectivement ce relâchement :

- ◇ la diffusion dans le grain solide
- ◇ la désorption de la surface du grain cristallin

L'importance relative de ces processus sur le temps moyen de relâchement dépend de la structure poreuse, de la dimension des isotopes et de leurs propriétés physico-chimiques.

Le fait de savoir si l'un des deux processus domine fortement sur l'autre permet d'optimiser la structure de la cible. Par exemple, dans le cas de certaines cibles métalliques où la désorption conditionne le temps de relâchement, l'utilisation de fines feuilles au lieu de poudre granulaire apporte une amélioration en réduisant la surface totale de la cible [Bjo 87]. Concernant le carbure d'uranium, la quantification de ces processus dépend grandement de la nature chimique de l'isotope relâché [Rud 87]. Toutefois une cible granuleuse UC_x donne des taux de production de Rb et de Cs bien meilleures qu'une cible de feuilles en graphite de 30 μm d'épaisseur contenant du carbure d'uranium [Shm 83]. De plus, dans le cadre d'une expérience faite au CERN avec des cibles minces, la comparaison en ligne de cibles de carbures d'uranium dans des feuilles en graphite de 30 μm et de 50 μm d'épaisseur suggère que la diffusion limite principalement la sortie des isotopes de reculs observés [Tou 81].

4.2.3.1 diffusion

La diffusion d'un isotope dans un milieu solide en fonction du temps se décrit par les deux lois de Fick. La première exprime le flux de particules transporté en fonction du gradient de concentration et la seconde exprime la conservation du nombre de particules migrantes.

$$\partial_t c = -\nabla \cdot \mathbf{J} = -\nabla \cdot (D \cdot \nabla c) \quad (4.6)$$

\mathbf{J} : flux vectoriel de l'espèce observée, par unité de surface et de temps

D : coefficient de diffusion (moléculaire) de l'espèce diffusante.

c : concentration locale de l'espèce diffusante, par unité de volume

En tenant compte de la décroissance radioactive durant cette diffusion, l'équation 4.6 devient :

$$\partial_t c = -\nabla \cdot (D \cdot \nabla c) - \lambda c + q \quad (4.7)$$

$\lambda = \text{Ln}(2)/T_{1/2}$ où $T_{1/2}$ est la période de l'isotope radioactif étudié

q : taux par unité de volume des isotopes produit par fission

Les conditions limites déterminant les solutions de l'équation 4.7 sont données par la structure du solide. En supposant une diffusion purement radiale, l'équation 4.7 admet une solution analytique dans le cas d'un grain sphérique [Mau 98].

$$\Phi_{\text{diff}} = \frac{8 q R^3}{\pi} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\mu}{k^2 \mu + \lambda} (1 - \exp[-(k^2 \mu + \lambda)t]) \quad (4.8)$$

Φ_{diff} : flux des isotopes étudiés arrivant à la surface du grain

R : rayon du grain

$\mu = \pi^2 D/R^2$

t : le temps ($t=0$ correspond au début de l'irradiation)

D'où se déduit la fraction relâchée du flux produit F_{Φ} :

$$F_{\Phi} = \frac{6}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\mu}{k^2 \mu + \lambda} (1 - \exp[-(k^2 \mu + \lambda)t]) \quad (4.9)$$

Puisque les grains ne sont en fait pas rigoureusement sphérique et que leur taille présente une importante variation, la donnée de $\mu = \pi^2 D/R^2$ déduite des mesures expérimentales caractérise mieux la diffusion que le coefficient de diffusion D . Les grandeurs expérimentalement mesurées sont l'efficacité de diffusion ϵ_{diff} [Lec 97] ou la fraction de flux restante dans le grain R [Car 78-Car 79]. De la fraction F_{Φ} (relation 4.9) peut se déduire l'expression de l'efficacité de diffusion ϵ_{diff} (équation 4.10) et celle de la fraction restante R (équation 4.11).

$$\epsilon_{\text{diff}} = F_{\Phi}(t = \infty) = \frac{6}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k^2 + \lambda/\mu} = 3 \frac{\sqrt{\pi^2 \lambda/\mu} \coth(\sqrt{\pi^2 \lambda/\mu}) - 1}{\pi^2 \lambda/\mu} \quad (4.10)$$

$$R = 1 - F_{\Phi} = \frac{6}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\exp[-(k^2 \mu + \lambda)t]}{k^2 + \lambda/\mu} \quad (4.11)$$

La relation d'Arrhenius traduit la dépendance de μ en fonction de la température.

$$\mu = M_0 \exp(-Q_d / R_g T) \quad (4.12)$$

$M_0 = \pi^2 D_0/R^2$ où D_0 est le facteur de fréquence (constante)

Q_d : énergie d'activation pour la diffusion

Les valeurs de M_0 (de l'ordre de 10^{-2} s^{-1}) et de Q_d dépendent des propriétés physico-chimique de l'isotope diffusant et du milieu. Le tableau IV.3 fournit une compilation de valeurs typiques de μ ainsi que de l'énergie d'activation Q_d pour différents isotopes dans différentes cibles à différentes températures. Compte tenu de la faible concentration en uranium de la cible, la diffusion dans les grains d' UC_x devrait être proche de celle dans le graphite.

Noyaux	Température Cible (°C)	$\mu \text{ (s}^{-1}) \times 100$	$Q_d \text{ (kJ/mol)}$	réf.
Cible UC_x (2 g/cm ³ d' ²³⁸ U, fibres de diamètre 20 μm)				
²⁵ Na	2050	15 \pm 1		[Car 79]
^{86m} Rb	1750	1,9 \pm 0,2		[Car 79]
^{86m} Rb	1900	7,4 \pm 0,7	268 \pm 25	[Car 79]
^{86m} Rb	2050	15 \pm 1		[Car 79]
^{130m} Cs	1750	1,3 \pm 0,1		[Car 79]
^{130m} Cs	1900	4,1 \pm 0,4	280 \pm 25	[Car 79]
^{130m} Cs	2050	12 \pm 1		[Car 79]
²²⁴ Fr	1900	8,6 \pm 0,8		[Car 79]
²²⁴ Fr	1900	6,5 \pm 0,6		[Car 79]
Cible UC_x (0,15 g/cm ³ d' ²³⁵ U)				
¹³² Te	2600		75,24	[Cow 58]
^{131,133} I	2600		175,56	[Cow 58]
¹²⁷ Sb	2600		209	[Cow 58]
¹¹⁵ Cd	2600		125,4	[Cow 58]
^{100,112} Pd	2600		37,62	[Cow 58]
⁸³ Br	2600		112,86	[Cow 58]
⁷⁷ As	2600		133,76	[Cow 58]
Cible UC_x (0,52 g/cm ³ d' ²³⁵ U, grains de diamètre 70 μm)				
Xe	1500	2 $\cdot 10^{-3}$	205	[Cow 58]
Cible Graphite (grains de 4 μm)				
¹²¹ Sb	2100	0,9	263	[Kir 97]
⁸⁴ Kr	2000	2,5		[Kir 97]
⁷⁷ Kr	1500-2100		478 \pm 25,0	[Mau 98]
³⁵ Ar	1500-2100		229,9 \pm 18,4	[Lec 97]
¹⁸ Ne	1500-2100		119,9 \pm 12,1	[Lec 97]

Tableau IV.3 : compilation de valeurs de $100 \mu \text{ (s}^{-1})$ et de $Q_d \text{ (kJ/mol)}$.

Les éléments bien relâché par la cible UC_x ont une cinétique de sortie principalement gouvernée par la diffusion. Avec la valeur μ mesurée pour les alcalins dans le tableau IV.3, l'efficacité de diffusion calculée (équation 4.10) du ⁹⁷Rb (17%) et du ¹⁴⁴Cs (35%) est très

proche de l'efficacité de relâchement mesurée à ISOLDE (respectivement 12% et 40%) [Rav 94].

Le terme μ variant de façon inversement proportionnelle au carré du rayon du grain, la réduction du temps moyen de diffusion découle sensiblement de celle de la taille du grain. Des expériences menées au GANIL révèlent un gain d'environ un ordre de grandeur sur l'efficacité de relâchement de ^{35}Ar ($T_{1/2}=1,78$ s) en réduisant la taille moyenne du grain d'une cible en graphite, de 15 μm à 1 μm [Lan 00].

4.2.3.2 désorption

A la surface d'un solide, le temps moyen de séjour d'une molécule peut se déduire de l'équation de Frenkel [Boe 69].

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{\Delta H_{\text{d.s}}}{k_B T}\right) \quad (4.13)$$

τ_0 : temps d'oscillation de la molécule à l'état d'adsorption, de l'ordre de 10^{-13} s

$\Delta H_{\text{dés}}$: énergie de désorption de surface

Des valeurs de $\Delta H_{\text{dés}}$ pour la plupart des surfaces métalliques peuvent se déduire des tables semi-empiriques de B. Eichler *et al.* [Roß 84 - Eic 85]. Cependant, ces valeurs peuvent sensiblement différer des mesures expérimentales en raison du dépôt en surface de monocouches de divers éléments évaporés à haute température.

Le temps de séjour moyen τ peut s'estimer en fonction de $\Delta H_{\text{dés}}$ et de la température de la surface à l'aide des données expérimentales obtenues dans [Kir 87] (fig. IV.1). A 2000°C, le temps moyen de désorption d'un élément ayant $\Delta H_{\text{dés}} > 5,2$ eV, comme par exemple les réfractaires, dépasse la seconde. Par contre, les gaz rares caractérisés par leur inertie chimique ont un temps d'oscillation τ_0 de l'ordre de 10^{-15} s [Kir 87] et une énergie $\Delta H_{\text{dés}}$ de l'ordre de 0,1 eV [Sam 60].

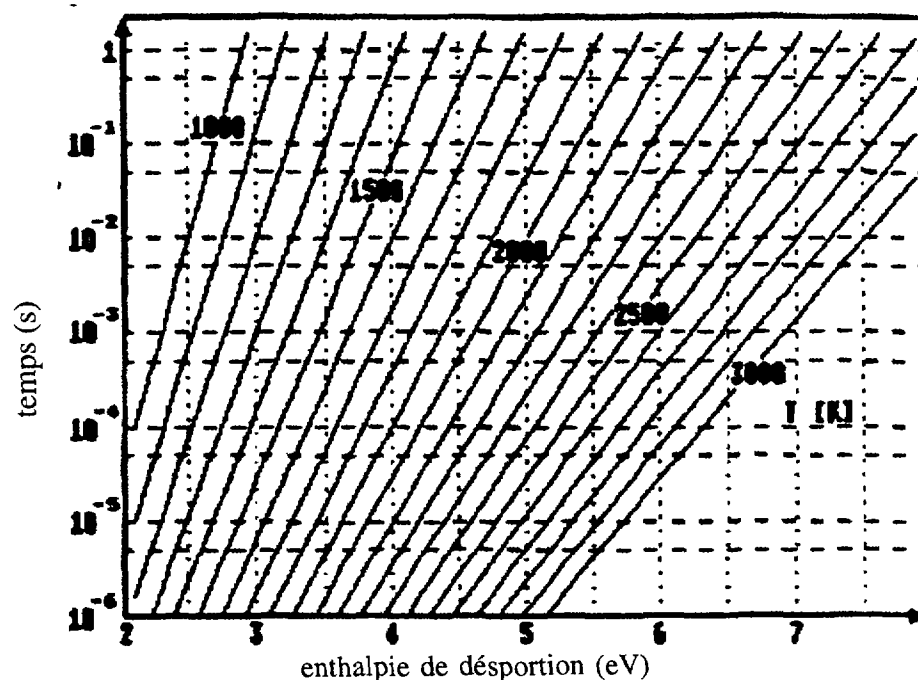


Figure IV.1 : temps de séjour moyen en seconde, donné en fonction de l'enthalpie de désorption $\Delta H_{\text{dés}}$ en eV et de la température [Kir 92].

L'observation des productions obtenus pour une cible à 2000°C [Car 78] montre que le relâchement des éléments figurant dans les colonnes 8A (gaz rares), 1A (alcalins), 2A, 6A, 2B du tableau périodique, ainsi que d'autres éléments relativement volatils (Eu, Sm, Yb, In...) est conditionné par la diffusion dans le grain solide. Tandis que les éléments réfractaires ayant une valeur de $\Delta H_{\text{dés}}$ élevée : Ti, Zr, Hf... montrent un relâchement peu efficace.

Le relâchement rapide dès 1900°C pour Ag et Au (groupe 1B), In (3A), Sn et Pb (4A), Sb et Bi (5A), I et At (7A : halogènes) [Hof 84] montre qualitativement que la désorption ne gouverne pas leur relâchement. Pour une comparaison quantitative, il faut cependant être conscient d'une éventuelle contribution d'autres phénomènes comme l'effusion dans le tube transfert et la dépendance chimique de l'efficacité de la source d'ions.

Un procédé pour accélérer la désorption consiste à provoquer une réaction chimique adéquate afin de transformer un élément en une molécule plus volatil. Par exemple, la fluoruration permet de mieux extraire les alcalino-terreux et les terres rares. Cette réaction peut s'obtenir en employant des composés fluorés dans la cible même [Rav 75-Ree 76] ou afin de mieux contrôler le débit, en introduisant des fluorures comme le CF_4 dans le gaz support de l'ensemble cible-source d'ions [Put 81]. Notamment, l'usage de CF_4 permet d'extraire les lanthanes d'une cible UC_x [Hof 80]. D'autres types de gaz support peuvent être utilisés en fonction de la nature de la cible et des éléments à sortir ([Hof 80-Hel 92] pour des cibles UC_x).

4.3 Réalisation de l'ensemble cible UC_x

L'ensemble cible se compose de la cible qui est logée dans un conteneur, d'un four et d'une enceinte à vide munie d'un circuit de refroidissement.

4.3.1 système de chauffage de la cible UC_x

Afin de porter la cible de carbure d'uranium à plus de 2000°C par un chauffage ohmique, il faut une puissance de l'ordre du kilowatt. Les métaux réfractaires et le graphite sont par leur résistivité électrique et leur tenue thermique, les matériaux qui s'imposent pour l'élaboration de four à haute température sous vide (tableau IV.4).

	résistivité électrique [μΩ.cm]		tension de vapeur [mbar]	
	à 1500°C	à 2000°C	à 2000°C	à 2500°C
Ta	70	92	10 ⁻¹⁰	10 ⁻⁶
Mo	43	60	10 ⁻⁷	5 · 10 ⁻⁴
W	45	66	<10 ⁻¹¹	10 ⁻⁷
graphite dense	1000 à 1900		10 ⁻⁶	10 ⁻³

Tableau IV.4 : Résistivités électriques d'éléments réfractaires à haute température (Metallwerk Plansee et Le Carbone-Lorraine) et leur tension de vapeur ([Mar 67] pour les métaux et [Pow 67] pour le graphite).

Le graphite est peu onéreux, il s'usine aisément et sa résistance électrique est élevée. De plus, ce matériau léger s'active peu par irradiation neutronique. Il donne principalement le ⁷Be de période T_{1/2} = 53,28 jours par ¹²C (n, X) ⁷Be (σ = 10 mb avec des neutrons de 30 MeV) [Cla 95]. C'est pour ces avantages que nous avons choisi le graphite. Pour un chauffage optimum, nous avons utilisé un graphite dense.

4.3.1.1 le graphite dense comme résistance électrique

Le carbone sous certaines nuances graphitées peut être traversé par des courants supérieurs à 250 A/cm² et rayonner ainsi une puissance de 1200 W/cm² avec une émissivité élevée (de 0,7 à 0,9) [Mai 75]. De plus, ce matériau facile à usiner peut être strié afin d'augmenter la résistance du four. Ce procédé est d'ailleurs employé de façon industrielle. L'épaisseur du four ne peut pas être réduite à moins d'1 mm pour la réalisation mécanique.

Ce matériau bon marché est toutefois particulièrement vulnérable à l'oxydation et le taux de réaction au dessus de 1200°C dépend peu de la structure du graphite [Cam 67]. Au cours d'essais, la destruction d'un four due seulement à l'oxygène évaporé d'une gaine en oxyde d'hafnium à 2000°C a été effectivement observée.

4.3.1.2 développement du résistor

Le résistor se présente sous la forme d'un tube cylindrique de 1,5 mm d'épaisseur parcourus de fentes transversales (fig. IV.2). Sa résistance à 2000°C avoisine 80 mΩ avec des

thermocouple aux points de mesures. Le déplacement sous vide du thermocouple WRe 5%-WRe 26% a été assuré en utilisant un passage étanche. Les mesures réalisées sur le dernier prototype donnent une uniformité thermique satisfaisante, avec un écart maximum en température de l'ordre de 200°C d'un bout à l'autre du four (fig. IV.3).

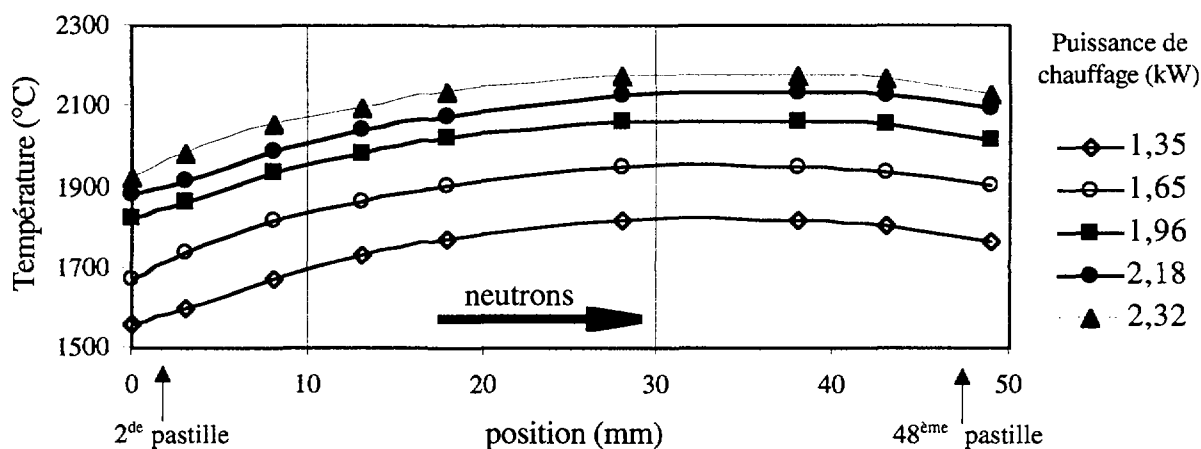


Figure IV.3 : gradient thermique mesuré le long de la cible de UC_x à l'aide d'un thermocouple WRe 5%-WRe 26%.

De plus, le gradient thermique au cours de l'irradiation devrait être sensiblement moins élevé que celui mesuré hors ligne. En effet, dans les conditions de mesure hors-ligne, une partie du fond du creuset (position 0 mm sur la figure IV.3) rayonne directement sur une bride à température ambiante. Dans les conditions d'expériences en ligne l'écran thermique utilisé empêche cependant des mesures en température de la cible.

La température de la cible a aussi été mesurée en fonction de la puissance électrique de chauffage. Nous comparons ces mesures avec un calcul utilisant la relation 4.3, établie au paragraphe § 4.1.2 (fig. IV.4). Ce calcul se fonde sur l'hypothèse que toute la puissance électrique est rayonnée du four sur la cible. Il néglige donc les pertes par conduction thermique.

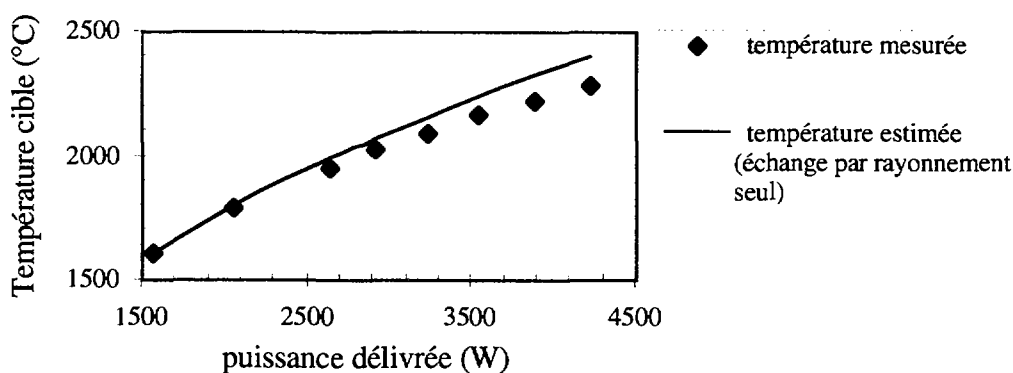


Figure IV.4 : Température de la cible mesurée en fonction de la puissance électrique délivrée. Comparaison avec un calcul déduit de l'équation (4.3).

En prenant une émissivité totale égale à 0,9 et une différence de température de 300°C entre la cible et le four, le calcul reproduit les mesures avec une surestimation inférieure à 5%. Les résultats calculés dépendent fortement de la valeur de l'émissivité totale (la surestimation atteint 15% avec une émissivité totale de 0,8) et du gradient thermique (la surestimation atteint 15% avec une différence de température de 200°C). Cette comparaison demeure limitée dans la mesure où les échanges par conduction ne sont pas tout à fait négligeables. Notamment, la surface de contact entre le conteneur cible et le four est de 7 cm². De plus, les isolants électriques en nitrure de bore à l'extrémité du four sont de bons conducteurs thermiques. Toutefois, la comparaison montre que les pertes de puissance électrique pour chauffer la cible, augmentent avec la température.

4.3.1.3 durée de vie du four

Pour qu'un four soit utilisable en ligne, sa durée d'opération doit excéder une semaine. Il s'avère que le fonctionnement prolongé d'un four dépend fortement des éléments environnants tant les interactions chimiques jouent un rôle important à haute température. Il convient donc en premier lieu de choisir avec soin les matériaux au voisinage immédiat du four : les réflecteurs, les isolants, le creuset...

Les réflecteurs utilisés sont en papyex (feuille de graphite). L'usage de tantale est aussi possible malgré la carburation du tantale car cette réaction est suffisamment lente pour que le tantale tienne plus d'une semaine dans ces conditions. Néanmoins l'activation neutronique du graphite est beaucoup plus faible que celle du tantale [Cla 95].

Le creuset contenant la cible UC_x étant aussi en graphite, l'environnement du four se compose essentiellement de graphite. Cela assure donc une certaine inertie chimique à l'ensemble.

Parmi les isolants réfractaires disponibles, le nitrure de bore a été choisi pour son usinage facile et son inertie chimique. Néanmoins, son utilisation est limitée autant que possible et il est placé aux endroits non exposés au rayonnement direct du four. De telles précautions sont indispensables car la décomposition du nitrure de bore à haute température produit de profondes corrosions dans le four en moins de 100 h à 2000°C. La conception de l'ensemble cible est telle que le four ne rayonne que sur des pièces en graphite, ce qui assure la préservation des isolants électriques.

En plus du choix et de la disposition des matériaux, les pièces utilisées doivent être aussi propres que possible. De plus, la réalisation du four doit être soignée de sorte à assurer une épaisseur constante des parois. Ce paramètre conditionne en effet la distribution en température le long du four.

Au cours de la dernière expérience de durée de vie réalisée hors-ligne (janvier 1998) la cible a pu être maintenue à 2000°C pendant une durée totale dépassant 8 jours.

4.3.2 ensemble cible

L'ensemble cible est représenté sur la figure IV.5. Puisque le graphite convient le mieux dans l'environnement du four, le conteneur four qui sert à maintenir le résistor et les réflecteurs est aussi réalisé dans ce matériau. Les fixations autour du four se font aussi à l'aide de vis en graphite.

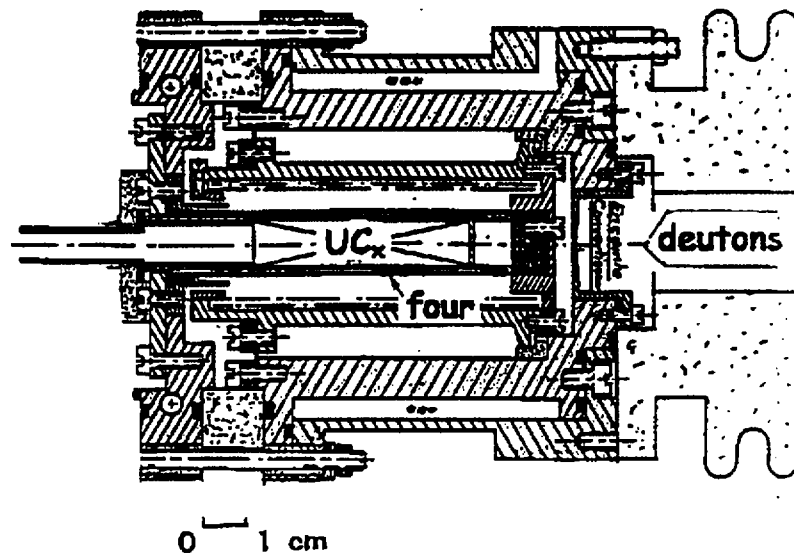


Figure IV.5 : ensemble cible UC_x . Le passage du courant de chauffage se fait de l'enceinte cible en dural à la bride de sortie de cible et une bride en macor isole électriquement ces deux pièces en dural.

L'enceinte à vide de cet ensemble doit être réalisé dans un matériau léger qui sous l'irradiation d'un flux de neutrons rapides, produit peu de radioéléments ou des radioéléments de courts périodes. Ainsi le dural qui donne principalement ^{22}Na ($T_{1/2}=2,6$ ans) et ^{24}Na ($T_{1/2}=15$ h) par interaction avec des neutrons se présente comme un matériau de premier choix à cet usage [Cla 95]. L'enceinte est refroidi par un circuit d'eau intégré.

Le fond du four de 1,2 cm d'épaisseur peut servir de convertisseur graphite pour un faisceau de deutons de moins de 60 MeV d'énergie et moins de 1 μA d'intensité. Cette option permet de rapprocher la cible du point d'émergence des neutrons et d'augmenter en conséquence le flux d'irradiation à travers la cible.

Cet ensemble cible a été expérimenté avec l'installation PARRNe 1 et avec la ligne PARRNe 2 (chapitres suivants).

4.4 Cible ^{238}U Liquide

Le relâchement efficace de la cible UC_x s'obtient au détriment de la concentration d'uranium. Afin d'obtenir une cible plus concentrée qui garde toutefois des propriétés de relâchement

acceptables, une solution consiste à réaliser une cible d'uranium pur à l'état liquide. La diffusion dans les métaux est beaucoup plus rapide à l'état liquide que solide, avec des coefficients de diffusion supérieurs d'un facteur 100 à 1000. De plus, la présence de courants de convection au sein du liquide favorise le transport des isotopes. Toutefois le film superficiel du liquide constitue une barrière qui peut limiter sensiblement l'efficacité du relâchement. De plus, le parcours d'un noyau de fission dans une cible épaisse liquide est quatre ordres de grandeur plus long que celui d'une cible solide de grains micrométriques.

Dès les débuts d'ISOLDE, des cibles de métaux à l'état liquide ont été expérimentées à des températures entre 800 et 1500°C : Pb liquide pour la production de Hg, Sn liquide pour celle de Cd et Ge liquide pour celle de Zn [Hag 70]. De même que pour les cibles solides poreuses, un relâchement optimum demande un chauffage aussi élevé que possible. Toutefois à leur différence, la limite en température ne provient pas de la tenue de la cible elle-même mais des taux d'évaporation et de réactions avec l'environnement cible.

La masse volumique d'uranium dans une cible liquide est de l'ordre de 17 g/cm³ alors que dans une cible UC_x elle dépasse difficilement 3 g/cm³. Il en résulte donc qu'à quantité d'uranium égale, une cible liquide est beaucoup plus compacte. Les avantages qui en découlent sont un chauffage homogène plus facile de la cible et de son environnement, un flux de neutrons à travers la cible est plus élevé.

La réalisation d'une telle cible épaisse présente cependant une difficulté majeure. En effet, l'uranium à l'état liquide est extrêmement corrosif et réagit chimiquement avec la plupart des éléments. Après une étude des propriétés physiques et chimiques de l'uranium liquide, les expériences menées hors ligne avec différents creusets seront traitées. A partir de ces travaux, la première cible épaisse d'uranium liquide expérimentée en ligne a été réalisée avec succès.

4.4.1 propriétés physiques de l'uranium à l'état liquide

Un paramètre essentiel est la tension de vapeur de l'uranium fondu en fonction de sa température. Il est nécessaire de le connaître d'autant plus que pour une cible suffisamment pure, la tension de vapeur est assez basse pour envisager un chauffage à quelques centaines de degrés au-dessus du point de fusion. Sa connaissance permet d'estimer pour une cible donnée, son taux d'évaporation et sa compatibilité avec la source d'ions utilisée.

La connaissance de la densité et de la viscosité du liquide permet notamment de quantifier les mouvements par diffusion et par convection du fluide.

Quant à la tension superficielle, elle renseigne sur l'adsorption en surface du liquide. Une tension superficielle élevée défavorise la solubilité des éléments et une contamination superficielle peut altérer l'évaporation des produits de fission.

4.4.1.1 tension de vapeur

Le point de fusion de l'uranium pur se situe à 1135°C et le point d'ébullition à 4131°C [Lid 96]. A 1135°C, la pression vapeur est de l'ordre de 10⁻¹⁰ mbar. Elle croît avec la

température pour atteindre quelques 10^{-2} mbar à 2000°C suivant la relation de Clapeyron dont les coefficients pour l'uranium figurent dans la relation (4.14) [Alc 84] :

$$\log_{10}(P_{[\text{Pa}]}) = 25,741 - \frac{28\,776}{T_{[\text{K}]}} - 4,0962 \log_{10}(T_{[\text{K}]}) \quad (4.14)$$

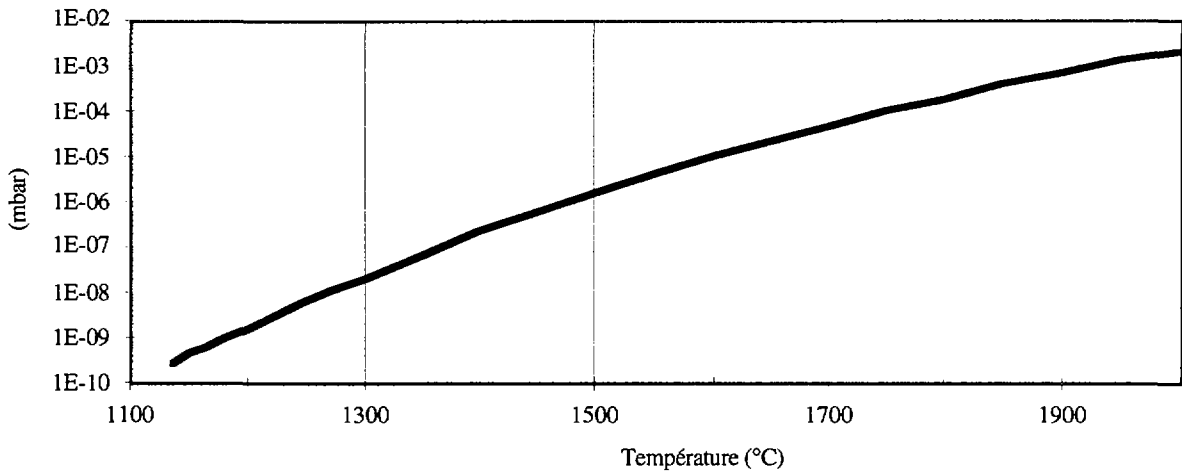


Figure IV.6 : Tension de vapeur (mbar) de l'uranium liquide du point de fusion (1135°C) à 2000°C .

Notons toutefois que la tension de vapeur dépend de l'environnement de la cible : les éléments composant le système de chauffage et le gaz résiduel. Ces éléments peuvent par réaction chimique modifier les propriétés de la surface du liquide et ainsi les échanges entre le liquide et le gaz résiduel.

Lors d'une expérience hors-ligne en collaboration avec ISOLDE, nous avons observé au le plan focal du séparateur électromagnétique un courant de 2 nA de ^{238}U monochargé. Cette mesure fut obtenue pour une cible d'uranium liquide à 1600°C ayant $1,33\text{ cm}^2$ de surface libre. En évaluant l'efficacité de la source d'ions à environ 1% pour l'uranium, le flux déduit vaut $33\text{ }\mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{jour}$ de ^{238}U . De cette valeur de flux, une estimation de la tension de vapeur peut être déduite. En effet, en régime d'équilibre le taux de noyaux évaporé est égal au taux de noyaux de la phase vapeur qui se condensent en surface (équation 4.15).

$$J = \frac{\alpha_c P}{\sqrt{2\pi M R_g T}} \quad (4.15)$$

J : flux évaporé par unité de surface

α_c : coefficient de condensation

P : pression partielle de l'élément évaporé

Expérimentalement, le coefficient de condensation α_c varie de 10^{-6} à 1. Ce coefficient pour les métaux liquides est proche de 1 et des valeurs de α_c beaucoup plus faibles traduisent une contamination de surface [Pow 67].

