

ORSAY
N° d'ORDRE : 7322

CERN LIBRARIES, GENEVA



CM-P00081151

111215

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE

présentée pour obtenir

Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITE PARIS XI

SPECIALITE PHYSIQUE NUCLEAIRE

soutenue publiquement
par

Angélique JOINET

le 10 Octobre 2003

Titre :

*Production de faisceaux d'ions radioactifs chimiquement réactifs par
séparation en ligne*

Directeur de thèse :

Monsieur A.C. Mueller

JURY

Madame	E. Dartyge	Présidente
Monsieur	D. Goutte	
Monsieur	M. Huyse	Rapporteur
Monsieur	F. Le Blanc	Rapporteur
Monsieur	H. Ravn	

Thesis-2003-Joinet

CERN LIBRARIES, GENEVA

The isotope separation on line method allows to produce by spallation, fragmentation or fission reaction, radioactive ion beams far from the valley of stability. A thick target is irradiated by a high intensity primary beam. Therefore, high production can be achieved. The problem is to find target material that releases rapidly at high temperature, the reaction products stopped into the target. This radiochemical method, optimised to work with an ion source, is based on the thermochemical properties as vapour pressure, diffusion and desorption. The delay due to the mass transfer will have some consequences on the production efficiency, and particularly for the short half life isotopes. This technique has been inefficient for the 14 and 16 group elements, which are chemically reactive in their production environment. The introduction of the chemical evaporation can solve the problem. Chemical specie is introduced into the target, allowing the transportation of the element as a molecule towards the ion source.

The neutron deficient selenium and sulphur radioactive ion beams and the neutron rich tin beams are of great interest for the physicist community. The goal of my work has been to optimise the target and ion source unit in order to achieve high intensity and purity

. First, off line measurements allowed to find target material dealing to a fast release of these isotopes and of several elements. Afterwards, we studied the formation, stability and ionisation of the COSe, COS, SnS and GeS molecules by on line measurements. One advantage of the chemical evaporation method is to obtain volatile molecules and to reduce isobaric contamination.

This thesis has been done in the frame of the EURISOL project. This would construct a new generation accelerator, that would deliver high intensity and high purity ion beams. And this work demonstrates that a chemical physical treatment of isotopes in their environment is crucial.

Remerciements

Je remercie la direction de l'IPN, Sydney Gales et Dominique Guillemaud-Mueller pour m'avoir accueilli dans leur laboratoire.

J'exprime ma profonde gratitude à tous les membres du Jury pour avoir accepté de considérer ces travaux. Notamment, je remercie Marc Huyse et François Le Blanc qui ont bien voulu être les rapporteurs malgré leur emploi du temps chargé. Merci également à Elisabeth Dartyge, présidente du Jury, ainsi qu'à Dominique Goutte et Helge Ravn qui m'ont fait le grand honneur de composer ce Jury.

Je remercie Alex Mueller pour avoir dirigé mes travaux de thèse malgré son emploi du temps très chargé et pour nos discussions durant lesquelles j'ai beaucoup appris.

Je voudrais remercier sincèrement Helge Ravn pour m'avoir accueilli à ISOLDE au CERN et intégré au projet EURISOL durant plus de deux ans. Tout le matériel et toute la confiance qu'il a su m'accorder pour les développements que j'ai entrepris, m'auront permis de passer de nombreuses heures d'exploration et de découverte. De plus, je lui suis très reconnaissante pour m'avoir sensibilisée et introduite au domaine de la radiochimie. Un grand merci également à Ulli Köster pour tous ses conseils, son dynamisme et sans qui je n'aurais pas pu maîtriser tous les outils expérimentaux, informatiques (PAW, LATEX, schémas), ... J'aurais passé avec Helge Ravn et Ulli Köster un séjour au CERN extrêmement enrichissant. Je remercie également Thomas Nilsson et Yuhä Aystö pour leur accueil au sein d'ISOLDE et pour avoir exprimé leur soutien à mes travaux. Je n'oublierai pas Antonietta Dubos, Geneviève Lescornet mais aussi Manoli Turrion, Luis Fraile, Mario Santana, Magdalena Kowalska et Marcella Grassot avec qui j'ai passé de bons moments et qui m'ont encouragé durant tout mon séjour cernois. En particulier, j'exprime une chaleureuse reconnaissance à Kari Peräjärvi et Christophe Lau pour les interactions au cours des expériences de mesures.

Je voudrais exprimer toute ma gratitude à la sympathique équipe tech-

nique d'ISOLDE, et en particulier à Daniel Carminati et Bernard Crépieux pour tous les petits "bijoux" que vous avez construit pour moi et les heures passées pour le montage des expériences. Merci également au groupe de la radioprotection: André Muller pour ses discussions riches d'expériences mais aussi Alexandre Dorsival et Pierre Carbonez pour leur grande disponibilité et leur présence durant les innombrables irradiations que j'ai effectué. Mes remerciement vont aussi aux "aiguilleurs" du faisceau de protons: Ove Jonsson, Richard Catherall, Uwe Georg et Tim Giles que l'on dérange jours et nuits. Merci à Einar Hagebø pour toutes ses explications concernant les codes de simulation de sections efficaces et à Jacques Lettry pour nos rencontres pleines d'apprentissages. Un grand merci à Marc Dietrich pour m'avoir prêté les chambres de collection du groupe de physique du solide. Sans sa confiance, de nombreuses expériences n'auraient pas eu lieu.

Un grand merci au personnel de l'atelier technique de la division EP du CERN pour m'avoir initié au maniement de la fameuse presse hydraulique sans laquelle je n'aurais pu concevoir de nombreux matériaux de cible.

Je remercie le groupe de thermochimie de la Sapienza, Giovanni Balducci et Guido Gigli pour leur invitation dans leur laboratoire et en particulier Andrea Ciccioili pour sa grande et précieuse aide concernant les calculs effectués par THERMOCALC. Grâce à eux, la chimie ne m'est presque plus un mystère.

Je remercie le groupe des sources d'ions, Saïd Essabaa, Michel Ducourtieux, Jean Claude Potier, Olivier Bajeat, Hervé Lefort et Jacques Obert pour leur chaleureux accueil au cours de mes différents séjours à l'IPN d'Orsay, notamment au cours de mes différentes participations aux expériences en ligne à Orsay, ainsi que pour leur gentillesse et leur encouragement durant les derniers mois de ma thèse. Je remercie particulièrement Christophe Lau pour ses remarques critiques et son soutien durant la rédaction de ce manuscrit.

Je voudrais remercier les très nombreuses personnes rencontrées au cours des différentes collaborations EURISOL, venant du GANIL (Caen), de LNL (Legnaro), de IKS (Leuven), de CRC (Louvain-La-Neuve) ou de l'université de Mayence qui m'ont encouragée durant mes travaux.

Je voudrais exprimer toute ma reconnaissance à ceux avec qui j'ai partagé la passion de la science et qui m'ont guidé jusqu'à présent et en particulier à François Quercy, François Vannucci et Alain de Bellefon.

Enfin, j'aurais une pensée particulière pour ma famille et mes amis pour leur constant encouragement durant toutes ces années.

Table des matières

1	Introduction: le contexte des travaux de développements	8
1.1	Intérêts physiques de nouveaux faisceaux ISOL pour la physique	9
1.1.1	$^{67,68}\text{Se}$: étude du processus rp	9
1.1.2	^{27}S : étude de la décroissance βp	10
1.1.3	$^{100-110}\text{Sn}$: modèle en couche loin de la stabilité	11
1.1.4	Les faisceaux riches en neutrons	12
1.2	Le projet EURISOL	13
2	Description d'un système ISOL et la réalisation de ses différentes composantes à CERN-ISOLDE	15
2.1	Les réactions de production	16
2.1.1	La spallation	17
2.1.2	La fission	18
2.1.3	La fragmentation	18
2.1.4	La fusion-évaporation	19
2.1.5	Réactions de transfert inélastiques	19
2.1.6	Réactions utilisées à ISOLDE	19
2.2	Le faisceau primaire à ISOLDE	20
2.3	La cible ISOL: paramètres physico-chimiques	21
2.3.1	Stabilité à haute température	21
2.3.2	Réactivité	26
2.3.3	Les processus de relâchement dans le système ISOL	26
2.4	Les sources d'ions utilisées avec la méthode ISOL	30
2.4.1	Sources à ionisation de surface	30
2.4.2	Sources FEBIAD (Forced Electron Beam Ion Arc Discharge)	32
2.4.3	L'ionisation LASER	35
2.5	Le séparateur d'ISOLDE	37
2.6	La méthode IGISOL	39
2.7	Conclusion	40

3	Les développements pour l'amélioration de l'efficacité d'un système ISOL	41
3.1	Mesures en ligne	42
3.1.1	Description du dispositif expérimental	42
3.1.2	Etude d'une cible de ZrO_2	43
3.2	Mesures hors ligne	50
3.2.1	Description du dispositif expérimental	50
3.2.2	Etude du relâchement de différentes matrices	54
3.2.3	Discussions: développement du Se, S, Te, Sn, Ge, Si	69
3.2.4	Conclusion	73
3.3	La séparation chimique	74
3.3.1	La méthode radiochimique	74
3.3.2	La méthode thermochromatographique	74
3.3.3	La formation d'ions moléculaires	75
4	Etude de la production et du relâchement des faisceaux d'ions radioactifs du groupe 14 et 16	78
4.1	Eléments du groupe 16	78
4.1.1	Etude thermochimique des éléments du groupe 16	78
4.1.2	Le sélénium	82
4.1.3	Le soufre	89
4.1.4	Le tellure	94
4.1.5	Conclusion	95
4.2	Eléments du groupe 14	96
4.2.1	Etude thermochimique des éléments du groupe 14	96
4.2.2	L'étain	99
4.2.3	Le germanium	108
4.2.4	Discussion	110
5	Prédictions pour le projet EURISOL	112
5.1	Cibles et sources d'ions pour la production de l'étain	112
5.2	Prédiction des intensités	113
6	Résumé et perspectives	116
A	Fabrication des matrices prototypes	120
A.1	Le principe	120
A.2	La méthode	121
B	La méthode de détection hors ligne	124
C	Calcul du rapport d'embranchement βn du ^{134}Sn	127

D Formation d'éléments superlourds dans les réactions de fusion froide

130

Introduction

En 1934, Irène et Frédéric Joliot-Curie [Cur34] procédèrent à l'irradiation d'une cible d'aluminium par des rayons α en provenance d'une source radioactive, produisant ainsi pour la première fois de la radioactivité artificielle. Par la suite, des cibles furent irradiées par des particules produites par des accélérateurs allant du proton aux ions lourds, ou par des neutrons générés par réactions nucléaires. Ceci ouvrit ainsi la voie à la découverte et à l'étude de nombreux noyaux radioactifs.

Le principal défi fut de séparer les différents produits de réaction du matériau de cible afin de pouvoir identifier et étudier les propriétés d'un noyau bien défini dans des conditions suffisamment propres. Pour cela, un certain nombre de méthodes radiochimiques furent développées pendant la première partie du siècle dernier. Basées sur des manipulations chimiques en phase aqueuse, elles sont similaires à celles qui ont permis à Pierre et Marie Curie [Cur98] de séparer plusieurs grammes de radium. De telles méthodes ont finalement permis l'isolation rapide d'isotopes radioactifs allant jusqu'aux transuraniens [Sea90]. Ainsi, la connaissance des propriétés chimiques des éléments et l'élargissement du tableau de Mendelèïev contribuèrent largement à la naissance de la physique nucléaire.

Autour de 1970, le développement des accélérateurs permit aux physiciens de porter leur intérêt sur les noyaux de plus courte durée de vie, qui sont situés autour des "dripline" en neutrons et protons. Ces noyaux sont les mieux produits par des réactions très complexes et qui ont de nombreux canaux de sortie comme la fission et les réactions utilisant des projectiles relativistes. Afin d'obtenir la sélectivité et la rapidité nécessaires, une étape de séparation a dû être ajoutée à une séparation chimique rapide.

L'idée de coupler une cible émanante à la source d'ions d'un séparateur électromagnétique en masse, a été démontrée lors d'une expérience pionnière à l'Institut Niels Bohr dès 1951 [Kof51]. A partir de 1970, principalement en Europe, un certain nombre de Séparateur d'Isotope en Ligne dit ISOL ("Isotope Separator On Line") furent installés en conjonction avec des accélérateurs et des réacteurs. En particulier, le concept utilisé à ISOLDE-CERN (à Ge-

nève) s'est montré très puissant. Plus de trente années de R&D sur les cibles et sources d'ions faites dans ce laboratoire et dans d'autres installations similaires comme par exemple à GSI (avec GSI-ISOL), à L'IPN (avec ISOCELE et PARRNe), au GANIL (avec SIHa), TRIUMF (avec ISAC), JYFL (avec IGISOL), KULeuven et ORNL (avec HRIBF), ont permis d'obtenir des systèmes de production de faisceaux d'ions radioactifs d'une énergie d'environ 60 keV et ceci pour presque l'ensemble des éléments du système périodique.

Le problème a été de trouver des matériaux de cible qui à haute température, relâchent rapidement les produits de réactions stoppés dans la cible, sans transmettre plus de 10^{-8} mol/s de la matière restante dans la source d'ions du séparateur en masse qui est très sensible. Ces nouvelles méthodes radiochimiques, optimisées pour fonctionner en connexion avec une source d'ions, utilisaient jusqu'à récemment les propriétés thermochimiques comme la pression de vapeur, la diffusion et la désorption. Le délai causé par les processus de transfert de masse, détermine l'efficacité due à la décroissance des espèces de courtes durées de vie. Pour certains éléments, qui sont soit réfractaires ou bien qui forment des composés réfractaires, il semble qu'une telle méthode soit inefficace. Pour ces éléments, l'introduction du processus d'évaporation chimique peut résoudre le problème. Cette technique au cours de laquelle un agent chimique est introduit dans la cible, assurant le transport vers la source d'ions de l'élément en question sous la forme d'une molécule volatile, est le principal sujet des travaux que je vais présenter.

A cause des cibles épaisses utilisées dans la méthode ISOL, des faisceaux d'ions radioactifs d'une durée de vie ≥ 50 ns sont produits avec les plus fortes intensités. Elle est par conséquent complémentaire à la méthode de fragmentation en ligne, développée pour la première fois à Berkeley au LBL en 1979 [Sym79] puis au GANIL avec LISE. Un faisceau d'ions lourds d'une énergie de 50 à 2000 MeV par nucléon interagit avec une cible mince. Cette interaction conduit à la production de fragments ayant une énergie proche de celle du faisceau incident: SISSI à GANIL, FRS à GSI et A1200 à MSU utilisent une telle méthode. Elle a l'avantage d'être indépendante de la chimie et de la période de l'isotope produit, ce qui permet de produire avec plus de facilité les éléments réfractaires. Cependant, les qualités optiques du faisceau et les intensités obtenues sont moins bonnes qu'avec la méthode ISOL.

Récemment, il a été reconnu que les expériences avec des faisceaux d'ions radioactifs accélérés dans la région des énergies de 2 jusqu'à 50 MeV par nucléon, permettent de fabuleuses opportunités scientifiques comme l'étude d'espèces nucléaires rares. De plus, les réactions fondamentalement importantes en physique nucléaire et en astrophysique qui sont inaccessibles lors des expériences réalisées avec les diverses combinaisons faisceau/cible actuellement disponibles, pourront également être étudiées et utilisées pour une

variété de réactions. Il a été prouvé que la méthode ISOL était idéalement compatible en tant qu'injecteur dans des post accélérateurs qui produisent des faisceaux d'ions radioactifs intenses dans cette région d'énergie.

Entrepris à la fin des années 80 à Louvain-La-Neuve [Ver97] avec le cyclotron CYCLONE30, ce concept fait désormais l'objet de nouveaux projets comme le projet ISAC au Canada qui fut opérationnel en 2000, SPIRAL ("Séparateur et Post accélérateur d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne") qui délivra son premier faisceau à une expérience fin septembre 2001 au GANIL et REX-ISOLDE [Hab97b] au CERN qui accéléra son premier faisceau d'ions radioactifs avec une énergie de 2 A.MeV la même année. A plus long terme, le projet EURISOL, auquel profitent les travaux effectués dans ce manuscrit, impliquera des faisceaux de fortes intensités (jusqu'à 5 MW pour le faisceau primaire de protons) et donc les développements de la cible et de la source sont d'autant plus cruciaux. Ce projet ainsi que les exigences actuelles relatives à l'intensité et à la pureté des faisceaux d'ions radioactifs seront présentés dans le chapitre 1.

L'optimisation de l'ensemble cible/source, pour réaliser ces deux critères, passe, par le choix du matériau de cible, en fonction des paramètres thermo-chimiques décrivant sa stabilité et sa réactivité ainsi que de la méthode d'ionisation. Les processus physico-chimiques intervenants aux différentes étapes de parcours du noyau seront décrits dans le chapitre 2.

La cible est la partie essentielle de ce système, puisque les éléments vont y être stoppés et en être relâchés plus ou moins rapidement. De nombreuses expériences hors ligne, décrites dans le chapitre 3, ont été effectuées afin de choisir la meilleure matrice pour le relâchement du S, Se, Te, Ge et Sn.

Le chapitre 4 traitera en détail des différents faisceaux développés durant ces travaux: le soufre, le sélénium et le tellure qui appartiennent au groupe chimique de l'oxygène puis le germanium et l'étain qui appartiennent au groupe du carbone. Ces éléments sont chimiquement réactifs, ce qui explique leur faible intensité. L'introduction d'une séparation chimique en ligne de ces éléments sera étudiée et on verra comment dans certains cas elle s'avère prometteuse.

Les applications des faisceaux d'ions radioactifs sont très vastes. Que ce soit pour les études des modèles de la structure des noyaux aux limites de leur cohésion ainsi que pour les études des mécanismes de nucléosynthèse dans différents sites astrophysiques, ou bien en médecine nucléaire où les radio-isotopes sont utilisés comme outil de diagnostic ou de thérapeutique, des faisceaux plus intenses et purs sont attendus. Une nouvelle génération d'installations pour la production de faisceaux d'ions radioactifs est donc en pleine préparation. En particulier, le projet EURISOL nécessite une étude radio-chimique des éléments produits afin d'optimiser leur efficacité de production.

Les aspects de sûreté sont également très importants¹ pour ce type d'installation qui sera utilisé avec des faisceaux de fortes intensités. En effet, la plupart des radioéléments seront dispersés dans le système de vide qui maintient une pression de 10^{-6} mbar dans le système cible/source, mais également sur les parois du séparateur et les aimants. Ainsi, les développements techniques sont l'élément clef du progrès des connaissances en physique nucléaire dans les prochaines années et méritent donc les plus grands efforts.

1. Après irradiation d'une cible de UC_x d'une longueur de 20 cm et d'une épaisseur de 122 g/cm^2 , avec un faisceau de protons de $100 \mu\text{A}$, la dose relevée [Smc02] à 1 m après 1 semaine d'irradiation est de 10 Sv/h.

Chapitre 1

Introduction: le contexte des travaux de développements

La radioactivité est un phénomène par lequel un noyau instable se transforme en un autre noyau. Cette radioactivité peut être produite par interaction faible (radioactivité β , capture électronique), par interaction électromagnétique (isomérisme nucléaire), ou par interaction forte (radioactivité α , fission spontanée) [Mac71]. La figure 1.1 représente une partie de la carte des nucléides, version nucléaire du tableau de Mendeleïev, avec le nombre Z de protons en ordonnée et le nombre N de neutrons en abscisse. Si l'on imagine en troisième dimension l'énergie de liaison qui forment une courbe s'inclinant progressivement vers un excédent de neutrons, les éléments stables se trouvent au fond d'une cuvette, appelée "vallée de stabilité". Plus on s'en éloigne, et moins les isotopes sont liés et ont une durée de vie courte.

Par décroissance β , ils se transformeront en noyaux de plus en plus "stables"¹. La stabilité des noyaux est conditionnée par le rapport N/Z , qui décrit la compétition entre les forces Coulombiennes et les forces nucléaires. Les noyaux riches en neutrons, vont être des émetteurs β^- :



Tandis que les noyaux riches en protons sont des émetteurs β^+ :



Cette réaction est en compétition avec la capture électronique :



1. Chaque transition β est caractérisée par une énergie de décroissance (généralement notée " Q_β ").

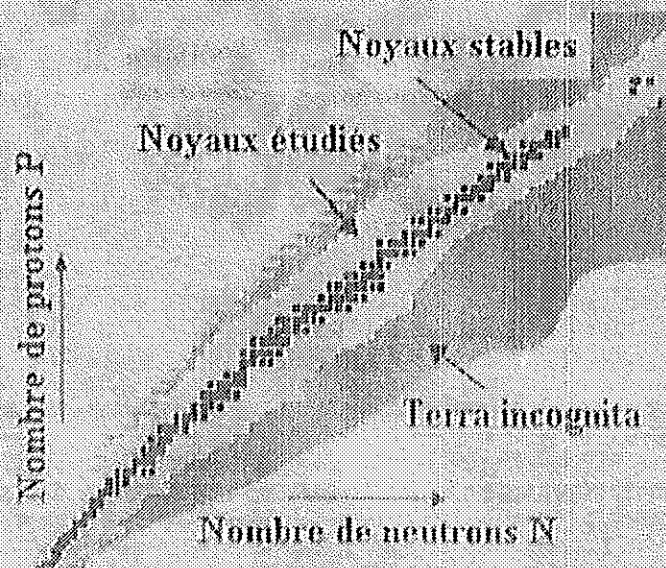


FIG. 1.1 – Carte des nucléides.

où A_ZX capture un électron du cortège électronique de l'atome.

Il existe une limite, appelée "drip-line" au delà de laquelle l'assemblage de protons et de neutrons n'est plus possible.

Donnons à présent les motivations qui ont menées aux développements des faisceaux d'ions radioactifs de soufre, sélénium et d'étain riches et déficients en neutrons.

1.1 Intérêts physiques de nouveaux faisceaux ISOL pour la physique

1.1.1 ${}^{67,68}\text{Se}$: étude du processus rp

Les isotopes ${}^{67}\text{Se}$ et ${}^{68}\text{Se}$ sont impliqués dans le processus rp ("rapid proton capture"). Dans des conditions de fortes températures ($T > 10^9$ K) et densités ($\rho > 10^9 \text{ g/cm}^3$) [Wal81], ce processus astrophysique intervient lors de l'explosion de supernovae ou de sursauts X dans un système binaire proche. Il démarre à partir de l'isotope ${}^{63}\text{Ge}$ [Wor94] et peut continuer jusqu'à des noyaux de masse $A \approx 100$ [Sch98]. Le chemin et la rapidité du processus sont principalement définis par les taux de décroissances β et de capture de protons proche de la ligne de stabilité.

Les paramètres d'entrée pour les calculs du processus rp sont les différences de masse nucléaire. Ainsi, l'énergie de séparation des protons ($S_p = (M(Z, N) - M(Z-1, N) - M_p)c^2$), les valeurs Q_{β} de la décroissance β ($Q_{\beta} =$

$(M(Z, N) - M(Z - 1, N + 1) - m_p)c^2$) et d'autres réactions [Sch98] doivent être déterminées avec une grande précision afin de déterminer de manière fiable le chemin de ce processus. La structure des couches et la densité des niveaux affectent la forme des noyaux. La masse est donc un paramètre crucial pour un traitement théorique précis des taux de réaction et de la durée de vie de la décroissance β .

Les propriétés de décroissance β des isotopes $^{67,68}\text{Se}$ ainsi que leur durée de vie ont déjà été déterminées [Bau94] : elle est respectivement pour ces deux isotopes de 107 ms et 35,5 s. L'isotope ^{68}Se est dit "point d'attente" car la décroissance β domine les réactions de capture et il va donc largement déterminer la vitesse du processus rp . Etant donnée la nature non liée du ^{69}Br , l'hypothèse selon laquelle le ^{68}Se capture deux protons afin de réduire sa durée de vie dans le processus rp , doit être vérifiée. Pour cela, la détermination des masses dans le voisinage du ^{68}Se doit être réalisée. La figure 1.2, représentant la région d'intérêt concernant le processus rp , montre les masses devant encore être mesurées.

Une première expérience de mesure de masse du ^{68}Se a déjà été effectuée à GANIL avec une incertitude de l'ordre de 100 keV [Lal00]. Cependant, cette valeur diffère de 1,8 MeV par rapport aux dernières tabulations en masse [Aud95], ce qui pousse à vérifier l'exactitude de la mesure expérimentale. La technique ISOLTRAP [Her01] est une technique performante permettant d'obtenir des mesures de masse avec une précision de l'ordre de la dizaine de keV. Cependant, le faisceau délivré actuellement contient une importante contamination isobarique des éléments As, Ge et Ga qui ont une production de 2 à 3 ordres de grandeur supérieure à celle du Se. De plus, l'intensité du Se et donc la statistique sont insuffisantes pour effectuer une spectrométrie en masse. Je présenterai par la suite les travaux qui ont permis d'améliorer la pureté et l'intensité du faisceau d'ions radioactifs de sélénium.

1.1.2 ^{27}S : étude de la décroissance βp

Les différences en masse isobarique augmentent lorsque l'on s'éloigne de la vallée de la stabilité pour s'approcher de la "drip-line". En même temps, l'énergie de liaison des nucléons les moins liés diminue, ce qui ouvre des canaux pour l'émission de neutrons ou de protons. Les isotopes ^{31}Ar [Fyn00] et ^{22}Si [Bla96] tous deux émetteurs β suivis de l'émission retardée de deux protons, ont très bien été étudiés à ISOLDE et GANIL respectivement. Le ^{27}S [Bor91] a été produit au GANIL par fragmentation de l' ^{36}Ar à 85 MeV/n. Cependant, à cause d'une forte contamination, notamment due au ^{25}Si , la spectroscopie βp n'a pu clairement mettre en évidence l'ensemble du schéma de décroissance du ^{27}P .

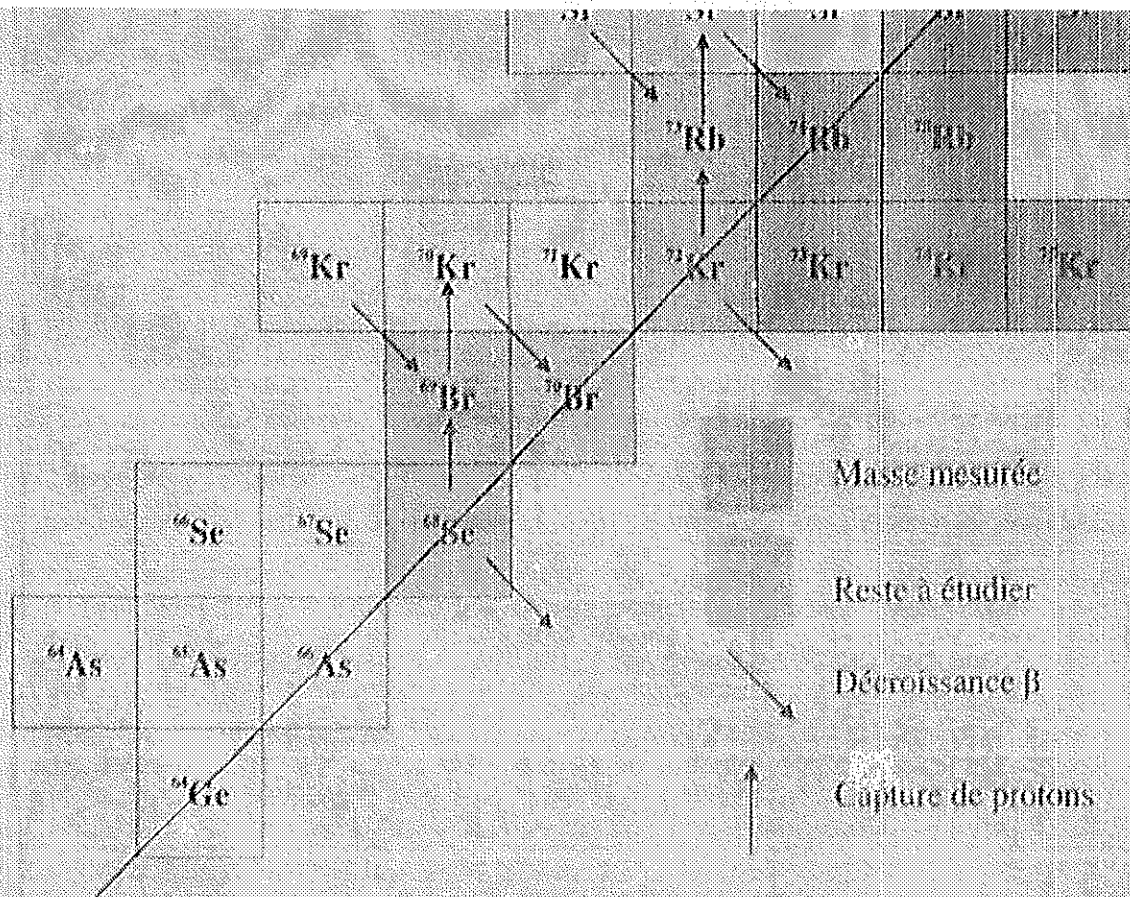


FIG. 1.2 – Partie du diagramme des nucléides au voisinage du chemin du processus rp avec les masses étudiées [Her02a] et restant à étudier. ^{68}Se et ^{72}Kr sont des "points d'attente".

Le cas du ^{27}S reste donc à explorer. Quelques événements "propres" suffiraient pour effectuer une telle spectroscopie des noyaux implantés dans le détecteur. L'intérêt de la spectroscopie βp est de vérifier les prédictions du modèle en couche qui sont désormais déterminées avec une grande précision.

Le soufre n'ayant jamais été observé comme faisceau d'ions radioactifs à ISOLDE, les travaux de cette thèse visent à comprendre sa réactivité et à trouver une méthode permettant d'améliorer sa pureté.

1.1.3 $^{100-110}\text{Sn}$: modèle en couche loin de la stabilité

Un des modèles utilisé afin de décrire la structure d'un noyau est le modèle en couche. Il a été élaboré par analogie avec les couches électroniques d'un atome. Les noyaux ayant un nombre de protons ou (et) de neutrons magiques (2, 8, 20, 28, 50, 82 ou 126) ont une énergie de liaison particulièrement élevée et sont aussi particulièrement stables. Pour ceux-ci, la couche externe est complètement remplie.

L'étude des noyaux doublement magiques (nombre de protons et de neutrons magiques), sont de grand intérêt puisqu'ils sont des points fixes pour des calculs de structure nucléaire utilisant par exemple le modèle en couche ou en champ moyen. Ces noyaux sont censés être particulièrement liés et présenter une forme d'équilibre sphérique.

Pour l'isotope ^{100}Sn ($N = Z = 50$), les neutrons et les protons occupent les mêmes orbitales. Les effets d'appariement proton-neutron deviennent alors importants du point de vue de l'interprétation théorique de ses états excités. L'étude de l'évolution de la structure des couches loin de la stabilité permet de mieux comprendre la structure du noyau et d'étudier la compétition entre magicité et exotieité. En particulier, de nombreuses expériences sont centrées sur la persistance des fermetures de couches très loin de la stabilité.

L'isotope ^{100}Sn a déjà été étudié en utilisant la fragmentation d'un faisceau de ^{124}Xe d'une énergie de 1,1 GeV par nucléon sur le FRS à GSI [Sch94, Sch95] et celle d'un faisceau de ^{112}Sn 63 MeV par nucléon au GANIL [Lew94, Lew95]. Dans la première expérience, le nombre d'événements était insuffisant tandis que dans la seconde, la contamination due à la présence de différents états de charge, était trop importante pour effectuer une spectroscopie significative. Les réactions de fusion-évaporation $^{58}\text{Ni} + ^{50}\text{Cr}$ ont été réalisées au GANIL [Cha96, Lip96, Lip98] et au GSI-ISOL [Cha96] où elles se sont avérées prometteuses du point de vue de l'intensité obtenue. Les isotopes ($^{100-110}\text{Sn}$), une fois produits par réaction de spallation à ISOLDE, pourraient être abordés en utilisant la technique d'excitation coulombienne d'un faisceau d'ions radioactif en cinématique inverse [Ame03]. Nous verrons par la suite comment nos travaux de développement ont permis d'améliorer la sélectivité et donc la pureté de tels faisceaux.