Le flux d'uranium J évaporé en surface diffère de celui arrivant effectivement dans la source d'ions d'un facteur K qui traduit la conductance du tube de transfert et celle de la cathode (relation 4.16) [Dus 66]. La condensation de l'uranium dans le tube à 1800°C est négligée.

$$J_{SI} = K J \approx \left(1 + \frac{3}{4} \frac{L_t}{d_t}\right)^{-1} \left(1 + \frac{3}{4} \frac{L_c}{d_c}\right)^{-1} J \quad (4.16)$$

J_{SI} : flux d'évaporation arrivant dans la source d'ions

J : flux évaporé en surface du liquide

L_t : longueur du tube transfert cylindrique (6 cm)

L_c : longueur du tube de la cathode (3 cm)

d_t : diamètre du tube transfert (7 mm)

d_c : diamètre du tube de la cathode (3,6 mm)

Ainsi, la tension de vapeur déduite du flux de 33 $\mu\text{g}/\text{cm}^2/\text{jour}$ de ^{238}U vaut $1,3 \cdot 10^{-6}$ mbar avec un coefficient de condensation égal à 1. Afin de reproduire la valeur déduite de l'équation (4.14), le coefficient de condensation α_c doit être de l'ordre de 0,14. Si l'efficacité totale de la ligne est bien de l'ordre du pourcent, cette valeur suggérerait une certaine contamination de l'état de surface.

En conclusion, les tensions de vapeur de l'uranium sont suffisamment faibles à haute température pour ne pas poser de problème à un chauffage au delà de 1600°C. Les tensions de vapeur maximales acceptables dépendent de la source d'ions utilisée. D'après la figure IV.6 la température limite liée au dégazage de la cible pour une source MK5 [Sun 92] se situe vers 1750°C alors qu'elle se situe vers 1900°C pour une source Nier-Bernas. D'autres paramètres comme la tenue du creuset peuvent empêcher d'atteindre de telles températures.

4.4.1.2 densité

Comme le volume de l'uranium augmente avec la température, il est nécessaire de connaître la densité de l'uranium à la température d'exploitation afin d'éviter tout risque de débordement du creuset au cours du chauffage. De plus, il s'avère aussi que la densité (exprimée par la compacité χ) constitue un paramètre essentiel pour décrire le comportement dynamique du fluide.

Expérimentalement, la densité des métaux liquides présente globalement une variation linéaire avec la température [Lid 88]. Cependant, la précision des mesures reste actuellement limitée pour les métaux dont le point de fusion est élevé ou dont la réactivité chimique à l'égard de l'environnement expérimental à haute température est trop importante. Des mesures sous vide par pycnomètre donnent pour l'uranium liquide [Roh 70] :

$$\rho_{\text{pyc}}[\text{g}/\text{cm}^3] = 17,27 - 1,601 \cdot 10^{-3} (T_{[\text{K}]} - 1405) \quad (4.17)$$

D'autres mesures sous vide par atténuation de rayonnements γ fournissent pour des températures inférieures à 1450°C [Dro 82] :

$$\rho_{\gamma}[\text{g/cm}^3] = 16,95 - 1,29 \cdot 10^{-3} (T_{[\text{K}]} - 1407) \quad (4.18)$$

La méthode pycnométrique consiste e à mesurer dans une enceinte graduée le volume d'un échantillon métallique de masse connue [Iid 88]. Elle donne les mesures les plus précises avec les métaux à bas point de fusion. Cependant elle est difficile à mettre en œuvre à des températures au delà de 1000°C. Celle par rayonnement γ présente l'avantage d'être insensible aux effets de surface et de contaminations chimiques superficielles. Toutefois, la mesure de l'absorption des γ est fortement compliquée par l'environnement chauffant. D'après une compilation de D.J. Steinberg, la densité au point de fusion est de 17,27 g/cm³ [Ste 74]. Bien que les mesures par ces deux méthodes dépendent grandement des conditions expérimentales, leur écart reste inférieur à 0,8 g/cm³ :

$$\Delta\rho[\text{g/cm}^3] = \rho_{\text{pyc}} - \rho_{\gamma} = 0,75438 - 0,31 \cdot 10^{-3} T_{[\text{K}]} \quad (4.19)$$

La densité d'un milieu peut aussi s'exprimer par la compacité χ (ou facteur de remplissage), rapport du volume propre d'une particule sur son volume d'occupation effectif.

$$\chi = \left[\frac{4}{3} \pi r^3 \right] / \left[\frac{A}{\rho N_A} \right] \quad (4.20)$$

χ : compacité

r : rayon effectif de la particule

ρ : densité du milieu

La définition de la compacité soulève l'interrogation sur le choix du rayon de la particule. Sans même considérer le fait général que la taille d'un atome dépend de ses liaisons ioniques avec les éléments du milieu, le problème réside dans la nature ionique ou atomique de la particule en mouvement. Pour la plupart des métaux liquides au point de fusion, la compacité est proche de 0,45 [Iid 88 ; Was 80]. Dédit de cette valeur, le rayon effectif de la particule en mouvement dans de l'uranium liquide à 1135°C est de l'ordre de 1,35 10⁻¹⁰ m.

Par définition la compacité χ varie comme la densité en fonction de la température.

$$\chi \approx 0,45 - 1,29 \cdot 10^{-3} (T_{[\text{°C}]} - 1135) \quad (4.21)$$

L'augmentation du volume d'une cible liquide est donc d'environ 0,4% par 50°C. Une telle dilatation doit être prise en compte pour déterminer la masse d'uranium à charger dans un creuset.

4.4.1.3 viscosité

Les particules se meuvent bien plus aisément dans un milieu lorsque celui-ci transite d'un état solide à un état liquide. Néanmoins, leur déplacement subit constamment un freinage par friction avec les particules environnantes. La viscosité permet de caractériser la dynamique d'un flux dans un liquide. Aussi nommée coefficient de viscosité ou encore viscosité dynamique, elle

est définie par la loi de Newton (équation 4.22). Cette loi s'applique généralement pour des liquides de particules ayant des rayons inférieurs à 1 μm , dont les métaux liquides.

$$P_x = -\eta \frac{\partial v_x}{\partial y} \quad (4.22)$$

P_x : la force par unité de surface de fluide qui s'oppose au mouvement du flux. Ce mouvement suit la direction x .

η : la viscosité

$\partial v_x / \partial y$: gradient de vitesse dans la direction perpendiculaire à celle du mouvement du fluide

Une relation simple de la viscosité au point de fusion a été établie par E.N. Andrade avec un modèle quasi-cristallin [And 34]. Cette relation reproduit bien les données expérimentales (tableau IV.5) :

$$\eta_m = 1,8 \sqrt{10} 10^{-2} \frac{\sqrt{A T_m}}{V_m^{3/2}} \quad (4.23)$$

η_m : viscosité d'un métal liquide au point de fusion en mPa.s

T_m : température de fusion en K

$V_m = A / \rho_m$: volume molaire au point de fusion en cm^3

Expérimentalement, la viscosité évolue avec la température approximativement suivant une relation d'Arrhenius [Iid 88] :

$$\eta = C_1 \exp\left(\frac{H_\eta}{R T}\right) \quad (4.24)$$

C_1 et H_η constantes

Comme proposé par A.V. Grosse [Gro 61], la constante C_1 peut s'obtenir par la relation (4.23) pour les métaux liquides. Empiriquement, H_η peut se déduire de T_m [Iid 88-75] :

$$C_1 \text{ [mPa.s]} = 5,7 10^{-2} \frac{\sqrt{A T_m}}{V_m^{2/3} \exp(H_\eta / R T_m)} \quad (4.25)$$

$$H_\eta = 1,21 (T_m)^{1,2} \quad (4.26)$$

La variation de la viscosité de l'uranium liquide est donc à peu près proportionnelle à $\exp(873,5/T_{[K]})$.

D'une façon générale, il est difficile d'établir la précision des mesures de viscosité pour les métaux liquides. Les erreurs s'étendent dans une plage de $\pm 1\%$ à $\pm 20\%$ pour la plupart des cas. Une mesure de la viscosité de l'uranium au point de fusion donne une valeur de 6,53 mPa.s

(tableau IV.5). Si l'on se base sur cette valeur, l'expression empirique de la viscosité de l'uranium est :

$$\eta_{\text{U [mPa.s]}} = 3,51 \exp(874/T_{\text{[K]}}) \quad (4.27)$$

Métal	viscosité calculée (Andrade)	viscosité mesurée (mPa.s)	références des mesures
Ni	4,77	4,5 - 6,4	cf. [Iid 88]
Cu	4,21	4,34	[Iid 75]
Ag	4,07	4,28	[Iid 75]
In	1,96	1,80	[Iid 75]
Sn	2,10	1,81	[Iid 75]
Sb	2,67	1,43	[Iid 75]
Au	5,17	5,38	[Geb 51]
Pb	2,78	2,61	[Iid 75]
La	2,84	2,65	[Wit 73]
Ce	2,90	3,20	[Wit 73]
Pr	3,05	2,85	[Wit 73]
Yb	2,89	2,67	[Wit 73]
U	5,73	6,53	[Wit 73]
Pu	4,50	5,93	[Wit 73]

Tableau IV.5 : mesure et calcul de la viscosité de divers métaux liquides.

La viscosité diminue de 14% entre le point de fusion et 1600°C, ce qui souligne l'intérêt de porter la cible à haute température.

4.4.1.4 tension superficielle

Un liquide présente à son interface avec un gaz ou un autre liquide un film superficiel qui peut stagner ou se déplacer comme un flux laminaire. Le comportement de ce film diffère du milieu liquide qu'il délimite notamment par sa concentration supérieure en impuretés diverses. Il joue un rôle très important à la fois dans les courants au sein du liquide et dans les échanges entre les deux milieux. Ce film en surface se caractérise par une tension quantifiée par le coefficient de tension superficielle. Dans la plupart des cas, le coefficient de tension superficielle se déduit expérimentalement de l'équation de Laplace.

$$\Delta P = \gamma (R^{-1} + R'^{-1}) \quad (4.28)$$

- ΔP : différence de pression entre les 2 côtés d'une interface courbe.
 γ : tension superficielle
 R et R' : principaux rayons de courbure de la surface au point de mesure (fig. IV.7). Pour un film sphérique, $R'=R$

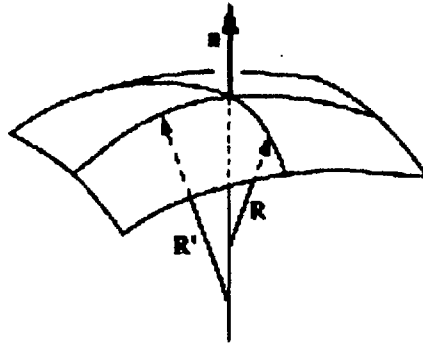


Figure IV.7 : définition des rayons de courbures principaux.

Puisque la tension superficielle dépend de la concentration en impureté, les difficultés à préserver pure la surface d'un métal liquide à haute température limitent la précision des mesures de tension de surface. Les impuretés dissoutes dans les métaux liquides peuvent fortement modifier la tension de surface, notamment les impuretés non-métalliques comme l'oxygène ou le soufre. Par conséquent, la détermination de l'incertitude dans une mesure de tension superficielle demeure délicate. Toutefois, une incertitude de l'ordre de ± 5 à $\pm 10\%$ semble généralement une estimation raisonnable [Iid 88]. Deux relations empiriques reproduisent assez bien les données expérimentales au point de fusion (tableau IV.6). A partir de modèles théoriques différents [Sch 49 ; Iid 74] ainsi que d'un traitement semi-empirique [All 72], la dépendance de la tension de surface de métaux purs en fonction de $T_m/V_m^{2/3}$ a été mise en évidence.

$$\gamma_m \approx 4,8 \cdot 10^{-4} \frac{R_g T_m}{V_m^{2/3}} \quad (4.29)$$

γ_m : tension superficielle au point de fusion en N/m

T_m : température de fusion en K

V_m : volume molaire au point de fusion en cm^3

Par une étude en terme d'enthalpie d'évaporation, A.S. Skapski exprime la tension superficielle en fonction de $\Delta_{l-g}H_m/V_m^{2/3}$ ($\Delta_{l-g}H_m$ et V_m : enthalpie d'évaporation et volume molaire, au point de fusion) [Ska 48].

$$\gamma_m \approx 1,8 \cdot 10^{-2} \frac{\Delta_{l-g}H_m}{V_m^{2/3}} \quad (4.30)$$

γ_m : tension superficielle au point de fusion en N/m

$\Delta_{l-g}H_m$: enthalpie d'évaporation au point de fusion en kJ.mol

V_m : volume molaire au point de fusion en cm³

Les relations (4.29) et (4.30) sont comparées à des données expérimentales dans le tableau IV.6.

éléments	tension avec Tm (N/m)	tension avec Hm (N/m)	mesure (N/m)
Fe	1,810	1,611	1,872
Co	1,823	1,842	1,873
Ni	1,826	1,906	1,778
Cu	1,369	1,446	1,303
Ag	0,963	0,936	0,966 *
In	0,266	0,668	0,556
Sn	0,303	0,794	0,56 *
Sb	0,512	0,499	0,367
Au	0,842	1,282	1,169 *
Pb	0,331	0,470	0,458 *
La	0,583	0,902	0,72
Ce	0,563	0,012	0,74
U	0,978	1,622	1,55
Pu	0,617	1,024	0,55

Tableau IV.6 : Comparaison des relations empiriques (4.29) et (4.30) avec des mesures de tension superficielle. Les données marquées par * viennent de A. Kasama *et al.* [Kas 76], les autres données de B.C. Allen [All 72]. Pour l'uranium, $|\Delta_{l-g}H_m| \approx |\Delta_{s-g}H_m| - |\Delta_{s-l}H_m| = 531 - 12,6 \approx 518$ kJ/mol (cf. [oet 76] pour $\Delta_{s-g}H_m$ et [Iid 88] pour $\Delta_{s-l}H_m$).

La tension superficielle décroît en fonction de la température jusqu'à s'annuler à la température critique T_C suivant la loi de Eötvös.

$$\gamma = \frac{k_\gamma}{V^{2/3}} (T_c - T) \quad (4.31)$$

γ : tension superficielle en N/m

T_c : température critique où le liquide ne se distingue plus d'un gaz.

$k_\gamma \approx 6,4 \cdot 10^{-8} \text{ J.K}^{-1}.\text{mol}^{-2/3}$ pour tous les métaux liquides.

V : volume molaire, $V=A/\rho$ en m^3 .

La température critique des liquides métalliques se mesure difficilement à cause des problèmes à température et à pression élevées. A part pour le mercure et certains alcalins, les données ne semblent pas exister. Pour l'uranium pur, la mesure $\gamma_m \approx 1,55 \text{ N/m}$ au point de fusion (tableau IV.6) donne une température critique de $T_c \approx 15\,330 \text{ K}$. La variation de la tension superficielle avec la température est presque linéaire (figure IV.8), l'influence de la variation thermique du volume molaire est négligeable.

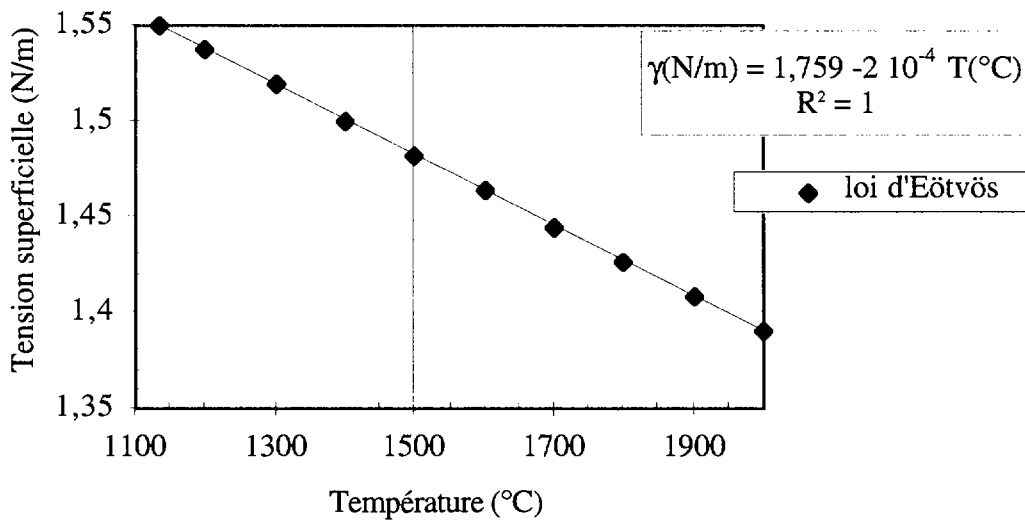


Figure IV.8 : La variation de la tension superficielle pour l'uranium pur obtenue avec la loi d'Eötvös (relation 4.31).

La tension superficielle relativement élevée de l'uranium ne favorise pas la solubilité des éléments. Or une pollution en surface élevée modifie sensiblement les propriétés physiques en surface. La variation de la tension superficielle est liée à la concentration en surface par l'équation d'adsorption de Gibbs [Iid 88-Boe 69].

De plus, si des gradients en concentration de solutés apparaissent, des courants sont générés en surface. Pour des gradients importants, ces courants peuvent entraîner des convections dans tout le volume du liquide. Ce phénomène est connu sous le nom d'effet Marangoni (§ 4.6.4.2) Il se produit aussi en présence de gradients thermiques superficiels. Cependant, d'après la relation (4.31), l'effet Marangoni par gradient thermique demeure limité en surface.

4.4.2 réactions chimiques de l'uranium liquide avec le gaz résiduel

La cible de métal liquide interagit avec le gaz résiduel et son creuset. En raison de sa réactivité chimique élevée qui augmente avec la température, l'uranium liquide agit comme un piège pour le gaz résiduel. La composition de ce dernier dépend en partie des matériaux environnant la cible : isolants, réflecteurs... Cependant, les éléments principaux demeurent l'azote, l'oxygène, l'hydrogène et le carbone qui provient des divers hydrocarbures. Les composés stables formés avec l'uranium ont généralement des températures de fusion plus élevées que celui-ci. Par conséquent, si ces molécules ne se dissolvent pas dans le liquide, une pellicule solide se forme en surface de la cible dégradant ainsi l'efficacité de relâchement.

4.4.2.1 combinaisons avec l'azote

L'uranium réagit avec l'azote à partir de 350°C. Sous vide, seul le composé UN demeure stable au delà de 1300°C [Pas 61]. Le mononitruure se présente comme un composé réfractaire qui ne fond qu'à $T_m = 2650^\circ\text{C}$ [Lid 96]. Sa solubilité (la concentration dans la solution par rapport à celle du gaz) varie de 3,4% en atomes au point de fusion à 8% à 2000°C suivant la relation (4.32) [Bug 64].

$$s = 2,45 \times 10^4 \exp(-38\,800 / R_g T) \quad (4.32)$$

s : solubilité de l'azote dans l'uranium liquide en % atomique

Par conséquent, il y a intérêt à chauffer autant que possible la cible liquide pour limiter une contamination superficielle défavorable au relâchement des produits de fission.

4.4.2.2 combinaisons avec l'oxygène

Plusieurs oxydes peuvent résulter de réactions entre U et O. En effet, l'oxyde UO_2 peut se réoxyder. Notamment, si la quantité d'oxygène est suffisante, la réaction exothermique donnant U_2O_8 se produit [Pas 61]. L'oxyde UO_2 fond à 2280°C [Lid 96] et la solubilité de l'oxygène dans l'uranium liquide est faible : 0,05% (en atome) au point de fusion, 0,2% à 1700°C [Pas 61] et 0,4% à 2000°C [Ack 62]. Puisque l'oxygène réagit bien avec l'uranium liquide, cette faible solubilité se traduira par une contamination importante en surface. Toutefois, l'expérience hors-ligne à ISOLDE suggère la possibilité de réaliser une cible à 1600°C dont la surface est peu oxydée (§ 4.4.3.3). De plus, l'oxyde superficiel peut être attaqué en utilisant des agents fluorurant comme le CF_4 , à un débit soigneusement contrôlé [Pas 61].

4.4.2.3 combinaisons avec le carbone

Le carbone peut provenir du CO_2 , d'hydrocarbures présents dans le du vide résiduel ou éventuellement de la faible sublimation du graphite si ce matériau est utilisé dans l'environnement de la cible. Le composé formé avec l'uranium est réfractaire (§ 4.2.1). En quantité suffisante, il réduit l'oxyde d'uranium et n'est guère volatile. D'après le diagramme

U – C [Shu 69] une concentration en C de 5% dans l'uranium élève sa température de fusion à 1600°C.

4.4.2.4 interaction avec l'hydrogène

L'hydrogène réagit avec l'uranium en donnant seulement UH₃. Toutefois, ce composé n'est pas stable au delà de 400°C. Par conséquent, malgré une solubilité faible dans l'uranium liquide (équation 4.33 [Pas 61]), la présence d'hydrogène n'apparaît pas problématique.

$$s_{[\text{ppm}]} \approx 0,87(p_{[\text{mbar}]})^{1/2} \exp(-587/T_{[\text{°C}]}+0,426) \quad (4.33)$$

s : solubilité de l'hydrogène dans l'uranium liquide en parties par million

p : pression partielle d'hydrogène en mbar

De ces considérations, la qualité du vide résiduel apparaît primordiale pour éviter toute contamination préjudiciable à un bon relâchement des radio-isotopes. Des précautions s'imposent donc dans le nettoyage et la manipulation des éléments de l'ensemble cible ainsi que dans le choix des matériaux utilisés.

4.4.3 études de creusets

L'uranium est hautement corrosif à l'état liquide, sa tenue dépend des matériaux environnants. Les avantages techniques et économiques à mettre en forme l'uranium par moulage lancèrent des études de creuset pour contenir de l'uranium fondu dès les années 40. Le creuset servant de revêtement pour protéger le moule, pouvait subir une certaine attaque de l'uranium. Dans cette optique, les expériences ont montré que parmi les éléments réfractaires, seul le graphite convenait jusqu'à 1500°C. Cependant, comme l'uranium obtenu avec un creuset en graphite contenait beaucoup de carbone, d'autres revêtements comme l'alumine Al₂O₃, la thorie ThO₂, la zircone de magnésium... ([Pas 60 – Her 65 – Jes 79]), ont été utilisés à des températures inférieures à 1300°C. Les creusets chauffaient pendant le temps d'une coulée (moins d'une heure) et une certaine détérioration du revêtement était acceptable.

Dans le cadre de la réalisation d'une cible d'uranium liquide pour des expériences en ligne, les conditions de chauffages deviennent beaucoup plus sévères puisque le creuset doit tenir au moins quelques jours à des températures aussi élevées que possibles. Des expérimentations hors ligne s'avèrent indispensables car la cinétique des réactions éventuelles reste difficile à prévoir et à quantifier. Les données expérimentales sont peu nombreuses et concernent souvent des expériences de courtes durées. De plus, les corps mis en jeu ne sont pas dans le même état.

Dans les années 80, des expériences menées par l'équipe du séparateur en ligne ISOCELE à l'IPN d'Orsay, ont montrées qu'en moins de 2 h de chauffage l'uranium rongeaient les creusets en tantale et en molybdène et réagissait fortement avec ceux en alumine, en oxyde de zirconium et en thorie.

Ces expériences ont été poursuivies, à l'initiative de J. Obert *et al.*, dans le contexte de PARRNe. Des entreprises spécialisées ont été contactées afin de trouver des matériaux pouvant

potentiellement servir de creusets performants. Trois matériaux ont été sélectionnés : céramique en nitrure de bore, un alliage métallique industriel : le tribocor et une céramique en oxyde d'yttrium Y_2O_3 .

4.4.3.1 creuset en nitrure de bore

Le nitrure de bore de grade AX05 est une céramique isolante qui peut être chauffée sous vide jusqu'aux environs de 1700°C. D'une façon générale, il présente une certaine inertie chimique à haute température. De plus, il est facile à usiner et a une bonne conductivité thermique. Comme tous les matériaux inorganiques non-métalliques, le nitrure de bore est poreux. Après usinage, il contient des interstices entre les grains de cristaux. La porosité est par définition le pourcentage du volume des pores par rapport au volume total de la pièce. La porosité ouverte concerne les pores ou les canaux à travers lesquels un gaz peut passer au travers du matériau. La porosité ouverte de ce nitrure de bore est de 14,2%. Parmi les différents types de nitrure de bore proposés, le grade AX05 est celui qui contient sensiblement le moins d'oxygène en impureté (tableau IV.7).

impuretés dans la céramique de grade AX05	quantité [%]
oxygène	0,4%
carbone	0,02%
calcium	0,04%
B ₂ O ₃	<0,2%
autres impuretés	0,05%

Tableau IV.7 : impuretés contenues dans le nitrure de bore de grade AX05. Données fournies par le constructeur.

Les interactions possibles entre l'azote et l'uranium ont été abordées dans au paragraphe 4.4.2.1. Concernant les réactions entre l'uranium et le bore, les composés UB_2 , UB_4 , UB_{12} peuvent être produits dès 1000°C [Pas 61]. Ces données ne permettent cependant pas de prévoir le comportement de l'uranium liquide avec le nitrure de bore pour de longues périodes, d'où la mise en place d'un banc d'expérimentation.

Les essais ont été fait avec un creuset contenant, par précaution, une petite quantité d'uranium (7 g). La température de la surface de l'uranium, mesurée au pyromètre optique, fut maintenue à 1200°C pendant 2 h. L'analyse du creuset après ce chauffage révéla une forte réaction entre l'uranium et le nitrure de bore. Des taches grises sur la paroi extérieure de la céramique produisent des étincelles au grattage avec une pointe métallique. Elles révèlent qu'une partie de l'uranium pyrophorique imprègne le creuset et que les réactions avec le nitrure de bore se produisent très rapidement. Par conséquent il apparaît clairement que le nitrure de bore ne peut pas servir de creuset.

4.4.3.2 creuset tribocor

Le tribocor est un alliage de Ti Nb et W fabriqué aux USA par ZYP coatings [ZYP 98]. Ce matériau est connu pour sa résistance à la corrosion de l'uranium fondu. De plus, ce creuset conducteur électrique offre la possibilité d'utiliser le bombardement électronique dans le but d'améliorer le relâchement en surface.

Le titane (Ti) et le niobium (Nb) sont des métaux de transition très sensibles à l'oxydation et la nitruration [Pas 60]. La nitruration de cet alliage réfractaire s'avère nécessaire pour résister à la corrosion de l'uranium. Elle permet de former une pellicule de UN passivante. Sans considérer les effets sur le relâchement de produits de fission, cette nitruration donne un certain degré de mouillabilité à la surface, comme le montreront nos essais.

L'existence de ce matériau nous a été signalée par J.A. Nolen (Argonne National Laboratory) qui nous a aussi gracieusement mis à disposition quelques creusets. Avant de charger l'uranium, tous les creusets sont étuvés par paliers successifs jusqu'aux environs de 1130°C.

Le premier creuset de tribocor a été chauffé jusqu'à 1200°C avec 10 g d'uranium. Après deux cycles consécutifs de 9 h à 1200°C, la surface convexe de l'uranium ne montre pas d'évolution. La tenue satisfaisante du creuset dans ces conditions de chauffage mène à poursuivre les cycles à 1400°C.

Les examens après chaque cycle de chauffage à 1400°C montrent des variations de l'état de surface de l'uranium. Après une durée de presque 50 h à 1400°C, le chauffage est accidentellement interrompu. La cause est attribuée à une migration soudaine de l'uranium. Un second creuset a donc été éprouvé avec 5 g d'²³⁸U. Des cycles de chauffage d'environ 9 h à 1350°C ont été accumulés et après une durée totale de 110 h à 1350°C, une migration soudaine de l'uranium fut observée jusqu'au bord du creuset.

En conclusion le creuset de tribocor peut donc contenir de l'uranium liquide sans subir de corrosion jusqu'à au moins 1400°C dans la limite de la durée de nos essais. Toutefois, comme le montre la migration soudaine le creuset ne semble pas montrer la fiabilité souhaitée. L'utilisation d'un mouillant comme l'indium pourrait éventuellement remédier à cette migration incontrôlable, toutefois la qualité du relâchement resterait à contrôler.

4.4.3.3 creuset en yttria (Y₂O₃)

L'oxyde d'yttrium Y₂O₃ (yttria) est une céramique réfractaire blanche dont le point de fusion se situe entre 2375 et 2500°C. Son frittage peut se réaliser sous vide ou par compression isostatique à chaud. Ce dernier procédé donne une microstructure plus fine (diamètre des grains 0,6 µm) et plus homogène (porosité 0,3%) [Mon 91]. Le creuset ainsi réalisé est sensiblement plus compact.

Ce matériau nous a été proposé par le CE2M du CEREM (CEA Saclay [CER 00]). En effet, son utilisation comme surface pour condenser des vapeurs d'uranium révéla une inertie chimique satisfaisante. La céramique a le grand avantage d'être usinable. De plus, l'yttria possède une faible section efficace de capture neutronique [Mon 91], notamment par rapport

aux oxydes de terres rares [Cur 57]. Le matériau que nous avons expérimenté est réalisé par compression isostatique de 1500 bars à froid, puis fritté à 2000°C sous vide. Ce procédé de fabrication assure l'obtention d'un matériau très compact. Par rapport à la compression isostatique à chaud, il donne des grains de plus grande taille. Ainsi, les joints de grains sont moins nombreux, ce qui favorise l'inertie chimique du matériau.

Toutefois, la faible résistance mécanique de l'yttria et son coefficient de dilatation très différent de celui de l'uranium [CER 00-Pas 60] constitue un risque d'altération du creuset au cours des variations de températures d'un cycle de chauffage. De plus, l'yttria ne supporte que des chocs thermiques inférieurs à 600°C [Mon 91], ce qui nécessite des précautions de chauffage. Le matériau obtenu dans notre cas est mécaniquement plus fragile que celui obtenu par compression isostatique à chaud.

Après un chauffage à 1300°C de 21 g d' ^{238}U pendant 48 h, le creuset utilisé (1,3 cm de diamètre intérieur et de 3 cm de profondeur), ne manifeste aucune altération physique. De plus, son inertie chimique au regard de l'uranium est remarquable puisque l'échantillon d'uranium n'adhère pas aux parois du creuset (fig. IV.9). Cet ensemble a été réchauffé dans les mêmes conditions pendant 24 h afin de constater si le creuset pouvait tenir plus d'un cycle thermique. Devant la reproductibilité des résultats obtenus, le même creuset fut utilisé en ligne jusqu'à une température de 1400°C. Finalement, après une période totale de 120 h à plus de 1200°C dont 12 h à 1400°C, le creuset demeure inaltéré et inerte vis à vis de l'uranium.



Figure IV.9 : creuset de Y_2O_3 avec le lingot de 21 g d'uranium après expérience en ligne à 1400°C.

Notre démarche s'est faite par étapes compte tenu des risques liés à l'utilisation de l'uranium liquide. A la suite du succès de l'expérience en ligne à 1400°C, les études hors-ligne à plus haute température ont été poursuivies. Elles ont démarré auprès du séparateur de la collaboration ISOLDE où la cible de 21 g a été alors portée à 1600°C. Nous avons alors pu observer un taux d'évaporation d'uranium négligeable (§ 4.4.1.1) et constater après le chauffage, la non adhérence de l'uranium au creuset. Un noircissement général du creuset a été observé. Il caractérise une sous stoechiométrie en oxygène de la céramique. Ces résultats ont montrés la faisabilité d'une cible liquide à 1600°C. Nous avons donc décidé de mettre au point une cible de 250 g en vue de l'expérimenter sur le séparateur en ligne PARRNE 2.

4.5 Réalisation de l'ensemble cible de 250 g d'uranium

4.5.1 géométrie du creuset

Afin que le flux neutronique traverse efficacement la cible, le creuset cylindrique doit avoir son axe de rotation vertical (fig. IV.10). Il faut donc concevoir et usiner un creuset qui permette à la fois de charger la masse d'uranium sans difficulté et de la contenir de façon étanche à haute température.

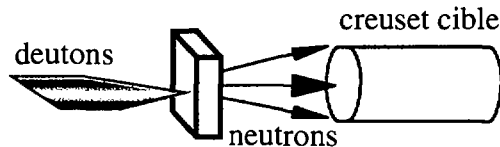


Figure IV.10 : position du creuset cible pour une irradiation efficace.

Le creuset réalisé dans un barreau de Y_2O_3 est taraudé à une extrémité afin de recevoir un bouchon semi fileté assurant une fermeture hermétique (fig. IV.11).

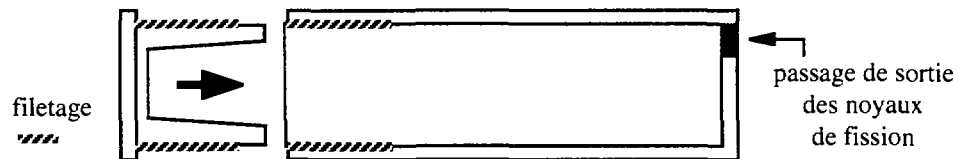


Figure IV.11 : schéma de réalisation d'un creuset cylindrique d'axe horizontal. Le bouchon semi fileté en Y_2O_3 doit assurer l'étanchéité une fois visée.

Un autre creuset cylindrique de diamètre inférieur et utilisé en position verticale permet de former un lingot d'uranium pouvant se loger dans le creuset définitif. Les expériences de chauffage réalisées par la suite ont montré que ce creuset contient de façon étanche l'uranium.

4.5.2 four pour U liquide

Bien qu'une cible d'un quart de kilogramme d'uranium occupe un volume comparable à une cible UC_x d'une trentaine de gramme, l'encombrement du creuset nécessite la réalisation d'un four de plus grand diamètre. Cet agrandissement impose une augmentation de la puissance de chauffage. Afin que le courant de chauffage de la cible ne soit pas trop élevé, nous devons augmenter la résistance du four en graphite. Les essais hors-ligne montrent qu'une augmentation sensible de la résistance ne peut s'obtenir qu'en accroissant le nombre de stries dans le four et non en modifiant les dimensions de ces stries.

4.5.3 ensemble cible

La réalisation de cette première cible de 250 g d'uranium a été menée avec le souci constant d'éviter toute propagation accidentelle de l'uranium fondu au cours d'une irradiation. Notamment, l'ouverture d'échappement des produits de fission a ainsi été réduite à 14 mm².