1.1.4 Les faisceaux riches en neutrons

Le noyau doublement magique ^{132}Sn [Bj86a] a déjà permis d'étudier les modes collectifs (de vibration et de rotation) et de prouver la validité du modèle en couche. L'étude des noyaux de haute valeur de spin donne des informations sur les excitations entre couches, lesquelles jouent un rôle important pour les noyaux loin de la vallée de stabilité. L'intérêt d'un tel noyau est qu'il pourrait (cas donné dans le cadre du projet EURISOL), après post-accélération, être fragmenté sur une cible de béryllium afin de peupler des isotopes de $N = 82$ [EUR].

L'étude des noyaux d'étain riches en neutrons ($^{135-138}\text{Sn}$) servira à mieux connaître la structure nucléaire des noyaux très riches en neutrons. De plus, ce sont des données d'entrée pour les calculs de nucléosynthèse du processus r ("rapid neutron capture"), favorisé dans des environnements très riches en

neutrons [Thi91]. Le chemin de ce processus est déterminé pour une énergie de séparation donnée $S_n(n_n, T)$, par la densité de neutrons n_n et la température T . En particulier, la détermination de la durée de vie lors de la décroissance β de ces isotopes permettrait de déterminer, pour un flux de neutrons donné, quel pourrait être le "point d'attente" du processus. Une forte contamination isobarique due aux éléments Cs, I et Te rend difficile la spectroscopie du ^{136}Sn , car leurs émissions γ et neutron interfèrent avec celle des isotopes d'étains. Nous allons montrer quelle méthode permet de supprimer une telle contamination isobarique. Enfin, le rendement du ^{138}Sn doit être amélioré afin de mettre en évidence son schéma de décroissance.

Conclusion

L'exploration de la structure et des mécanismes de réaction des noyaux loin de la ligne de stabilité β , est d'un grand intérêt pour la physique nucléaire. En effet, l'étude des limites de cohésion des noyaux exotiques a contribué à révéler l'existence d'agrégats et de nuages de nucléons. Ces noyaux servent également à la compréhension des mécanismes de nucléosynthèse se déroulant lors de phénomènes astrophysiques très explosifs.

Deux critères, sur lesquels a porté mon effort, sont essentiels pour de telles études:

- l'intensité
- la pureté

Pour améliorer ces deux critères, il faut remonter à la source de production qui est l'ensemble cible/source. Les chapitres suivants décriront les travaux que j'ai effectué afin d'obtenir une meilleure sélectivité et efficacité du système de production.

1.2 Le projet EURISOL

De nombreuses installations de type ISOL ont été construites en Europe, permettant de fournir une large variété d'isotopes radioactifs. Cependant, la production de certains noyaux très exotiques nécessiterait réellement d'être améliorée alors que des méthodes restent à établir pour d'autres éléments. Afin d'évaluer avec précision les intensités des faisceaux d'ions radioactifs qui pourraient être disponibles dans une future installation comme EURISOL [EUR], une étude détaillée de quelques éléments de référence a été entreprise. De plus, un programme de développement de faisceaux pour lesquels les méthodes de production ne sont pas efficaces ou bien n'existent pas, a

commencé. Les éléments de référence suggérés par le comité NuPECC (Nuclear Physics European Collaboration Committee) sont le Be, Ar, Ni, Ga, Kr, Sn et Fr. Tout d'abord, s'ils sont disponibles avec une intensité suffisante, ces faisceaux d'ions permettront de faire une physique très intéressante [NuP]. Par exemple, un faisceau de ^{132}Sn de 10^{11} ions/s serait suffisant pour l'étude des noyaux en utilisant des réactions de fragmentation. Les prédictions en intensité seront présentées dans le chapitre 6. Les noyaux d'Ar et Kr qui sont facilement relâchés² seraient utilisés afin d'optimiser la diffusion dans des matrices données. Le Fr est le noyau le plus lourd pouvant être ionisés par le processus d'ionisation de surface. Le Ga et Sn serviront de référence même dans des régions loin de la stabilité. Le relâchement des noyaux de Be et Ni qui sont des éléments difficiles, doit être amélioré afin de traiter des cas de physique intéressants.

L'objectif du projet EURISOL [EUR] est d'établir une installation de type ISOL de nouvelle génération afin d'augmenter d'un facteur 1000 les intensités [Ben00] actuellement obtenues (elles atteignent à présent au maximum 10^{11} ions/s). Nous montrerons dans le chapitre 5 qu'un faisceau de protons de 1 à 2 GeV d'une intensité de 100 μA (en incidence directe sur une cible épaisse) ou de plusieurs mA (en incidence sur un convertisseur), permettra d'obtenir de telles intensités.

L'unité cible/source est la partie clé de la future installation puisque les ions radioactifs y sont produits puis extraits avec une certaine efficacité. En particulier, l'étude de la cible et de ses propriétés de relâchement est cruciale. Cette R&D va être soutenue par les travaux du projet TARGISOL [TAR] qui a pour objectif d'optimiser les propriétés de la cible pour chaque isotope. Pour cela, des mesures hors ligne et en ligne qui seront décrites par la suite, sont absolument nécessaires.

Mes travaux s'inscrivent dans le cadre du projet EURISOL et concernent les éléments chimiquement réactifs. Ceci m'a amenée à considérer les propriétés radiochimiques de la cible ainsi que des espèces radioactives vis à vis de leur environnement (cible et source). Une partie des éléments proposés dans le rapport EURISOL, en particulier le C, O, Si, P, S et Ge concernent des objectifs de développement à plus court terme puisqu'ils sont difficilement produits à cause de leur forte réactivité. Dans le contexte d'extrapolation des intensités d'ISOLDE aux conditions d'EURISOL, j'ai participé à la détermination de paramètres pertinents pour l'élément Sn.

2. Ce sont en effet des gaz rares et ce sont donc les éléments les plus volatiles.

Chapitre 2

Description d'un système ISOL et la réalisation de ses différentes composantes à CERN-ISOLDE

Le principe (figure 2.1) de la séparation d'isotopes en ligne (technique ISOL) (voir par exemple la référence [Rav89]) est le suivant. Une cible épaisse¹ est irradiée à l'aide d'un faisceau de particules énergétiques (au moins plusieurs MeV pour les protons) afin de produire par réactions nucléaires des espèces radioactives. La cible est portée à haute température et conçue de façon appropriée afin de permettre aux espèces produites au sein de la cible d'atteindre la source d'ions. Les ions produits sont extraits par une haute tension accélératrice vers un séparateur électromagnétique. Afin d'avoir une statistique suffisante au point de mesure qui est le lieu de l'expérience de physique, un faisceau intense de l'isotope d'intérêt est requis. La production s'exprime par :

$$R = \Phi \cdot N \cdot \sigma \cdot \epsilon_{\text{cible}} \cdot \epsilon_{\text{source}} \cdot \epsilon_{\text{sep}} \quad (2.1)$$

Φ est le flux de particules primaires, N l'épaisseur de la cible et σ la section efficace de production.

Durant le transfert de matière du lieu de production jusqu'au point de détection, certaines pertes ont lieu et sont décrites par le produit de trois efficacités ϵ_{cible} , ϵ_{source} et ϵ_{sep} qui traduisent respectivement les pertes lors du relâchement dans la cible, lors de l'ionisation et lors de la transmission dans la ligne de faisceau. Les paragraphes suivants décriront les différentes parties

1. C'est à dire de dimension beaucoup plus grande que la distance de parcours des produits de réaction. Elles peuvent varier de 3 à 200 g/cm² (soit 0.1 à 1 mol/cm²) suivant la densité des matériaux.

du système ISOL.

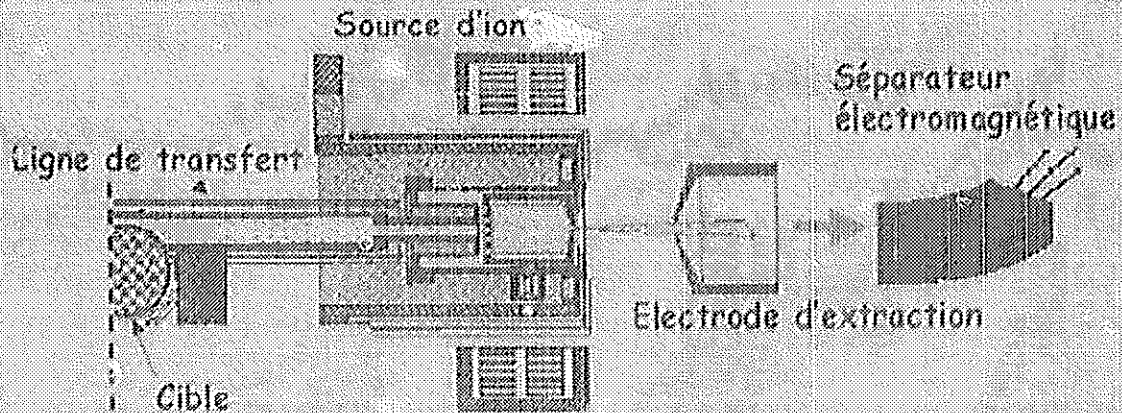


FIG. 2.1 – Schéma du dispositif ISOL: une cible est connectée à une source d'ions de laquelle est extrait par l'électrode d'extraction un faisceau qui sera trié par un séparateur électromagnétique.

2.1 Les réactions de production

Pour un projectile d'énergie donnée, différents mécanismes de réactions peuvent être utilisés afin de produire un noyau se trouvant à un endroit donné du diagramme (N/Z). Ils dépendent du projectile, de son énergie et de la nature de la cible ((A, Z) du noyau cible). Ainsi, pour une installation ayant un accélérateur de faisceau primaire donné, seules certaines réactions seront possibles.

La section efficace de production et la distribution angulaire des produits de réactions sont des paramètres caractéristiques de cette réaction. De plus, il faut tenir compte de la fonction d'excitation qui est la section efficace de production en fonction de l'énergie. Plus la largeur d'excitation est petite (c'est le cas des réactions de fusion-évaporation et de transfert), plus l'épaisseur effective de la cible est petite mais plus la réaction est sélective, c'est à dire produira un nombre de produits de réaction faible. Dans ce cas, des cibles minces doivent être utilisées. En effet, les fonctions d'excitations de ces réactions sont proches les unes des autres. Présentons les principales réactions nucléaires [Mac71] possibles.

2.1.1 La spallation

La spallation est une cascade intranucléaire où un proton incident entre en collision avec un proton ou neutron du noyau. Il transfère une partie de son énergie à un nucléon, puis ces deux particules cèdent à leur tour une part de leur énergie à un autre nucléon et ainsi de suite. Une rapide cascade est ainsi générée suivie de l'évaporation des nucléons due à l'échauffement du noyau. Il perdra d'avantage de neutrons car les protons doivent passer la barrière de Coulomb. C'est pourquoi la spallation donne plutôt des noyaux déficients en neutrons. C'est une réaction devenant dominante pour des n, p et ions (^3He , ^4He) ayant une énergie supérieure à 100 MeV/u. La réaction conduit à un grand nombre de noyaux tels que $(A, Z)_{\text{produits}} \sim (A, Z)_{\text{cible}}$.

Pour ces particules légères, on peut utiliser une cible épaisse. En effet, à 600 MeV, une cible de 150 g/cm² [Ray89] a une longueur d'interaction égale à la longueur de la cible pour un élément de masse d'environ 140. Dans le cas d'ions plus lourds comme le ^{12}C , l'épaisseur effective d'interaction est fortement diminuée.

Le modèle semi-empirique de Silberberg et Tsao [Sil73] permet d'obtenir les sections efficaces de production des isotopes produits par réaction de spallation. Ce modèle n'est cependant fiable que pour les isotopes proches de la stabilité. A titre d'exemple, la figure 2.2 montre les sections efficaces de production d'une cible de Zr irradiée avec un faisceau de protons de 1,4 GeV.

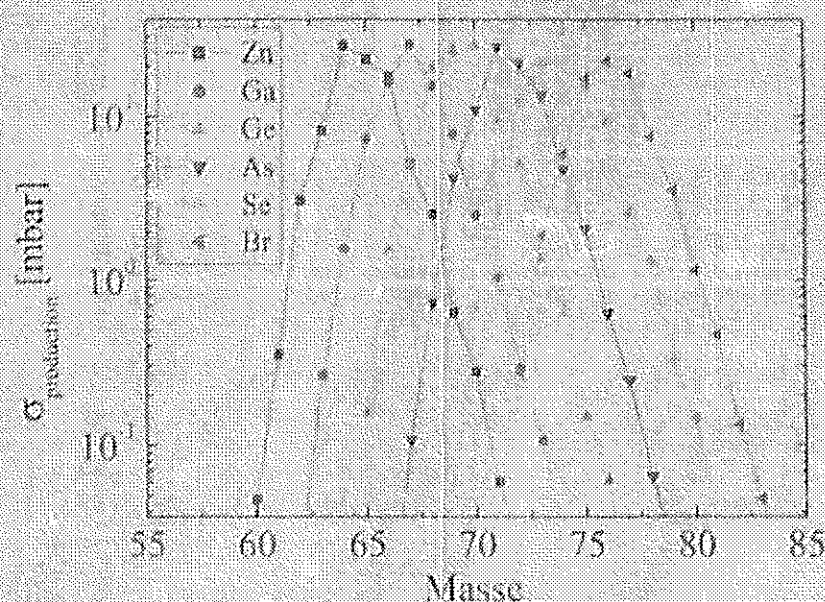


FIG. 2.2 – Section efficace de production calculée, des isotopes produits par spallation d'une cible de Zr irradiée par des protons de 1,4 GeV.

2.1.2 La fission

La fission peut être induite par une particule incidente qui est absorbée par le noyau. Celle-ci lui donne de l'énergie d'excitation conduisant à des oscillations longitudinales. Si cette énergie est suffisante, il peut se former deux "gouttes" qui (si elles ont assez de protons chacune) se repoussent et cassent le noyau en deux. Les deux fragments vont continuer à se repousser par la force Coulombienne et gagnent ainsi environ 1 MeV/nucléon. D'après ce modèle dit "de la goutte liquide", un noyau est d'autant plus fissile que le rapport Z^2/A est grand, ce qui est le cas pour les noyaux lourds. Tous les fragments de fission contiennent une forte proportion de neutrons ce qui fait que cette réaction est prometteuse pour la production d'isotopes riches en neutrons de masses moyennes. Les particules incidentes peuvent être de plusieurs sortes:

- un proton [Mel06]: ce type de réaction est couramment utilisé à ISOLDE pour la fission de ^{235}U . Le code MCNPX [Wat99] permet de calculer la production pour ce type de réactions.
- des neutrons thermiques: le séparateur OSIRIS à Studsvik a permis l'étude du rendement d'une cible de ^{235}U [Rud90]. Le projet MAPP, utilisera ce type de réaction en irradiant une cible de ^{235}U avec les neutrons du réacteur à haut flux FRM-II [Hab97a].
- un neutron rapide [Na99]: dans le programme PARRNe-1, ils sont générés par l'impact d'un faisceau de deutons sur un convertisseur en Be qui est suivi d'une cible de ^{238}U . Un convertisseur en W est utilisé à ISOLDE afin de générer des neutrons de spallation.
- un flux de photons: il est créé par bremsstrahlung grâce à l'impact d'un faisceau d'électrons d'environ 50 MeV sur un convertisseur [Oga98]. Une expérience test a déjà été réalisée avec le dispositif PARRNe auprès de l'injecteur du LEP [Ibr02]. Le succès de cette expérience a donné naissance au projet ALTO sur le site d'Orsay.

2.1.3 La fragmentation

La fragmentation est un processus très rapide lors duquel un noyau lourd se fragmente. A ISOLDE, ce processus intervient lors de l'impact d'un proton sur une cible de Pb. Dans des laboratoires comme le GANIL (avec SPIRAL), des faisceaux primaires d'ions lourds comme le ^{36}Ar [Vil02] (d'une intensité de $2 \cdot 10^{11}$ pps) sont envoyés comme projectile sur une cible en graphite. Dans

ce cas, le processus de fragmentation est utilisé en cinématique inverse. De telles réactions sont souvent associées à un spectromètre en masse de recul car les noyaux sont émis dans un cône étroit, conservant ainsi une direction proche du faisceau incident.

2.1.4 La fusion-évaporation

Elles se produisent avec des projectiles ayant une énergie ≤ 10 MeV/u. La fonction d'excitation a une très courte largeur et donc très peu de canaux de réactions sont permis (par exemple: (p,xn), (α ,xn)...), ce qui confère à cette réaction une sélectivité intrinsèque. Les fonctions d'excitations étant très proches, seules des cibles minces peuvent être utilisées, ce qui implique des taux de production bas. Cette réaction, qui est la seule à pouvoir atteindre des noyaux très lourds, est utilisée à GSI avec SHIP ("Super Heavy Ions Production") pour produire les transuraniens. Par exemple, l'isotope $^{272}111$ a été découvert grâce à la fusion du ^{209}Bi et ^{64}Ni .

Une fois stoppés et purifiés dans une cellule gazeuse, qui est la première partie de SHIPTRAP [Sch01] (futur projet) et qui permet de mesurer la masse des ions superlourds, les ions sont transportés vers le piège de Penning.

Dans le cadre du projet EURISOL, le processus de fusion-évaporation pourrait être utilisé après la post-accelération du faisceau d'ions radioactif (cf. le cas de la fusion froide du Se riche en neutrons en Annexe D).

2.1.5 Réactions de transfert inélastiques

En bombardant une cible de rapport N/Z grand avec un projectile d'énergie légèrement supérieure au seuil d'interaction, il se produit des réactions inélastiques lors desquelles des nucléons sont transférés. Ces réactions peuvent conduire à la production de fragments ayant un rapport N/Z plus grand que celui du projectile. Les réactions de transfert de multi-nucléons ont déjà été utilisées pour la production d'isotopes riches en neutrons, comme par exemple les isotopes du Cr au Ni [Bos85, Bos88] et des lanthanides qui se trouvent en dehors de la région des fragments de fission.

2.1.6 Réactions utilisées à ISOLDE

A ISOLDE, les trois modes de production adaptés aux énergies de protons de l'ordre du GeV et à des cibles épaisses sont la spallation, la fission et la fragmentation. Pour de telles énergies, la distribution des énergies d'excitation est large et donc le nombre de canaux de réaction élevé. Ainsi, un large éventail d'isotopes radioactifs sera produit. Le code ABRABLA [Gai91, Ign95, Jun98]

développé à GSI, permet de calculer les sections efficaces de production pour de telles réactions. La figure 2.3 récapitule les réactions possibles lors de l'impact d'un proton hautement énergétique avec un noyau d'uranium. Les sections efficaces de production dans ce dernier cas ont été récemment mesurées [Ber02].

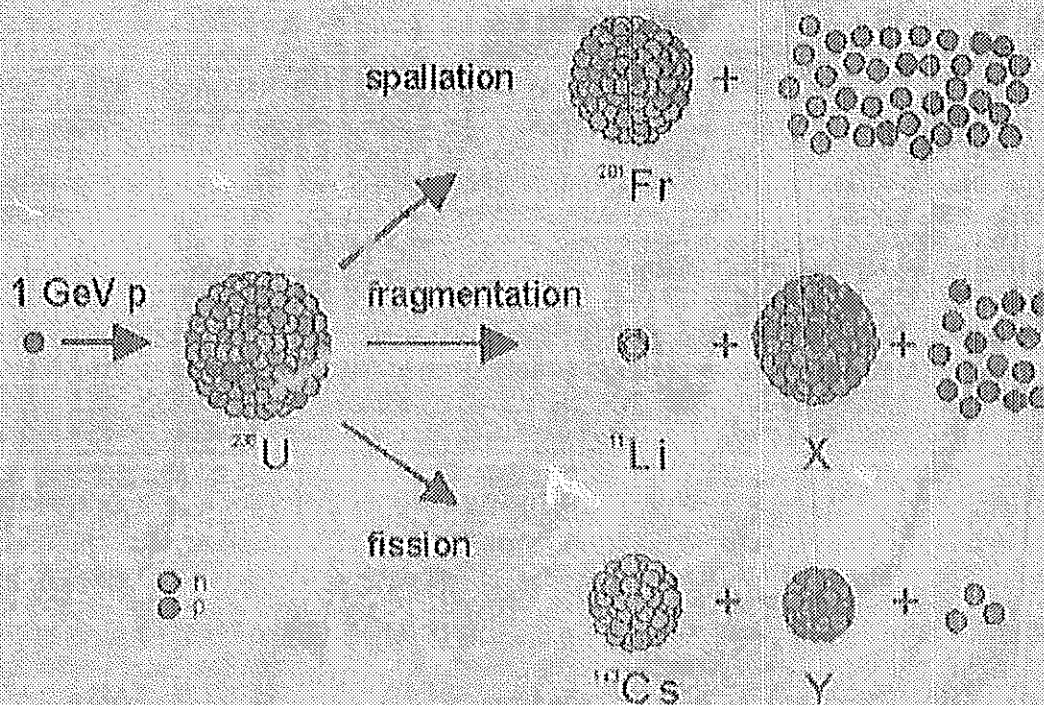


FIG. 2.3 - Réactions résultant de l'impact d'un proton sur un noyau d' ^{238}U : réactions de spallation de fission et la fragmentation.

2.2 Le faisceau primaire à ISOLDE

D'après la formule 2.1, l'intensité du faisceau secondaire d'ions radioactifs est d'autant plus élevée que le flux de particules primaires est important. Les accélérateurs linéaires de protons, d'électrons, de deutons et d'ions lourds se sont considérablement développés afin d'atteindre des puissances de l'ordre de quelques kW. Les cibles ont également été développées en fonction des caractéristiques du faisceau incident (type de particule et énergie).

Le premier séparateur de type ISOL, ISOLDE-1 (qui fut amélioré en ISOLDE-2 puis ISOLDE-3) [Jon00], fut installé au CERN en 1967. Un faisceau primaire de protons de 600 MeV, provenant du synchrocyclotron fut

ensuite remplacé en 1990 par le faisceau de 1,4 GeV délivré par le PS Booster (PSB). Ainsi, ISOLDE, où se sont déroulés mes travaux de développement, a bénéficié de l'amélioration des accélérateurs du CERN qui produisent une vaste variété de particules instables. Le booster du PS (PSB) a été construit afin d'augmenter la luminosité des machines consécutives. Le PSB contient quatre synchrotrons qui accélèrent des protons à des énergies de 1 ou 1,4 GeV [Kug00]. Pour cela, 4 paquets de protons provenant d'un linac sont injectés dans chacun des synchrotrons, accélérés à une énergie de 1 GeV (ou 1,4 GeV) et extraits à 0,6 μ s d'intervalle de chacun des synchrotrons. Un pulse de protons de 2,0 μ s est ainsi construit. En moyenne, 6 pulses de protons sur les 12 pulses délivrés par le complexe accélérateur du PS, sont envoyés sur la cible ISOLDE lors d'un cycle de 14,4 s et un pulse contient typiquement $3 \cdot 10^{13}$ protons. Ceci est équivalent à un courant continu de protons de 2,5 μ A (soit 3,5 kW pour un faisceau de 1,4 GeV). Ainsi, le PSB délivre de très courts pulses de fortes intensités avec un bas temps de répétition (1,2 à 2,4 s).

Les produits de réaction sont relâchés sous forme de paquets caractéristiques. En effet, lors de son impact avec la cible, le faisceau pulsé de protons génère une onde de choc [Rav97]. La forte puissance déposée dans la cible ($P=6$ MW/cm² [Kos02] dans une cible d'UC_x) augmente les contraintes thermiques créant des surchauffes locales et accentuant ainsi la création de défauts. Comme on va le voir, l'un des processus responsable du relâchement est la diffusion. La diffusion étant favorisée par l'existence de défauts cristallins dans la matrice, le faisceau pulsé a pour effet d'augmenter le relâchement. Cependant, cela peut également fortement détériorer la cible lors d'une utilisation prolongée, si la puissance ne peut être suffisamment dissipée.

2.3 La cible ISOL: paramètres physico-chimiques

Après avoir sélectionné le composé de cible en fonction des produits de réaction souhaités, il faut s'assurer que celle-ci va être stable à haute température et qu'elle ne va pas réagir chimiquement avec son environnement (ligne de transfert, source d'ions ...). Nous allons décrire les paramètres thermo-chimiques qui permettent de s'assurer que ces deux critères sont réalisés.

2.3.1 Stabilité à haute température

Le relâchement d'un élément est d'autant meilleur dans un matériau donné que la température de la matrice est élevée. En effet, le processus de diffusion et de désorption est plus rapide. Dans la mesure où le relâche-

ment d'une cible solide poreuse est sensiblement plus rapide qu'une cible liquide [And91], le matériau doit être réfractaire. On chauffera celle-ci à une température inférieure à sa température de fusion.

Ensuite, le diagramme de phase de chaque matériau a été étudié. Il permet d'évaluer les différentes phases qui sont thermodynamiquement stables en fonction des conditions extérieures dans lesquelles se trouve le système. La représentation la plus populaire est la localisation des différents domaines de stabilité des différentes phases (composés stochiométriques et non stochiométriques, solutions liquides ou solides, coexistence de différentes phases, etc.) en fonction de la température et de la fraction molaire des différents composés (composition élémentaire de la cible: par exemple $\text{Ti} + \text{O}$ pour une cible de TiO_2). Quand ce type d'information est disponible, cela nous permet de tenir en compte des possibles changements du matériau de cible durant le chauffage (réactions chimiques, transformations de phase, décomposition par évaporation, etc.). En libérant de l'oxygène lorsque l'on augmente sa température, le TiO_2 ($T_m = 1843^\circ\text{C}$) se transforme en TiO ($T_m = 1750^\circ\text{C}$). C'est pourquoi, il faudra maintenir une température de travail inférieure à $T_m = 1700^\circ\text{C}$. D'après le diagramme de phase du système Ce-S [Mas] représenté sur la figure 2.4, les trois principaux composés existants sont le CeS, Ce_2S_3 et Ce_3S_4 dont les propriétés sont récapitulées dans le tableau 2.1. Lors du chauffage du Ce_2S_3 , ce composé libère du soufre se transformant progressivement en CeS qui est plus stable. Nous reviendrons par la suite sur le comportement thermochimique de ce composé.

sulfides	CeS	Ce_2S_3	Ce_3S_4
couleur	or	noir	rouge
densité [g/cm^3]	5.9	5.3	5.2
$T_m [^\circ\text{C}]$	2442	2050	1890

TAB. 2.1 – Propriétés physico-chimiques du CeS, Ce_2S_3 et Ce_3S_4 ; la couleur des différents composés, la densité ρ et la température de fusion T_m .

Lors de son chauffage, la phase solide de la cible s'évapore et établit un équilibre thermodynamique avec la phase vapeur. Si les énergies de Gibbs² de formation sont connues pour toutes les phases ainsi que pour les molécules gazeuses qui sont potentiellement formées, il est possible, en principe, de calculer la composition de la phase vapeur dans des conditions d'équilibres données. Par exemple, les pressions partielles de toutes les espèces gazeuses produites par évaporation seront déterminées pour une température donnée.

2. L'énergie de Gibbs se définit comme $\Delta G = \Delta H - T\Delta S$ où ΔH est l'enthalpie de formation et ΔS l'entropie.

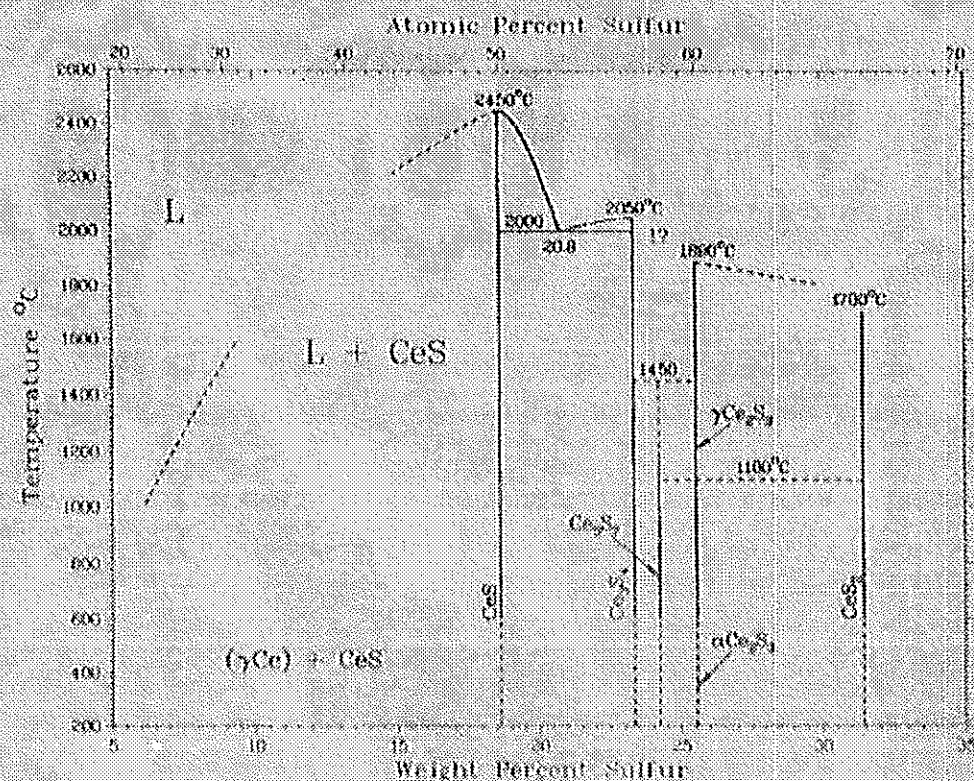


FIG. 2.4 - Diagramme de phase du système Ce-S [Mas].

On détermine également grâce à ce paramètre, si les phases condensées formées sont stables.

Ces calculs peuvent être réalisés à l'aide d'un logiciel thermodynamique implémentant un algorithme dédié à trouver l'état du système qui minimise l'énergie totale de Gibbs. Pour cela, le logiciel est relié à une base de données contenant les données thermodynamiques pour toutes les espèces possibles. Pour nos calculs, nous avons utilisé le logiciel THERMOCALC [Tmc] relié à la base de données SGTE (Scientific Group ThermoData Europe) SUBSTANCES DATABASE [Tmc]. La fraction molaire x_i de chacune des espèces présentes dans la phase vapeur ainsi que la pression totale P_{tot} sont reliées à la pression partielle p_i par l'expression bien connue:

$$p_i = P_{tot} \cdot x_i \quad (2.2)$$

Dans des conditions d'équilibre, comme c'est le cas dans une cellule de Knudsen³, la masse m_i de chacune des espèces i vaporisées du solide en un temps Δt est donnée par l'équation de Knudsen-Hertz-Langmuir:

3. Une cellule de Knudsen est une cellule comportant une ouverture de très faible diamètre par rapport aux dimensions de celle-ci. Cette ouverture sert à l'analyse de la phase

$$m_i = p_i \cdot \Delta t \cdot A \cdot \sqrt{M_i / (2 \cdot \pi \cdot R \cdot T)} \quad (2.3)$$

où M_i est la masse molaire de l'espèce, R la constante de gaz parfait, T la température thermodynamique et A la surface du matériau s'évaporant.

En mettant les bonnes constantes dans l'expression 2.3, on a :

$$m_i[g] = 44,326 \cdot p_i[atm] \cdot \Delta t[s] \cdot A[cm^2] \cdot \sqrt{M_i/T} \quad (2.4)$$

En sommant l'ensemble des contributions, on peut en déduire la **perte totale de masse**. Cette estimation est valable dans le cas où le matériau s'évapore dans une cellule de Knudsen. Dans le cas où la surface s'évapore dans un système ouvert, cette équation nous donne une limite supérieure. Les pertes en masse sont alors obtenues en multipliant cette relation par un facteur α (coefficient d'évaporation) qui est en général significativement plus petit que 1 (en particulier pour les céramiques). Il est aussi important de garder à l'esprit que ces calculs reposent sur les paramètres thermodynamiques des espèces impliquées. Si ces valeurs sont affectées d'une erreur significative, cela se reflétera sur la fiabilité du calcul.