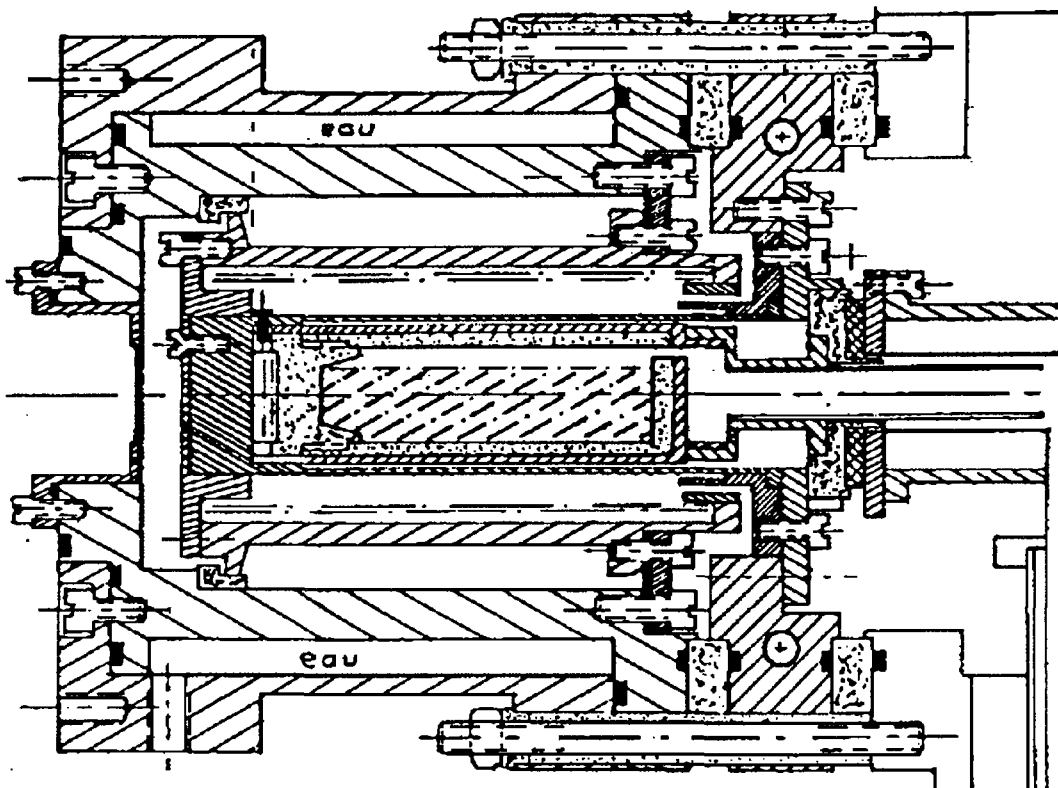


Figure IV.12 : schéma de l'ensemble cible conçu pour contenir 250 g d'uranium liquide.

Le tungstène est un bon matériau pour contenir le creuset en céramique [CER00]. A défaut, le molybdène s'avère être un bon substitut. Le creuset est entièrement enveloppé dans un conteneur en molybdène afin d'empêcher la propagation de l'uranium en cas de fissuration du creuset (fig. IV.12). La connexion entre le conteneur et le tube transfert est aussi assurée par une pièce en molybdène.

Cet ensemble cible a été très récemment expérimenté auprès du séparateur en ligne PARRNe 2 (fin mai 2000). Dans cette configuration, la cible a été portée à 1700°C.

4.6 Processus de relâchement d'une cible liquide

Plusieurs phénomènes interviennent dans le processus de relâchement d'un radioélément hors d'une cible de métal liquide : la diffusion moléculaire, le transport par des courants de convection du liquide, la diffusion à travers le film superficiel du liquide et la désorption en surface.

4.6.1 diffusion dans un milieu liquide stagnant

La diffusion macroscopique de particules dans un milieu se décrit par l'équation de Fick :

$$\mathbf{J} = - D \nabla c \quad (4.34)$$

\mathbf{J} : flux vectoriel par unité de surface de l'espèce observée

D : coefficient de diffusion (moléculaire) de l'espèce observée

∇ : opérateur de différentiation spatiale ($\partial_x, \partial_y, \partial_z$)

c : concentration locale de l'espèce observée

Dans un fluide parfait, le seul traitement statistique du mouvement brownien permet d'établir une expression du coefficient de diffusion [Guy 94]. Toutefois, une particule dans un milieu liquide demeure constamment en interaction. Cette interaction se caractérise par la viscosité dynamique du milieu liquide. Connaissant la viscosité η (§ 4.4.1.3) une valeur du coefficient de diffusion D peut se déduire. Lorsque le rayon des particules diffusantes R_e est approximativement égal à celui des particules du milieu, la formule de Sutherland-Einstein donne l'expression du coefficient de diffusion :

$$D = \frac{k_B T}{4\pi \eta R_e} \quad (4.35)$$

η : viscosité du fluide

R_e : rayon de la particule qui diffuse. Un rayon d'encombrement de l'espèce diffusante peut se déduire de son volume molaire à la température du milieu.

Si les particules diffusantes sont grandes devant celles du milieu, les frictions au cours du mouvement sont accrues et la formule de Stokes-Einstein donne [Iid 88] :

$$D = \frac{k_B T}{6\pi \eta R_e} \quad (4.36)$$

La relation 4.36 donne un bon ordre de grandeur du coefficient de diffusion des liquides pour des particules de rayon inférieur à $1\mu\text{m}$, sur lesquelles les effets de l'agitation thermique demeurent importantes. Concernant l'autodiffusion de l'uranium où les particules diffusantes sont de même dimension que celles du milieu, la relation 4.35 couplée à l'expression 4.27 reproduit la relation empirique 4.38 établie pour les métaux liquides. Avec la relation 4.36, les résultats obtenus sont moins d'un facteur deux en dessous de ceux de la relation empirique 4.38.

Compte-tenu de la variation globale de la viscosité selon une loi d'Arrhenius (relation 4.24), il apparaît que la diffusion varie à peu près suivant l'expression suivante ;

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{H_D}{R_g T}\right) \quad (4.37)$$

D_0 et H_D : constantes

De cette équation découle une relation empirique pour l'autodiffusion dans les métaux liquides [Iid 88] :

$$D_{\text{auto}} = 3,5 \cdot 10^{-6} \left(\frac{T_m}{M}\right)^{1/2} \frac{V_m^{1/3}}{\exp(-H_D/R_g T_m)} \exp\left(-\frac{H_D}{R_g T}\right) \quad (4.38)$$

D_{auto} : coefficient d'autodiffusion en cm^2/s

T et T_m : températures en K

V_m : volume molaire au point de fusion (cm^3)

H_D : énergie d'activation apparente (relation 4.39)

De façon analogue à la relation 4.26 concernant la viscosité, il y a une relation empirique entre H_D et la température de fusion T_m . Pour les métaux normaux, la relation est :

$$H_D = 2,50 T_m^{1,15} \quad (4.39)$$

D'après ces données, le coefficient d'autodiffusion qui vaut au point de fusion $2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ augmente de 30% à 1600°C .

4.6.2 mouvements de convection

Si la température d'un liquide soumis au champ gravitationnel présente un gradient dans une direction autre que celle du champ, alors l'équilibre mécanique du fluide est impossible : des mouvements de convections se produisent. De telles convections dites libres se produisent aussi si le gradient thermique vertical vérifie la condition [Lan 59] :

$$d_z T \leq -\frac{M g}{C_p} \quad (4.40)$$

$d_z T$: gradient thermique vertical, $d_z T < 0$ lorsque la température baisse à mesure que l'altitude augmente. Pour l'uranium liquide, $d_z T$ ne doit pas dépasser $-4,8 \text{ K/cm}$ pour induire des courants.

C_p : capacité calorifique molaire. Pour l'uranium, $C_p = 48,66 \text{ J.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$ [Oet 76]

Les courants de convections pour des fluides newtoniens incompressibles peuvent être décrits par l'équation Navier-Stokes (4.41) [Guy 94].

$$\partial_t \mathbf{v} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\nabla p + \nu \Delta \mathbf{v} + \mathbf{g} \quad (4.41)$$

$\partial_t \mathbf{v} = \partial \mathbf{v} / \partial t$ où \mathbf{v} est le vecteur vitesse

∇ : opérateur de différentiation spatiale

∇p : gradient de la pression p .

$\nu = \eta / \rho$: viscosité cinématique (équation 4.27 pour η et équation 4.19 pour ρ)

Δ : opérateur laplacien (en coordonnées cartésiennes $\Delta = [\partial_x^2 + \partial_y^2 + \partial_z^2]$)

\mathbf{g} : accélération gravitationnelle. $|\mathbf{g}| = 9,80 \text{ m/s}^2$ au niveau de la mer

A l'équation de Navier-Stokes s'ajoute celle de conduction de la chaleur dont la contribution des termes de dissipation thermique par viscosité peut être négligée pour des convections libres.

$$\partial_t T + \mathbf{v} \cdot \nabla T \approx \alpha \Delta T \quad (4.42)$$

$\alpha = \kappa / (\rho C_p)$: diffusivité thermique

ΔT : laplacien de T ($\Delta T = \partial_x^2 T + \partial_y^2 T + \partial_z^2 T$ en coordonnées cartésiennes)

De plus, la condition d'incompressibilité donne la relation (4.43).

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (4.43)$$

La résolution du système d'équations 4.41, 4.42 et 4.43 en fonction des conditions expérimentales nécessite généralement des moyens numériques. Afin d'estimer l'ordre de grandeur de la vitesse des convections libres, la considération d'un flux laminaire (écoulement à une seule dimension) sous un gradient de 200°C et entre deux parois solides espacées de 4 cm centimètres, montre que la distribution des vitesses de courant peut atteindre 10 cm/s. L'estimation de l'importance de ces courants libres par rapport au déplacement diffusif régi par la viscosité s'obtient en déterminant le nombre de Grashof Gr (équation 4.44). Ce nombre sans dimension exprime le rapport des interactions mises en jeu dans les mouvements de convection sur celui des forces visqueuses.

$$Gr = \frac{g \zeta l^3 \delta T}{\nu^2} \quad (4.44)$$

ζ : expansion thermique (relation 4.45)

l : échelle de longueur caractéristique des variations de vitesse de l'écoulement

δT : amplitude du gradient de température

ν : viscosité cinématique : entre 10^{-8} et $10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ pour les métaux liquides

L'expansion thermique ζ de l'uranium se déduit de l'expression 4.19 de la densité en fonction de la température.

$$\zeta = \frac{\partial_T \rho}{\rho} = \frac{1,29}{19\,090 - 1,29 T_{[K]}} \quad (4.45)$$

ζ : expansion thermique qui est de l'ordre de $7 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ pour l'uranium liquide
 $\partial_T = \partial\rho/\partial T$ où ρ est la densité du liquide

La longueur caractéristique des variations de vitesse des écoulements est dans notre cas comparable aux dimensions de la cible liquide. Pour une cible cylindrique caractérisée par des dimensions de plusieurs centimètres, le nombre de Grashof est de l'ordre de $10^6 \cdot \delta T$ avec $\delta T \approx 200^\circ\text{C}$. Ce nombre très élevé indique que le transport par convection domine largement celui par pure diffusion. De plus, il se trouve dans un domaine d'apparition possible de courants turbulents, c'est à dire instables.

S'il n'y a pas formation en surface d'une pellicule solide par une contamination élevée, un gradient de tension superficielle dû à des variations de température ou de concentration crée des contraintes en surface qui induisent des mouvements dans le fluide. Il s'agit de l'effet Marangoni.

Ainsi pour des solutés tensio-actifs (des solutés qui abaissent la tension superficielle), l'effet Marangoni tend à les étaler à la surface, facilitant ainsi leur évaporation. Parmi les solutés métalliques, les éléments tensio-actifs sont principalement caractérisés par une température de fusion plus basse que celle du solvant, c'est à dire une tension superficielle plus faible (équation 4.29). Les paramètres secondaires d'interactions chimiques répulsives et de taille d'atome du soluté peuvent aussi intervenir. En régime stationnaire la concentration d'isotopes de fission devrait être approximativement homogène, ce qui limiterait la portée de l'effet Marangoni par concentration.

Quant au gradient thermique maintenu en surface par le chauffage, la contrainte induite σ_γ dirige le flux superficiel vers les maxima de tension avec une amplitude proportionnelle au gradient thermique et au gradient de tension.

$$\sigma_\gamma = \gamma \partial_T \gamma \partial_x T \quad (4.46)$$

σ_γ : contrainte superficielle égale à la force par unité de surface de film déplacée

γ : tension superficielle

$\partial_T \gamma = \partial\gamma/\partial T$: constante négative puisque γ décroît linéairement

$\partial_x T$: gradient thermique superficiel

La contrainte par frottement visqueux tendant à compenser ce déplacement, le mouvement superficiel se propage dans le liquide. De la même manière que le nombre de Grashof pour les convections libres, le nombre de Marangoni Ma (relation 4.47) permet de quantifier l'amplitude de l'effet. Ce nombre sans dimension se définit comme le rapport des forces générées par un gradient de tension sur les forces de freinage visqueux.

$$Ma = \frac{\delta \partial_T \gamma \delta T}{\alpha \eta} \quad (4.47)$$

δ : épaisseur du film

δT : gradient thermique superficiel

$\alpha = (\kappa A)/(\rho C_p)$: diffusivité thermique

η : viscosité dynamique (6,5 mPa.s pour U)

La diffusivité thermique α d'un métal liquide se situe entre 10^{-4} et 10^{-6} m²/s [Guy 94]. La conductivité thermique κ nécessaire pour déterminer la diffusivité α , peut se déduire de la résistivité électrique par la loi de Wiedemann-Franz-Lorenz (4.48), à défaut de mesure.

$$\kappa \rho_e = \frac{1}{3} \left(\frac{\pi k_B}{e} \right)^2 T = 2,45 \cdot 10^{-8} T_{[K]} \text{ W}\Omega\text{K}^{-1} \quad (4.48)$$

κ : conductivité thermique

ρ_e : résistivité électrique

e : charge électrique élémentaire

A l'exception du cadmium et du zinc, la résistivité électrique d'un métal liquide augmente linéairement avec la température avec un coefficient de l'ordre de 10^{-2} $\mu\Omega\text{.cm}/^\circ\text{C}$ et elle se déduit, au point de fusion, de la résistivité à l'état solide par l'équation de Mott (4.49) [Iida 88].

$$\rho_{e,s}/\rho_{e,l} = \exp(-80 \frac{\Delta_{s,l}H_m}{T_m}) \quad (4.49)$$

$\rho_{e,s}$: résistivité électrique d'un métal solide près du point de fusion

$\rho_{e,l}$: résistivité électrique d'un métal liquide au point de fusion

$\Delta_{s,l}H_m$: chaleur latente de fusion égale à 12,6 kJ/mol pour l'uranium

T_m : température de fusion

On obtient ainsi, $\kappa \sim 40 \text{ W.K}^{-1}\text{.m}^{-1}$. Cette valeur est en accord avec les mesures générales des métaux liquides [Guy 94]. La densité se déduisant de la relation 4.17 et la capacité calorifique molaire à pression constante de l'uranium liquide valant $48,66 \text{ J.K}^{-1}\text{.mol}^{-1}$ [Oet 76], la diffusivité thermique α déduite pour l'uranium est proche de 10^{-5} m²/s. De ces valeurs, le nombre de Marangoni déduit avec un gradient thermique de 200°C et une variation de tension de surface de $2 \cdot 10^{-4} \text{ N.m/K}$ (fig. IV.8) est de l'ordre de 1. Les instabilités Marangoni se manifestent pour des nombres dépassant $Ma \approx 80$. Par conséquent, même si la surface du liquide est libre, cet effet reste superficiel.

4.6.3 transfert de masse en surface

Toute interface entre deux milieux différents présente une résistance au transport de particules entre ces deux milieux. Une telle interface se décrit en première approximation comme un film stagnant d'une épaisseur de l'ordre de 10 μm pour un liquide et de l'ordre de 100 μm

pour un gaz [Wes 90-Rav 79]. L'effet du film gazeux est négligeable devant celui du liquide en raison de l'écart de plus de huit ordres de grandeur, entre les coefficients de diffusion.

$$J_i = \frac{D}{\delta} (c_{i0} - c_{i\delta}) \quad (4.50)$$

- J_i : flux par unité de surface de l'isotope i à travers le film
- D : coefficient de diffusion de l'isotope i dans le film
- δ : épaisseur du film
- c_{i0} et $c_{i\delta}$: concentrations de l'isotope i de chaque côté du film

L'isotope migrant est supposé produit uniformément dans la cible, ce qui donne à saturation :

$$c_{i0} = \frac{\Phi_i}{\lambda_i V} \quad (4.51)$$

- c_{i0} : concentration de l'isotope i dans le liquide
- Φ_i : production du fragment de fission i par seconde
- λ_i : constante de désintégration de l'isotope i ($\lambda_i = \text{Ln}(2) / T_{1/2}$)
- V : volume de la cible liquide

La concentration d'un isotope relâché à l'état gazeux apparaît négligeable devant celle à l'état liquide. Le flux à travers le film s'exprime donc par la relation :

$$J_i = \frac{D}{\delta} \frac{\Phi_i}{\lambda_i V} \quad (4.52)$$

- J_i : flux par unité de surface de l'isotope i à travers le film
- D : coefficient de diffusion de l'isotope i dans le film
- δ : épaisseur du film
- Φ_i : production du fragment de fission i par seconde
- λ_i : constante de désintégration de l'isotope i
- V : volume de la cible liquide

Considérant une cible de 250 g d'uranium avec 12 cm² de surface libre (§ 4.5), le flux d'isotopes traversant le film en surface vaut 10⁻². $q_i T_{1/2}$ isotopes/s. Ainsi, pour des isotopes de période proche de la seconde, le taux d'éléments franchissant le film diminue d'un facteur cent par rapport à celui généré dans la cible. Si le film superficiel subit une solidification par oxydation, le coefficient de diffusion peut baisser de plus d'un ordre de grandeur encore.

Le temps de séjour en surface d'un métal à haute température est de l'ordre de quelques μ s pour les gaz rares et de quelques ms pour les alcalins [Rav 79]. De ces considérations, le transfert à travers la pellicule superficielle du liquide conditionne principalement la dynamique du relâchement des isotopes de fission.

4.6.4 interactions chimiques entre l'uranium liquide et les éléments produits

Le relâchement d'un fragment de fission dépend de ses possibilités de former un composé stable avec l'uranium. Les éléments les plus produits par la fission et qui peuvent se combiner avec l'uranium sont essentiellement métalliques. Des études de fabrication d'alliage d'uranium montre une correspondance les possibilités de formation d'un composé entre et la solubilité du métal dans l'uranium solide à haute température [Pas 60]. La solubilité des métaux dans l'uranium peut se classer en quatre catégories :

- ◇ les métaux non miscibles dans l'uranium liquide c'est à dire les alcalins, les alcalino-terreux (sauf Be), les terres rares, le cuivre, l'argent et le mercure .
- ◇ les métaux très peu solubles. Cette seconde catégorie comprend d'une part les éléments ayant une parenté avec les métaux cités ci-dessus : le béryllium, le zinc, le cadmium, l'antimoine, l'or, d'autre part le tantale, le tungstène, l'antimoine, le thallium, le bismuth et le thorium.
- ◇ les métaux de solubilités limitées : les éléments des groupes IIB et IVB (aluminium, gallium, silicium, étain) ainsi que les éléments ruthénium, rhodium, palladium et platine.
- ◇ les métaux ayant une solubilité étendue ou complète. Elle est constituée par quatre métaux de transition : titane, zirconium, niobium et molybdène.

Pour les métaux ayant une certaine solubilité dans l'uranium, il faut considérer la stabilité des composés à la température de l'uranium liquide. Par exemple, pour le nickel, le composé U_6Ni formé en milieu excédentaire en uranium se décompose dès $790^\circ C$ et aucun composé stable n'a été identifié au delà de $1300^\circ C$ [Pas 60]. Concernant l'étain, les molécules U_3Sn_5 USn_3 sont difficilement produits dans un milieu excédentaire en uranium. L'eutectique terminal est pratiquement confondue avec U [Pas 60]. Le composé le plus réfractaire U_3Sn_2 [Shu 69] qui fond à $1500^\circ C$ n'est obtenu que dans un mélange contenant plus de 40% d'étain [Pas 60]. Qualitativement, auprès du séparateur hors-ligne de la collaboration ISOLDE, nous avons observé vers $1600^\circ C$ le relâchement des isotopes stables d'étain, présents dans la cible sous forme d'impuretés.

Les interactions chimiques ne devraient donc pas altérer le relâchement d'une grande part ie des métaux (alcalins, alcalino-terreux...) dont notamment les éléments d'intérêt nickel et étain.

4.7 Comparaison du relâchement entre UC_x & U liquide

De ces considérations théoriques, le relâchement d'une cible liquide dépend fortement de son état de surface. Un chauffage élevé favorise la dissolution d'impuretés dans le liquide mais augmente aussi le taux de réactions chimiques en surface. Le contraste entre l'état de surface brillant observé après un chauffage à $1600^\circ C$ et celui qui, souvent oxydé, suit un chauffage à

1400°C, suggère que le taux de contamination superficiel est négligeable devant celui de la dissolution dans le liquide.

A quantité d'uranium égale, le volume d'une cible d'uranium liquide est bien plus réduit que celui d'une cible UC_x . Cela favorise l'utilisation optimum du flux neutronique à travers la cible et une meilleure efficacité d'effusion vers la source d'ions. Néanmoins, compte tenu de la quantité de matière à traverser dans une cible liquide, il paraît difficile pour les éléments de plus courtes périodes d'obtenir un relâchement comparable à celui d'une cible UC_x [And 91].

Bien que dépendant des conditions optimales de chauffage qui seront atteintes, les caractéristiques de la cible liquide dont en particulier la sélectivité dans le relâchement, se présentent assez distinctes de la cible UC_x pour suggérer des usages complémentaires de ces cibles. Pour l'étude de noyaux de très courte période, la cible UC_x est plus favorable. Tandis que pour l'obtention de faisceaux très intenses d'isotopes peu éloignés de la vallée de stabilité, comme ceux recherchés pour la synthèse de noyaux superlourds, la cible liquide présente des avantages certains.

5. Le dispositif PARRNe 1

5.1 Présentation du Dispositif

Ce système qui permet une mise en place relativement rapide a été initialement conçu pour mesurer des taux de gaz rares exotiques relâchés d'une cible UC_x irradiée par des neutrons rapides.

La mobilité du montage PARRNe 1 a aussi permis d'étudier le taux de production en fonction de différentes énergies de deutons, par des expériences auprès de différents accélérateurs. Cette étude a été réalisée dans le cadre de la collaboration européenne SPIRAL II.

Les caractéristiques de cet ensemble expérimental seront présentées après sa description.

5.1.1 description

La figure V.1 décrit le dispositif PARRNe 1. Les gaz rares radioactifs relâchés par la cible à haute température sont condensés avec une certaine efficacité sur un doigt cryogénique maintenu à une température de 12 K pour une identification par spectroscopie γ . La tête cryogénique est refroidie par un cryogénérateur à deux étages, un étage à 80 K suivi d'un étage à 20 K. Le compresseur qui permet le refroidissement par un circuit fermé d'hélium gazeux (cycle de Stirling), a une puissance suffisamment élevée (4 kW) pour placer un écran autour de la tête cryogénique sur l'étage à 80 K.

Une détection sous des conditions de bruit de fond satisfaisantes nécessite de placer ce doigt froid en dehors de la salle d'irradiation. Par conséquent la cible est reliée au doigt cryogénique par un tube de transport d'environ 8 m de long que seuls les éléments gazeux peuvent parcourir.

Afin de ne pas détériorer la cible de production à haute température et de ne pas saturer le doigt cryogénique, le vide dans l'intégralité du dispositif ne doit pas dépasser 10^{-4} mbar. Etant donné le dégazage élevé des éléments environnant la cible portée à haute température, un pompage secondaire est installé dans l'enceinte cible. A l'autre extrémité du dispositif une petite pompe moléculaire réalise le vide dans toute la tubulure de transport. Néanmoins, pendant la durée de l'acquisition, seul le doigt cryogénique assure le pompage dans la canalisation afin de ne pas perdre de gaz rares radioactifs.

Compte tenu de la longueur de la tubulure de transport, la caractérisation de l'écoulement est fondamentale à la définition du dispositif, à la fois pour la qualité du vide et la réduction des pertes par décroissance radioactive.

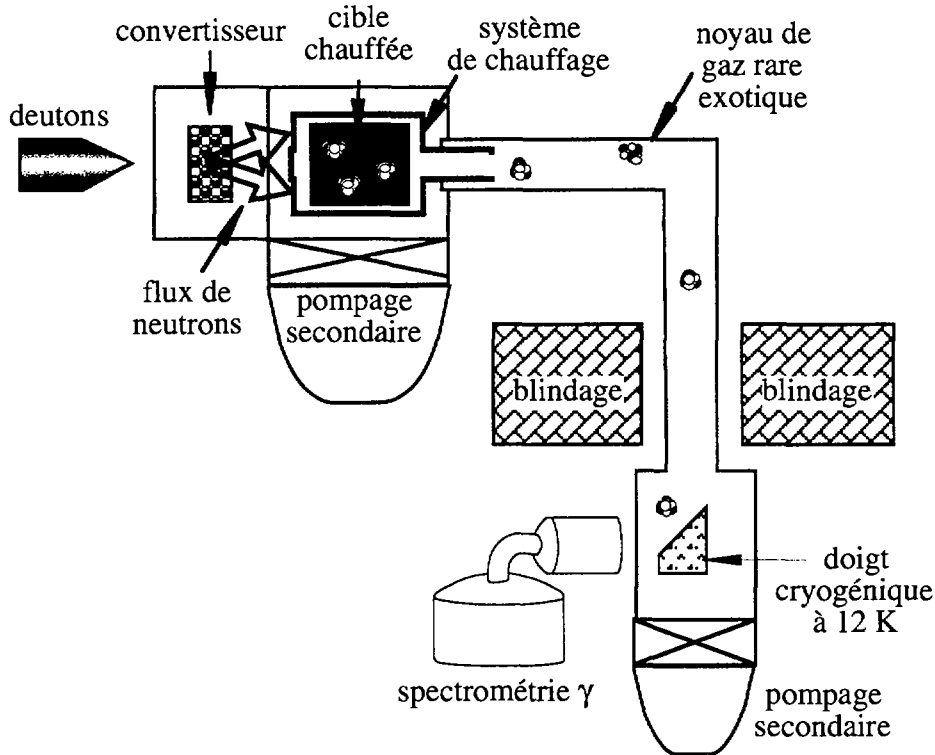
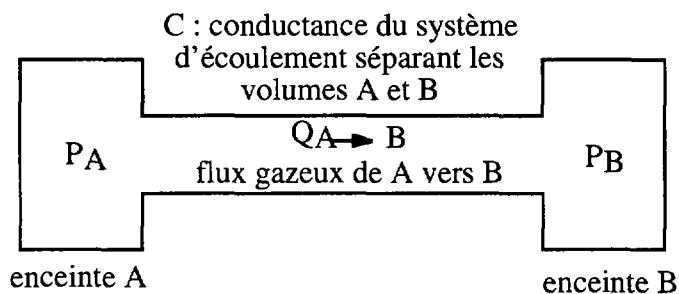


Figure V.1 : Schéma du dispositif PARRNe 1.

5.1.2 définition de la tubulure de transport

La forme de la tubulure est fixée par la géométrie des lieux. Sa longueur doit être minimisée afin de réduire le temps de transport moyen. Elle est généralement proche de 8 m. La conductance d'une canalisation définie par la relation 5.1 permet de caractériser l'écoulement à travers cette tubulure.



$$Q_{A \rightarrow B} = C (P_A - P_B) \quad (5.1)$$

Puisque l'inverse de la conductance se présente comme une résistance à l'écoulement du flux gazeux, la canalisation définie doit comporter une conductance aussi élevée que possible.

5.1.2.1 conductance de la tubulure de PARRNe 1

Lorsque le libre parcours moyen des particules du gaz est supérieur au tiers du diamètre d'un conduit de transport, les collisions entre particules gazeuses sont rares et le régime d'écoulement est dit moléculaire. Les chocs sur les parois conditionnent alors l'écoulement. Pour ce régime la conductance est donnée par la formule de Knudsen dont l'équation (5.2) donne l'expression pour une canalisation cylindrique ayant plusieurs coudes.

$$C = \frac{1}{6} \sqrt{\frac{2\pi R_g T}{M}} \frac{d^3}{L + \sum_n \frac{1,33 d \theta_n}{180}} \quad (\text{usi}) \quad (5.2)$$

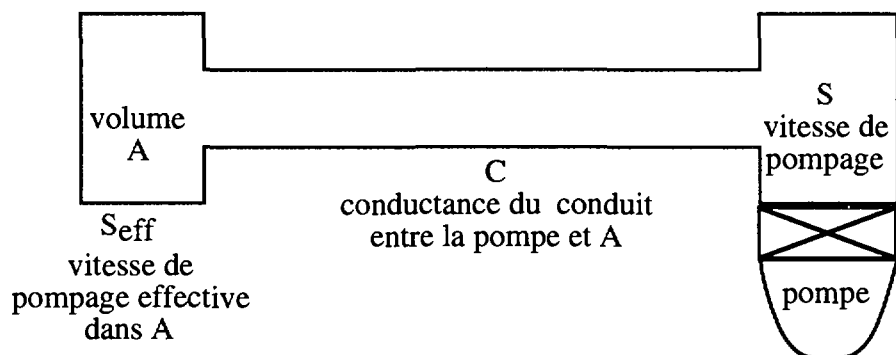
M : masse molaire de l'élément qui s'écoule

d : diamètre de la canalisation cylindrique

L : longueur de la canalisation.

θ_n : angle en degré du coude d'indice n

Puisque la conductance dépend du cube du diamètre du conduit alors que le taux de dégazage total n'en dépend que linéairement, le diamètre du conduit doit être choisi aussi grand que possible. La canalisation standard utilisé a donc un diamètre nominal de 4 cm. La conductance d'un tube de 8 m de long et de 4 cm de diamètre est inférieure à 1 l/s. La vitesse de pompage effective en bout de canalisation sera donc très proche de la conductance de la tubulure (relation 5.3).



$$S_{\text{eff}}^{-1} = S^{-1} + C^{-1} \quad (5.3)$$

Par conséquent il n'est pas nécessaire d'utiliser une pompe ayant une vitesse de pompage très supérieure à 50 l/s (taille des plus petites pompes turbomoléculaires).

5.1.2.2 vide résiduel le long de la tubulure

Il s'agit de déterminer si un seul pompage placé en bout de la tubulure suffit à obtenir une pression résiduelle inférieure à 10^{-4} mbar et si le doigt cryogénique peut à lui seul maintenir ce vide pendant la collection des gaz rares (fig. V.1). La distribution de la pression résiduelle peut se calculer en considérant un taux de dégazage (noté a) constant (fig. V.2) [Del 61-Lau 96]. En raison de l'étendue de la surface de l'ensemble de la canalisation, le dégazage provenant de la cible chauffée ($x = L$) est négligeable. La relation (5.4) exprime la distribution obtenue.

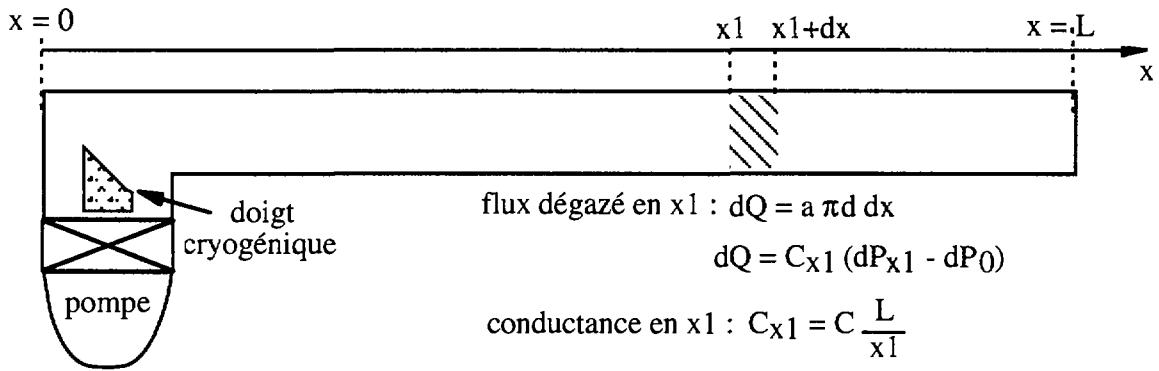


Figure V.2 : Schéma du calcul de la distribution du vide dans la tubulure PARRNe 1

$$P(x) = a \pi d \left[\frac{x}{C} - \frac{x^2}{2CL} + \frac{L}{S} \right] \quad (5.4)$$

La distribution est calculée pour une pompe turbomoléculaire de 50 l/s avec un taux de dégazage de l'incox donné à $2 \cdot 10^{-8}$ mbar.l.s⁻¹.cm⁻¹ après 5 h de pompage [Ley 85]. Cette distribution est comparée aux mesures de vide qui pour des raisons pratiques n'ont été réalisées qu'aux extrémités de la tubulure (fig. V.3).