Comme exemple, la figure 2.5 que l'on a établi à partir de calculs thermodynamiques avec THERMOCALC, montre le flux de matière des composés d'oxydes réfractaires chauffés sous vide à une température de 2000 °C. Ceci montre en particulier la tendance d'un oxyde à libérer de l'oxygène. On constate qu'elle est de 7 ordres de grandeur entre le CeO_2 et le ZrO_2 . De plus, la composition des différentes vapeurs effusantes varie selon les cas.

Ainsi, la **pression de vapeur** d'un composé donne une indication sur les pertes en masse par évaporation. Dans le cas d'une source d'ions à plasma de type MK5, celle-ci ne doit pas excéder 10^{-9} mbar [Kir76], ce qui correspond, d'après l'équation de Knudsen-Hertz-Langmuir, à un flux d'environ 10^{-8} mol/s de matériau, afin de ne pas détériorer la source d'ions dans laquelle le flux de gas est injecté. En effet, l'efficacité d'ionisation est très sensible à la pression des neutres injectés.

Enfin, durant le chauffage, la microstructure de la cible peut évoluer à cause du processus de frittage (voir Annexe A). Celui-ci peut entraîner une augmentation de la taille des grains et donc altérer le relâchement des isotopes. Ce processus a été entre autre observé expérimentalement [Car78] par L.C. Carraz et al. pour le carbure d'uranium. Notamment, pour des matrices poudreuses dont la taille des grains est de 1,3 μm ou de 20 μm , le relâchement s'est avéré identique. Ceci s'explique par l'augmentation des grains de petites dimensions du fait du frittage. G.T. Ewan et al. observèrent gazeuse à l'intérieur de la cellule à l'aide d'un spectromètre de masse.

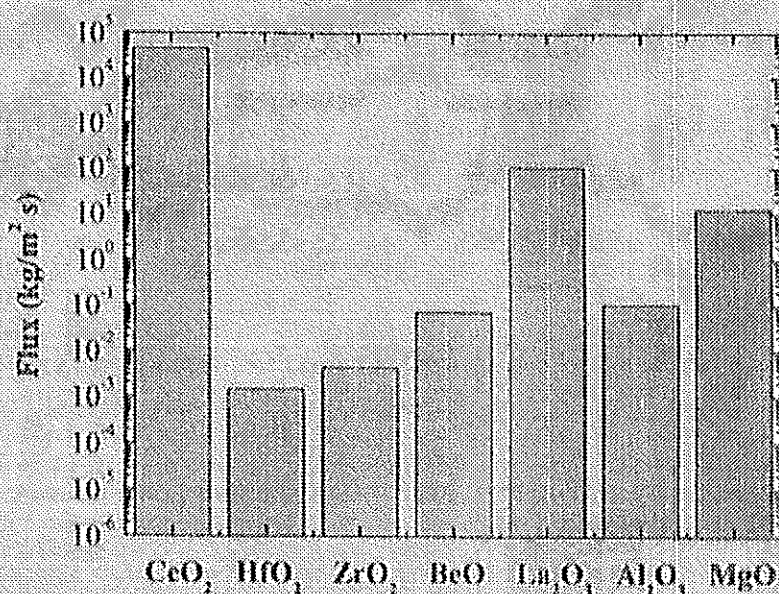


FIG. 2.5 – Comparaison entre le flux de matière de différents composés d'oxyde, chauffés sous vide à une température de 2000 °C.

[Ewa84] ce même phénomène avec une matrice de ThO_2 , pour laquelle une augmentation de la température n'a pas d'effet sur le relâchement. Ainsi, on ne choisira pas de matrice ayant une structure microscopique trop petite ou bien il faudra la stabiliser.

Le ZrO_2 a une température de fusion élevée, cependant à cause de son polymorphisme, une transformation de phase et donc un changement de volume peuvent se produire pendant le chauffage [Ste86]. Le tableau 2.2 présente les variations de structure cristallographique et donc de densité pour trois paliers de température.

structure cristalline	densité [g/cm³]	température [°C]
monoclinique	5,6	<1000
tétraogonale	6,1	1000-1150
cubique	6,3	2350

TAB. 2.2 – Variation de la densité du ZrO_2 pur [Zirb].

Entre 1000 et 1150 °C, une matrice de ZrO_2 pure va progressivement subir des changements de sa structure microscopique ce qui a pour effet d'apporter des contraintes dans le matériau. Le processus d'agglomération des grains (décrit en annexe A) d'une matrice poudreuse de ZrO_2 résultant

d'une modification de sa structure microscopique, va entraîner sa fragilisation ce qui peut mener à sa détérioration. L'addition de certains oxydes comme le CaO , MgO , Y_2O_3 qui ont une structure cubique, permet de stabiliser la structure cristalline du ZrO_2 . Ainsi, les contraintes dans le matériau sont réduites, ce qui a pour effet d'augmenter la résistance aux chocs thermiques. L'oxyde de zirconium stabilisé par de l'oxyde d'yttrium (Y_2O_3) est utilisé sous forme de fibre ou de poudre. Il conserve alors sa nature fibreuse⁴ jusqu'à 2480 °C [Zirb].

2.3.2 Réactivité

Le matériau de cible et les produits de sa vaporisation ne doivent pas réagir avec le container, ce qui peut mener à des phénomènes de dégradation et de corrosion. Pour évaluer l'interaction entre un matériau (ou la vapeur) A et un matériau B, l'énergie de Gibbs de formation (ou bien la chaleur de formation) de tous les produits possibles lors de l'interaction entre A et B doit être évaluée. Moins cette valeur est négative et moins le matériau aura d'affinité chimique vis à vis de la cible et de la phase vapeur existant dans l'environnement de la cible. A titre d'exemple, le tableau 2.3 présente l'énergie de Gibbs de la réaction de différents matériaux de cible avec de potentiels containers. On en déduit qu'un container en Mo serait préférable pour une matrice de CeO_2 et de TiO_2 , tandis que l'on pourra utiliser un container en Ta pour une matrice de ZrO_2 .

container	TiO_2	ZrO_2	CeO_2
Ta	-32,0	254,4	-64,1
Mo	1,7	482,8	-4,7
W	0,9	486,6	-6,5

TAB. 2.3 – *Energie de Gibbs en kJ de la réaction de différents matériaux de cible avec des containers en Ta, Mo et W.*

2.3.3 Les processus de relâchement dans le système ISOL

Si le temps de séjour de l'isotope est long au sein du système de production, les pertes par décroissances radioactives vont limiter le nombre d'atomes détectés. Ceci est d'autant plus critique pour les plus courtes durées de vie.

4. La section des fibres varie entre 4 et 6 μm [Kos03].

La cinétique de transfert d'un isotope donné est limitée par différents mécanismes que sont la diffusion, la désorption et l'effusion. L'efficacité de relâchement ϵ_{rel} est obtenue en intégrant la probabilité $p(t)$ pour qu'un ion de constante radioactive λ_i soit relâché à un instant t avant de s'être désintégré.

$$\epsilon_{rel} = \int_0^{\infty} p(t) \exp(-\lambda_i t) dt \quad (2.5)$$

La fraction relâchée à l'instant t est :

$$F(t) = \int_0^t p(u) du \quad (2.6)$$

Le processus de diffusion

Le transfert des noyaux radioactifs créés dans la cible vers le point de détection se produit par diffusion, c'est à dire un mouvement aléatoire au travers du système de vide. La diffusion dans les solides qui correspond à un transfert de matière est décrite par les deux lois de Fick [Bak90]. La loi décrivant les processus de diffusion et donc l'évolution de la concentration est la première loi de Fick qui pour un milieu isotropique s'écrit :

$$\vec{J}[1/cm^2.s] = -D[cm^2/s] \cdot \vec{grad}(c[1/cm^3]) \quad (2.7)$$

J est le flux instantané d'une certaine espèce, c sa concentration et D le facteur de proportionnalité.

D est appelé coefficient de diffusion. Il dépend de la température et de la pression. Dans un milieu anisotropique, le coefficient de diffusion varie selon les directions et la loi se généralise à :

$$\vec{J} = -\vec{D} \nabla c \quad (2.8)$$

Dans notre cas le coefficient de diffusion varie avec le temps. Ainsi, une équation d'équilibre doit nécessairement compléter la première loi de Fick; c'est l'équation de continuité, qui suppose qu'il n'y a aucune réaction chimique dans le système.

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \text{div} \vec{J} = 0 \quad (2.9)$$

En combinant 2.8 et 2.9, on obtient la seconde loi de Fick :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (2.10)$$

La diffusion d'un atome dans un matériau et pour une température donnée dépend beaucoup du processus utilisé [Bak90] lors de sa diffusion: mécanisme interstitiel, interstitiel - substitutionnel, de lacune.

La diffusion d'impuretés dans les métaux se produit en général par le mécanisme de lacune. Dépendant de l'interaction entre l'atome et la vacance, le coefficient de diffusion de l'impureté sera plus ou moins grand que le coefficient d'autodiffusion. La seconde loi peut-être résolue analytiquement [Car46, Cra56] en utilisant la séparation des variables pour différentes conditions initiales et conditions aux limites. En particulier, elle a été résolue [Cra56, Fuj81, Kir92], pour les trois géométries de cibles utilisées que sont les poudres, les fibres et les feuilles. En supposant que l'isotope est produit uniformément à l'instant $t=0$ dans le solide, la fraction restante dans le solide à l'instant t est :

$$F(t_c) = \frac{2n}{\pi^2} \sum_m c_m^{-1} \exp(-c_m t_c) \quad (2.11)$$

$c_m = (m - 1/2)^2$, $(j_{0,m})^2$ et m^2 pour une feuille ($n=1$) d'épaisseur $2a$, une fibre ($n=2$) et une sphère de diamètres $2a$ ($n=3$). $j_{0,m}$ est la m^{me} racine positive de la fonction de Bessel d'ordre zéro et $t_c = t/t_D$ avec $t_D = a^2/(\pi^2 D) = 1/\mu_0^2$ où μ_0 est le paramètre de délais.

L'activité fractionnelle F peut-être décrite comme fonction de la température. En effet, le coefficient de diffusion D , suit la loi d'Arrhenius :

$$D = D_0 \exp(-Q/RT) \quad (2.12)$$

où D_0 et Q sont les deux coefficients d'Arrhenius.

D'après l'équation 2.11, on détermine analytiquement le coefficient de diffusion D qui permet de modéliser le relâchement dans la cible. Si D est déterminé pour différentes températures, on en déduit par interpolation linéaire (utilisant l'équation 2.12) les coefficients d'Arrhenius. Cette méthode a été utilisée lors de l'analyse des courbes de relâchement des paragraphes 3.1.3.

D'après la référence [Bey77], les critères requis pour une diffusion dite normale sont :

- L'équation d'Arrhenius décrit la courbe $D(T)$ obtenue. Si, ce n'est pas le cas, d'autres processus autre que la pure diffusion peuvent-être en jeu.
- Le facteur D_0 varie entre 0,05 et 5 cm^2/s .
- L'énergie d'activation Q est proportionnelle à la température de fusion T_m suivant la loi empirique $Q[\text{cal/g} \cdot \text{atom} \cdot \text{K}] = 34T_m$.

L'équation 2.5 peut être résolue compte tenu de l'expression de l'activité fractionnelle (équation 2.11). Dans le cas de la diffusion pure, l'efficacité de relâchement ϵ_{rel} est donc de la forme:

$$\epsilon_{rel} \simeq 0,76n\sqrt{\mu_0 T_{1/2}} \quad \text{si} \quad \mu_0 T_{1/2} \leq 0,3 \quad (2.13)$$

Le processus de désorption

Lorsqu'il atteint la surface de la cible, l'ion va diffuser via la ligne de transfert vers la source d'ions par une succession de collisions sur les parois environnantes. D'après la théorie cinétique des gaz, l'écoulement est dit moléculaire, car à très basse pression, le choc des molécules sur les parois jouent un rôle prédominant par rapport aux chocs entre les molécules. Knudsen a montré que tout se passait comme si la paroi absorbait les molécules pour les émettre à nouveau dans une direction indépendante de la direction de la vitesse incidente. Soit n , le nombre de collisions durant l'effusion, le délai minimum passé par l'isotope radioactif durant cette phase d'effusion est:

$$\tau_i = n\tau_c \quad (2.14)$$

où τ_c , est le temps entre deux collisions (de l'ordre de 5 à 20 ms).

En diminuant le volume de la source et en augmentant l'aire de l'orifice de sortie de cette dernière ainsi que la température, on peut minimiser ce délai [Kir81b].

Pendant l'effusion, l'atome ou la molécule peut se "coller" à la paroi pendant un certain temps avant de repartir. Le temps de résidence moyen est décrit par l'équation de Frenkel:

$$\tau_a = \tau_0 \exp(-\Delta H_a/kT) \quad (2.15)$$

avec k la constante de Boltzmann, T la température absolue et τ_0 la période de vibration de la liaison entre la molécule adsorbée et le substrat. Elle est généralement prise autour de 10^{-13} s.

L'enthalpie d'adsorption ΔH_a est tabulée dans les systématiques empiriques d'Eichler et traduit l'énergie qu'il faut fournir pour "arracher" l'ion de la surface. Il dépend du type de matériau et de la température de la surface et traduit la chimie entre l'atome adsorbé et la surface où se produit l'adsorption. En conséquence, le choix des matériaux du système ISOL est primordial afin de réduire le temps de résidence sur les surfaces rencontrées entre la cible et la source d'ions. Des matériaux chimiquement inertes seront préférables. Pour les éléments chimiquement réactifs, il faudra limiter le nombre de collisions avec les surfaces de l'ensemble cible/source, en diminuant par exemple la longueur de la ligne de transfert.

Le délai moyen lors de l'effusion est donc :

$$t = 1/m = (\tau_a + \tau_e)n \quad (2.16)$$

où m est une constante de temps.

La fonction de délai par effusion est par analogie à l'évacuation d'un volume via un orifice :

$$P(t) = \mu \exp(-\mu t) \quad (2.17)$$

En introduisant l'équation 2.17 dans l'expression 2.5 [Kir92], l'efficacité d'effusion peut être exprimée par :

$$\epsilon_{rel} = \int_0^\infty \mu \exp(-\mu t) \exp(-\lambda t) dt = \frac{\mu}{\mu + \lambda} = \frac{1}{1 + \tau \lambda} \quad (2.18)$$

$$\epsilon_{rel} \simeq 1,44 \mu P_{1/2} \quad \text{si} \quad \mu P_{1/2} \leq 0,3 \quad (2.19)$$

2.4 Les sources d'ions utilisées avec la méthode ISOL

Après avoir été créés par réactions nucléaires, les radioéléments doivent être ionisés afin d'être séparés en masse et transférés vers le point de mesure. Etant donné le grand nombre d'isotopes présents à la sortie de la cible, l'ionisation devra être la plus efficace et sélective possible vis à vis de l'isotope d'intérêt. Nous allons donc décrire différents types de sources qui ont été utilisés lors de mes travaux ainsi que de leurs intérêts respectifs.

2.4.1 Sources à ionisation de surface

Lors de l'interaction d'un atome avec une surface métallique, si la fonction de travail ϕ de cette surface est supérieure au potentiel d'ionisation I de l'atome, ce dernier est ionisé positivement. Le principe d'ionisation est récapitulé sur la figure 2.6. Si la fonction de travail ϕ de cette surface est inférieure à l'affinité électronique de l'atome, ce dernier est ionisé négativement. Les sources d'ions qui sont basées sur ce dernier principe, sont appelées source à ionisation de surface négative et n'ont pas été utilisées dans le cadre de ces travaux.

Les propriétés ionisantes sont décrites par la loi de Saha-Langmuir qui exprime le nombre d'ions produits en fonction de I , de la température de la surface et de ϕ [Kir81a]. L'efficacité d'ionisation dépend donc de la température de la surface ainsi que de la pureté de la surface. Ce type d'ionisation est particulièrement favorable à la production d'ions alcalins.

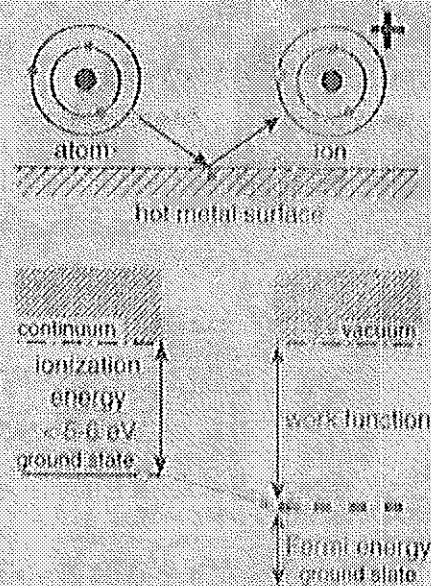


FIG. 2.6 – *Principe d'ionisation par une surface.*

L'efficacité d'ionisation obtenue pour les alcalins est très élevée: elle est comprise entre 50 et 100% [Kir90]. Ce type d'ionisation est également très sélectif vis à vis de ces éléments. Nous avons en effet obtenu des faisceaux de Cs et Rb riches en neutrons d'une très grande pureté isobarique [Lau03] lors d'une expérience sur le séparateur PARRNe. Ceci est confirmé par la spectroscopie γ d'alcalins loins de la stabilité comme le ^{98}Rb ($T_{1/2} = 114$ ms) qui a été clairement identifié.

L'équipe de l'IRIS de Strasbourg a néanmoins mis en évidence l'existence de la contamination d'ions multichargés ($^{140}\text{Xe}^{4+}$, $^{198}\text{Bi}^{6+}$, ...) lors d'une expérience en ligne associant une cible UC_x à une source à ionisation de surface munie d'un tube en W. L'impact des ions ionisés par la surface sur l'électrode d'extraction pourraient expliquer la formation de tels ions. Les électrons résultants de cette interaction sont accélérés vers la source d'ions où ils ioniseraient par impact électronique les atomes se trouvant dans la région d'extraction.

Ce type de source ne peut ioniser qu'une petite partie des éléments. Cependant, elle a l'avantage de la simplicité par rapport aux autres sources d'ions existantes. Ainsi, à TRIUMF, elle a été installée sur le séparateur ISAC pour des faisceaux de protons de fortes intensités (500 MeV, 100 μA) et elle a révélé [Dom03] une bonne tenue aux forts rayonnements.

2.4.2 Sources FEBIAD (Forced Electron Beam Ion Arc Discharge)

Les sources d'ions de type FEBIAD [Kir76, Kir81a] ont été développées afin de s'adapter à l'ionisation des multiples espèces radioactives produites dans un système ISOL et elles permettent une ionisation efficace pour des basses pressions [Kir76].

Les électrons sont produits par le chauffage d'une cathode grâce au principe d'émission thermoélectronique. La densité d'émission (ou de saturation) J_s , traduisant ce pouvoir d'émission, dépend du travail de sortie du matériau et de sa température. Ainsi, le tantale et le tungstène, qui sont des matériaux réfractaires et de bons émetteurs thermoélectroniques⁵, peuvent être utilisés comme matériaux de cathode.

Le flux d'électrons produit par la cathode est forcé vers la chambre d'ionisation qui est à basse pression, par l'anode qui se présente sous la forme d'une grille en graphite située au voisinage de la cathode. Sinon, il existerait une pression minimum pour laquelle la charge d'espace empêcherait au flux d'électrons d'entrer dans la chambre à décharge [Kir76]. La région de décharge est typiquement d'un volume de quelques cm^3 . L'ionisation se produit grâce à la collision dans cette cavité dans laquelle la pression est généralement inférieure à 10^{-5} mbar, d'électrons de 100 à 200 eV [Kir76] avec les éléments provenant de la cible via une ligne de transfert. Le processus mis en jeu lors de cette ionisation, qui est schématisé sur la figure 2.7, est le processus par impact électronique.

Du fait du processus d'ionisation, les sources FEBIAD ionisent de façon peu sélectives. Différents types de sources FEBIAD [Sun92] dont la température dépend des éléments à ioniser, ont donc été développés. Les éléments étudiés durant mes travaux sont chimiquement réactifs et pour la plupart réfractaires. Pour ces éléments, la source MK5 (figure 2.8) qui a une ligne de transfert à haute température ($T_{\text{opér.}} \approx 1900^\circ\text{C}$) doit être utilisée. Dans ce cas, la même alimentation et donc le même courant de chauffage sont utilisés pour la ligne de transfert et la cathode de la source d'ions [Sun92]. Ceci permet, en outre, d'avoir une température homogène et d'éviter les points froids où les éléments les plus réfractaires pourraient être piégés. Pour l'ionisation des gaz rares, la température de la ligne de transfert est maintenue à 50°C à l'aide d'un refroidissement à eau. Ainsi, les éléments non volatiles sont retenus dans la ligne de transfert qui opère donc une sélectivité. Ce type de source est appelé MK7.

L'efficacité d'ionisation, qui est définie comme le rapport entre le nombre

5. A 2200°C , $J_s[\text{Ta}] \approx 1 \text{ A/cm}^2$, $J_s[\text{W}] \approx 0.5 \text{ A/cm}^2$.

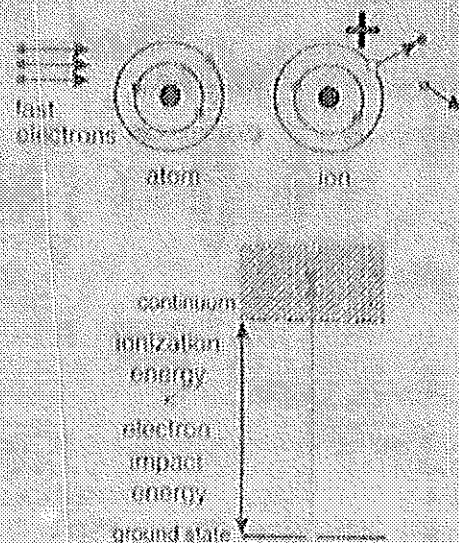


FIG. 2.7 – Principe physique de l'ionisation par impact électronique.

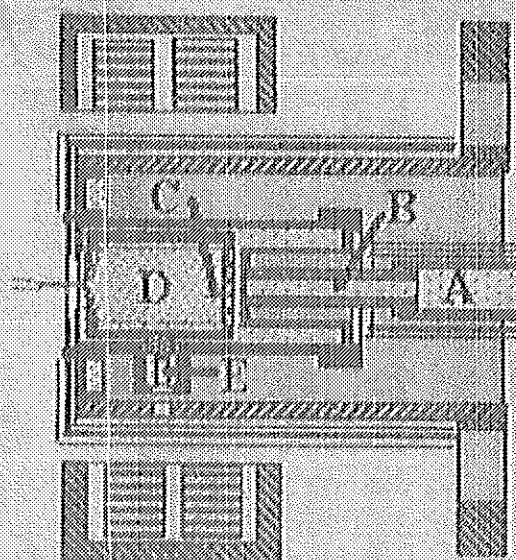


FIG. 2.8 – Schéma de la source à plasma MK5. A: ligne de transfert en Ta, B: cathode en Ta, C: grille d'anode en graphite, D: chambre à plasma en Mo, E: isolant en BeO.

d'atomes ionisés sur le nombre d'atomes injectés, varie suivant les éléments à ioniser. Elle montre en effet une loi d'échelle en $\sigma_{\text{ion}} \sqrt{A}$ avec A la masse de l'élément ionisé. $\sqrt{A}$ est proportionnel au temps moyen passé par un atome au sein de la chambre d'ionisation. Ainsi, un noyau sera d'autant mieux ionisé qu'il est lourd et que son potentiel d'ionisation est bas. Par exemple, nous avons mesuré une efficacité de 4,4% pour l' ^{40}Ar et de 15,2% pour le ^{131}Xe .

Avant toute manipulation en ligne, on doit optimiser les paramètres de la source afin d'obtenir la meilleure efficacité d'ionisation. Les paramètres de source que l'on peut ajuster sont les suivants:

- La tension d'anode: elle a pour effet de changer la température des électrons et des ions et donc la section efficace d'ionisation.
- Le gaz (Ar, Xe, Kr, mélange Ar/Xe...): injecté par une fuite calibrée, il permet de suivre avec précision l'efficacité d'ionisation de la source en cours d'opération. De plus, la fuite permet de contrôler la composition et le débit du gaz (sécurité d'exploitation en ligne).
- Le champ électrique à l'extraction: il dépend de la distance de l'électrode d'extraction et de la tension d'extraction.

Par exemple, les paramètres d'une source d'ions MK5 que l'on a utilisé en ligne, sont récapitulés dans le tableau 2.4.

U(V)	I(A)	Éléments de sources
465	6,8	cible
300	4,2	cathode + ligne de transfert
130	0,1	anode

TAB. 2.4 - *Caractéristiques des paramètres de sources optimisés pour une source MK5.*

Avant chaque utilisation en ligne, nous vérifions les impuretés présentes dans la source d'ions. Un balayage en masse que l'on a effectué avec une source FEBIAD de type MK5, montre d'après la figure 2.9, que les courants les plus importants sont en générale: l'Ar, le CO (dû au dégazage de carbone et d'oxygène) et le Xe. On trouve également des impuretés métalliques qui proviennent de l'usinage des pièces de la source d'ions. Un tel balayage en masse permet d'avoir un diagnostic sur le fonctionnement de la source d'ions et donc de contrôler d'éventuelles anomalies.

L'efficacité d'ionisation dans une source est non seulement liée au processus d'ionisation mais peut également être affectée par la réactivité vis-à-vis des surfaces. Cette dernière agit en effet directement sur le temps de résidence dans la source. L'un des avantages de ce type d'ionisation est de pouvoir ioniser des molécules. On trouvera dans différentes références [Iti02, Kim97, Man00] des mesures expérimentales portant sur la section efficace d'ionisation de l'Ar, Xe, Ne, Kr mais également de molécules comme le CO₂, CO et COS. On constate d'après la figure 2.10 que la fonction décrivant

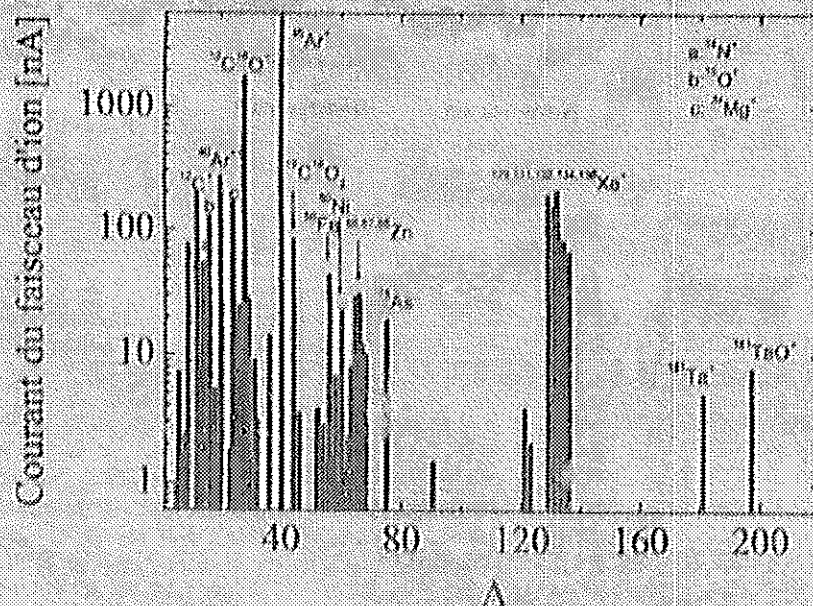


FIG. 2.9 – Courants mesurés avec une source d'ions MK5.

la section efficace d'ionisation des molécules est similaire à celle des atomes. Une section efficace d'ionisation optimum est obtenue pour des e^- possédant une énergie cinétique de 100 eV. De telles données sont utiles pour simuler la section efficace d'ionisation [Leit03].

Ainsi, l'avantage de ce type de source, est la possibilité d'ioniser une vaste étendue d'éléments et de molécules.

2.4.3 L'ionisation LASER

Ce type d'ionisation, souvent appelé RILIS (Resonance Ionisation Laser Ion Source) est basée sur l'excitation de l'électron de valence de l'atome par l'absorption résonante de la lumière du laser et ceci en deux ou trois étapes dans le continuum (le principe est récapitulé figure 2.11). Par exemple, l'étain dont la production a été étudiée durant ma thèse, peut être ionisé avec une source RILIS. Le schéma d'ionisation est basé sur trois transitions résonnantes: $\lambda_1 = 300,9$ nm, $\lambda_2 = 811,2$ nm et $\lambda_3 \leq 832,5$ nm. Pour cela, après avoir été relâchées de la cible, les isotopes radioactifs diffusent vers un tube (actuellement en W ou Nb) qui est chauffé à une température comprise entre 1800 et 2200 °C. Deux ou trois faisceaux laser sont colinéaires à l'axe de cette cavité [Mis93].

Cette méthode est la plus sélective pour ioniser un élément donné. Cependant, à cause de la présence d'une surface métallique chaude, on observe

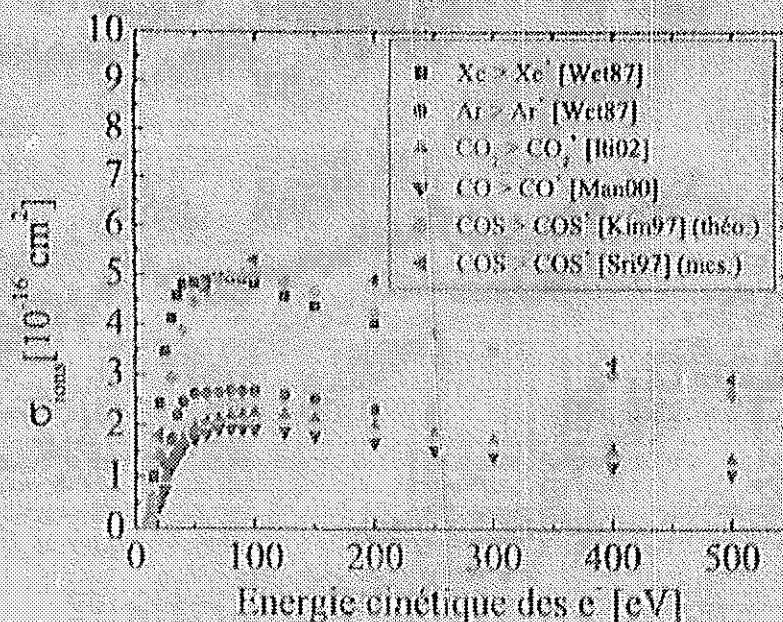


FIG. 2.10 - Section efficace d'ionisation par impact électronique, établie à partir de paramètres expérimentaux. Dans le cas du sulfure de carbonyle les points expérimentaux et théoriques sont comparés.

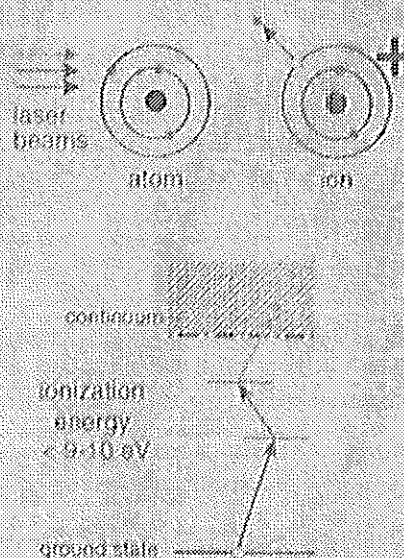


FIG. 2.11 - Principe d'ionisation laser.

l'ionisation des éléments ayant un faible (alcalins) et moyen (Ga, In et Tl) potentiel d'ionisation IP. On a observé une forte contamination provenant des alcalins. La température de la cavité pourrait être diminuée, cependant le temps de désorption serait augmenté et ceci au désavantage de l'isotope

d'intérêt. Parmi les développements envisagés pour réduire la contamination des alcalins, un nouveau développement de RHIS a récemment été proposée [Bla03]. Un potentiel est introduit à la sortie de la ligne de transfert qui repousse les ions qui y ont été ionisés. Cependant, il reste à prouver que la perte en efficacité ne sera pas trop importante avec un tel système. Cette méthode d'ionisation ne permet cependant pas d'ioniser des molécules qui ont de multiples niveaux de vibration et de rotation. Dans ce cas, on utilisera une source d'ions FEBIAD.