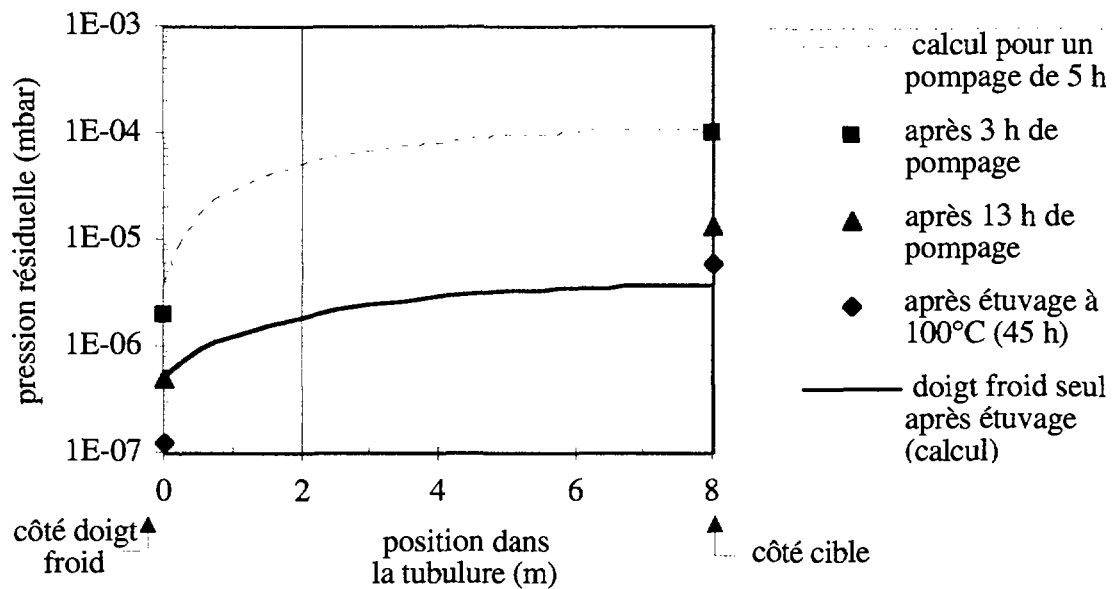


Figure V.3 : Distribution de la pression résiduelle calculée pour une pompe de 50 l/s (pointillée) et comparaison à des mesures. Le taux de dégazage après étuvage de la tubulure est déduit de cette comparaison pour calculer la distribution pour le doigt froid.

La comparaison permet de déduire le taux de dégazage après un étuvage de la tubulure et la relation (5.5) permet de déterminer la vitesse de pompage du doigt cryogénique. Le doigt froid ayant une surface de 6 cm², sa vitesse de pompage est de l'ordre de 50 l/s.

$$S_{\text{cryo}} = \sqrt{\frac{R_g \cdot T_g}{2\pi M}} \left(1 - \frac{P_s}{P_g} \sqrt{\frac{T_g}{T_s}} \right) \quad (5.5)$$

S_{cryo} : capacité d'aspiration par unité de surface

P_s : tension de vapeur à la température T_s de la cryosurface du gaz à pomper

P_g et T_g : pression et température du gaz à pomper

Par conséquent, il peut à lui seul maintenir le pompage durant toute la période de collection des gaz rares (fig. V.3). Cependant, afin de ne pas saturer le doigt, sa mise en froid nécessite une pression résiduelle préalable qui ne dépasse pas 10⁻⁴ mbar.

5.1.2.3 caractérisation du temps de transport dans la tubulure

En régime moléculaire, l'écoulement peut se décrire comme une autodiffusion du gaz avec un libre parcours déterminé par le diamètre du tube de transport (relation 5.6). En effet, le temps de séjour des gaz rares sur la paroi de la tubulure (<10⁻¹³ s) est infiniment petit devant la centaine de microsecondes nécessaire pour accomplir le libre parcours moyen.

$$l_{pm} = \frac{d}{\cos \theta_m} = 4,28 \text{ cm} \quad (5.6)$$

l_{pm} : libre parcours moyen

d : diamètre du tube

$$\theta_m = \frac{1}{\pi} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} |\theta| \cos \theta \, d\theta = 1 - \pi/2 : \text{ angle moyen de réflexion d'une paroi}$$

Considérant qu'un certain nombre de particules gazeuses de la cible est relâché dans la tubulure à un temps $t=0$, ce flux de gaz se propage avec une distribution gaussienne dépendant du coefficient d'autodiffusion D [McD 64]. Le temps moyen de déplacement de ce flux le long de la canalisation de transport est donné par la relation (5.7) [Lau 96].

$$t_m = \frac{\pi L_{eff}^2}{4 D} = \left(\frac{3\pi^{3/2} L_{eff}^2}{8 l_{pm}} \right) \sqrt{\frac{M}{2 R_g T}} \quad (5.7)$$

L_{eff} : longueur effective de la tubulure (équation 5.2)

D : coefficient d'autodiffusion du gaz

l_{pm} : libre parcours moyen

Expérimentalement, afin d'obtenir une mesure du temps moyen de transport dans la tubulure, une microfuite calibrée simule le relâchement de la cible. Cette microfuite de 10^{-6} mbar.l/s délivre un flux gazeux contenant les gaz rares stables ^4He , ^{84}Kr et ^{132}Xe . Le temps moyen de transport se déduit de la décroissance du flux gazeux dans l'enceinte du doigt froid lorsque la microfuite est fermée. Cette décroissance évolue de façon exponentielle et se caractérise donc par un temps moyen statistique donné par la relation 5.8 [Lau 96].

$$\tau_m = \frac{t_{1/2}}{\text{Ln}(2)} \quad (5.8)$$

τ_m : temps moyen statistique de la décroissance exponentielle

$t_{1/2}$: temps au bout duquel l'amplitude initiale a décré de moitié (période)

Le temps t_m caractérise le temps moyen de propagation d'un flux gaussien à travers la tubulure alors que τ_m caractérise le temps moyen de pompage à travers cette tubulure. Dans la mesure où la vitesse de pompage effective est avant tout conditionnée par l'écoulement dynamique le long de la canalisation, ces deux temps moyen t_m et τ_m sont comparables. Le tableau V.1 montre que les résultats obtenus avec une pompe de 50 l/s sont très proches. La proportionnalité du temps moyen à la racine carré de la masse molaire s'observe expérimentalement.

isotope	t_m [s]	τ_m [s]
^4He	2	$3 \pm 0,5$
^{84}Kr	9,3	$10,5 \pm 0,6$
^{132}Xe	11,6	$11,6 \pm 0,8$

Tableau V.1 : Comparaison du temps de transport moyen calculé t_m et du temps de pompage moyen mesuré τ_m pour une tubulure de 7,5 m de long avec un pompage de 50 l/s.

Puisqu'au bout de trois périodes radioactives 88% des isotopes d'une même population se sont désintégrés, le dispositif ne devrait pas permettre d'observer des kryptons et des xémons riches en neutrons de période inférieure à quelques secondes.

Le tableau V.2 donne les résultats obtenus au Tandem d'Orsay avec des deutons de 20 MeV [Cla 98] et une canalisation de 6,5 m de long. L'efficacité de sortie de la cible des gaz rares est calculée avec l'équation 4.10 avec des données de [Rav 94] (§ 6.3.2.2). La correction des productions mesurées par le facteur $\exp(-\lambda t_m)$ et l'efficacité de relâchement donne les productions induites dans la cible : N_{CIBLE} . En prenant pour référence le rendement de 3% donné pour le ^{90}Kr dans [LBNL], le rendement des autres isotopes est déduit (tableau V.2).

isotopes	$T_{1/2}$ [s]	t_m calculé [s]	N (mesure) [noyaux/ μC]	N_{CIBLE} [noyaux/ μC]	rendement déduit (%)	rendements LBNL (%)
^{90}Kr	32,3	8,8	$2 \cdot 10^5$	$2,5 \cdot 10^5$	3,1	1,9 - 3,1
^{91}Kr	8,6	8,8	$4 \cdot 10^4$	$8 \cdot 10^4$	1	2,6 - 3,4
^{92}Kr	1,84	8,9	10^4	$2,8 \cdot 10^5$	3,6	2,5 - 2,7
^{139}Xe	39,7	11	$2 \cdot 10^5$	$2,5 \cdot 10^5$	3,1	3,3 - 5,3

Tableau V.2 : Productions de gaz rares (noté N) collectés sur le doigt froid au bout d'une tubulure de 6,5 m. De ces mesures, la production au sein même de la cible (N_{CIBLE}) est estimée. Les mesures ont été obtenues avec des deutons de 20 MeV sur un convertisseur en Be à 8 cm d'écart d'une cible UC_x à 1600°C [Cla 98].

Les rendements calculés à partir de mesures, pour des neutrons de 8 MeV d'énergie moyenne, se comparent assez bien avec ceux figurant dans [LBNL] pour des neutrons de 14 MeV.

5.2 Expérimentation d'une cible d'uranium liquide de 20 g

5.2.1 conditions d'irradiation

La tenue remarquable du creuset d'oxyde d'yttrium avec 20 g d'uranium à 1300°C (§ 4.4.3.3) indiqua la possibilité de réaliser une cible épaisse liquide afin de profiter de sa

grande densité. Nous avons alors souhaité irradier cette cible de 20 g à l'aide du dispositif PARRNe 1.

La figure V.4 illustre le montage de l'ensemble cible liquide. Nous avons utilisé le même dispositif qui a servi à irradier la cible UC_x de 20 g en février 97 moyennant de légères modifications pour s'adapter au creuset vertical.

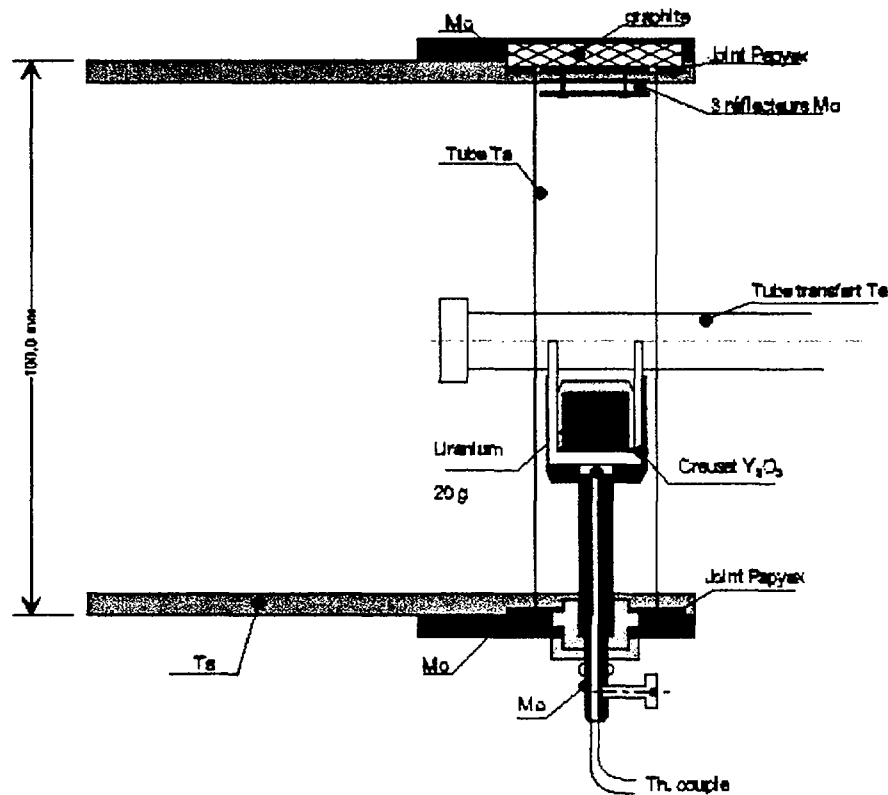


Figure V.4 : ensemble cible de la première expérience en ligne PARRNe 1 avec une cible d'uranium liquide (mai 98). La pièce en molybdène qui contient le creuset possède un évidement pour le passage du thermocouple mesurant la température de la cible. Le faisceau arrive sur la cible d'uranium perpendiculairement au plan de la figure.

Ainsi, les conditions d'irradiation de la cible liquide sont aussi proches que possible de celles utilisées avec la cible UC_x , ceci pour comparer au mieux les résultats. Ces conditions sont schématisées sur la figure V.5. Cependant, il faut prendre en compte pour les deux types de cible, les différents matériaux que traversent les neutrons avant d'atteindre la cible (tableau V.3). Dans la configuration de la cible liquide, les neutrons traversent $1,25 \text{ g/cm}^2$ de matière supplémentaire notamment en raison de l'épaisseur de 2 mm du creuset d'oxyde d'yttrium et de la présence du convertisseur en pyrocarbone. Etant donné la faible section efficace de capture neutronique de la céramique [Mon 91] et du carbone [Cla 95], cette différence d'épaisseur peut être négligée.

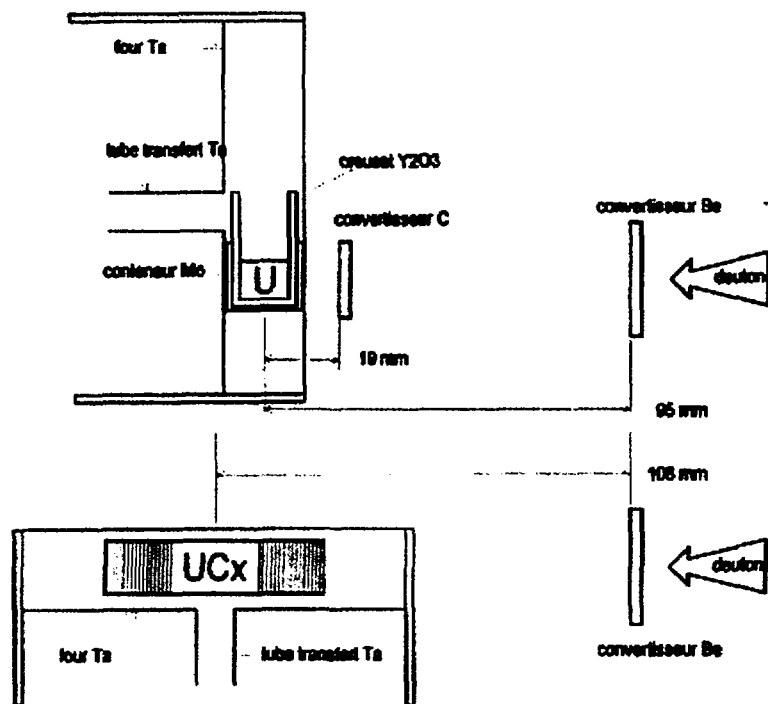


Figure V.5 : comparaison des dispositifs expérimentaux (UC_x en février 97 et U liquide en mai 98). Les deux cibles contiennent 20 g d'uranium.

Cible UCX (fév. 97)		Cible U liquide (mai 98)	
éléments	épaisseur [g/cm ²]	éléments	épaisseur [g/cm ²]
fenêtre Al	0,27	fenêtre inox 5/100	0,39
4 écrans Ta	0,66	4 mm de pyrographite	0,98
graphite du four	0,44	paroi du four en Ta	0,43
4 écrans Ta	0,66	conteneur en Mo	0,91
conteneur en graphite	0,33	creuset Y ₂ O ₃	1,00
épaisseur totale	2,37	épaisseur totale	3,62

Tableau V.3 : épaisseurs traversées par les neutrons issus du convertisseur en Be, avant d'atteindre la cible.

La configuration de la cible liquide nous a permis de placer un convertisseur en pyrographite à 1,9 cm du centre de la cible (8 mm du résistor). Ainsi nous pourrions comparer les taux obtenus avec ce convertisseur en graphite et celui en Be situé à 9,5 cm de la cible (fig. V.5). Cette distance de 9,5 cm ne peut être réduite en raison de l'encombrement du circuit de refroidissement nécessaire au convertisseur en Be.

Notons qu'afin d'éviter le risque d'un débordement de l'uranium au cours de l'irradiation, les parois intérieures du creuset de 3 cm de hauteur s'élèvent 2 cm au dessus de la surface du

liquide. Cette précaution impérative détériore néanmoins la conductance de l'ensemble cible-tube transfert (fig. V.5).

5.2.2 résultats

L'expérience en ligne fut réalisée à une température cible de 1300 et 1400°C, avec les deux convertisseurs positionnées à 9,5 cm et 1,9 cm du centre de la cible et aux énergies de deutons de 20 et 26 MeV. Les taux de gaz rares mesurés sur le doigt cryogénique figurent, dans le tableau V.4 [Kan 00 – Kan 00a].

Le gain obtenu en augmentant la température cible de 1300 à 1400°C dépend de la période du radio-isotope. Il atteint environ un facteur trois pour les kryptons de plus de 8 s et pour les xétons de plus de 30 s. Si l'on considère la zone d'émission des neutrons comme ponctuelle, l'angle solide sous lequel la cible est vue de ce point diffère de 11 msr pour le convertisseur en Be à 9,5 cm du centre de la cible, à 270 msr pour le convertisseur en C à 1,9 cm. Compte tenu de la distribution angulaire des neutrons (largeur à mi-hauteur d'une vingtaine de degré), le flux neutronique traversant la cible dépend sensiblement de la distance du convertisseur. C'est pourquoi malgré un rendement neutronique inférieur d'un facteur 0,6 à celui du Be (§ 2.4), le convertisseur en graphite donne un gain d'un facteur 3,3. De plus, notons que la disposition verticale de la cible liquide est moins bien adaptée qu'une configuration horizontale à la distribution angulaire des neutrons (§ 4.5).

L'énergie moyenne des neutrons incidents varie de 8 à 10 MeV lorsque l'énergie des deutons passe de 20 à 26 MeV. Dans cet intervalle d'énergie des neutrons, la section efficace de fission proche de 1 barn varie très peu. Le gain d'environ 2,3 dans les taux mesurés est donc attribué à l'augmentation du flux neutronique incident.

conditions d'irradiation	⁹⁰ Kr (32,3 s)	⁹¹ Kr (8,6 s)	⁹² Kr (1,8 s)	¹³⁹ Xe (39,7 s)	¹⁴⁰ Xe (13,5 s)
convertisseur Be E _d = 20 MeV T = 1300°C	9 ±0,6	1,5 ±0,1	0,12 ±0,01	9 ±0,6	2 ±0,2
convertisseur C E _d = 20 MeV T = 1300°C	30 ±3	5 ±0,4	0,4 ±0,03	30 ±2	8 ±0,6
convertisseur C E _d = 20 MeV T = 1400°C	85 ±6	15 ±1	0,7 ±0,05	80 ±6	10 ±1
convertisseur C E _d = 26 MeV T = 1400°C	200 ±20	25 ±2	2,5 ±0,2	150 ±20	30 ±2

Tableau V.4 : taux de gaz rares collectés sur le doigt froid avec une cible de 20 g d'uranium liquide. Les taux sont donnés en 10^4 noyaux. $\mu\text{C}^{-1}.$ (50 g d'²³⁸U/cm²)⁻¹ et en fonction du convertisseur utilisé, de l'énergie des deutons E_d et la température de la cible T. La période des radioéléments figure entre parenthèse [Kan 00].

Afin de comparer les cibles UC_x et U liquide, les conditions géométriques d'irradiation de ces deux cibles figurent dans le tableau V.5 et leur taux de production mesurés dans le tableau V.6. Le rapport des angles solides des géométries d'irradiation des deux cibles est de 1,1. En considérant la distribution angulaire des neutrons [Mén 99] une différence de 12% dans les taux de production est estimée en faveur de la cible UC_x [Kan 00].

	UC _x	U fondu
Convertisseur	Be	Be
Distance convertisseur/cible (mm)	108	95
Angle (°)	3,7	3,5
Angle solide (msr)	13,2	10,7

Tableau V.5 : conditions géométriques d'irradiation des cibles UC_x et U fondu (fig. V.5).

nature et température de la cible	^{90}Kr (32,3 s)	^{91}Kr (8,6 s)	^{92}Kr (1,8 s)	^{139}Xe (39,7 s)
UC _x 1600°C	66	13	3,5	66
UL 1300°C	9	1,5	0,12	9
UL 1400°C	25,5	4,5	0,4	25,5

Tableau V.6 : Comparaison des taux de gaz rares collectés sur le doigt froid avec une cible UC_x (corrigé du gain de 12% dû à la différence d'angle solide) et une cible U liquide. Les taux sont donnés en 10^4 noyaux. $\mu\text{C}^{-1}.$ (50 g d' $^{238}\text{U}/\text{cm}^2$) $^{-1}$.

Notre système d'acquisition permet une analyse en multispectre afin d'observer le relâchement temporel de la cible. Cette observation s'est faite avec une durée d'irradiation de 60 s et une série de spectres de 30 s. La fraction relâchée (%) des noyaux produits dans la cible a été calculée suivant une fonction paramétrisant le relâchement dynamique comme décrit dans [Let 97]. La figure V.6 compare les résultats obtenus pour les cibles UC_x et U liquide de 20 g d'uranium.

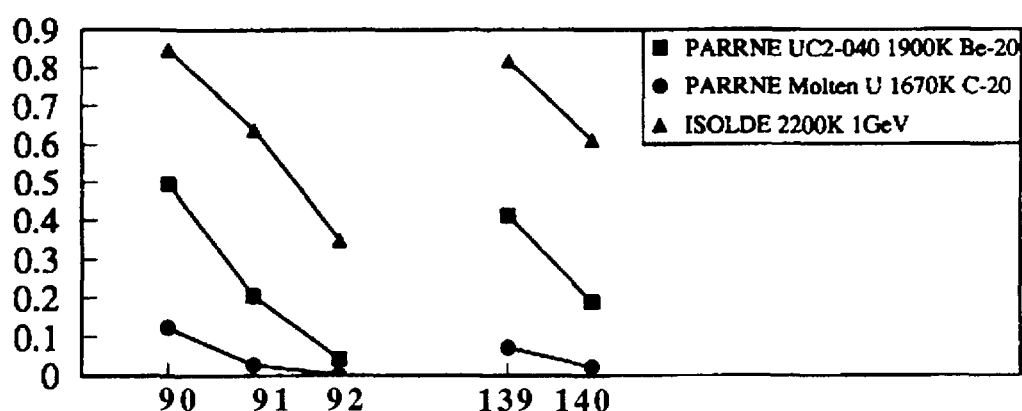


Figure V.6 : facteur de relâchement des cibles UC_x (carrés) et U liquide (ronds) (20 g d'uranium) pour les masses 90 91 et 92 du krypton ainsi que 139 et 140 du xénon [Let 97].

Il apparaît que le relâchement à partir du liquide à 1400°C est plus lent que celui de la cible UC_x à 1600°C. Cela est également confirmé par les taux absolus d'isotopes de krypton et de xénon mesurés (tableau V.6). La différence de température et de longueur de parcours dans la cible expliquent ce relâchement plus lent de la cible fondue [And 91]. Cela est en accord avec l'observation générale à ISOLDE d'un relâchement plus rapide de cibles solides poreuses à haute température par rapport aux cibles liquides [Rav 79].

La figure V.7 donne l'évolution de l'activité collectée dans le cas d'une irradiation à saturation pour la mesure de production. La durée du décalage entre la courbe d'activité et le début de l'irradiation ($t=0$) est comparable aux temps de transport moyen de la tubulure mesurée hors ligne (13 s pour le ^{84}Kr stable et 17 s pour le ^{132}Xe stable). Ces temps mesurés hors ligne sont reproduits par l'équation (5.7).

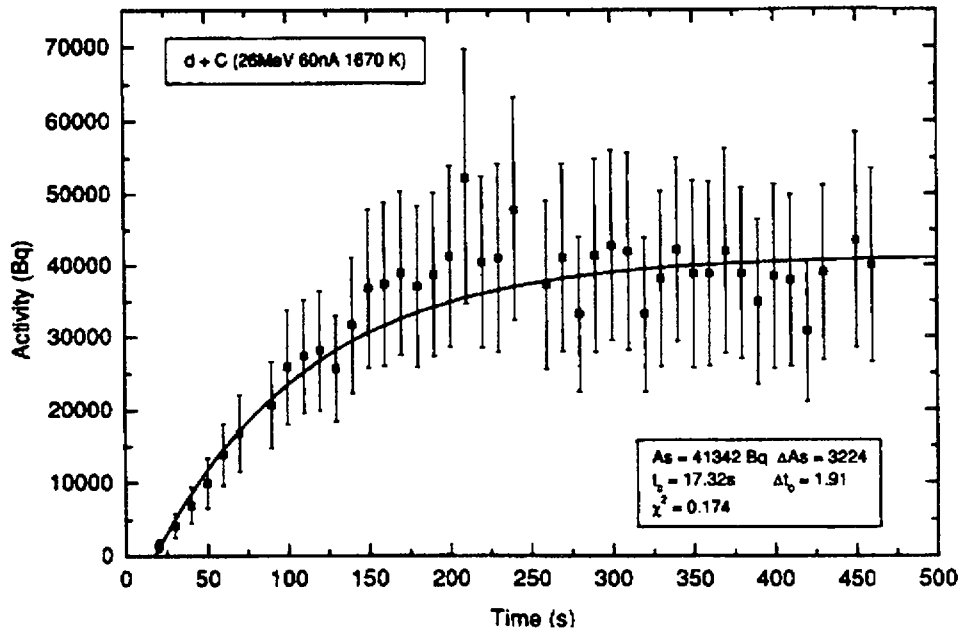


Figure V.7 : activité du ^{139}Xe ($T_{1/2} = 39,7$ s) en fonction du temps (s). La courbe de fit intercepte l'axe des abscisses à $t_0 = 17,32$ s [Kan 00a].

Si l'on considère que l'efficacité de relâchement de la cible liquide à 1400°C est essentiellement conditionnée par le film superficiel, une efficacité de relâchement peut être estimée à l'aide de la relation 4.52. En utilisant la relation 5.7 pour déterminer le temps de transport moyen dans la tubulure, nous pouvons estimer le nombre de noyaux collectés sur le doigt froid (tableau V.7). La production des gaz rares au sein de la cible s'obtient, dans la configuration du convertisseur en Be, en utilisant le code FICNeR ou le calcul à l'ordre 0 (§ 2.5) avec les rendements de [LBNL].

noyau	$T_{1/2}$ (s)	production calculée dans la cible (noyau/ μC)	t_m (s)	efficacité de relâchement du film (%)	nombre calculé de noyaux collectés sur le doigt	nombre mesuré (noyau/ μC)
^{90}Kr	32,3	$8,1 \cdot 10^5$	13,3	53	$3,20 \cdot 10^5$	$4 \cdot 10^4$
^{91}Kr	8,6	$8,8 \cdot 10^5$	13,3	14	$4,21 \cdot 10^4$	$6,1 \cdot 10^3$
^{92}Kr	1,8	$6,9 \cdot 10^5$	13,4	3	$1,17 \cdot 10^2$	$5 \cdot 10^2$
^{139}Xe	39,7	$1,4 \cdot 10^6$	16,5	65	$6,78 \cdot 10^5$	$3,7 \cdot 10^4$
^{140}Xe	13,5	$1,3 \cdot 10^6$	16,5	22	$1,21 \cdot 10^5$	$7,7 \cdot 10^3$

Tableau V.7 : Comparaison des mesures du nombre de noyaux collecté avec les calculs. L'efficacité de relâchement est obtenu par l'équation 4.52 en supposant une épaisseur du film de $50 \mu\text{m}$. Les calculs reproduisent grossièrement les mesures avec une tendance à les surestimer. Cette tendance provient d'avoir négligé l'efficacité de transport au sein du liquide. Ces résultats confirment néanmoins que le transfert en surface conditionne en grande partie la sortie des isotopes produits.

5.3 Etude en fonction de l'énergie à l'aide du dispositif PARRNe 1

Le tableau V.8 résume les conditions d'exploitation du dispositif dans le cadre du programme européen SPIRAL 2.

accélérateur	Deutons	
	Energie (MeV)	Intensité (μA)
IPN Orsay	20	0,2
CRC Louvain-la-Neuve	50	$3 \cdot 10^{-2}$ à 2,5
KVI Groningen	80 et 130	25 à 50

Tableau V.8 : conditions de faisceau utilisées pour les expériences PARRNe 1 dans le cadre de SPIRAL II.

Les figures V.8 et V.9 donnent les résultats obtenus avec les convertisseurs en graphite et en béryllium situés à une même distance de la cible (8 cm).

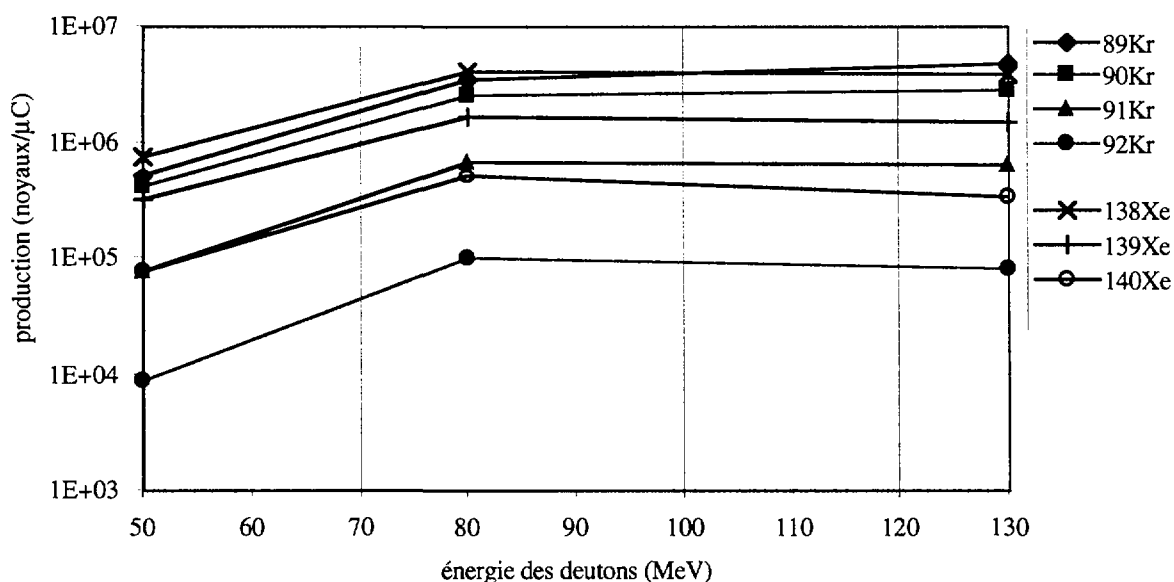


Figure V.8 : nombre de gaz rares collectés en fonction de l'énergie incidente des deutons. Ces taux ont été obtenus avec un convertisseur en carbone distant de 8 cm de la cible.

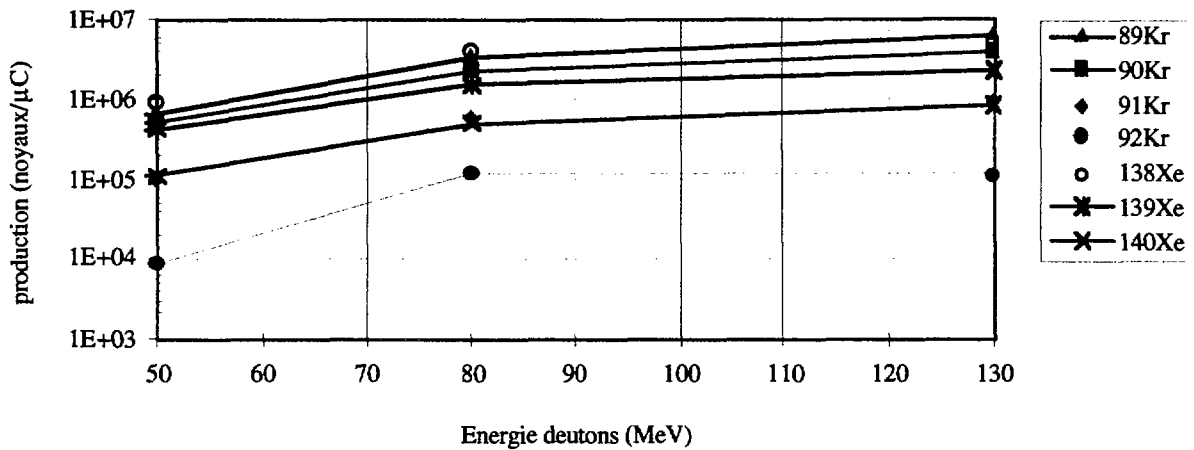


Figure V.9 : nombre de gaz rares collectés en fonction de l'énergie incidente des deutons. Ces taux ont été obtenus avec un convertisseur en béryllium distant de 8 cm de la cible.

Comme prévu, les taux du convertisseur en graphite se rapproche de celui en béryllium à mesure que l'énergie incidente augmente (§ 2.4.4.1). La pente de l'accroissement des taux avec l'énergie incidente s'atténue vers 80 MeV, indiquant ainsi une saturation des taux au delà de 130 MeV (§2.5.2). De plus cette saturation apparaît dès 80 MeV d'énergie deutons pour les gaz rares les plus riches en neutrons $^{91-92}\text{Kr}$ et ^{140}Xe (§ 2.1.2.4). Ces résultats montrent que l'énergie maximum des neutrons se situe aux alentours de 35 MeV, voire plus bas pour les isotopes les plus excédentaires en neutrons. Il en découle que l'accélérateur de deutons peut être limité à des énergies aux alentours de 80 MeV et qu'il est donc plus important pour cette méthode de production de disposer d'un accélérateur de très forte intensité que de très haute énergie.

Pour les résultats obtenus avec le convertisseur en Be, les mesures sont comparées à la courbe donnant le nombre de fissions par μC de deutons (fig. V.10). Cette courbe est obtenue par le code de calculs de M. Miréa *et al.* [Mir 99] (§ 2.5.2). Le rendement isotopique par fission pour les gaz rares étant de l'ordre du pourcent, nous voyons qu'une bonne partie des gaz rares produits sont collectés sur le doigt froid. Cette courbe reproduit à peu près l'évolution des mesures en fonction de l'énergie des deutons. Cependant nous ne comprenons pas encore très bien les légers écarts entre les mesures à 20 MeV et à plus haute énergie. Notons toutefois que les rendements isotopiques par fission pensiblement changer lorsque l'énergie incidente augmente.