L'efficacité d'ionisation qui dépend fortement de la puissance du laser pulsé et surtout de la cadence de répétition, atteint quelques dizaines de % [Let97, Kos02]: nous avons obtenu respectivement pour le Ga et le Sn, 20 et 10 %.

Avec une telle méthode, seuls les métaux (comme l'Ag, Ni, Cu ...) sont efficacement ionisés. Les schémas d'ionisation de 22 éléments ont pour l'instant été réalisés [Fed00, Kos02a]. Pour le projet EURISOL (voir le rapport EURISOL [EUR]), une telle source mériterait d'être étendue à une plus vaste variété d'éléments du fait de la haute sélectivité de la méthode. Des efficacités de l'ordre de 50% pourraient être attendue pour les métaux [EUR].

2.5 Le séparateur d'ISOLDE

Après extraction de la source d'ions, le faisceau d'ions est accéléré avec un potentiel de quelques dizaines de kV. Le faisceau est enfin envoyé vers différents sites expérimentaux grâce à des éléments électrostatiques (lentilles quadrupolaires, déviateurs, ...). Le diagnostic de faisceau est réalisé à l'aide de cages de Faraday et scanners afin d'optimiser la transmission.

A ISOLDE, le "front-end" sur lequel est connecté l'unité cible/source via une bride d'accouplement permet d'extraire puis d'accélérer les ions à l'aide d'un gap d'accélération de 60 kV (à SPIRAL [Vil03], le potentiel est de 36 kV). Le faisceau pulsé de protons pouvant atteindre des courants crête de 2,5 A, ionise l'air sur son passage. Pour éviter des claquages lors de son impact avec la cible, la haute tension est pulsée: elle est rétablie 5 ms après l'impact.

Deux systèmes de séparation, le GPS (General Purpose Separator) et le HRS (High Resolution Separator) permettent la distribution du faisceau à l'ensemble des sites expérimentaux (voir la figure 2.12).

Les éléments optiques du HRS sont tous électrostatiques à l'exception de deux aimants [Gil03]. À la sortie de ce système dispersif et focalisant qu'est le HRS, la séparation Δx entre deux faisceaux de masses m et $m + \Delta m$

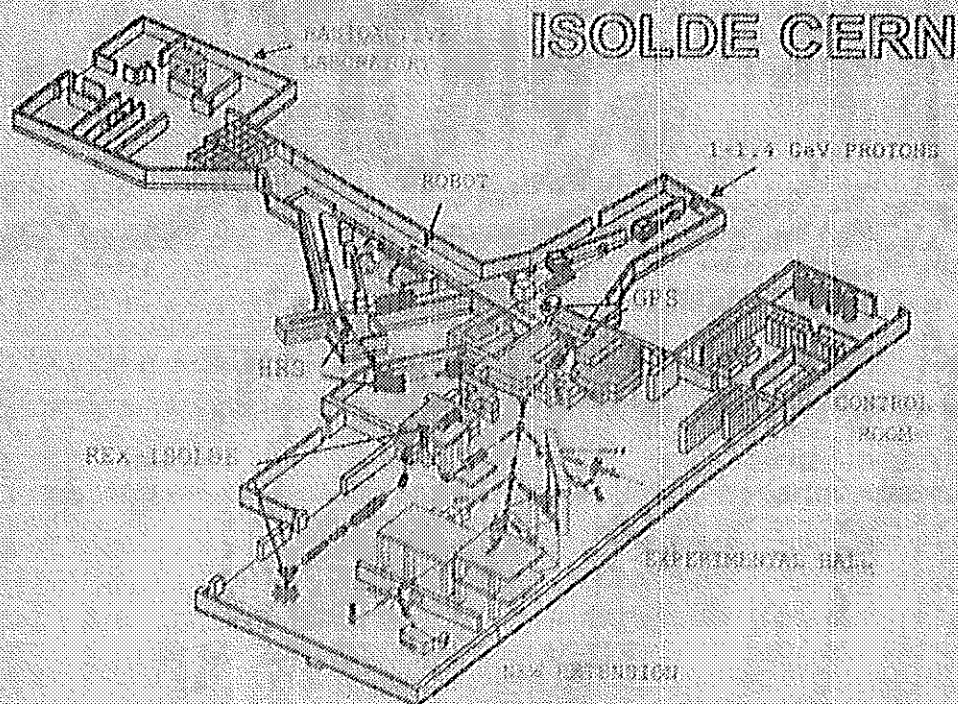


FIG. 2.12 - Séparateur ISOLDE et ses différents sites expérimentaux.

s'exprime selon:

$$\Delta x = D \frac{\Delta m}{m} \quad (2.20)$$

où la dispersion D est de 2,7 m pour le HRS. Le pouvoir de résolution est donc donné par:

$$P_R = \frac{\Delta m}{m} \frac{\Delta x}{\delta x} = \frac{D}{\delta x} \quad (2.21)$$

où δx est la largeur de l'image dans le dernier plan focal. En conséquence, une image d'une largeur de 1 mm sera obtenue avec une résolution maximum de 2700.

Le GPS et HRS pourraient respectivement atteindre des pouvoirs de séparation de 2400 et 7000 [Kug00]. Il n'est cependant pas possible de séparer tous les isobares avec de telles résolutions. Sur la figure 2.13 est représentée la différence en masse relative des possibles contaminants isobariques lors de la séparation du sélénium riche en neutrons. En supposant une résolution de 6000 pour le HRS, la distance en masse minimum qu'il est possible de séparer est supérieure à la largeur des bandes qui ont été représentées sur la même figure. On constate qu'il faudrait un pouvoir de résolution supérieur à 10000 pour commencer à séparer les contaminants. De tels séparateurs ont été discutés dans le cadre du projet EURISOL [EUR], cependant il faut s'attendre

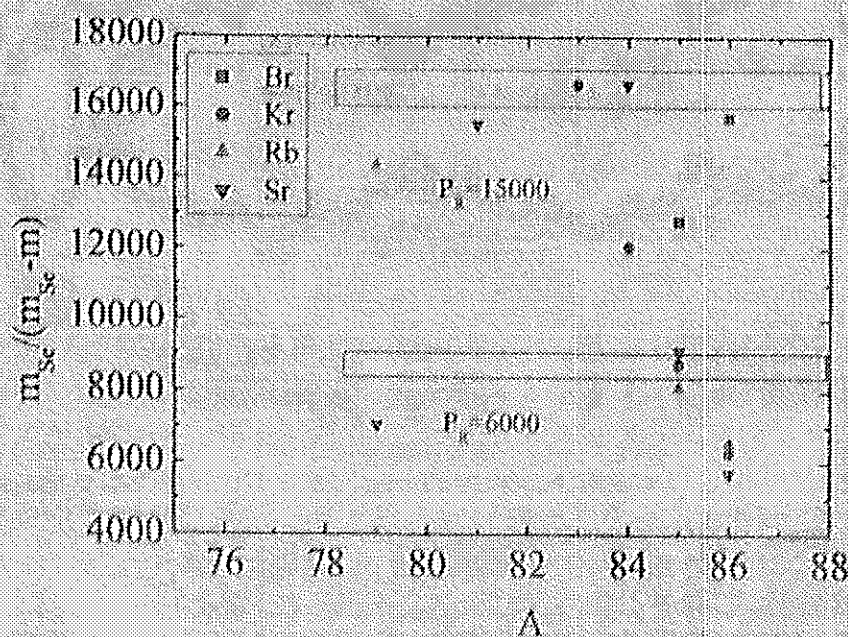


FIG. 2.13 - Différence en masse relative de l'ensemble des isobares contaminants les isotopes de sélénium riches en neutrons $^{79-86}\text{Se}$. Les isobares se trouvant dans une bande dont l'aire dépendant du pouvoir de résolution P_R du séparateur, ne seront pas séparés.

à une diminution de l'efficacité de séparation, d'où le grand intérêt pour l'utilisation de méthodes chimiques afin d'avoir une meilleure sélectivité.

2.6 La méthode IGISOL

Développée à l'université de Jyväskylä [Arj85] et de Leuven puis dans d'autres laboratoires dans le monde comme à RIKEN [Mor92, Ina92], la méthode IGISOL (Ion-Guide Isotope Separator On-Line) [Den97, Kud01] est décrite comme ceci. Des réactions de fission (avec de ^{238}U) [Den97] ou de fusion-évaporation sont induites dans une cible mince. Les fragments énergétiques produits, sont ralentis et thermalisés dans un gaz d'hélium puis transportés par un flux gazeux jusqu'à l'électrode d'extraction.

L'avantage de cette méthode est qu'elle permet d'obtenir des faisceaux d'éléments réfractaires même de durée de vie très courte ($T_{1/2} < 1 \text{ ms}$) comme le Nb, Mo, Tc, Ru et Rh qui sont disponibles avec des intensités pouvant atteindre 10^5 ions/s [Den97]. Avec d'autres installations de type ISOL (ISOLDE), où la chimie des éléments est un facteur limitant leur production, ces éléments, du fait de leur forte affinité chimique, restent inaccessibles.

Cependant, il est difficile d'obtenir des faisceaux intenses avec cette méthode. Pour les réactions de fusion-évaporation induite par des protons, des efficacités de 1 à 10% [Arj85] peuvent être atteintes. Mais si ces réactions sont induites par des ions lourds ou bien pour des réactions de fission, l'efficacité globale chute autour de 0,01% [Den97]. En fait, si le dépôt en énergie du faisceau incident est supérieure à $5 \cdot 10^{16}$ eV/s [Den97], le gaz d'hélium est ionisé et ces effets de plasma entraînent donc une diminution de l'efficacité.

A l'heure actuelle, l'intérêt de la méthode IGISOL est la production de faisceaux d'ions radioactifs réfractaires non accessibles par la méthode ISOL. Cependant, les efficacités globales sont loin d'atteindre celles obtenues avec la méthode ISOL. S'il existe une méthode de séparation, permettant de volatiliser un élément réfractaire donné, cette dernière sera toujours avantageuse.

2.7 Conclusion

Une méthodologie d'optimisation d'un système ISOL serait la suivante:

- Choix de la cible ayant une section efficace de production optimale, de bonnes propriétés thermiques et un relâchement favorable pour l'isotope d'intérêt.
- Optimisation de la géométrie de la cible à l'aide de simulation Monte Carlo [Leit03].
- Sélection de la meilleure source d'ions et détermination de l'efficacité d'ionisation.
- Détermination des pertes globales dans le système à l'aide de simulation Monte Carlo [Leit03].
- Evaluation des intensités finales.

Tout d'abord, les noyaux cibles seront choisis en fonction des produits de réaction souhaités. Le matériau de cible est ensuite sélectionné en fonction de ses propriétés de relâchement vis à vis du noyaux d'intérêt. Les paramètres de relâchement sont donc indispensables. On les détermine à partir de mesures hors ligne pour un petit échantillon de cible. Ces données pourront par la suite être extrapolées à l'aide de simulation Monte Carlo au volume réel de la cible. Suivant les propriétés physico-chimiques de l'élément d'intérêt, le type d'ionisation et donc la source d'ions seront choisis. Après avoir déterminé l'efficacité d'ionisation, on pourra évaluer les pertes globales dans le système ISOL et en déduire les intensités.

Chapitre 3

Les développements pour l'amélioration de l'efficacité d'un système ISOL

Le développement des faisceaux d'ions radioactifs n'est possible que par le développement de l'ensemble cible/source. Afin d'atteindre de fortes intensités (cf. le projet EURISOL chapitre 2), d'après la formule 2.1, l'efficacité de relâchement et l'efficacité d'ionisation doivent être optimisées.

En particulier, les efficacités de relâchement obtenues qui sont de l'ordre du % ou de la dizaines de % peuvent être améliorées. Par exemple, au GANIL, l'efficacité de diffusion de ^{46}Ar a été multipliée [Pel02] par un facteur 10 en diminuant la taille des grains de la matrice de graphite de 15 à 1 μm . A ISOLDE-CERN, la production des isotopes ^7Li ($T_{1/2} = 8,5 \text{ ms}$) et ^{12}Be ($T_{1/2} = 21,5 \text{ ms}$) a été augmentée [Ber02] de plus d'un ordre de grandeur en utilisant une cible constituée de feuilles de Ta de 2 μm au lieu de 20 μm d'épaisseur.

Comment améliorer les efficacités de relâchement d'un système ISOL? Tout d'abord, en déterminant les paramètres liés aux processus de relâchement de l'isotope d'intérêt dans l'ensemble cible/source. Des données expérimentales sont donc nécessaires pour décrire le relâchement d'un élément par la fonction $F(t)$ et donc $p(t)$ (cf. chapitre 2). En effet, cela permet de comprendre ce qui le limite.

De nombreux travaux ont déjà été effectués [Bey76, Car78, Car79, Hof84, Bjø86b, Bjø87] à cette fin, permettant d'élargir la variété des cibles exploitées et donc les faisceaux d'ions radioactifs produits à ISOLDE. R. Kirchner a également effectué de nombreux travaux sur les processus de relâchement à GSI [Kir92]. Par une série de mesures, il a commencé à établir une base de données expérimentales (coefficient de désorption, temps de désorption, etc.)

exploitables pour le développement des cibles épaisses.

Mes travaux, dans le prolongement des développements passés, portent sur ces éléments chimiquement réactifs. Les résultats présentés proviennent tant de mesures en ligne (relâchement de l'ensemble cible/source) que hors ligne (relâchement de différentes matrices cibles).

3.1 Mesures en ligne

3.1.1 Description du dispositif expérimental

La méthode utilisée à ISOLDE consiste à implanter sur une bande en mylar aluminisée, différents isotopes produits en ligne. Tout d'abord, on envoie un pulse de protons sur la cible. Après un délai t_d variable, on laisse passer les produits jusqu'à la bande de détection. Le faisceau est alors collecté pendant un temps t_c . Les ions collectés sont analysés par un détecteur $4\pi\beta$ en déroulant la bande à travers un scintillateur plastique. En faisant varier t_d de 0 jusqu'au temps voulu (par exemple la durée d'un supercycle), on produit ainsi une courbe de relâchement. On répète l'opération afin d'obtenir une statistique suffisante.

Avec un détecteur $4\pi\beta$, il n'est pas possible d'identifier clairement un isotope donné, sachant de plus que l'ensemble des isobares est présent sur la bande. Il nous est possible, par un logiciel développé dans ce but, de déduire en ligne une période de décroissance moyenne. On peut donc avoir une idée de l'isotope le plus abondant sur la bande. Nous devons ainsi choisir un isotope dont le faisceau contient peu de contaminants.

Le profil de la courbe de relâchement obtenu peut être décrit par la somme de trois exponentielles [Let97]:

$$p(t) = C \cdot (1 - \exp(-t/t_r)) [\alpha \cdot \exp(-t/t_f) + (1 - \alpha) \cdot \exp(-t/t_s)] \quad (3.1)$$

où t_r est le temps caractérisant la vitesse de montée, t_f le temps caractérisant la composante rapide du relâchement, α la contribution relative de la composante rapide et t_s le temps caractérisant la composante lente du relâchement. La constante C permet de normaliser cette fonction avec l'intensité mesurée.

Par exemple, la figure 3.1 représente la courbe de relâchement du Rb produit dans une cible de ZrO_2 connectée à une source FEBIAD de type MK5.