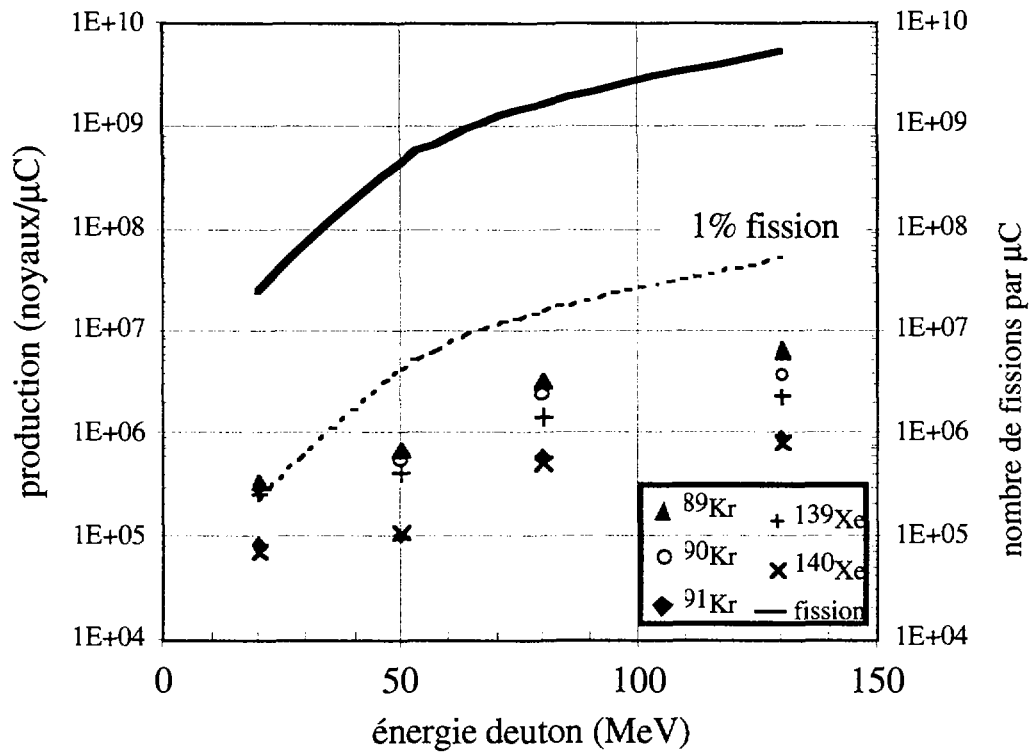


Figure V.10 : Comparaison du nombre de fissions par μC de deutons (échelle de droite) avec les mesures obtenues pour un convertisseur de Be et une cible UC_x de 30 g d'uranium.

6. Installation de la Ligne PARRNe 2

La construction d'un séparateur est indispensable pour pouvoir analyser les isotopes de fission relâchés hors de la cible. La réalisation de la ligne PARRNe 2 sera décrite en trois parties. La première traitera de la source d'ions et la seconde du séparateur. Les premiers résultats obtenus avec ce dispositif seront discutés dans la troisième partie.

6.1 Ensemble source d'ions

6.1.1 tube transfert

Le tube transfert permet aux produits de fission sortant de la cible d'effuser vers la source d'ions. Il doit être le plus court possible afin de minimiser les pertes d'isotopes de période brève. L'effusion des particules dans le tube de transfert peut se traiter en première approximation en considérant la conductance du tube (e.g. [Ben 97]).

Afin de pouvoir libérer la ligne de faisceau primaire du Tandem d'Orsay en dehors des expériences, la source d'ions doit être distante de 20 cm du point d'irradiation. Cela implique un tube transfert relativement long qui doit donc être chauffé indépendamment de la cible et de la source. Dans cette configuration, le tube transfert a une longueur de 24 cm (fig. VI.1). C'est un tube en tantale chauffé par effet Joule. Sa température moyenne peut atteindre 1600°C. Sa calibration en température a été établie hors ligne avec un thermocouple WRe5%-WRe26% mobile qui permet de mesurer les températures le long du tube.

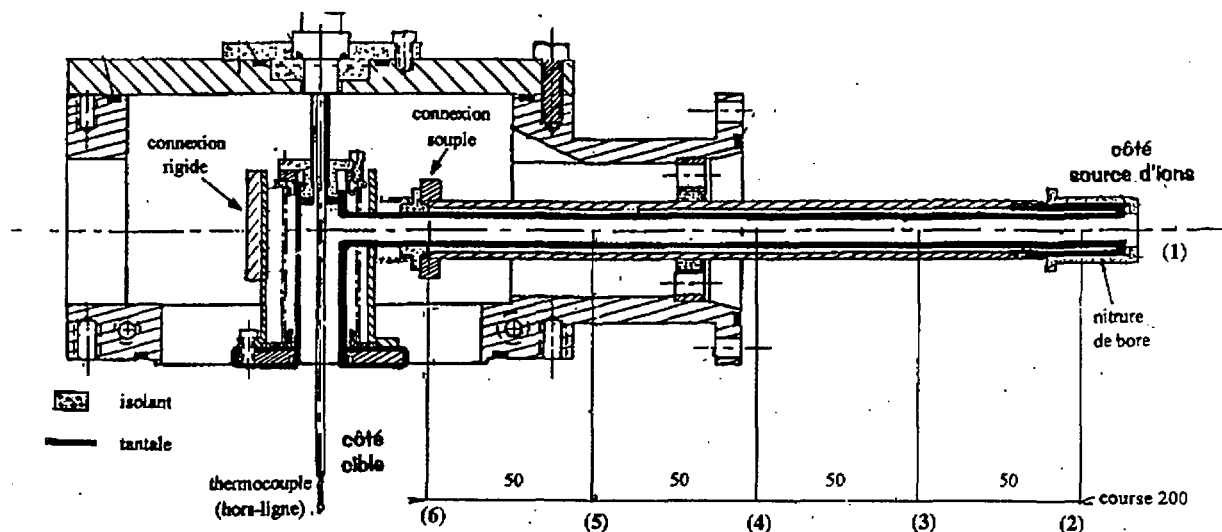


Figure VI.1 : Schéma du tube de transfert PARRNe 2. Les positions (1) à (6) correspondent aux points de mesure de température le long du tube transfert sur la figure VI.2. En ligne, le coude du tube de transfert est refermé par un bouchon en graphite muni de réflecteurs.

La figure VI.2 montre la variation de la température le long du tube placé entre la cible chauffée à 2000°C et la source d'ions portée à 1200°C. Une distance de 50 mm sépare chaque position de mesure, le point 1 étant dans la source d'ions. La répartition des températures le long du tube dépend évidemment de la puissance de chauffage de ce tube. L'extrémité côté cible constitue un point froid jusqu'à 1380 W de chauffage pour lequel on mesure encore une différence de température entre les deux extrémités de 60°C. Les alimentations disponibles ne permettaient pas d'augmenter la puissance de chauffage au delà. Les mesures de température montrent également que le chauffage du tube transfère participe au chauffage de la source.

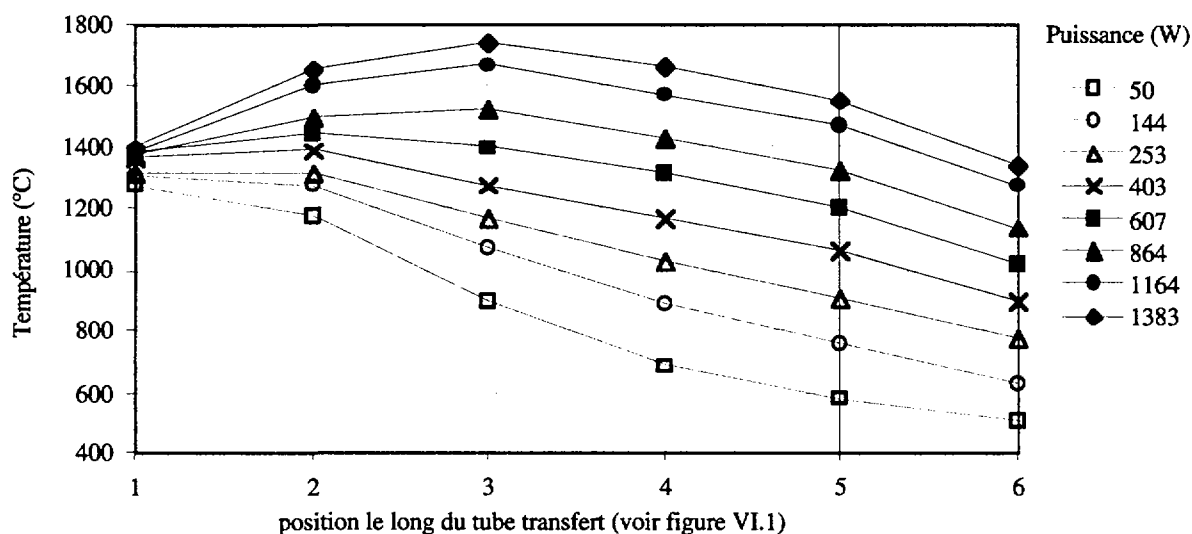


Figure VI.2 : Températures (C°) mesurée le long du tube transfert en fonction de différentes puissances de chauffage (W).

6.1.2 source d'ions Nier-Bernas

Trois raisons nous ont conduit à choisir une source d'ions de type Nier-Bernas pour installer la ligne PARRNe 2. Cette source d'ions à plasma ionise la plupart des éléments. Les courants extraits de la source d'ions peuvent atteindre des intensités de quelques centaines de microampères, ce qui facilite la mise au point du séparateur. Enfin, les faisceaux produits ont de bonnes qualités optiques : une faible dispersion en énergie de l'ordre de 10 eV et de faibles émittances de l'ordre de 20 π .mm.mrad.

Les ions sont formés dans une chambre d'arc en graphite de 4,9 x 2 x 1,8 cm³ par bombardement électronique d'un gaz ou d'une vapeur contenant les atomes à ioniser (fig. VI.3). Les électrons proviennent d'une cathode chauffée par effet Joule. La cathode est un filament en tungstène de 1,5 mm de diamètre pouvant comporter plusieurs spires afin d'accroître la surface d'émission des électrons. La tension d'arc entre la cathode et la chambre permet d'établir une décharge. Les ions sont extraits à travers une fente verticale de 12 mm de haut et de 0,8 mm de large percée dans l'électrode d'émission.

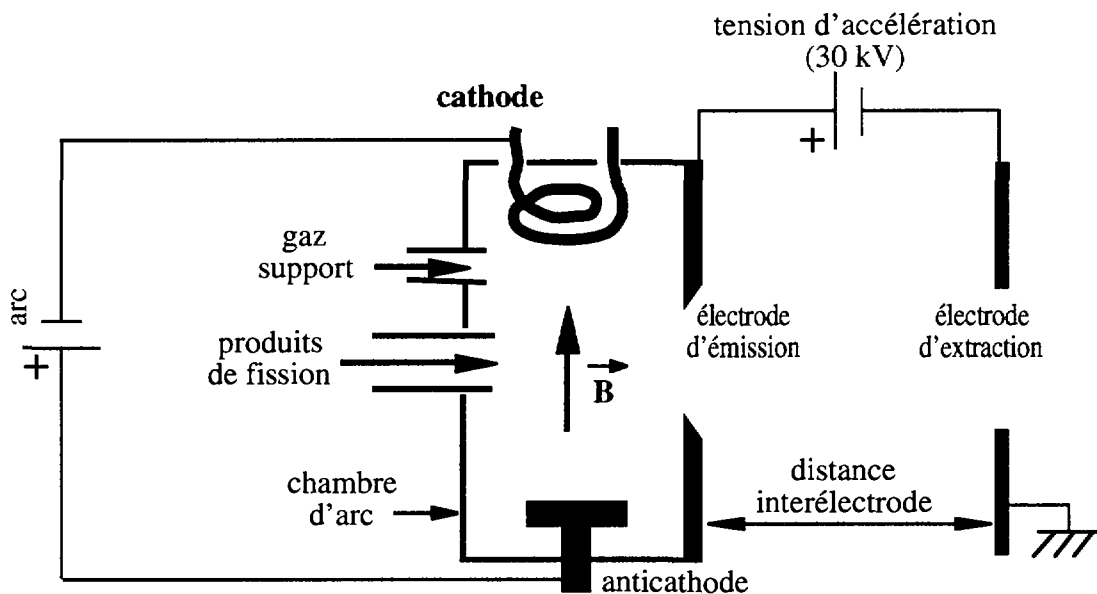


Figure VI.3 : schéma de principe de la source à plasma Nier-Bernas.

Un champ magnétique axial traversant la source améliore l'efficacité d'ionisation en augmentant la densité des électrons dans la colonne plasma. L'agitation thermique des électrons étant d'environ $1,5 \cdot 10^4$ K vers 10^{-3} mbar [Pap 63], un champ vertical d'une centaine de gauss suffit à donner aux électrons incidents un mouvement hélicoïdal de quelques dixièmes de millimètre de rayon de courbure. L'influence d'un tel champ sur les ions plus massifs est négligeable.

La réduction maximum des pertes de produits de fission dans la source est recherchée. La surface de la fente d'émission doit être adaptée aux dimensions de la colonne de plasma afin de minimiser les fuites de gaz. Les fuites autour des amenées de courant ou de gaz doivent également être aussi faibles que possible. Afin de limiter la condensation d'éléments d'intérêt sur les parois de la chambre d'arc, un résistor en tantale entourant celle-ci permet de la chauffer jusqu'à 1200°C . Certains éléments comme les alcalins diffusant facilement dans le graphite [Cha 70], la chambre d'arc est chemisée par une feuille en tantale. L'ensemble de la source d'ions est portée à la haute tension face à l'électrode d'extraction à la masse.

I. Chavet et R. Bernas [Cha 67] ont montré que la densité de courant émise par la source ne dépendait quasiment que des paramètres de la chambre source :

- pression dans la chambre d'arc
- intensité de chauffage de la cathode
- tension d'arc
- champ de source

et que les paramètres d'extraction de la source :

- tension d'accélération

- distance entre l'électrode d'émission au potentiel de la source d'ions et l'électrode d'extraction à la masse
- masse des ions extraits

contrôlaient la divergence du faisceau au moins au premier ordre.

6.1.2.1 paramètres de la chambre source

Le régime de la décharge d'arc amorcée à l'aide d'une tension d'une centaine de volts dépend fortement de la pression régnant dans la chambre. Afin d'induire un arc stable, la pression dans la chambre doit être supérieure à quelques 10^{-4} mbar [Koc 58]. Un gaz porteur est donc nécessaire, délivré par une vanne de microfuite.

Deux régimes de fonctionnement se distinguent : le régime limité par la cathode où l'intensité du courant d'arc est restreinte par le chauffage de la cathode, et le régime limité par pression où l'intensité est cette fois-ci bornée par le débit du gaz support [Cha 67a]. Pour un courant d'arc donné, plus le courant de chauffage de la cathode est important, moins il faut de débit de gaz. Le régime limité en pression avec une température cathodique aussi élevée que possible permet d'obtenir une efficacité d'ionisation maximum. Le chauffage important de la cathode diminue cependant la durée de vie du filament. L'utilisation d'un filament limite généralement la durée de vie de la source à quelques jours.

La tension d'arc conditionne l'énergie des électrons émis par la cathode. La section efficace de première ionisation augmente rapidement avec l'énergie des électrons incidents et atteint son maximum pour une valeur de 2,7 fois le potentiel de première ionisation [Ari 97]. La tension d'arc doit donc être suffisamment élevée, notamment pour les gaz rares krypton et xénon dont le potentiel de première ionisation est proche de 20 eV. Toutefois, cette tension présente un seuil (environ 70 V pour l'argon) au delà duquel la résolution du faisceau extrait se dégrade.

Une fois le régime d'arc établi, l'efficacité de la source d'ions est optimisée en réglant l'intensité du champ de source. Les conditions caractéristiques d'utilisation de la source d'ions sont les suivantes :

cathode :	65 A – 3 V
arc :	1 A – 50 V
pression :	10^{-3} – 10^{-4} mbar
champ de source :	100 Gauss

L'efficacité de cette source d'ions dépend de la nature du gaz support et des éléments à ioniser. Elle dépend donc notamment de la température de la chambre d'arc. Dans notre configuration où le volume de la chambre d'arc est relativement grand, il est difficile de chauffer la chambre au delà de 1300°C. En raison de la nécessité d'un gaz support pour maintenir un arc stable, l'ionisation a une efficacité relativement faible. Pour le krypton et le xénon l'efficacité d'ionisation est de l'ordre de quelques pourcents.

La densité du courant émis dépend du plasma créé par la décharge. Les conditions d'extraction, au moins au premier ordre, ne modifient pas cette densité de courant car le champ

électrique d'extraction ne pénètre pas le plasma. La surface émissive du plasma prend la forme d'un ménisque au travers de la fente d'émission. L'émission des ions de cette surface émissive est toujours limitée par la charge d'espace.

La mobilité des électrons étant bien supérieure à celle des ions massifs, aucune différence de potentiel significative ne peut exister entre le plasma et l'anode. Le plasma peut donc être considéré au même potentiel que l'anode c'est à dire la chambre d'arc.

Les ions se déplacent lentement vers la cathode alors que les électrons sont repoussés très rapidement, entraînant l'apparition d'un excès de charge positive au voisinage de la cathode.

6.1.2.2 paramètres d'extraction de la source

La fente d'émission de $0,1 \times 1,2 \text{ cm}^2$ est centrée devant la colonne de plasma afin que le faisceau d'ions extrait le long de cette fente soit le plus uniforme possible.

L'intensité maximale extraite de deux électrodes planes infinies est donnée par la relation de Child-Langmuir (équation 6.1 [For 88]) dans la mesure où le courant est limité en charge d'espace et non par la densité du plasma.

$$I = \frac{4 \epsilon_0}{9} \sqrt{\frac{2 q e}{M}} \frac{S}{d^2} U^{3/2} = \mu U^{3/2} = 1,72 \cdot 10^{-3} \frac{S}{d^2} \sqrt{\frac{q e}{M}} U_{[kV]}^{3/2} \quad (6.1)$$

I : courant maximum (en A)

S : surface de la fente d'émission ($0,12 \text{ cm}^2$)

d : distance interélectrode (environ 3 cm dans nos conditions)

μ : pervéance (en u.s.i.)

U : tension d'extraction entre les deux électrodes

La pervéance de la géométrie d'extraction utilisée vaut $7,3 \cdot 10^{-10}/M^{1/2}$ dans nos conditions de fonctionnement (équation 6.1). Elle se situe au milieu de l'intervalle entre $2,34 \cdot 10^{-11}/M^{1/2}$ et $2,34 \cdot 10^{-9}/M^{1/2}$ où l'effet de charge d'espace sur le faisceau extrait peut être négligé jusqu'à 1 m du point d'émission [Hut 67]. Avec une tension d'extraction de 30 kV, les courants extraits n'ont que quelques centaines de microampères d'intensité. Par conséquent, l'usage d'une électrode d'extraction plane suffit pour la faisceauologie et la relation (6.1) donne une bonne estimation du courant extrait dans notre configuration.

Etant donné que l'émission des ions est limitée par la charge d'espace, les conditions d'extraction déterminent la courbure du ménisque. Un ménisque convexe fournira un faisceau divergent alors qu'un ménisque concave fournira un faisceau convergent. I. Chavet a montré qu'on obtenait une meilleure intensité de courant et une meilleure résolution en masse du séparateur avec un faisceau divergent [Cha 67a]. Nous ne considérerons pas ici les conditions extrêmes d'extraction pour lesquelles le ménisque est très déformé.

L'électrode d'extraction a quatre mouvements de déplacement. La translation dans la direction x du faisceau permet de régler sa divergence. Le centrage du faisceau dans la ligne est obtenue avec une translation dans la direction horizontale y, perpendiculairement à x et une

rotation autour de l'axe vertical z. Une rotation d'axe y permet de pallier les défauts de verticalité de la fente d'émission.

6.1.2.3 propriétés optiques du faisceau obtenu

L'ensemble des points représentant les ions émis de la source d'ions dans l'espace des phases (x, y, z, p_x, p_y, p_z) constitue un hypervolume d'émittance qui permet de caractériser les propriétés dynamiques d'un faisceau. Le théorème de Liouville traduit l'invariance de cet hypervolume le long de la trajectoire c'est à dire permet d'assimiler cet hypervolume à un fluide incompressible. Ce théorème ne s'applique plus lorsque les phénomènes suivants ne sont plus négligeables :

- diminution du nombre d'ions par des diaphragmes ou des fentes
- collisions entre particules ou sur le gaz résiduel
- effets de charge d'espace
- changement d'énergie du faisceau
- divergence du faisceau
- dispersion en énergie

Dans la plupart des cas, les ions se propagent selon l'axe du faisceau avec une dispersion en quantité de mouvement négligeable et des vitesses transverses $\frac{\partial y}{\partial t}$ et $\frac{\partial z}{\partial t}$ négligeables devant $\frac{\partial x}{\partial t}$. Par ailleurs, si les plans horizontaux et verticaux sont découplés, la notion d'hypervolume d'émittance à six dimensions se réduit alors aux figures d'émittance transverses dans les espaces à deux dimensions (y, p_y) et (z, p_z) . Dans le cas de faisceaux peu divergents, ces émittances sont généralement décrites dans les espaces des traces $(y, \frac{\partial y}{\partial x})$ et $(z, \frac{\partial z}{\partial x})$ avec l'approximation paraxiale $\frac{\partial y}{\partial x} = \tan \alpha_y \approx \alpha_y$ et $\frac{\partial z}{\partial x} = \tan \alpha_z \approx \alpha_z$.

L'émittance dans chaque plan transverse s'exprime à partir de la surface A_ε de la figure obtenue dans le système de coordonnées (y, α_y) et (z, α_z) comme :

$$\varepsilon = A_\varepsilon / \pi \text{ (en } \pi \text{ mm mrad)} \quad (6.2)$$

Avec une fente émettrice de $1 \times 12 \text{ mm}^2$, les émittances d'une source de type Nier-Bernas sont de l'ordre de $15 \pi \text{ mm.mrad}$ dans l'espace (y, p_y) et de $20 \pi \text{ mm.mrad}$ dans l'espace (z, p_z) [Put 87].

6.2 Le séparateur d'isotopes

La figure VI.4 présente le schéma d'implantation de la ligne PARRNe 2 auprès du Tandem de l'IPN d'Orsay [Waa 90]. Le séparateur est installé entre deux salles d'expériences du Tandem afin de maintenir le niveau du bruit de fond suffisamment bas pour assurer une détection optimale. Le faisceau traverse donc un mur de béton de 1,5 m d'épaisseur.

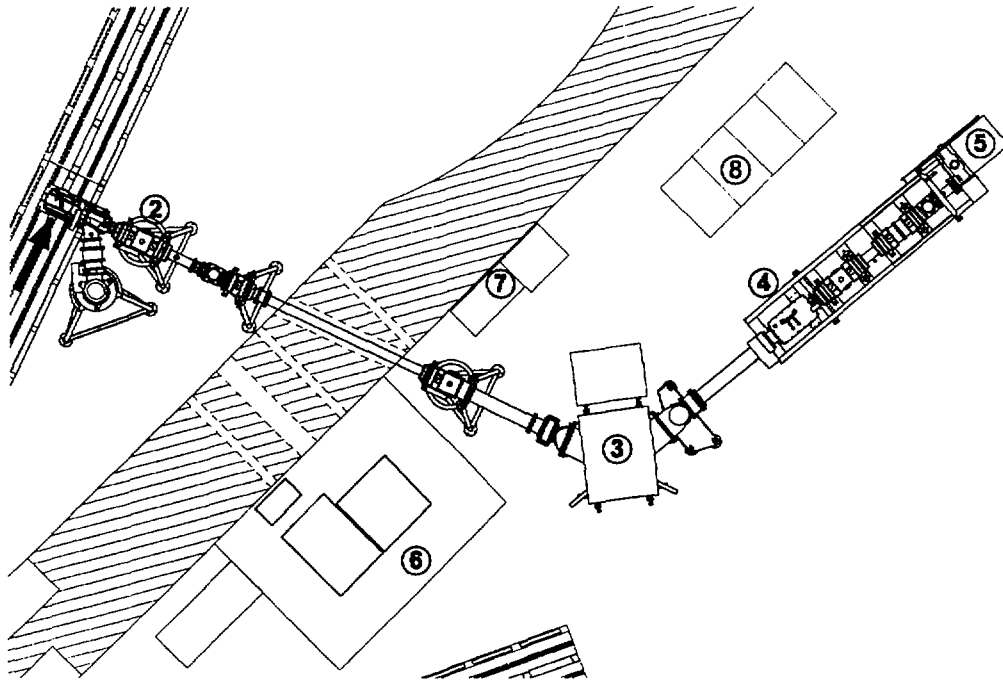


Figure VI.4 : implantation de PARRNe 2 auprès du Tandem d'Orsay. Le faisceau de deutons est représenté par la flèche noire. Ensemble cible-source d'ions (1), quadrupôles (2), dipôle électromagnétique (3), plan focal (4), dérouleur de bande (5), cabine haute-tension (6), armoires de puissances (7), baies de contrôle (8).

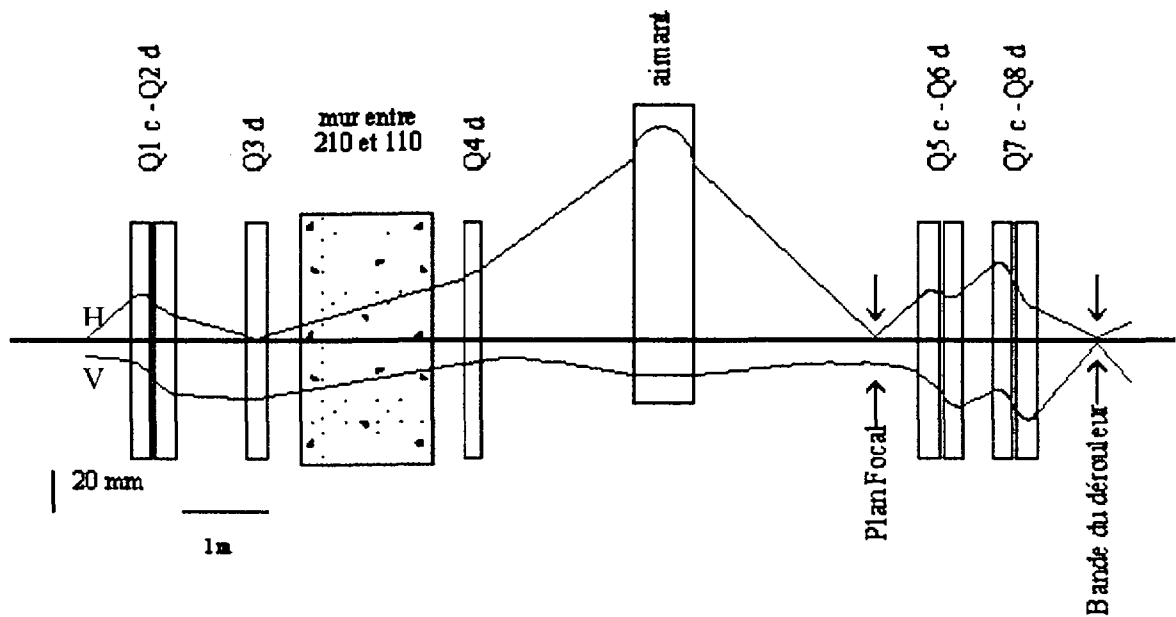


Figure VI.5 : profils horizontal (haut) et vertical (bas) du faisceau dans la ligne PARRNe 2.

Le point image de la source obtenu avec un premier doublet quadrupolaire électrostatique convergent – divergent (Q1 - Q2) sert de point objet pour l'aimant (fig. VI.5). Le diamètre de la tubulure sous vide à travers le mur retenu a été limité au DN 150 pour préserver une conductance acceptable du tuyau d'une part et d'autre part permettre de bloquer correctement les neutrons susceptibles de passer par cette ouverture dans le mur. Le quadrupôle Q3 placé au point image permet de régler l'amplitude verticale du faisceau. A la sortie du mur, le quadrupôle Q4 permet d'élargir le faisceau dans le plan horizontal de sorte que le faisceau remplisse la chambre de l'aimant afin d'optimiser le pouvoir de résolution de l'aimant. Les quadrupôles ont un rayon de gorge de 5,5 cm et des électrodes de 17,5 cm de long.

L'aimant est un électroaimant dipolaire en forme de H provenant du séparateur en ligne Isocèle 2 [Par 81]. Ses caractéristiques sont les suivantes :

- angle de déflexion de 65°
- indice nul (champ homogène)
- rayon de déviation de 0,6 m
- entrefer de 66 mm
- inclinaison des faces d'entrée et de sortie de +21,5°

Le rayon de courbure ρ_c de la trajectoire des ions de masse M , d'énergie E et de charge $q e$, dans un champ magnétique vertical B est donné par l'équation (6.3).

$$B\rho_{c \text{ [T.m]}} = \frac{p}{q e} = 0,144 \frac{\sqrt{M_{\text{[uma]}} E_{\text{[MeV]}}}}{q e} \quad (6.3)$$

La dispersion de cet aimant étant égale à 1370 mm ce qui se traduit par une distance de 13,7 mm entre les masses 100 et 101 au plan focal. Une fente au plan focal permet de sélectionner le faisceau d'intérêt. Celui-ci est refocalisé par deux doublets quadrupolaires

électrostatiques sur la bande d'un dérouleur pour des mesures de spectroscopie. Des diaphragmes polarisés négativement permettent de neutraliser la charge d'espace à l'entrée et à la sortie de chaque ensemble quadrupolaire.

Différents éléments de diagnostics sont placés le long du séparateur. Au niveau de l'arrivée du faisceau de deutons, un diaphragme composé de quatre secteurs isolés permet de contrôler son alignement sur le convertisseur. Des diaphragmes de mesure à l'entrée et à la sortie des doublets permet d'optimiser la transmission du faisceau. Une cage de Faraday à l'entrée du quadrupôle Q3 mesure l'intensité du faisceau produit par la source d'ions. Un profileur placé juste devant cette cage ainsi qu'un profileur à l'entrée de l'aimant permet d'optimiser le faisceau dans l'aimant. Au plan focal, un fil effectuant un balayage vertical permet d'obtenir un profil des masses et l'intensité des faisceaux séparés est mesurée dans une cage de Faraday située derrière la fente de sélection. Enfin, une cage de Faraday placée devant la bande permet de contrôler la transmission sur cette portion de ligne. Les cages sont évidemment toutes escamotables.

Un vide de quelques 10^{-7} mbar est obtenu dans le séparateur au moyen de pompes à diffusion de 1000 l/s à l'exception de la section de la source sur laquelle nous avons installé une pompe de 2000 l/s et un piège à azote liquide. Le pompage est contrôlé par un automate gérant les mesures de vide et les sécurités.

Le contrôle – commande du séparateur est géré par un programme Labview (National Instruments) qui mesure et visualise les paramètres suivants:

- _ pression de source
- _ tension et intensité de chauffage de la cathode
- tension et intensité de l'arc
- tension et intensité du chauffage d'enceinte
- température de la source (thermocouple)
- tension et intensité de chauffage de la cible
- tension et intensité de chauffage du tube transfert
- haute tension
- _ champ magnétique
- signal d'une balise gamma pour contrôler le faisceau sur la cible

La résistance du four cible, de la cathode et du tube transfert sont calculées et visualisées afin de suivre leur évolution dans le temps. Tous ces paramètres sont stockés dans des fichiers Excel afin de constituer une mémoire de l'expérience.

Le programme permet de calculer en permanence la masse correspondante au champ magnétique et à la haute tension mesurés. Ce massemètre après calibration avec une ou plusieurs masses stables permet de sélectionner un isotope radioactif produit en quantité trop faible pour que l'on puisse mesurer l'intensité.

6.3 Premiers faisceaux

6.3.1 système d'acquisition

Le faisceau radioactif issu du séparateur de masse est implanté pendant un temps de collection donné sur la bande de mylar du dérouleur (fig. VI.6) et constitue ainsi une source radioactive. Le dérouleur peut déplacer cette source vers une autre position de mesure ou l'évacuer pour ne pas polluer la mesure suivante. Un détecteur germanium face au faisceau incident permet d'analyser directement l'activité déposée sur la bande. Nous pouvons aussi déplacer la source radioactive face à un second détecteur germanium et à un détecteur $4\pi\beta$. Ce dernier est composé de deux scintillateurs plastiques (épaisseur 3 mm, hauteur 20 mm, longueur 40 mm) séparés par une distance de 3 mm dans laquelle circule la bande. Ces scintillateurs couvrent la quasi-totalité de l'angle solide. Un guide de lumière couplé aux deux scintillateurs transporte les photons vers un photomultiplicateur. La plupart des noyaux riches en neutrons étant émetteurs β^- , le $4\pi\beta$ permet, par des coïncidences $\beta - \gamma$, d'identifier des noyaux dont les raies γ d'émission seraient noyées dans le bruit de fond ambiant.

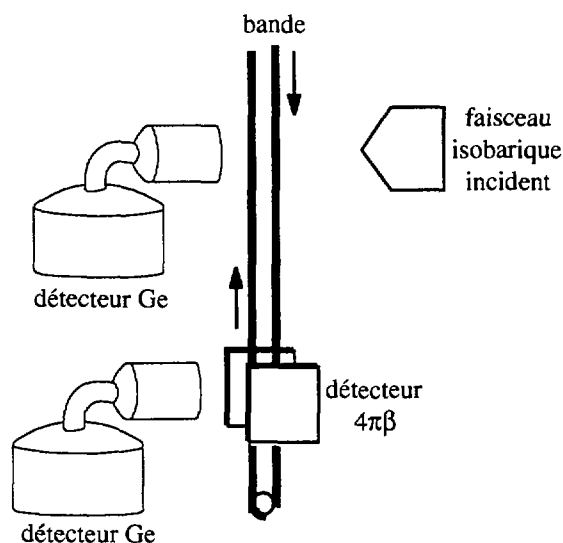


Figure VI.6 : schéma du dispositif d'acquisition de la ligne PARRNe 2.

Le panier de commande du dérouleur a été réalisé par le LPC de Caen. Le logiciel de commande séquentielle du dérouleur, réalisé par le service S2I de l'IPN d'Orsay, permet de gérer le temps de collection, le transport de la bande et la durée de la mesure. Le système d'acquisition comprend une carte d'acquisition COMET (Codage Marqué En Temps) récemment conçue et mise au point par le service SEP de l'IPN d'Orsay et un programme développé par le service S2I de l'IPN d'Orsay. Son principe est particulièrement bien adapté aux mesures de taux de production et à celles de temps de diffusion – effusion. Le temps absolu d'arrivée est associé à chaque événement enregistré. L'échelle de temps est déclenchée

par un signal trigger. Ce signal peut être généré par l'ordre de comptage délivré par le logiciel de commande du dérouleur. De cette façon il est possible en une seule acquisition, de réaliser des multispectres avec autant de pas différents que l'on souhaite puisque chaque événement est connu avec son temps absolu. De plus si plusieurs détecteurs sont utilisés, on peut déterminer les événements en coïncidence, la précision de la mesure du temps (400 ps pour une acquisition qui peut durer plusieurs minutes) étant très bonne.

Le déplacement de la bande du point de collection au détecteur $4\pi\beta$ dure environ 1,5 s. La figure VI.7 compare un spectre obtenu au point de collection à celui obtenu en coïncidence β - γ avec la carte COMET (à l'étage inférieur).

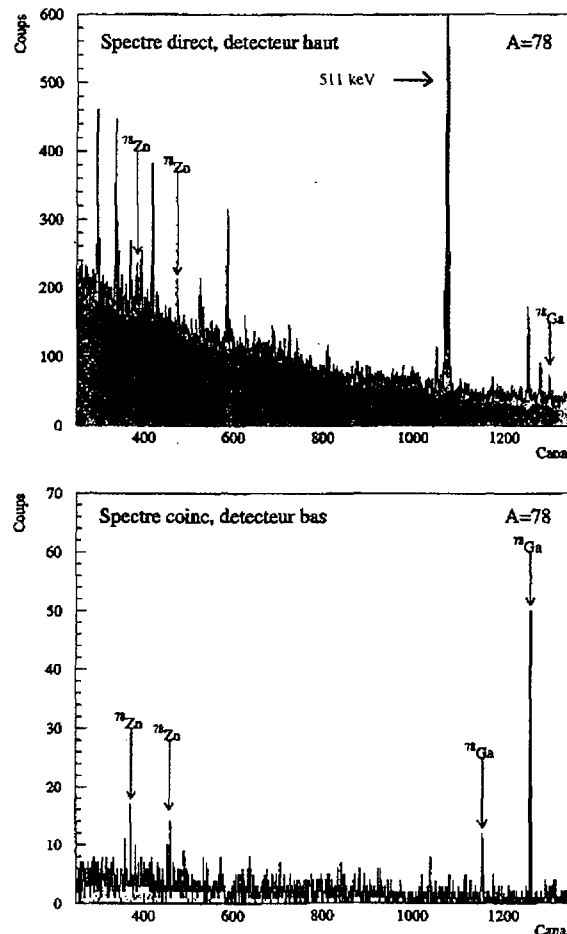


Figure VI.7 : Le spectre du haut est obtenu avec le détecteur Ge situé au point de collection. Le spectre du bas est obtenu par coïncidence β - γ à l'étage du détecteur $4\pi\beta$.

Cette figure souligne la finesse de l'acquisition en coïncidence β - γ . En effet, bien que le ^{78}Zn ($T_{1/2} = 1,47$ s) ait le temps de décroître en grande partie sur le ^{78}Ga ($T_{1/2} = 5,49$ s) après le déplacement de la bande, les faibles raies du zinc demeurent clairement identifiables par le spectre obtenu par coïncidence.

6.3.2 résultats obtenus avec une cible UC_x

6.3.2.1 conditions d'irradiation

La figure VI.8 illustre les conditions d'irradiation de la cible UC_x . Le parcours des deutons de 26 MeV dans du graphite calculé avec le logiciel TRIM [TRIM] est inférieur à 3 mm. Le fond du four d'épaisseur 13 mm peut donc jouer le rôle de convertisseur. Ce dernier se trouve ainsi le plus près possible de la cible, ce qui optimise le flux neutronique à travers la cible.

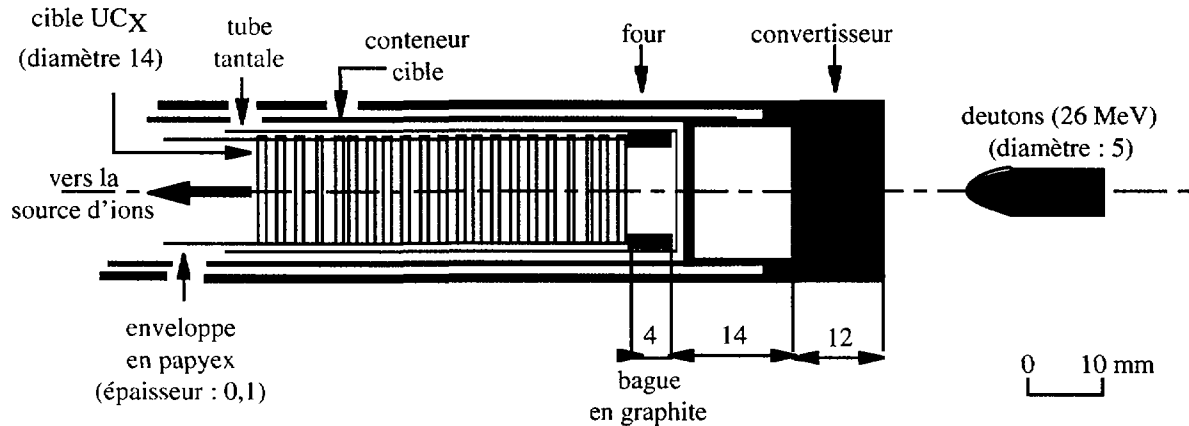


Figure VI.8 : Configuration schématique d'irradiation de la cible UC_x à 2200°C.

Lors du démarrage en ligne de PARRNe 2, la cible n'était entourée que de pièces en graphite : conteneur, four et réflecteur. Avec cette première cible nous avons d'abord cherché des faisceaux de krypton et de xénon riches en neutrons car ils sont à la fois bien produits par la fission basse énergie, gazeux et inertes chimiquement (§ 4.2.1.). Pour la masse 132, des noyaux d'iode et d'antimoine ont été également observés. L'augmentation du pic de ^{132}Sb avec le chauffage de l'ensemble cible-source d'ions (fig. VI.9) montre que cet ensemble est limité en température pour la production d'antimoine. Au cours de cette seule expérience dans les conditions extrêmes de chauffage, le noyau ^{132}Sn ($T_{1/2} = 40$ s) a été identifié avec environ 50 noyaux/ μC .

La figure VI.9 montre aussi que les raies de l'iode 132 tendent à s'atténuer lorsque le chauffage tend au maximum. La sélectivité thermique de l'ensemble cible-source d'ions est ainsi mise en évidence.

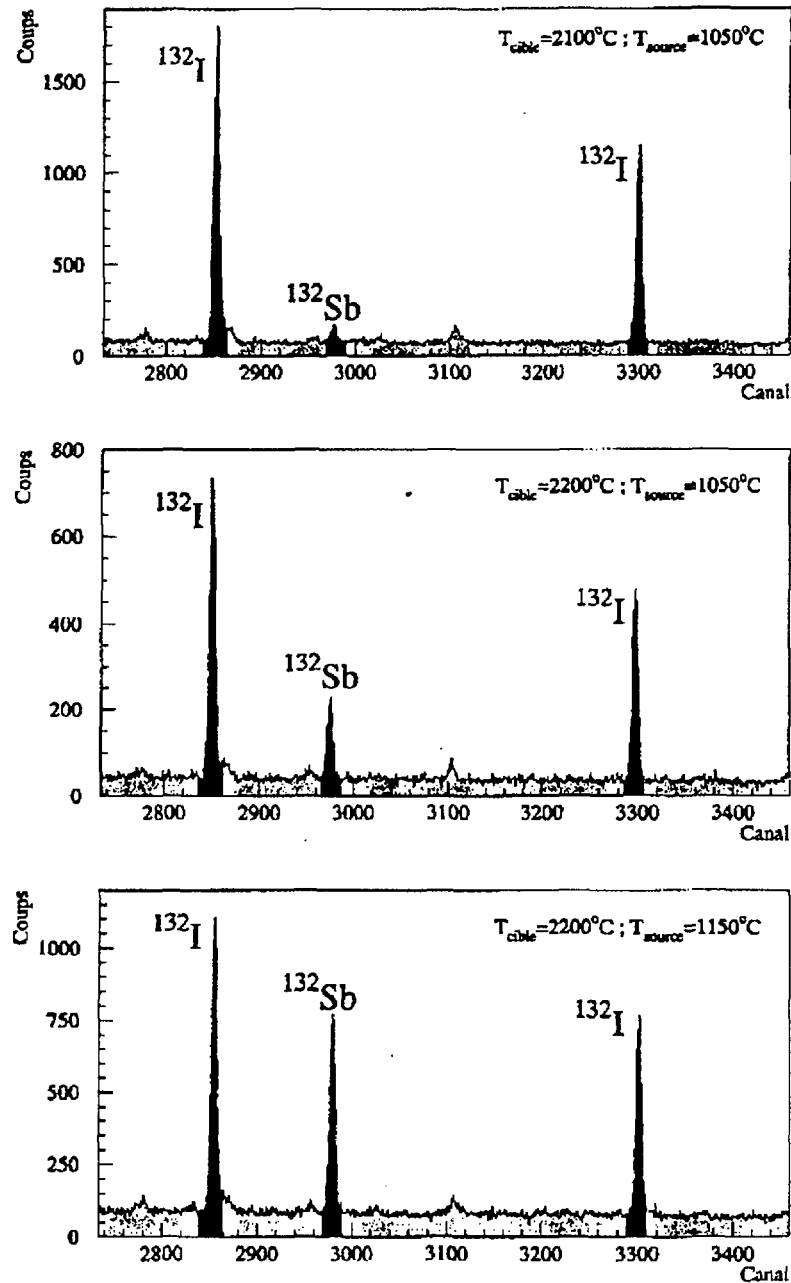


Figure VI.9 : Spectres observés dans des conditions extrêmes de fonctionnement de l'ensemble cible-source d'ions. Le tube de transfert est chauffé au maximum, jusqu'à rupture.

Toutefois, avec cette cible, les alcalins rubidium et césium relativement volatils et tout autant produits par la fission que les kryptons et n'ont pas été observés. En effet les alcalins diffusent très rapidement à travers le graphite [Cha 70]. Pour remédier à cette fuite, nous avons tapissé le conteneur en graphite avec un tube en tantale de 0,05 mm d'épaisseur (fig. VI.8). Comme le tantale réagit rapidement avec le carbure d'uranium à haute température (§ 4.2.1), une feuille de papyex (carbone) de 0,1 mm d'épaisseur sépare le tube en tantale de la cible. A 2000°C, le tantale se carbure en présence de graphite et devient cassant. Cependant, dans notre cas cela ne pose pas de problème car le tube n'a aucun rôle mécanique.

Le tube de transfert est chauffé à une température moyenne de 1600°C (§ 6.1.1).

6.3.2.2 résultats

Dans cette configuration d'irradiation (fig. VI.8) les faisceaux obtenus avec leur flux collectés en bout de ligne sont présentés dans le tableau VI.1. Ces productions sont corrigées de la contribution provenant de la décroissance des pères au cours de la période d'acquisition. Des noyaux exotiques comme le ^{78}Zn ($T_{1/2} = 1,47$ s), le ^{94}Kr ($T_{1/2} = 0,2$ s), le ^{95}Rb ($T_{1/2} = 0,38$ s) ou le ^{145}Cs ($T_{1/2} = 0,59$ s) ont été mesurés. Le noyau ^{129}Cd ($T_{1/2} = 0,27$ s) n'a été identifié que sur sa seule raie connue (281 keV). Toutefois, son rapport d'embranchement mal connu ne nous a pas permis de le quantifier. Bien que le ^{95}Kr ($T_{1/2} = 0,78$ s) ait une période plus longue que le ^{94}Kr et que son descendant le ^{95}Rb ($T_{1/2} = 0,38$ s) ait été mesuré, il n'a pas pu être identifié car ses raies ne sont pas connues.

Noyau	$T_{1/2}$	nombre d'ions collectés en bout de ligne (noyaux/ μC)
76 Zn	5,7 s	$2,0 \cdot 10^2$
77 Zn	2,08 s	$1,4 \cdot 10^2$
78 Zn	1,47 s	$1,2 \cdot 10^2$
89 Kr	3,15 mn	$3,5 \cdot 10^4$
90 Kr	32,32 s	$2,5 \cdot 10^4$
91 Kr	8,57 s	$1,5 \cdot 10^4$
92 Kr	1,85 s	$7,0 \cdot 10^3$
93 Kr	1,29 s	$3,0 \cdot 10^3$
94 Kr	0,2 s	$2,0 \cdot 10^2$
94 Rb	2,7 s	$2,0 \cdot 10^2$
95 Rb	0,38 s	$1,5 \cdot 10^2$
119 Cd	2,69 mn	$9,0 \cdot 10^3$
119m Cd	2,2 mn	$4,0 \cdot 10^3$
120 Cd	50,8 s	$1,5 \cdot 10^4$
121 Cd	13,5 s	$6,0 \cdot 10^3$
121m Cd	8,3 s	$5,0 \cdot 10^3$
122 Cd	5,24 s	$6,0 \cdot 10^3$
123 Cd	2,1 s	$2,0 \cdot 10^3$
123m Cd	1,82 s	$5,0 \cdot 10^3$
124 Cd	1,25 s	$4,0 \cdot 10^3$
125 Cd	0,65 s	$5,0 \cdot 10^2$
125m Cd	0,57 s	$2,0 \cdot 10^3$
126 Cd	0,51 s	$1,0 \cdot 10^3$
127 Cd	0,37 s	$1,5 \cdot 10^3$
128 Cd	0,34 s	$2,0 \cdot 10^2$

Noyau	$T_{1/2}$	nombre d'ions collectés en bout de ligne (noyaux/ μC)
132 I	2,3 h	$8,0 \cdot 10^3$
133 I	2,8 h	$3,0 \cdot 10^4$
134 I	52,6 mn	$3,0 \cdot 10^4$
134m I	3,69 mn	$2,0 \cdot 10^2$
135 I	6,57 mn	$2,5 \cdot 10^4$
136 I	83,4 s	$3,0 \cdot 10^3$
136m I	46,9 s	$2,0 \cdot 10^3$
137 I	24,5 s	$7,0 \cdot 10^3$
135 Xe	9,14 h	$7,0 \cdot 10^4$
135m Xe	15,3 mn	$1,5 \cdot 10^4$
137 Xe	3,82 mn	$7,0 \cdot 10^4$
138 Xe	14,08 mn	$8,0 \cdot 10^4$
139 Xe	39,68 s	$6,0 \cdot 10^4$
140 Xe	13,6 s	$2,0 \cdot 10^4$
141 Xe	1,73 s	$1,0 \cdot 10^4$
141 Cs	24,94 s	$3,0 \cdot 10^3$
143 Cs	1,78 s	$8,0 \cdot 10^2$
144 Cs	1,01 s	$2,0 \cdot 10^2$
145 Cs	0,59 s	$1,0 \cdot 10^2$

Tableau VI.1 : Production mesurés en bout de ligne.

Le code FICNeR [Mir 99] permet d'obtenir le taux de fission dans la cible ($5,2 \cdot 10^7$ fission/s). Les productions au sein de la cible sont alors déduits des rendements donnés dans [LBNL] pour des neutrons de 14 MeV. Ces rendements prennent en compte la contribution provenant de la décroissance des parents. Des efficacités de relâchement sont données pour la cible UC_x dans [Rav 94]. De plus, en considérant l'efficacité de la source d'ions proportionnelle au produit du potentiel d'ionisation et du nombre d'électrons périphériques (formule de Lotz sur la section efficace d'ionisation [Ari 97]), celle-ci se déduit de celle des gaz rares prise à 1%. En supposant une transmission de 100% pour le séparateur, nous en déduisons alors une estimation de la production des éléments. Cette production calculée est comparée aux mesures obtenues en bout du séparateur PARRNe 2 dans le tableau VI.2.

Noyau	$T_{1/2}$ (s)	production calculé dans la cible (noyaux/ μC)	efficacité globale (%)	production calculée (noyaux/ μC)	production mesuré (noyaux/ μC)
78 Zn	1,47	$1,7 \cdot 10^3$	$4,8 \cdot 10^{-2}$	$8,3 \cdot 10^{-1}$	$1,2 \cdot 10^2$
91 Kr	8,57	$1,7 \cdot 10^6$	0,72	$1,2 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 10^4$
94 Kr	0,2	$3,8 \cdot 10^5$	0,16	$6,1 \cdot 10^2$	$2,0 \cdot 10^2$
124 Cd	1,25	$1,1 \cdot 10^4$	0,25	$2,8 \cdot 10^1$	$4,0 \cdot 10^3$
144 Cs	1,01	$9,6 \cdot 10^5$	0,4	$3,8 \cdot 10^3$	$2,0 \cdot 10^2$

Tableau VI.2 : Comparaison des calculs avec les taux mesurés (noyaux/ μC) en bout du séparateur PARRNe 2. L'efficacité pour le ^{124}Cd est une efficacité totale pour l'ensemble cible-source d'ions donnée par [Fog 92].

L'énergie de désorption du zinc d'une paroi en tantale est d'environ 2,2 eV [Kir 87]. D'après l'équation de Frenkel (relation 4.13) le temps moyen de séjour de cet élément sur un tube à 1600°C est de l'ordre de la dixième de microseconde. D'après un calcul de Monte Carlo [Pon 88], le nombre moyen de chocs que doit subir une particule pour traverser le tube de transfert est de 300 chocs. Le temps total moyen de séjour est négligeable devant la trentaine de millisecondes d'effusion (équation 5.7). Devant les périodes de l'ordre de la seconde des noyaux de zinc observés, le temps moyen de transport à travers le tube de transfert peut donc être négligé. Par conséquent le relâchement des noyaux de zinc est essentiellement conditionné par la diffusion dans la cible (§ 4.2.3). A partir de l'efficacité mesurée du ^{78}Zn nous pouvons déduire à l'aide de l'équation 4.10 une valeur du coefficient de diffusion μ ainsi que l'efficacité de relâchement de ^{76}Zn et ^{77}Zn (tableau VI.3).

Le temps de séjour du césium et du cadmium sur une paroi de tantale est comparable à celui du zinc [Kir 87]. De la même manière, nous négligeons le processus d'effusion devant celui de diffusion et avec l'équation 4.10 nous déduisons respectivement de l'efficacité de relâchement mesurée pour le ^{144}Cs et le ^{124}Cd l'efficacité pour leur autres isotopes.

De la même manière, les noyaux ^{91}Kr et ^{94}Kr ont servis de référence pour déterminer l'efficacité de relâchement des autres isotopes. En considérant le coefficient de diffusion μ des xénon égal à celui obtenu pour les kryptons, nous déduisons l'efficacité de relâchement des isotopes de xénon. De même, l'efficacité des isotopes de rubidium sont obtenues à partir de la mesure de l'alcalin ^{144}Cs . Le tableau VI.3 donne la comparaison des calculs se basant sur ces approximations avec les mesures pour les isotopes énumérés.

Noyau	$T_{1/2}$	production dans la cible calculée (noyaux/ μC)	efficacité globale (%)	production calculée (noyaux/ μC)	production mesurée (noyaux/ μC)
76 Zn	5,7 s	$3,3 \cdot 10^2$	$9,3 \cdot 10^{-2}$	0,3	$2 \cdot 10^2$
77 Zn	2,08 s	$9,0 \cdot 10^2$	$5,7 \cdot 10^{-2}$	0,5	$1,4 \cdot 10^2$
78 Zn	1,47 s	$1,7 \cdot 10^3$	$4,8 \cdot 10^{-2}$	0,8	$1,2 \cdot 10^2$
89 Kr	189 s	$1,4 \cdot 10^6$	0,88	$1,2 \cdot 10^4$	$3,5 \cdot 10^4$
90 Kr	32,32 s	$1,6 \cdot 10^6$	0,84	$1,3 \cdot 10^4$	$2,5 \cdot 10^4$
91 Kr	8,57 s	$1,7 \cdot 10^6$	0,72	$1,2 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 10^4$
92 Kr	1,85 s	$1,4 \cdot 10^6$	0,48	$6,6 \cdot 10^3$	$7 \cdot 10^3$
93 Kr	1,29 s	$7,5 \cdot 10^5$	0,42	$3,2 \cdot 10^3$	$3 \cdot 10^3$
94 Kr	0,2 s	$3,8 \cdot 10^5$	0,16	$6,1 \cdot 10^2$	$2 \cdot 10^2$
94 Rb	2,7 s	$1,7 \cdot 10^6$	0,41	$6,8 \cdot 10^3$	$2 \cdot 10^2$
95 Rb	0,38 s	$8,8 \cdot 10^5$	0,38	$3,4 \cdot 10^3$	$1,5 \cdot 10^2$
119 Cd	161,4 s	$1,0 \cdot 10^4$	0,91	$9,4 \cdot 10^1$	$9 \cdot 10^3$
120 Cd	50,8 s	$2,0 \cdot 10^4$	0,83	$1,6 \cdot 10^2$	$1,5 \cdot 10^4$
121 Cd	13,5 s	$1,9 \cdot 10^4$	0,63	$1,2 \cdot 10^2$	$6 \cdot 10^3$
122 Cd	5,24 s	$1,9 \cdot 10^4$	0,46	$8,7 \cdot 10^1$	$6 \cdot 10^3$
123 Cd	2,1 s	$1,7 \cdot 10^4$	0,31	$5,2 \cdot 10^1$	$2 \cdot 10^3$
124 Cd	1,25 s	$1,1 \cdot 10^4$	0,25	$2,8 \cdot 10^1$	$4 \cdot 10^3$
125 Cd	0,65 s	$5,1 \cdot 10^3$	0,19	9,5	$5 \cdot 10^2$
126 Cd	0,51 s	$4,2 \cdot 10^2$	0,17	0,69	$1 \cdot 10^3$
127 Cd	0,37 s	$2,1 \cdot 10^2$	0,14	0,3	$1,5 \cdot 10^3$
128 Cd	0,34 s	$6,6 \cdot 10^1$	0,14	$9 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^2$
135 Xe	9,14 h	$3,6 \cdot 10^6$	0,43	$2,9 \cdot 10^4$	$7 \cdot 10^4$
137 Xe	3,82 mn	$3,1 \cdot 10^6$	0,43	$2,5 \cdot 10^4$	$7 \cdot 10^4$
138 Xe	14,08 mn	$2,9 \cdot 10^6$	0,43	$2,4 \cdot 10^4$	$8 \cdot 10^4$
139 Xe	39,68 s	$2,8 \cdot 10^6$	0,42	$2,2 \cdot 10^4$	$6 \cdot 10^4$
140 Xe	13,6 s	$2,5 \cdot 10^6$	0,42	$2 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^4$
141 Xe	1,73 s	$1,7 \cdot 10^6$	0,40	$1,3 \cdot 10^4$	$1 \cdot 10^4$
143 Cs	1,78 s	$1,5 \cdot 10^6$	0,5	$7,3 \cdot 10^3$	$8 \cdot 10^2$
144 Cs	1,01 s	$9,6 \cdot 10^5$	0,4	$3,8 \cdot 10^3$	$2 \cdot 10^2$
145 Cs	0,59 s	$2,9 \cdot 10^5$	0,31	$9 \cdot 10^2$	$1 \cdot 10^2$

Tableau VI.3 : Comparaison des calculs avec les taux mesurés (noyaux/ μC) en bout du séparateur PARRNe 2 pour les éléments Zn, Rb, Kr, Cd, Xe et Cs.

Nos calculs sont en bon accord avec les mesures pour tous les isotopes de krypton et de xénon. Le relâchement des alcalins est rapides L'identification du ^{145}Cs ($T_{1/2} = 0,59$ s) et du ^{95}Rb ($T_{1/2} = 0,38$ s) le confirme. Si l'on se fie aux rendement utilisés dans les calculs [LBNL], les mesures indiquent une importante perte des alcalins. Ces pertes peuvent suggérer qu'une partie des alcalins parviennent à se combiner chimiquement. Cependant, les combinaisons possibles avec un halogène ou l'oxygène ne sont pas stables au delà de 1400°C . L'utilisation d'un bouchon en graphite au niveau du coude du tube de transfert (fig. VI.1) ainsi que celle d'une plaque d'émission dans le même matériau sont très probablement les causes de cette perte d'alcalins. Mise à part cette perte, les calculs reproduisent bien la distribution des isotopes de rubidium et de césium.

Les productions de noyaux de zinc et de cadmium en bout de ligne sont systématiquement environ deux ordres de grandeur supérieures aux calculs. Les efficacité de relâchement et d'ionisation ne permettent pas de rendre compte du gain des mesures par rapport aux calculs. Cette différence ne peut s'expliquer que par le fait que les rendements isotopiques par fission donnés par LBNL sont beaucoup plus bas que ceux que nous obtenons en ligne. Personnellement, l'explication viendrait de la distribution en énergie des neutrons qui dans notre cas est d'une dizaine de MeV. En considérant la distribution en masse des fragments de fission (fig. II.4), il apparait que les isotopes de Cd se situent dans une région où le rendement en masse par fission varie très sensiblement avec l'énergie des neutrons, contrairement aux gaz rares et aux alcalins. Quant aux isotopes de Zn, ils se trouvent à la limite de cette courbe, au voisinage de la fission superasymétrique. Dans cette région limite, les rendements augmentent avec l'énergie des neutrons à partir de 10 MeV.

D'une façon générale les résultats expérimentaux semblent valider les calculs pour des deutons de 26 MeV. Les modèles doivent encore être validés à plus haute énergie. Une étude est en cours au GANIL pour comparer les résultats obtenus à partir du code LAHET modifié par D. Ridikas [Rid 99] et appliqué à l'ensemble PARRNe 1 aux résultats expérimentaux obtenus avec ce même dispositif à différentes énergies.

6.3.3 résultats préliminaires obtenus avec une cible liquide

6.3.3.1 conditions d'irradiation

La figure VI.10 illustre la configuration dans laquelle la cible d'uranium liquide de 0,25 kg a été irradiée sur le séparateur en ligne PARRNe 2.

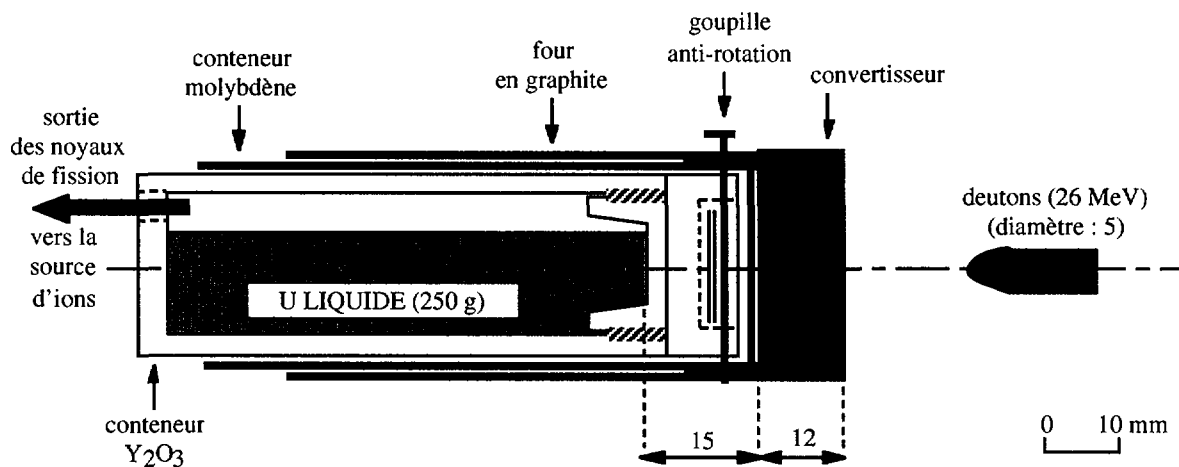


Figure VI.10 : Configuration schématique d'irradiation de la cible d'uranium liquide (mai 2000).

Pour des raisons de sécurité, nous avons limité le trou d'échappement des produits de fission à 14 mm^2 d'étendue au détriment d'une transmission optimale de ces produits. Nous avons pu chauffer la cible en ligne jusqu'à 1700°C avec succès. Le creuset a été maintenu environ 48 h à plus de 1600°C et l'observation de son état après l'expérience en ligne a montré qu'il n'a pas subi de corrosion.

6.3.3.2 résultats préliminaires

L'expérience en ligne s'est déroulée à la fin du mois de mai 2000. Le dépouillement détaillé, en cours, dépasse le cadre de cette thèse. Toutefois nous pouvons déjà présenter quelques comparaisons avec la cible UC_x de volume comparable et contenant 30 g d'uranium (§ 6.3.2.1). Les figures VI.11, VI.12 et VI.13 donnent les résultats obtenus pour les isotopes de krypton, d'iode et de cadmium.

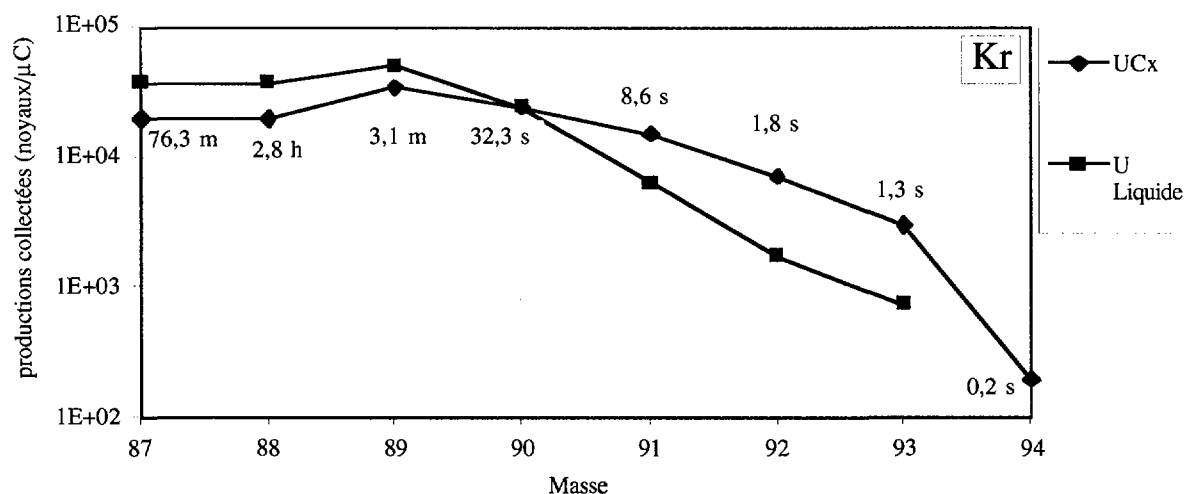


Figure VI.11 : Comparaison des productions collectées de krypton au bout du séparateur PARRNe 2 entre les cibles UC_x (30 g) et U liquide (250 g). La durée de vie de chaque isotope est associée aux points de mesure.

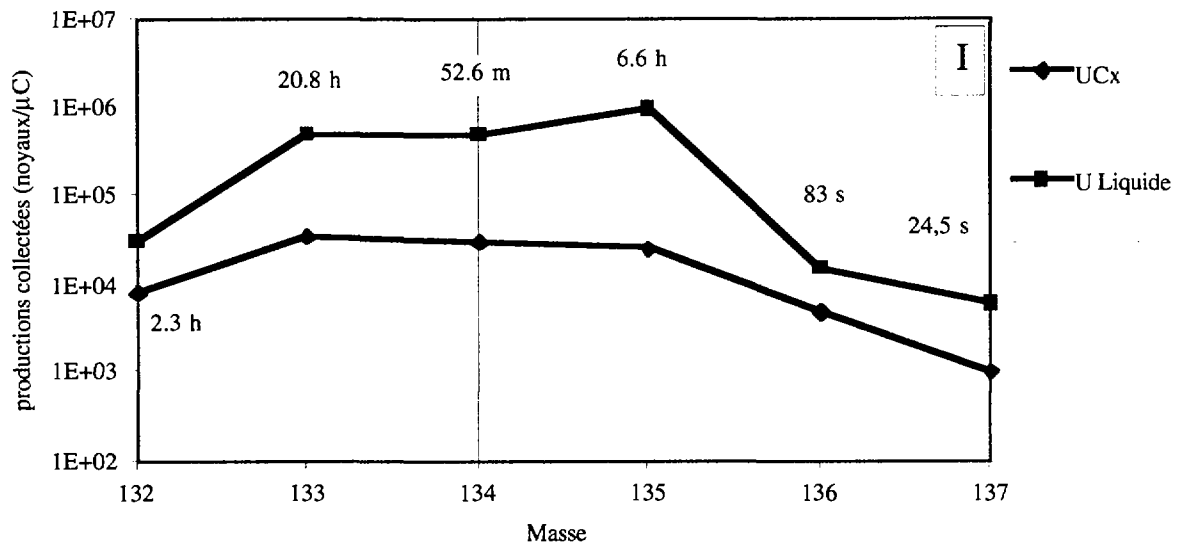


Figure VI.12 : Comparaison des productions de différents isotopes d'iode collectés au bout du séparateur PARRNe 2 entre les cibles UC_x (30 g) et U liquide (250 g). La durée de vie de chaque isotope est associée aux points de mesure.

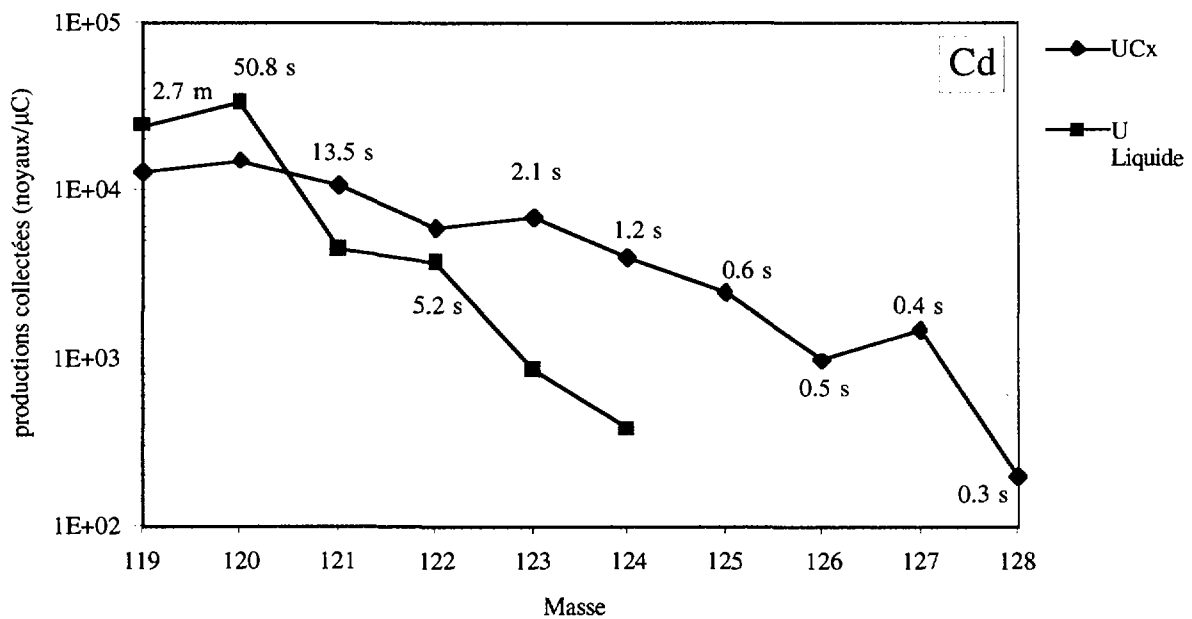


Figure VI.13 : Comparaison des productions de différents isotopes de cadmium collectés au bout du séparateur PARRNe 2 entre les cibles UC_x (30 g) et U liquide (250 g). La durée de vie de chaque isotope est associée aux points de mesure.

Comme prédite dans les considérations des paragraphes 4.6 et 5.2, la cible liquide produit des taux plus élevés pour les isotopes de période supérieure à quelques dizaines de secondes. Comme attendu, la cible UC_x montre une meilleure efficacité de relâchement pour les isotopes de plus courtes périodes.

Dans le cas de l'iode (fig. VI.12), les résultats avec la cible liquide sont très supérieurs à ceux de UC_x . Cependant, nous n'observons que des isotopes de relativement longue période alors que des isotopes de quelques secondes de période sont attendus. L'iode a en effet la caractéristique d'être chimiquement très réactif. A titre d'exemple, l'équipe d'ISOCELE avait observé un gain sensible de la production d'isotopes d'iode radioactifs en saturant préalablement avec de l'iode stable leur tube de transfert portée à environ 1400°C. Les mesures de temps de sortie de l'iode réalisées auprès de PARRNe 2 montrent que les productions par filiation doivent être considérées pour approfondir l'analyse de ces résultats.

En ce qui concerne les éléments Cd et Kr. Les pertes pour les isotopes de l'ordre de la seconde s'explique en grande partie par le transfert de masse en surface (§ 4.6). Par contre, pour les isotopes d'assez longue période, le gain d'un facteur huit attendu en passant d'une cible de 30 g d'uranium à une cible de 243 g n'est pas retrouvé. Devant la multiplicité de ces interrogations, une piste nous vient de l'observation de l'état de la cible après irradiation.

L'observation de l'état de la cible après l'expérience en ligne montre que la cible a tenue jusqu'à 1700°C sans fuite d'uranium à travers son creuset. De plus, le creuset n'a pas été attaqué à une telle température. La figure VI.14 montre cependant que sur une grande partie de la cible, l'uranium a migré le long des parois. Ce mouillage n'a jamais été observé en dessous de 1600°C.

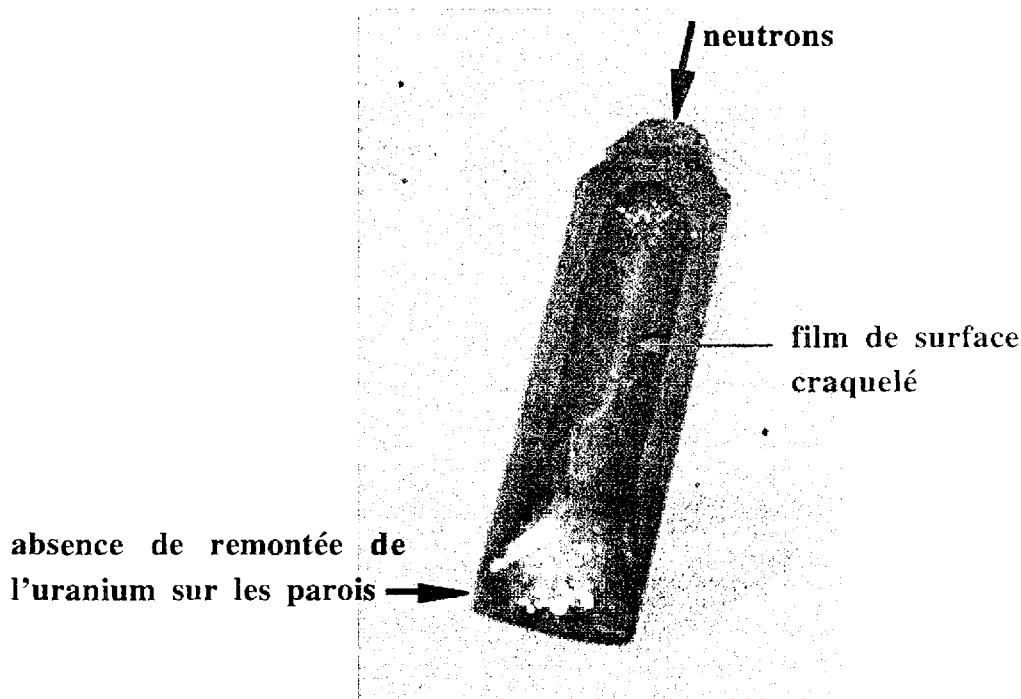


Figure VI.14 : Cible d'uranium après expérience en ligne à 1700°C.

Du côté où arrivent les neutrons, l'uranium mouille entièrement les parois du creuset alors qu'à l'extrémité opposée aucune migration ne s'est produite. En chauffant à température élevée, l'oxyde d'yttrium perd de l'oxygène. Le noircissement du creuset qui caractérise cette sous-stoechiométrie a été observé après l'expérience. En perdant de l'oxygène, les parois de la

céramique favorise le mouillage par les métaux liquides. Dans la mesure où cette perte augmente avec la température de chauffage, la différence de migration de l'uranium peut suggérer un gradient thermique aux deux extrémités de la cible. Or le gradient thermique par chauffage ohmique de la cible est inférieur à 200°C (§ 4.5.1 et §4.3.1). L'apport de puissance par les fissions induites dans la cible (environ 10⁹ fission/s d'après le code FICNeR [Mir 99]) est de l'ordre de trente milliwatts (194 MeV/fission [Jam 69]). Cet apport réparti dans la cible suivant la distribution angulaire des neutrons produit un gradient thermique négligeable. Le mouillage total à l'extrémité d'arrivée des neutrons peut être simplement attribué au rétrécissement du volume cible du à la forme du bouchon en céramique (fig. VI.10).

La surface libre de l'uranium présente une pellicule noire d'oxyde d'uranium qui s'est fissurée par endroit en raison de la différence de dilatation entre le film d'oxyde et le métal. La température de la cible n'est pas encore assez élevée pour dissoudre dans la masse toute cette pellicule d'oxyde (solubilité de 0,2% à 1700°C § 4.4.2.2). Toutefois ce film réfractaire ne couvre que la partie mouillante de la cible. L'autre partie présente un état de surface brillant analogue à celui observé au cours des expériences à 1600°C auprès du séparateur hors-ligne d'ISOLDE (§ 4.4.3.3). Cette surface brillante indique que le taux d'oxydation sur la surface brillante est plus faible que le taux de dissolution des oxydes dans la masse du liquide.

L'absence de mouillage à l'extrémités de la cible ainsi que la différence d'état de surface peuvent impliquer d'autres phénomènes que les effets thermiques, comme des inhomogénéités le long du creuset (distribution des zones sous-stoechiométriques) ou la pureté en surface de l'échantillon d'uranium avant le chauffage. Notamment l'aspect sombre du bouchon en céramique (avant même le chauffage) pourrait aussi avoir favorisé le mouillage total en amont de la cible. Des essais complémentaires : chauffages avec d'autres creusets, étuvage à plus longue durée de la cible d'uranium... s'avèrent donc nécessaires afin de maîtriser la cible liquide aux environs de 1700°C et d'améliorer son relâchement. En particulier le nettoyage de la cible devra être plus poussé.

En conclusion, cette cible de 250 g d'uranium liquide a été validée en ligne à 1700°C. Dans les conditions actuelles, son utilisation est intéressante pour la production d'isotopes de période supérieure à 30 s. Néanmoins ses propriétés de relâchement ne sont pas assez rapides pour collecter des isotopes de plus courte période. Des développements sont envisageables pour améliorer les performances de cette cible : augmentation de l'ouverture du creuset pour l'échappement des produits de fission, amélioration du relâchement en surface par fluoruration, bombardement électronique...

1. Conclusion et Perspectives

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du programme de R&D PARRNe qui explore la fission induite par des neutrons rapides comme mode de production de faisceaux radioactifs riches en neutrons. Les perspectives de ce projet concernent les futures installations à fortes intensités de faisceaux primaires exploitant ce schéma de production. Démarré quatre ans auparavant, ce programme de R&D regroupe déjà d'importantes données expérimentales. Comme le procédé de production des fragments de fission permet de découpler dans une certaine mesure le convertisseur et la cible de production, des mesures de flux de neutrons ont été réalisées indépendamment de celles de taux de production [Mén 99-Pau 00a]. Les productions dépendent en effet sensiblement de la configuration d'irradiation.

Bien qu'ayant aussi apporté une contribution aux différentes étapes de ce programme, mes travaux au cours de cette thèse sont concentrés sur deux tâches : la participation à la mise au point expérimentale du séparateur en ligne PARRNe 2 auprès du Tandem 15 MV de l'IPN d'Orsay et la recherche à la fois bibliographique et expérimentale sur les cibles de carbure d'uranium et d'uranium liquide.

Les expériences PARRNe 1 réalisées dans le cadre du programme européen SPIRAL II ont mis en évidence que l'énergie optimale des deutons se situait autour de 80 MeV. En effet la section efficace de production des neutrons tend à saturer au delà de 100 MeV. De plus la section efficace de fission de ^{238}U n'augmente plus quand l'énergie des neutrons dépasse 40 MeV. Compte tenu des possibilités techniques actuelles, l'option d'un cyclotron produisant 100 μA de deutons de 100 MeV [Bar 00] et celle d'un linac donnant de deutons de 40 MeV à plus de 100 mA [IFMIF 96] sont toutes les deux envisageables. Le gain en intensité obtenu avec des deutons de 40 MeV compense largement le rendement de fission d'un ordre de grandeur plus faible que celui de deutons de 100 MeV.

Malgré ses limites en énergie et en intensité, le faisceau de deutons délivré par le Tandem de l'IPN d'Orsay nous a permis de développer des cibles adaptées. L'installation du séparateur PARRNe 2 auprès de cet accélérateur nous a permis d'approfondir les résultats obtenus avec le dispositif PARRNe 1 pour les gaz rares. Des faisceaux de zinc, de krypton, de rubidium, de cadmium, d'iode, de xénon et de césium ont été produits. Des noyaux exotiques comme le ^{129}Cd ($T_{1/2} = 0,27$ s) ou le ^{78}Zn ($T_{1/2} = 1,47$ s) ont été observés. Dans l'état actuel des travaux, des faisceaux de $^{90-91}\text{Kr}$ et $^{140-141}\text{Xe}$ de l'ordre de 10^4 noyaux/ μC sont produits avec une cible UC_x (30 g d'uranium). Il est donc envisageable d'obtenir de tels faisceaux secondaires avec des intensités de 10^8 isotopes/s à partir d'un cyclotron fournissant 100 μA de deutons de 100 MeV. Avec un accélérateur limité à 40 MeV d'énergie deutons, des intensités pouvant atteindre 100 mA sont techniquement envisageables. Dans ces conditions, des faisceaux secondaires de 10^{10} isotope/s pourraient être obtenus. Cependant, l'étude de

l'évacuation d'une telle puissance incidente doit être approfondie. De plus, la réalisation d'un convertisseur de lithium liquide demande actuellement un investissement financier important. Un gain supplémentaire d'environ deux ordres de grandeur sur les intensités de krypton et de xénon données pourrait être obtenu en utilisant une source d'ions ECR et en augmentant l'épaisseur de la cible.

La cible liquide nécessite encore des développements pour déterminer ses conditions optimales de fonctionnement. Dans les conditions expérimentales présentes, une cible de 250 g d'uranium liquide portée à plus de 1600°C donne, pour les gaz rares d'une dizaine de seconde de période, des résultats comparables à la cible UC_x de 30 g. Elle fournit des faisceaux secondaires plus intenses pour des isotopes de durée de vie de l'ordre de la minute. Les études comparatives entre ces deux types de cibles complémentaires doivent être poursuivies. En effet, une cible plutôt qu'une autre peut être plus adaptée pour la production d'un isotope donné.

L'optimisation de la production des faisceaux radioactifs implique aussi le développement de sources d'ions plus sélectives. Pour la recherche d'isotopes de fission moins volatils comme l'étain ou le cuivre, il faut une source d'ions capable de fonctionner à très haute température. Nous avons donc décidé d'implanter sur PARRNe 2 une source d'ions MK5 développée à ISOLDE pour une utilisation jusqu'à 1900°C [Sun 92]. Cette source d'ions de type FEBIAD (Forced Electron Beam Induced Arc Discharge [Kir 76]) est suffisamment compacte pour permettre de chauffer le tube transfert sans point froid. Parallèlement une source d'ions laser est en cours de développement. La photoionisation par étape qui utilise des radiations de différentes longueurs d'onde pour exciter puis ioniser les atomes d'intérêt [Mis 93] a une très grande sélectivité chimique. Dans l'optique de produire dans un premier temps des faisceaux exotiques d'étain, cette source utilisera un schéma d'ionisation à deux longueurs d'ondes de laser (286 nm et 410 nm). Ce schéma a été validé avec le dispositif COMPLIS installé au CERN par le groupe NODE de l'IPN d'Orsay [PAR 00]. Le développement des prochains ensembles cible-source d'ions nécessitent l'installation de bancs de diagnostics hors ligne. Nous montons actuellement un émittancemètre basé sur la méthode des deux fentes [Lej 80]. Un séparateur d'isotopes hors-ligne est également en cours de montage afin de pouvoir analyser les performances d'ensembles cible-source d'ions.

Dans la partie expérimentale de cette thèse nous nous sommes limités à la production de neutrons à partir de deutons. On peut cependant également envisager d'utiliser les cibles d'uranium que nous avons mises en oeuvre avec des neutrons produits par des protons de haute énergie (GeV) dans des cibles de spallation. En effet un accélérateur de protons d'environ 1 GeV de haute intensité est actuellement en discussion pour de nombreux autres projets (source à neutrons de spallation, irradiateur, transmutation de déchets, génération de muons et de neutrinos). Il s'agit d'un linac supraconducteur dont l'intensité peut dépasser plusieurs dizaines de milliampères. Toutefois, compte tenu de la distance d'arrêt des protons de 1 GeV

dans la matière, des études poussées sur les conditions optimum d'irradiation et de dissipation de puissance doivent être entreprises.

Pour terminer, soulignons que les cibles que nous avons développées se prêtent bien pour explorer un mode de production prometteur : la photofission. Une extension du programme de R&D PARRNe est prévue pour expérimenter ce mode. Les résultats obtenus permettront de déterminer entre ces deux modes de production lequel est le plus avantageux.

1. Annexe 1 : Reproduction semi-empirique du flux neutronique basé sur le modèle de Serber

1.1.1.1 le modèle semi-classique de Serber

Le modèle de R. Serber qui décrit notamment le stripping [Ser 47] établit des expressions pour reproduire les caractéristiques angulaires et énergétiques d'un flux de neutrons produit par des deutons.

Dans un premier temps, R. Serber part du cas limite d'un noyau cible complètement transparent au neutron. Autrement dit, le calcul de la fonction d'onde du neutron n'est pas corrigé par la condition que le neutron doit éviter le noyau cible. La distribution des impulsions du neutron émergent ne résulte que du mouvement du neutron au sein du deuton ; elle se déduit de l'expression de la fonction d'onde de l'état fondamental du deuton. Ce modèle du noyau transparent correspond à la limite des noyaux cibles les plus légers. Les distributions en angle et en énergie se déduisent des expressions suivantes :

$$2\pi P(\theta) = \frac{\theta_0}{(\theta_0^2 + \theta^2)^{3/2}} \quad (\text{A1.1})$$

$P(\theta)$: la probabilité non normalisée d'émettre un neutron à un angle θ par rapport à la direction incidente.

$\theta_0 \approx (\epsilon_d/E_d)^{1/2}$ avec ϵ_d : énergie de liaison du deuton (2,2 MeV) et E_d : énergie cinétique du deuton.

$$\pi P(E) = \frac{(\epsilon_d E_d)^{1/2}}{\left(E - \frac{E_d}{2}\right)^2 + \epsilon_d E_d} \quad (\text{A1.2})$$

$P(E)$: la probabilité non normalisée d'un neutron d'avoir l'énergie E ($E \leq E_d$). Dans ce modèle, elle est indépendante de l'angle d'émission.

Les largeurs à mi-hauteur de ces distributions sont :

$$\Delta\theta_{1/2} = 1,533(\epsilon_d/E_d)^{1/2} \quad (\text{A1.3})$$

$$\Delta E_{1/2} = 2(E_d \epsilon_d)^{1/2} \quad (\text{A1.4})$$

R. Serber considère l'autre cas limite qui est celui d'un noyau cible opaque au neutron. Ce cas est décrit en annulant la fonction d'onde de l'état fondamental du deuton pour toutes les conditions géométriques autres que celles où le proton heurte le noyau cible tandis que le neutron l'évite. Les distributions angulaires pour les deux cas limites sont très proches. Par contre, la distribution en énergie obtenue dans le cas du noyau opaque est sensiblement plus étroite que celle du noyau transparent ($\Delta E_{1/2} = 1,533(E_d \epsilon_d)^{1/2}$ pour le cas opaque).

Pour des cibles minces et de faibles Z, les résultats expérimentaux sont mieux reproduits par le modèle transparent pour des deutons de plusieurs centaines de MeV ([Ser 47, Had 49] à 190 MeV et [Mad 73] à 447 MeV).

1.1.1.2 Modèle pour la distribution angulaire des neutrons obtenue avec des deutons d'énergie moyenne sur des cibles épaisses

Concernant la distribution angulaire, R. Serber apporte dans son modèle des corrections électromagnétiques au stripping. Bien que ces corrections soient négligeables pour des deutons de plus d'une centaine de MeV sur des cibles minces, elles sont nécessaires pour des cibles épaisses, et aux énergies incidentes devant lesquelles la barrière coulombienne du noyau cible n'est plus négligeable.

$$E_c = 2,28Z / (r_0 A^{1/3}) \text{ MeV} \quad (\text{A1.5})$$

La première correction exprime la déflexion du deuton sous l'action du champ coulombien du noyau cible à la surface duquel se fait le stripping. L'expression corrigée figure entre crochet dans la relation (A1.7). La seconde correction traduit les multiples diffusions coulombiennes du deuton dans la cible avant le stripping. L'élargissement de la distribution angulaire due à ces diffusions sur toute l'épaisseur de la cible est contenue par l'opérateur G. On a alors :

$$2\pi P(\zeta) = G \left[\frac{u^{3/2} L_{1/2}(u)}{(1 + \zeta^2 + \zeta_c^2)^{3/2}} \right] \quad (\text{A1.6})$$

- $\zeta = \theta/\theta_0$
- $\zeta_c = \theta_c/\theta_0$ où $\theta_c = \arctan(E_c/E_d)$ est l'angle de déflexion du deuton sous l'effet du champ coulombien du noyau cible.

- $L_{1/2}(u) = 1 + \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^{n-1} a_n \left(\frac{u-1}{2}\right)^n$ où $a_{n+1} = \frac{(2n-1)(2n+3)}{4(n+1)^2} a_n$: la fonction de Legendre avec
$$u = \frac{1 + \zeta^2 + \zeta_c^2}{\left[(1 + \zeta^2 + \zeta_c^2)^2 - 4\zeta^2 \zeta_c^2 \right]^{1/2}}$$

- $G = 1 + \frac{1}{8} \zeta_{dm}^2 \Delta + \frac{1}{96} \zeta_{dm}^4 \Delta^2 + \frac{1}{864} \zeta_{dm}^6 \Delta^3 + o(\zeta_{dm}^8 \Delta^4)$ ([Mén 99]) avec le laplacien en coordonnées polaires $\Delta = \left(\frac{1}{\zeta} \frac{\partial}{\partial \zeta} \right) \left(\zeta \frac{\partial}{\partial \zeta} \right)$ et $\zeta_{dm} = \theta_{dm}/\theta_0$ où θ_{dm} caractérise l'ouverture angulaire due aux diffusions multiples [Mén 99, Mol 47, Hel 47].

Pour une cible épaisse, l'expression de la distribution angulaire due au stripping s'obtient finalement en intégrant sur la longueur du convertisseur l'équation (A1.7) pondérée par la section efficace de stripping qui varie, proportionnellement au pouvoir d'arrêt, le long du parcours L des deutons incidents dans la cible :

$$P(\theta) = k \frac{\int_0^L \sigma(E_d[l])P(\theta)dl}{\int_0^L \sigma(E_d[l])dl} \quad (\text{A1.7})$$

k : une constante de normalisation pour que $\int_0^\pi P(\theta) d\theta=1$.

Toutefois, l'expression (A1.8) ainsi obtenue ne permet pas de reproduire la distribution angulaire obtenue avec des deutons de 16 MeV sur du Be au delà de $\theta=15^\circ$ [Mén 99]. On ne peut plus se limiter à la considération du stripping seul si l'on souhaite améliorer le modèle de description.

Issus de l'interaction nucléaire, les neutrons rapides de recul sont produits en nombre comparable à ceux du stripping dans la mesure où une collision nucléaire peut donner, environ une fois sur deux, un neutron de stripping. Le traitement descriptif des neutrons de recul utilise le même formalisme que celui du stripping ; il est obtenu en substituant l'énergie de liaison du deuton ϵ_d par l'énergie de Fermi du noyau cible E_F [Ser 47]. E_F étant de l'ordre de 20 MeV, la distribution résultante est plus large, ce qui permet de mieux reproduire la distribution aux grands angles.

La distribution angulaire de neutrons s'obtient en sommant les deux contributions pondérées par R : le rapport entre le nombre de neutrons du stripping et celui de neutrons de recul. Comme les neutrons de stripping et ceux de recul sont indifférentiables par la détection, les valeurs de R (qui se situent aux alentours de 4) sont déduites en reproduisant les spectres mesurés à 16, 33 et 50 MeV par J.P. Meulders *et al.* [Meu 75]. De la sorte, on parvient à reproduire des distributions expérimentales obtenues par des deutons de 16 à 50 MeV jusqu'aux angles de 25 à 30° (fig. A1.6).

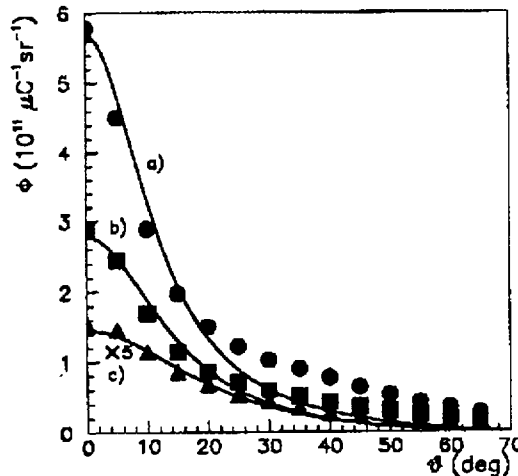


Figure A1.6 : comparaison entre les données expérimentales obtenues avec un convertisseur Be à des énergies incidentes de 50 MeV (cercles), 33 MeV (carrés), et 16 MeV (triangles) [Meu 75]. La courbe a) s'obtient avec $\theta_s=0,04$ rad et un rapport entre les neutrons considérés comme provenant du stripping et ceux d'interactions nucléaires directes égal à $R=3,7$. La courbe b) s'obtient avec $\theta_s=0,05$ rad et un rapport $R=4$. La courbe c) s'obtient avec avec $\theta_s=0,06$ rad et un rapport $R=5$.

L'amélioration du modèle pour des angles plus grands demande le traitement de l'émission de neutrons par évaporation. L'intégration dans le modèle actuel d'une description de ce processus n'est pas nécessaire ; la réalisation d'une cible dont la géométrie permet d'intercepter les neutrons aux grands angles introduit le problème de conserver à la fois un chauffage performant et une structure de cible favorable au relâchement des produits de fission. De plus, les neutrons d'évaporation ayant une énergie moyenne beaucoup plus faible que ceux provenant des deux autres processus, leur efficacité d'induire des fissions est donc sensiblement moindre.

1.1.1.3 Modèle pour la distribution en énergie avec des deutons d'énergie moyenne sur des cibles épaisses

La distribution en énergie donnée par le modèle transparent de Serber est centrée sur l'énergie la plus probable $E_n = E_d/2$ (équation (A1.2)). Plus précisément on doit corriger E_n de la contribution du potentiel coulombien ressenti à la distance où a lieu le stripping et de l'énergie de liaison du deuton ϵ_d . La distribution obtenue par le stripping s'écrit donc :

$$P_{\text{strip}}(E, E_d) = K_s(\theta) \frac{1}{\theta_2 - \theta_1} \int_{\theta_2}^{\theta_1} \frac{(\epsilon_d E_d)^{1/2}}{(E - E_{n.s.}(\theta_i))^2 + \epsilon_d E_d} d\theta_i \quad (\text{A1.9})$$

• $E_{n.s.}(\theta) = \{E_d - \frac{Z e^2}{r_{\text{strip}}(\theta)} - \epsilon_d\}/2$ où $r_{\text{strip}}(\theta)$ est la distance d'interaction déduite à partir de la formule

de Rutherford dans l'hypothèse d'une diffusion élastique [Mén 99].

• $K_s(\theta)$: constante de normalisation.

• θ_1 et θ_2 : angles associés aux distances $R_{\text{cible}} + R_d$ et $R_{\text{cible}} - R_d$ entre lesquelles se produit le stripping.

La contribution des neutrons de recul est déduite de l'équation (A1.2) où ϵ_d est remplacée par l'énergie de Fermi du noyau cible E_F et où $E_d/2$ l'est par l'énergie la plus probable du neutron de recul $E_{n.r.}$:

$$P_{\text{recul}}(E, E_d) = K_r(\theta) \frac{(E_F E_d)^{1/2}}{(E - E_{n.r.})^2 + E_F E_d} \quad (\text{A1.10})$$

• $K_r(\theta)$: constante de normalisation

• $E_{n.r.} = \{E_d - \frac{Z e^2}{R_{\text{CIBLE}}} - Q_{\text{moy}}\}/2$ où Q_{moy} est la moyenne des valeurs de Q associées aux différentes

réactions possibles

De façon analogue au calcul de la distribution angulaire, on somme les deux contributions pondérées par $r(\theta)$. Le rapport entre le nombre de neutrons de stripping sur celui de neutrons de recul à l'angle θ , tout en tenant compte de la variation de la section efficace due à la perte d'énergie du faisceau de deutons incident dans le convertisseur [Pau 01]. Le rapport $r(\theta)$ est

déduit des distributions angulaires des neutrons de stripping et de ceux de recul, pondérées par R.

Avec des deutons de 50 MeV sur du Be, le modèle reflète les spectres expérimentaux aux énergies de neutrons $E_n > 25$ MeV (fig. A1.7).

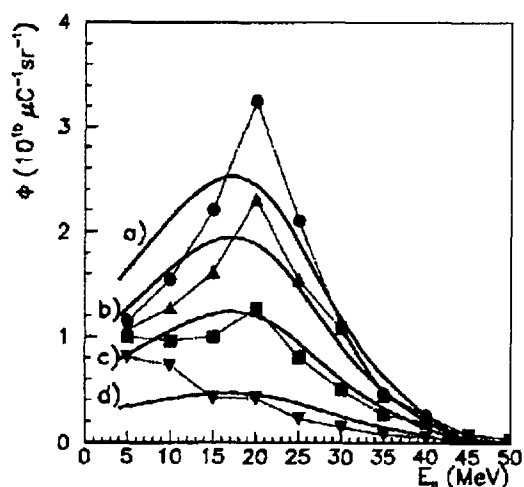


Figure A1.7 : distribution en énergie des neutrons pour des deutons incidents de 50 MeV. Les données expérimentales [Meu 75] à 0° (cercles), à 5° (triangles pointés vers le haut), à 10° (carrés) et à 25° (triangles pointés vers le bas) sont comparées aux calculs (lignes). Les lignes en pointillés ne servent qu'à guider l'œil.

Le maximum de la distribution calculée est d'environ 2 MeV en dessous de celui mesuré. Le décalage par rapport à $E_d/2$ donné par le calcul est systématiquement plus important que celui observé. Cela révèle la présence de neutrons provenant de la dissociation coulombienne qui perdent moins d'énergie cinétique [Sch 67, Dan 47]. Bien que le modèle reproduise l'allure de la distribution énergétique aux différents angles, il surestime le nombre de neutrons vers les énergies inférieures au maximum.

Bibliographie

- [Ack 62] R.J. Ackermann and R.J. Thorn, *Vaporization properties of thorium, uranium and plutonium metals and oxides*, Thermodynamics of nuclear materials, International Atomic Energy Agency, Vienna (1962) 445-464
- [Alc 84] C.B. Alcock *et al.*, *Canadian Metallurgical Quarterly* **23** (1984) 309
- [All 51] A.J. Allen *et al.*, Thick target fast neutron yield from 15 MeV deuteron and 30 MeV α -bombardment, *Phys. Rev.* vol **81**, n^o 4 (1951) 536-539
- [All 72] B.C. Allen *Liquid metals : chemistry and physics* (ed. S.Z. Beer) Marcel Dekker, NY (1972)
- [And 91] H. Andreassen *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth.* **B 58** (1991) 247-251
- [ANL 95] *Concept for an Advance Exotic Beam Facility based on Atlas*, working paper, Physics Division, Argonne National Laboratory, February 1995
- [Ari 97] J. Arianer, *Les sources de particules chargées*, IPNO 97-01
- [Baj 98] O. Bajeat, M. Mirea and F. Clapier, *Projet PARRNe : Géométrie convertisseurs-cibles de fission. Calculs de l'épaisseur équivalente des cibles*, rapport interne IPNO 98-03 (1998)
- [Bar 64] W.H. Barkas and M.J. Berger, *Tables of energy loss and ranges of heavy charged particles*, National Aeronautics and Space Administration (1964)
- [Bar 93] R. Barjon, *Physique des réacteurs nucléaires*, éd. SEILC 1993
- [Bar 00] E. Baron *et al.*, *Réflexions menées pour le compte du Conseil Scientifique du GANIL par le groupe « accélérateur »*, Mai 2000
- [Ben 97] J.R.J. Bennett, *Effusion in RNB targets – a simple conductance approach*, *Nucl. Instr. and Meth.* **B 126** (1997) 146-149
- [Ber 70] M.J. Berger and S.M. Seltzer, *Phys. Rev. C* **2** (1970) 621
- [Ber 94] M. Bernas *et al.*, Projectile fission at relativistic velocities : a novel and powerful source of neutron-rich isotopes well suited for in-flight isotopic separation, *Phys. Lett.* **B** (1994) 19
- [Ber 97] M. Bernas *et al.*, Discovery and cross section measurement of 58 new fission products in projectile fission of 750 MeV/A ²³⁸U, *Phys. Lett.* **B** (1997) 111
- [Boe 69] J.H. de Boer, *The dynamical character of adsorption*, Clarendon Press Oxford (1969)
- [Bol 92] V.A. Bolshakov *et al.*, *The production of neutron-rich heavy nuclei of astrophysical interest at the IRIS facility*, *Nucl. Instr. and Meth.* **B70** (1992) 69-74
- [Bol 96] G. Bollen, *Direct mass measurements at ISOLDE*, Proceedings of the International Workshop XXIV on Gross Properties of Nuclei and Nuclear Excitations, Hirschegg, Austria, January 15-20, edited by H. Feldmeier *et al.* (1996) 169-176
- [Bri 55] J.A. Brinkman et W.S. Gilbert, U.S. AEC Rep. NAA. SR. (1955) 262
- [Bug 64] J. Bugl and A.A. Bauer, *J. of Am. Ceramic Soc.* **47** (1964) 425-429
- [Bus 85] J. Bussac et P. Reuss, *Traité de neutronique*, éd. Hermann Paris (1985)

- [**Cal 80**] J.T. Caldwell, E.J. Dowdy, B.L. Berman, R.A. Alvarez and P. Meyer, *Phys. Rev. C* **21** (4) (1980) 1215
- [**Cam 67**] I.E. Campbell and E.M. Sherwood (eds.), *High-Temperature materials and technology*, J. Wiley & sons (1967)
- [**Car 78**] L.C. Carraz et al., *Fast release of nuclear reaction products from refractory matrices*, *Nucl. Instr. and Meth.* **148** (1978) 217-230
- [**Car 79**] L.C. Carraz et al., *High temperature carbide targets for fast on-line mass separator of alkali and noble gases elements*, *Nucl. Instr. and Meth.* **158** (1979) 69-80
- [**CER 00**] CEREM Centre d'Etude et de REcherches sur les Matériaux, CE2M Centre d'Elaboration et de Mise en forme des Matériaux, CEA Saclay - 91 191 Gif-sur-Yvette
- [**Cha 67**] I. Chavet and R. Bernas, *A study of the beam divergence in an electromagnetic isotope separator*, *Nucl. Instr. and Meth.* **47** (1967) 77-88
- [**Cha 67a**] I. Chavet and R. Bernas, *Experimental study of an ion source for electromagnetic isotope separation with a view to high efficiency operation*, *Nucl. Instr. and Meth.* **51** (1967) 77-86
- [**Cha 70**] J. Chaumont, *Contribution à l'étude de la fission par spectrométrie de masse en ligne*, thèse de l'université Paris XI Orsay (1970) 18-21
- [**Cla 95**] F. Clapier et al., *Neutrons créés par ions lourds et activation induite dans divers matériaux*, IPNO 95-02 (1995)
- [**Cla 98**] F. Clapier et al., *Exotic beams produced by fast neutrons*, *Phys. Rev. Spec. Topics AB* **vol.1** (1998) 013501
- [**CLI 89**] Rapport d'étude du projet de laser à électrons libres sur accélérateur linéaire HF 3 Ghz : CLIO, rapport interne LAL-LURE LAL/RT-89/04 (1989). cf. aussi <http://www.lure.u-psud.fr/>
- [**Cow 58**] G.A. Cowan and C.J. Orth, *Proc. 2d Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy*, United Nations, Geneva **vol.7** (1958) p 328
- [**Cra 56**] W.E. Crandell, G.P. Millburn and L. Schechter, *Neutron yields from thick targets bombarded by 24 MeV deuterons and 12 MeV protons*, UCRL-3177 (June 1956)
- [**Cur 57**] C.E. Curtis, *J. Am. Ceram. Soc.* **40** (8) (1957) 274
- [**Dan 47**] S.M. Dancoff, *Disintegration of the deuteron in flight*, *Phys. Rev.*, **vol. 72**, (1947) p.1017
- [**Del 61**] J. Delafosse et G. Mongodin, *Les calculs de la technique du vide*, Soc. Franç. des Ing. et Technic. du vide (1961)
- [**Del 94**] J.L. Delcroix et A. Bers, *Physique des plasmas*, Interéditions/CNRS éditions **vol. 1** (1994)
- [**Dia 99**] W.T. Diamond, *A radioactive ion beam facility using photofission*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **432** (1999) 471-482
- [**Dob 96**] J. Dobaczewski et al., *Phys. Rev. C* **53** (1996) 2809

- [Don 98] C. Donzaud et al., *Low energy fission investigated in reaction of 750 A MeV ^{238}U ions on ^{208}Pb* , Eur. Phys. J. A1, 407
- [Dro 82] Drotzig, High Temp.-High Pressures **14** (1982) 253
- [dSS 82] M. de Saint Simon *et al.*, *Independent cross sections of Na, K, Rb, Cs and Fr isotopes produced in Ta and U targets bombarded by ^{12}C ions up to 77 MeV/nucléon*, Phys. Rev. C **26** (6) (1982) 2447-2457
- [Dun 64] D.A. Dunn and S.A. Self, *Static theory of density and potential distribution in a beam-generated plasma*, Journal of Applied Physics **35** n° 1 (1964) 113-122
- [Dus 66] S. Dushman and J.M. Lafferty, *Scientific foundations of vacuum technique*, Wiley (1966)
- [Eat 87] T.W. Eaton *et al.*, *Beam heating of thick targets for on-line mass separators*, Nucl. Instr. and Meth. **B26** (1987) 190-194
- [Eic 85] B. Eichler, S. Hübener and H. Roßbach, Zentralinstitut für Kernforschung, Rossendorf, Reports 560 and 561 (1985)
- [Eis 96] V.P. Eismont *et al.*, *Relative and absolute neutron-induced fission cross sections of ^{208}Pb , ^{209}Bi , ^{238}U in the intermediate energy region*, Phys. Rev. C vol **53**, n° 6 (1996) 2911
- [Ell 65] R.P. Elliott, *Constitution of Binary Alloys*, 1st supplement, McGraw-Hill (1965)
- [ENAM 98] B.M. Sherill, D.J. Morissey, C.N. Davids (eds), *International Conference on Exotic Nuclei and Atomic Masses 1998*, AIP Conference proceedings 455, Woodbury NY, 1998. Concernant la fragmentation en vol cf. : I. Tanihata p 943 pour les installations en Asie, A.C. Mueller p 933 pour celles en Europe et J.A. Nolen p 953 pour celles aux USA.
- [Eve 98] A.H.M. Evensen *et al.*, *Release and yields from thorium and uranium targets irradiated with a pulsed proton beam*, Nucl. Instr. and Meth. **B 126** (1998) 160-165
- [Fer 97] P. Ferreira, *Etalonnage d'une chaîne de Spectrométrie gamma Application à une analyse de barreau d'uranium métal*, Rapport de stage à l'I.P.N. d'Orsay, D.U.T. Mesures Physiques, I.U.T. Orsay 1996/97
- [For 88] A. Theodore Forrester, *Large Ion Beams : fundamentals of generation and propagation*, Wiley (1988) 5-8
- [Fou 73] R. Foucher *et al.*, Proc. of the 8th Int. EMIS Conf. (1973) 341
- [Fra 98] S. Franchoo *et al.*, Phys. Rev. Let. **81** (1998) 3100
- [Fru 97] M. Fruneau, *The uranium target and source for the PIAFE project*, Nucl. Instr. and Meth. **B 126** (1997) 55-57
- [Fuj 75] Y. Fujita and H. Matsuda, *Third order transfer matrices for an electrostatic quadrupole lens*, Nucl. Instr. and Meth. **123** (1975) 495-504
- [Fuj 81] M. Fujioka *et al.*, *Diffusion of radioisotopes from solids in the form of foils, fibers and particles*, NIM 186 (1981) 409-412
- [Geb 51] E. Gebhardt and G. Wörwag, Z. Metallk **42** (1951) 358

- [Gom 98] I.C. Gomes and J.A. Nolen, *Influence of the incident particle energy on the fission product mass distribution*, Proc. of the 2d Int. Topical Meeting on Nuclear Applications of Accelerator Technology, Gatlinburg, TN USA, (1998)
- [Gra 77] P. Grand and N. Goland, *An intense neutron source base upon the deuteron-stripping reactions*, NIM **145** (1977) 49-76
- [Gro 61] A.V. Grosse, J. Inorg. Nucl. Chem. **23** (1961) 333
- [Gui 84] P. Guiraldenq, *La diffusion intergranulaire*, Les joints de grains dans les matériaux, Ecole d'Eté de Métallurgie Physique (responsable scientifique : M. Aucoeurier), les éditions de physique (1984) 297-316
- [Guy 94] E. Guyon, J.P. Hulin and L. Petit, *Hydrodynamique Physique*, savoir actuels InterEditions/CNRS Editions (1994)
- [Hab 97] D. Habs *et al.*, *The Munich Fission Fragment Accelerator*, Nucl. Phys. **A616** (1997) 39c-44c
- [Had 49] J. Hadley *et al.*, *Experiments on n-p scattering with 90- and 40-MeV neutrons*, Phys. Rev. **vol.75**, n° 3 (1949)
- [Hag 70] E. Hagebo, Proc. Intern. Conf. on *Electromagnetic isotope separators and the techniques of their applications*, Marburg, 1970 (eds. H. Wagner and W. Walcher) p 146
- [Hah 39] O. Hahn and F. Strassman *Naturwiss* **27** (1939) 11
- [Hel 47] A.C. Helmholtz, E.M. McMillan and D.C. Sewell *Phys. Rev.* **72** (1947) 1003
- [Hel 92] M. Hellström *et al.*, *Some molecular ions obtained from a U+C target at >2100°C*, Nucl. Instr. and Meth. **B70** (1992) 142-145
- [Hem 58] A. Hemmendinger, *2ème Conférence Internationale sur l'Utilisation Pacifique de l'Energie Atomique*, p 663, 1968
- [Hen 71] R.P. Henry, *Cours de technique du vide*, Livre 1 Tome 2, Société française des ingénieurs et techniciens du vide (1971)
- [Hen 97] W.F. Henning, *Physics with energetic radioactive ion beams*, Nucl. Instr. and Meth. **B 126** (1997) 1-6
- [Her 65] HERAEUS FRANCE, *Tables et Abaques de la Technique du Vide* (1965)
- [Hof 80] P. Hoff *et al.*, *Production of molecular ions in the integrated target/ion-source of an isotope-separation-on-line system*, Nucl. Instr. and Meth. **172** (1980) 413-418
- [Hof 84] P. Hoff *et al.*, *Release of nuclear reaction products from refractory compounds*, Nucl. Instr. and Meth. **221** (1984) 313-329
- [Hof 96] S. Hofman *et al.*, *Z. Phys. A* **354** (1996) 229
- [Hue 92] M. Huezt-Aubert, *Rayonnement thermique des matériaux opaques*, Techniques de l'ingénieur, traité Généralité ; thermique B1, A 1520, p1-31
- [Hut 67] R. Hutter, *Beams with space charge*, in *Focusing of Charged Particles*, édité by A. Septier (1967)

- [IFM 96] IFMIF CDA team, *IFMIF, Conceptual Design Activity, Final report*, edited by M. Martone, ENEA-Dipartimento Energia, Centro Ricerca Frascati, Roma (decembre 1996) RT/ERG/FUS/96/11
- [IFM 00] projet IFMIF (International Fusion Materials Irradiation Facility), <http://www.imfl-mw.fzk.de/ifmif/>
- [Iid 74] T. Iida *et al.*, J. Japan Inst. Metals **38** (1974) 177
- [Iid 75] T. Iida *et al.*, J. Japan Inst. Metals **39** (1975) 1169
- [Iid 88] T. Iida and R.I.L. Guthrie, *The Physical Properties of Liquid Metals*, Clarendon Press (1988) Oxford
- [Jam 69] M.F. James, Journal of Nuclear Energy **23** (1969) 517
- [Jes 79] N.C. Jessen *et al.*, *Application of Metal Oxide Refractories for Melting and Casting Reactive Metals*, preprint Y/DA-8225 for submission to the 6th Int. Vac. Met. Conf. on Special Melting and Metallurgical Coatings (1979)
- [Kan 00] S. Kandri-Rody *et al.*, *Exotic nuclei produced by fast neutrons in a liquid uranium target*, Nucl. Instr. and Meth. **B160** (2000) 1-6
- [Kan 00a] S. Kandri-Rody, *Développement d'un Système d'Identification pour SPIRAL et Test d'une Cible d'Uranium Liquide dans le Cadre du Projet PARRNe*, Thèse d'état es Sciences Physiques (2000) Université Chouaib Doukalik, Faculté des Sciences El Jadida, GANIL T 00 04
- [Kas 76] A. Kasama, T. Iida and Z. Morita, J. Japan Inst. Metals **81** (1976) 1030
- [Kir 76] R. Kirchner, Investigation of gaseous discharge ion sources for isotope separation on-line, Nucl. Instr. and Meth. **133** (1976) 187-204
- [Kir 87] R. Kirchner, *An ion source with bunched beam release*, Nucl. Instr. and Meth. **B26** (1987) 204-212
- [Kir 97] R. Kirchner, *Release studies of elementary and metal-fluoride ions at the GSI on-line mass separator*, Nucl. Instr. and Meth. **B126** (1997) 135-140
- [Kje 70] A. Kjelberg and G. Rudstam (eds.), *The ISOLDE isotope separator on-line facility at CERN*, CERN 70-3 (1970)
- [Kof 51] O. Kofoed-Hansen and K.O. Nielsen, K. Danske Vidensk. Selk. Mat. Fys. Medd. **26** n^o 7 (1951)
- [Kru 00] K. Kruglov *et al.*, *Production of neutron-rich copper isotopes in 30 MeV proton-induced fission on ²³⁸U*, International conference RNB 2000, proceedings to be published in Nuclear Physics A
- [Koc 58] J. Koch (editor), *Electromagnetic isotope separators and applications of electromagnetically enriched isotopes*, North-Holland publishing company (1958)
- [Kug 92] E. Kugler *et al.*, *The new CERN-ISOLDE on-line mass separator facility*, Nucl. Instr. and Meth. **B 70** (1992) 41-49
- [Kuz 96] G.I. Kuznetsov, *Cathodes for electron guns*, Physica Scripta **T71** (1997) 39-45
- [Lan 00] F. Landré-Pellemoine *et al.*, *Last results at the SIRA test bench: diffusion properties of carbon graphite and BC₄ targets*, International conference RNB 2000, proceedings to be published in Nuclear Physics A

- [Lau 96] C. Lau, Rapport de stage D.E.A. Physique et Technologie des Grands Instruments (1996) Université Paris 7
- [LBNL] LBNL Isotopes Project-LUNDS universitet : Nuclear Data Dissemination Home Page, cf. <http://isotopes.lbl.gov/isotopes/toi.html/>
- [Lec 49] A.D. Leclaire, Progr. Metal Phys. **306** (1949) 1
- [Lec 97] N. Lecesne *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. **B126** (1997) 141
- [Lef 66] M. Lefort, *La Chimie Nucléaire*, Dunod Paris 1966
- [Lej 80] C. Lejeune and J. Aubert, *Emission and Brightness : definitions and measurements*, in Applied Charged Particle Optics, edited by A. Septier suppl. 13A (Academic Press, New York, 1980) 205
- [Lem 76] G. Lempert and I. Chavet, *Practical factors affecting cathode performance in ion sources of the Nier-Bernas type*, Nucl. Instr. and Meth. **139** (1976) 7-12
- [Les 94] J.P. Lestone and A. Gavron, *Statistical model analysis of fast-neutron-induced fission of U isotopes*, Phys. Rev. C vol. 49 N° 1 (january 1994) p 372
- [Let 97] J. Lettry *et al.*, *Pulse shape of the ISOLDE radioactive beams*, Nucl. Instr. and Meth. **B126** (1997) 130-134
- [Ley 85] Leybold-Heraeus, Bases de la technique du vide, calculs et tables, édition (1985)
- [Lhe 00] G. Lhersonneau *et al.*, European Meeting SPIRAL II, GANIL (2000). Submitted to Eur. Phys. J.
- [Lid 96] Handbook of Chemistry and Physics 76th edition, D.R. Lide ed., CRC Press (1995-96)
- [LNL 99] SPES Project study of an advanced facility for exotic beams at LNS, LNL-INFN report 145/99 june 1999
- [Lon 81] M.A. Lone, A.J. Fergusson and B.C. Robertson, *Characteristics of neutrons from Be targets bombarded with protons, deuterons and alpha particles*, Nucl. Ins. Meth. **189** (1981) 515-523
- [Mad 73] R. Madey and F.M. Waterman, *A time-of-flight spectrometer for neutrons from 1 to 500 MeV*, Nucl. Instr. and Meth. **106** (1973) 89-101
- [Mad 76] R. Madey, F.M. Waterman and A.R. Baldwin, *Neutron spectrum at 0° from 83,7 MeV deuterons on Be*, Phys. Rev. C vol. 14 n° 3 sept. 1976
- [MAF 00] le projet MAFF, cf. <http://www.ha.physik.uni-muenchen.de/maff/>
- [Mai 75] J. Maire, *Le carbone en électrotechnique*, Techniques de l'ingénieur (1975) D 296
- [Mar 67] J.L. Margrave (ed.), *The Characterization of High Temperature Vapors*, J. Wiley & sons (1967)
- [Mau 98] L. Maunoury, *Production de faisceaux d'ions radioactifs multi-chargés pour SPIRAL : Etude et réalisation du premier ensemble cible-source*, thèse de l'université de Caen 1998.
- [McC 75] J.R. McConnell and W.L. Talbert, Nucl. Instr. and Meth. **128** (1975) 227
- [McD 64] E.W. Mc Daniel, *Collision Phenomena in ionized Gases*, ed. Wiley (1964)

- [Mei 39] L. Meitner and O.R. Frisch Nature **143** (1939) 239
- [Mén 99] S. Ménard et al., *Fast neutron forward distribution from C, Be and U thick targets bombarded by deuterons*, Phys. Rev. Spec. Top.-AB vol. 2 (1999) 033501
- [Meu 75] J.P. Meulders, P. Leleux, P.C. Macq and C. Pirart, Phys. Med.Bio. **20** (1975) 135
- [Mir 98] M. Mirea et al., *Kr and Xe neutron-rich nuclei production through ^{239}U fission*, Il Nuovo Cimento vol. A111,n°3 (1998) 267.
- [Mir 99] M. Mirea et al., *Estimation du nombre d'évènements de fission induite par des neutrons rapides pour différentes géométries entre le convertisseur et la cible*, Preprint IPNO 99-06, (1999)
- [Mis 93] V.I. Mishin et al., *Chemically selective laser ion-source for the CERN-ISOLDE on-line mass separator facility*, Nucl. Instr. and Meth. **B73** (1993) 550-560
- [Mol 47] G. Molière, Z. Naturforsch **3A** (1947) 78 ; ibid **10A** (1955) 177
- [Mon 91] J. Montintin, *Etude de céramiques élaborées par compression isostatique à chaud. Relation entre microstructure et propriétés*, Thèse de l'Université de Limoges, soutenue le 14 mai 1991
- [Mot 95] T. Motobayashi et al., *Large deformation of the very neutron-rich nucleus ^{32}Mg from intermediate energy coulomb excitation*, Physics Letters **B346** (1995) 9-14
- [Mue 99] A.C. Mueller, *Exotic nuclei : recent highlights and perspectives*, Nucl. Instr. and Meth. **A654** (1999) 215c-234c
- [Nag 78] S. Nagy et al., *Mass distributions in monoenergetic-neutron-induced fission of ^{238}U* , Phys. Rev. C vol. **17** n° **1** (1978) 163-171
- [Nak 84] T.Nakamura et al., Phys.Rev.C **29** (1984) 1317
- [Nin 99] V. Ninov et al., *Observation of superheavy nuclei produced in the reaction of ^{86}Kr with ^{208}Pb* , Phys. Rev. Let. vol. **83**, n° **6** (1999) 1104
- [Nol 93] J.A. Nolen, in 3rd International Conference on *Radioactive Nuclear Beams*, D.J. Morrissey (ed.), Editions Frontières, Gif-sur-Yvette 1993, p 111
- [Oet 76] F.L. Oetting, M.H. Rand and R.J. Ackermann, *The Chemical Thermodynamics of Actinide elements and compounds, Part 1 : The actinide elements*, International Atomic Energy Agency (1976) Vienna
- [Oga 99] Yu. Ts. Oganessian et al., *Synthesis of superheavy nuclei in the $^{48}\text{Ca}+^{244}\text{Pu}$ reaction*, Phys. Rev. Let. vol. **83**, n° **16** (1999) 3154
- [Oga 00] Yu. Ts. Oganessian, International conference RNB 2000, proceedings to be published in Nuclear Physics A
- [Ort 61] C.J. Orth, *Diffusion of Lanthanide and Actinides from Graphite at High Temperature*, Nuclear Science and Engineering, vol **98** (1961) 417
- [Pap 63] R. Papoular, *Phénomènes électriques dans les gaz*, Dunod Paris (1963)

- [Par 81] P. Paris et al., *Description and performance of the ISOCELE 2 separator*, Nucl. Instr. and Meth. **186** (1981) 91-98
- [PAR 00] Projet PARRNe, [http : // ipnweb.in2p3.fr/ipn/projet/parrne.shtml](http://ipnweb.in2p3.fr/ipn/projet/parrne.shtml)
- [Pas 60] P. Pascal, *Nouveau Traité de Chimie Minérale*, Tome XV (Uranium), 1er fascicule, éditeurs Masson & Cie (1960)
- [Pas 61] P. Pascal, *Nouveau Traité de Chimie Minérale*, Tome XV (Combinaisons de l'Uranium), 2d fascicule, éditeurs Masson & Cie (1961)
- [Pas 68] A.D. Pasternak and D.R. Olander, *Mass transfert between immiscible liquid metals*, AIChE Journal **14**, n° 2 (1968) 235-241
- [Pat 69] A. Pattoret, *Etudes Thermodynamiques par Spectrométrie de Masse sur les Systèmes U-O et U-C*, Thèse de doctorat en sciences chimiques (1969) Université Libre de Bruxelles
- [Pau 00] N. Pauwels et al., *Experimental determination of neutron spectra produced by bombarding thick targets : deuterons (100 MeV/u) on ⁹Be, deuterons (100 MeV/u) on ²³⁸U and ³⁶Ar (95 MeV/u) on ¹²C*, Nucl. Instr. and Meth. **B** (2000) 315-327
- [Pau 00a] N. Pauwels et al. *Fast neutron distributions from Be and C thick targets bombarded with 80 and 160 MeV deuterons*, IPNO 00-01 et soumis à Nucl. Instr. and Meth. **B**
- [Phi 98] W.R. Phillips et al., *Fragments yields from the fission of ²³⁸U by fast neutrons*, Eur. Phys. Journal **A 3** (1998) 205-207
- [Pon 88] A. Poncet, J. Bjon and A. Pace, *Vacuum*, Mac Montecarlo, 1988 CRN PS/ML
- [Pow 67] C.F. Powell et al., *Vapor deposition*, Wiley (1967)
- [Put 81] J.C. Putaux et al., *Target ion source systems at the Orsay ISOCELE 2 separator*, Nucl. Instr. and Meth. **186** (1981) 321-328
- [Put 87] J.C. Putaux, J. Obert, G. Boissier et P. Paris, *Comparison between Nier-Bernas and Nielsen type ion sources for extracted ion-beam intensities in the mA range*, Nucl. Instr. and Meth. **B26** (1987) 213-217
- [Rau 54] E.G. Rauth et R.J. Thorn, *A.N.L.* (1954) 5203
- [Rav 75] H.L. Ravn et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.* **37** (1975) 383
- [Rav 75a] H.L. Ravn, S. Sundell and L. Westgaard, *Target techniques for the ISOLDE on-line isotope separator*, Nucl. Instr. and Meth. **123** (1975) 131-144
- [Rav 79] H.L. Ravn, *Experiments with intense secondary beams of radioactive ions*, Physics Reports **54**, n° 3 (1979) 201-259
- [Rav 87] H.L. Ravn et al., *Use of refractory oxides, carbides and borides as targets for on-line mass separation*, Nucl. Instr. and Meth. **B 26** (1987) 183-189
- [Rav 94] H.L. Ravn et al., *Nucl. instr. and Meth.* **B 88** (1994) 441-461

- [**Rav 96**] H.L. Ravn, International Workshop on Research with Fission Fragments, Benediktbeuern, Germany (1996) 62
- [**Ree 76**] P.L. Reeder *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. **133** (1976) 501
- [**Reg 67**] E. Regenstreif in *Focusing of charged particles*, edited by A. Septier, Academic Press vol. 1 (1967) 353-410
- [**RIA 00**] projet Rare Isotope Accelerator : <http://www.anl.gov/ria/contents.html>
- [**Ric 72**] C. Richard-Serre, *Evaluation de la perte d'énergie unitaire et du parcours pour des ions lourds de 10 MeV/nucléon jusqu'à 1000 MeV/nucléon*, CERN 72-19 (1972)
- [**Rid 98**] D. Ridikas and W. Mittig, *RIB production with high energy neutrons from Be(d, xn) reactions*, International Conference on Exotic Nuclei and Atomic Masses 1998, AIP Conference proceedings 455, Woodbury NY, 1998.
- GANIL preprint **P 98 22**, GANIL Caen (July 98) disponible dans CERN Library Catalogue : <http://alice.cern.ch>
- [**Rid 99**] D. Ridikas, *Optimisation of Beam and Target Combinations for Hybrid Reactor Systems and Radioactive Ion Beam Production by Fission*, Thèse de l'Université de Caen 1999, GANIL - T 99 04
- [**Roß 84**] H. Roßbach and B. Eichler, Zentralinstitut für Kernforschung, Rossendorf, Report ZfK-527 (1984)
- [**Roh 70**] Rohr and Wittenberg, J. Phys. Chem. **74** (1970) 1151
- [**Rub 98**] V.A. Rubchenya *et al.*, *Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy*, 2d International Workshop edited by G. Fioni *et al.* (1998) 453-461
- [**Rud 87**] G. Rudstam, *The determination of nuclear reaction yields by means of an ISOL system*, Nucl. Instr. and Meth. **A 256** (1987) 465-483
- [**Sal 77**] M.J. Saltmarsh *et al.*, *Characteristics of an intense neutron source based on the d+Be reaction*, Nucl. Instr. and Meth. **145** (1977) 81-90
- [**Sam 60**] J.R. Sams *et al.*, J. Phys. Chem. **64** (1960) 1689
- [**Sch 49**] F. Schytil, Z. Naturforsch **4** (1949) 191
- [**Sch 67**] G.W. Schweimer, *Fast neutron production with 54 MeV deuterons*, Nucl. Phys. **A100** (1967) 537-544
- [**Sch 73**] G.G. Schlessinger, Handbook of Chemistry and Physics 54th edition, CRC Press (1973-74) D162-187
- [**Sch 92**] F. Scheerer *et al.*, A chemically selective laser ion source for on-line mass separation, Rev. Sci. Instr. **63** (4) (1992) 2831-2833
- [**Sch 96**] M. Schädel, *Fission Fragment Beams in Heavy Element Research -A critical perspective*, International workshop on Research with Fission Fragments at Benediktbeuern, edited by T. Von Egidy *et al.*, world scientific (1996) 104
- [**Sei 49**] P. Seitz, Dixc. Farady Soc. **5**(1949) 479

- [Sep 61] A. Septier et J. Van Acker, *Les lentilles quadrupolaires électrostatiques*, Nucl. Instr. and Meth. **13** (1961) 335-355
- [Ser 47] R. Serber, *The production of high energy neutrons stripping*, Phys. Rev., vol. 72, N° 11, (dec. 1947) 1008
- [Sig 69] P. Sigmund, *Theory of sputtering ; sputtering yield of amorphous and polycrystalline targets*, Phys. Rev. **187** (1969) 383
- [Shi 84] K. Shin *et al.*, Phys. Rev. C **29** (1984) 1307
- [Shm 83] M. Shmid *et al.*, *Comparison between solid graphite and graphite cloth as a target backing material for an ISOL system*, Nucl. Instr. and Meth. **211** (1983) 287-291
- [Shu 69] F.A. Shunk, *Constitution of Binary Alloys*, 2d supplement, McGraw-Hill (1969)
- [Ska 49] A.S. Skapski, J. Chem. Phys. **16** (1948) 389
- [Sky 62] D.M. Skyrme, *The evaporation of neutrons from nuclei bombarded with high energy protons*, Nucl. Phys. **35** (1962) 177-193
- [Smo 97-99] R. Smolanczuk, *Production mechanism of superheavy nuclei in cold fission reactions*, Phys. Rev. C vol. **59**, n° 5 (1999) 2634 ; vol. **56**, n° 2 (1997) 812
- [Ste 74] D.J. Steinberg, Met. Trans. **5** (1974) 1341
- [Sto 67] E.K. Storms, *The refractory carbides*, Acad. Press, New York (1967)
- [Sto 83] J.A. Stokes, L.A. Parks, C.A. Preskitt and J. John, *Performance of neutron radiography systems using particle accelerators*, IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. NS-30, N° 2, April 1983
- [Sun 92] S. Sundell *et al.*, *Ion source with combined cathode and transfer line heating*, Nucl. Instr. and Meth. **B70** (1992) 160-164
- [Thr 68] H.R. Thresh *et al.*, Trans. Met. Soc. AIME **242** (1968) 819
- [Tou 72] Y.S. Touloukian and D.P. Dewitt, *Thermophysical Properties of Matter, Thermal Radiative Properties, metallic elements and alloys vol. 7* (1970), non metallic solids **vol. 8** (1972)
- [Tou 81] F. Touchard *et al.*, *Production of ionic and atomic beams of alkaline elements*, Nucl. Instr. and Meth. **186** (1981)
- [TRIM] code de calcul pour l'étude de l'interaction faisceau-matière. Code accessible via : <http://www.research.ibm.com/ionbeams/>
- [Vac 91] S. Vacquié, *Arc électrique*, Technique de l'ingénieur, Génie électrique **D2 II** : matériaux (1991) D 324
- [Van 73] R. Vandenbosch and J.R. Huizenga, *Nuclear Fission*, Academic Press (1973)
- [Vig 96] B. Vignon, *The PIAFE Project*, International workshop on Research with Fission Fragments at Benediktbeuern, edited by T. Von Egidy *et al.*, world scientific (1996) 3
- [Waa 90] B. Waast *et al.*, *Status report of Orsay MP 9*, Nucl. Instr. and Meth. **A287** (1990) 26-30

- [Was 80] Y. Waseda, *The structure of non-crystalline materials liquids and amorphous solids*, McGraw-Hill (1980) New-York
- [Wea 73] K.A. Weaver, *Neutron spectra from deuteron bombardment of D, Li, Be and C*, Nuclear Science and Engineering vol. 52 (1973) 35-45
- [Wes 90] J.A. Wesselingh and R. Krishna, *Mass Transfer*, Ellis Horwood, series in chemical engineering (1990)
- [Wil 64] L. Wilets, *Theories of Nuclear Fission*, Clarendon press (1964)
- [Wil 66] C.F. Williamson, J.P. Boujot, J. Picard, *Tables of range and stopping power of chemical elements for charged particles of energy 0,05 to 500 MeV*, Rapport CEA-R 3042
- [Wit 73] L.J. Wittenberg and R. Dewitt, *The Properties of Liquid Metals* (ed. S. Takeuchi) Taylor and Francis, London (Proc. 2d Int. Conf.) p555
- [Wol 87] H. Wollnik, *Optics of charged particles*, Academic press (1987)
- [ZYP 98] ZYP Coatings Inc., 120 Valley Court, Oak Ridge, TN 37 830 USA

RESUME :

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du projet de Recherche et Développement PARRNe (**P**roduction d'**A**tomes **R**adioactifs **R**iches en **N**eutrons) qui consiste à explorer expérimentalement la fission de l'uranium 238 induite par des neutrons rapides comme mode de production en vue de réaliser des faisceaux d'isotopes radioactifs riches en neutrons. Le flux de neutrons rapides est produit par l'arrêt d'un faisceau de deutons dans un convertisseur.

Des cibles épaisses de carbures d'uranium et d'uranium liquide ont été mises au point afin de permettre un relâchement rapide des fragments de fission radioactifs. A l'aide d'un dispositif permettant de piéger sur un doigt cryogénique les gaz rares relâchés par la cible, des isotopes de quelques secondes de périodes ont été observés. Ce dispositif installé auprès de différents accélérateurs de deutons a permis d'étudier la production de gaz rares riches en neutrons à différentes énergies de deutons, dans le cadre de la collaboration européenne SPIRAL II.

Une expérience de calibration a montré la possibilité d'installer un séparateur d'isotopes en ligne de type ISOL auprès d'un accélérateur Tandem 15 MV pouvant fournir 500 nA de deutons à 26 MeV pour explorer expérimentalement la fission induite par neutrons rapides comme mode de production.

Des faisceaux de zinc, de krypton, de rubidium, de cadmium, d'iode, de xénon et de césium ont été produits auprès de cette installation. Les faisceaux les plus intenses atteignent dix milles noyaux par microcoulomb avec des deutons de 26 MeV. Un gain d'environ deux ordres de grandeur peut être obtenu en utilisant une source d'ions plus spécifique et en augmentant l'épaisseur de la cible. Un gain supplémentaire de deux ordre de grandeur s'obtient en augmentant l'énergie des deutons à 100 MeV.

DISCIPLINE :

Physique et technologie pour la production de faisceaux d'ions radioactifs riches en neutrons

MOTS-CLES :

fission, neutrons rapides, carbure d'uranium, uranium liquide, noyaux riches en neutrons, source d'ions, séparateur d'isotopes en ligne, faisceaux d'ions radioactifs.

ADRESSE DU LABORATOIRE :

INSTITUT de PHYSIQUE NUCLEAIRE d'ORSAY
Division Accélérateur – Bât. 106
91 406 Orsay Cedex