Un programme établi par Uffe Bergmann [Ber02c] permet de faire varier ces 4 paramètres afin de décrire la courbe expérimentale de relâchement. Il tient en outre compte de la décroissance des descendants en soustrayant

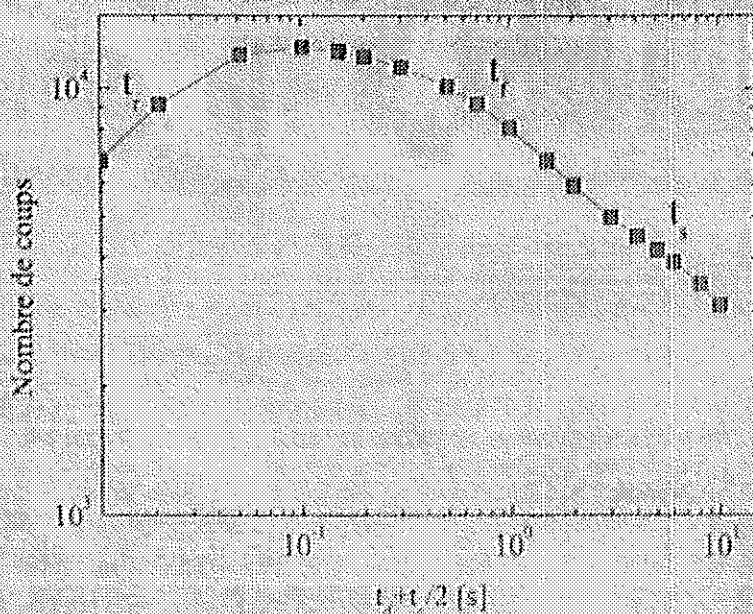


FIG. 3.1 – Relâchement du Rb d'une cible de ZrO_2 connectée à une source MK5 [Sun92].

leur contribution. Afin de reproduire au mieux les courbes obtenues par le détecteur $4\pi\beta$, le programme soustrait la contribution des descendants.

Nous avons déterminé avec cette méthode expérimentale, la courbe de relâchement de l'étain d'une cible d' UC_x combinée à une source laser (figure 3.2). Les paramètres de fit de cette courbe sont $\alpha = 0,99$, $t_r = 70$ ms, $t_f = 6$ s et $t_s = 50$ s. Ils indiquent que le Sn est difficilement relâché par rapport à l'Ar dont les paramètres de fit sont $\alpha = 0,96$, $t_r = 38$ ms, $t_f = 300$ ms et $t_s = 2,03$ s pour une cible d' UC_x connectée à une source MK7.

Un tel modèle empirique n'a pas de réelle signification physique. Cependant, qualitativement, on peut dire que t_r qui décrit la partie montante de cette courbe est relié au délai intrinsèque dans la source d'ions. t_f et t_s décrivent la partie descendante de cette courbe et contiennent une information sur la désorption et la diffusion dans la source d'ions.

3.1.2 Étude d'une cible de ZrO_2

La cible utilisée pour nos mesures en ligne est composée de fibres de ZrO_2 (voir le paragraphe 2.3.1) et a une épaisseur de $5,8$ g/cm² en Zr. Son étude a été motivée par la production d'isotopes d'intérêt chimiquement réactifs comme le Se, Br et As.

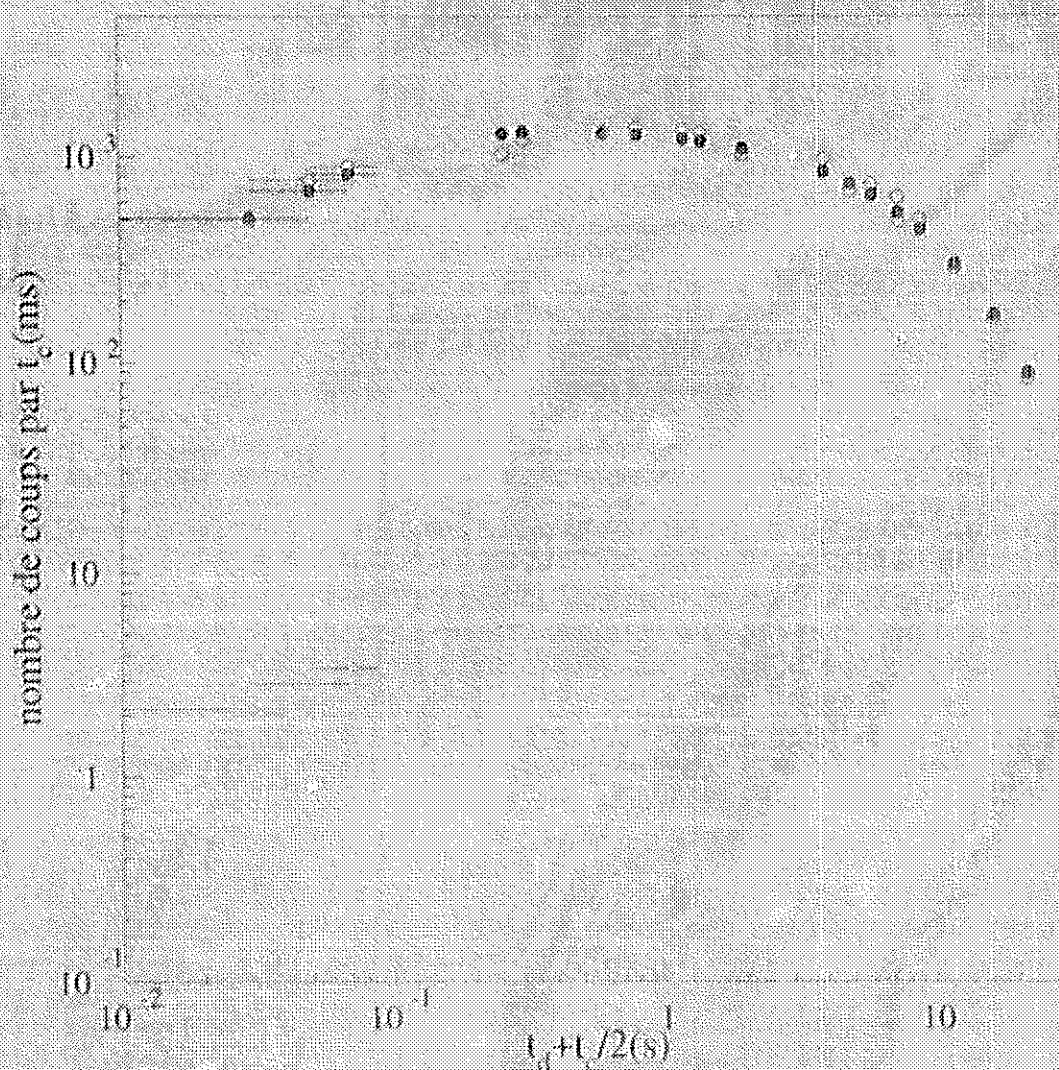


FIG. 3.2 - Courbe de relâchement de l'isotope ^{132}Sn : les cercles vides représentent les points de mesure, les cercles remplis les résultats du fit et les carrés la contribution du ^{132}Sb . Les paramètres de relâchement correspondants sont $\alpha = 0,99$, $t_s = 70 \text{ ms}$, $t_f = 6 \text{ s}$ et $t_a = 50 \text{ s}$.

Le relâchement du Br

Le Br qui appartient à la famille des halogènes, se combine facilement à d'autres atomes et est donc un élément difficilement relâché. Recherchant un composé moléculaire susceptible d'être volatil, nous avons observé la molécule AlBr . La production mesurée est présentée sur la figure 3.3.

A titre d'exemple, elle est comparée avec celle obtenue avec une cible métallique de Nb (d'après le code de R. Silberberg et C.H. Tsao [Sil73], la section efficace de production est similaire dans le Zr et Nb). La production

de l'AlBr est en général plus faible que celle du Br. Ceci s'explique tout d'abord par la différence d'épaisseur des deux matrices (voir figure 3.3). Cependant, même si la cible de ZrO_2 est 13 fois moins épaisse que celle de Nb, la production de l'isotope ^{81}Br ($T_{1/2} = 32$ m) est égale à celle obtenue avec la cible de Nb. La production du ^{71}Br ($T_{1/2} = 2,2$ s) est même supérieure. Ceci indique que le relâchement est meilleur que dans le cas d'une matrice de ZrO_2 . L'utilisation d'une telle molécule dans une matrice d'oxyde est donc favorable au relâchement du Br.

Il a été observé un rapide relâchement du Br d'une cible de ^{233}U à OSIRIS, ce qui s'explique probablement par une contamination de la cible par des alcalins. Ces derniers, combinés avec le Br favoriseraient le relâchement.

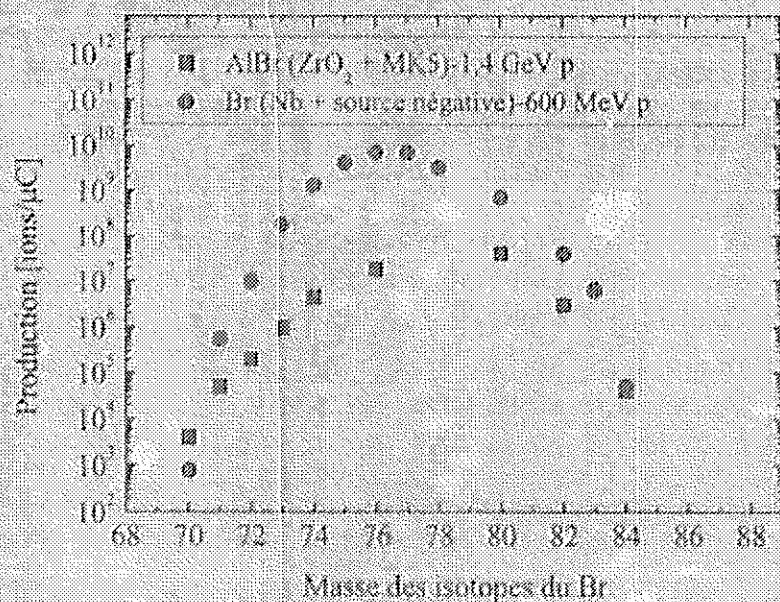


FIG. 3.3 - Production du Br dans une matrice de Nb d'une épaisseur de 85,2 g/cm² connectée à une source à ionisation de surface négative et dans une matrice de ZrO_2 d'une épaisseur de 6,3 g/cm² connectée à une source MK5.

En raison de la cinétique des réactions chimiques, la courbe de relâchement d'un composé moléculaire ne permet pas de déduire directement la dynamique du relâchement de la molécule. Par exemple, la courbe de relâchement de AlBr est singulièrement plate (voir figure 3.7).

Nous avons vu que le mode de production des fibres de ZrO_2 entraînait une contamination en Al. Nous avons mesuré lors de notre expérience en ligne des courants maximum de l'ordre de 0,9 μA d'Al stable. En ajoutant un facteur 10 d'Al dans la cible actuelle de ZrO_2 , on pourrait donc peut-être améliorer la production de l'AlBr.

Le relâchement du Ga

L'étude du relâchement du Ga est motivée par l'intérêt physique des isotopes du Ga. En effet, cet élément figure dans la liste NuPECC [NuP]. Nous avons mesuré la production du Ga (figure 3.4) lors de l'irradiation d'une cible fibreuse de ZrO_2 (la section moyenne des fibres est de 4-6 μm) d'une épaisseur de 6,3 g/cm² et qui est combinée à une source laser. L'ensemble a été irradié avec un faisceau de 1,4 GeV. Ces mesures sont comparées à la production d'une cible identique mais qui est connectée à une source FEBIAD de type MK5 et irradiée avec un faisceau de 0,6 GeV. D'après le code de R. Silberberg et C.H. Tsao [Sil73], qui reproduit assez bien les sections efficaces pour les isotopes proches de la vallée de la stabilité, le rapport entre les sections efficaces de production pour ces deux énergies ne diffère que d'un facteur 3. On déduit du fait que la production est similaire dans les deux cas, que l'on obtient une efficacité d'ionisation similaire dans les deux types de sources. Le Ga peut également être ionisé avec une source à ionisation de surface en tungstène, cependant la production est multipliée d'un facteur 20 lorsque l'on y ajoute une source laser. L'ionisation laser est donc très intéressante dans le cas du Ga pour lequel on obtient des efficacités d'ionisation de 20%.

D'après la courbe de relâchement (figure 3.5) du Ga produit dans une cible fibreuse de ZrO_2 , les paramètres sont $\alpha=0,89$, $t_1=30$ ms, $t_2=450$ ms, $t_3=7,9$ s. Si l'on compare ces paramètres à ceux du Li relâché d'une cible de ZrO_2 équipée d'une source MK5 ($\alpha=0,71$, $t_1=90$ ms, $t_2=938$ ms, $t_3=12,7$ s), on en déduit que le Ga est très bien relâché d'une matrice fibreuse de ZrO_2 .

Afin d'améliorer la production, nous avons fabriqué une cible plus dense (8,5 g/cm²) en comprimant annuellement une plus grande quantité de fibre. La production obtenue pour les isotopes $^{63-71}\text{Ga}$ est plus grande de 50% cependant celle du ^{62}Ga ($T_{1/2}=116$ ms) reste inchangée, car la production dans la cible est compensée par une basse efficacité de relâchement dans le cas d'une cible dense.

Le relâchement de l'As

Les isotopes de longue durée de vie de As sont relativement bien produits à ISOLDE. Les productions que nous avons mesurées pour une cible de ZrO_2 sont présentées dans la figure 3.6.

Cependant, As, un métalloïde appartenant au groupe 15, montre un relâchement singulièrement long (figure 3.7). Ce comportement peut être attribué d'une part à un temps de désorption considérable (environ 30 ms sur Ta d'après le modèle de Eichler-Miedema [Eic85, Bak98]) et d'autre part à la formation de composés chimiques. Cela nous a mené à chercher des composés

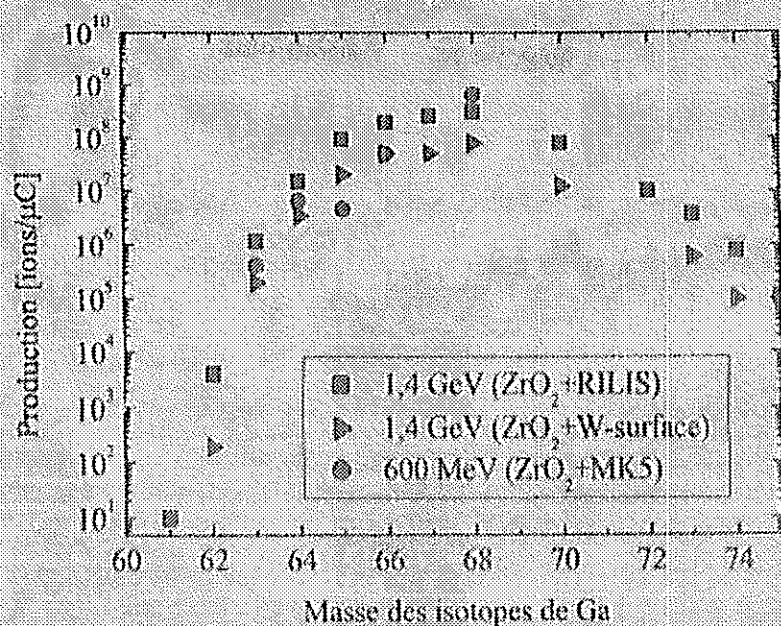


FIG. 3.4 – Production à ISOLDE du Ga dans une matrice de ZrO_2 connectée à différentes sources d'ions.

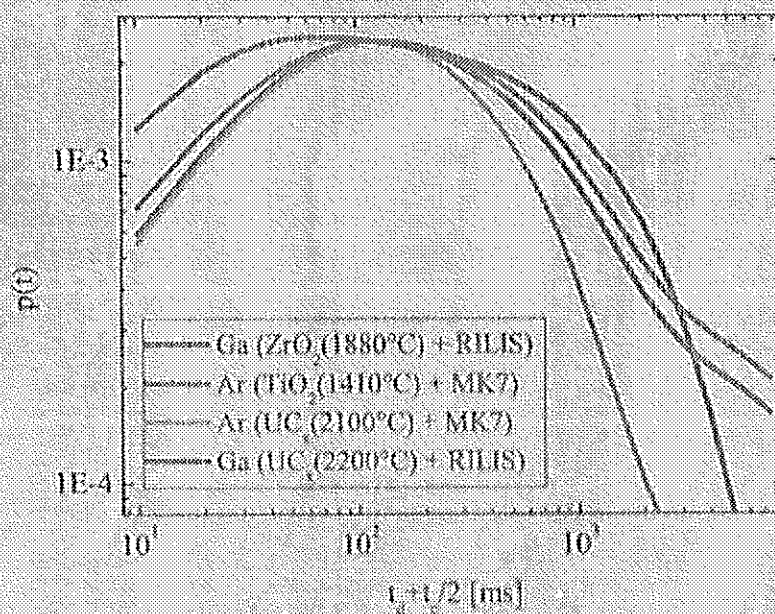


FIG. 3.5 – Courbes de relâchement des Ar et Ga de différents ensembles cible/source. Ces courbes, qui résultent du fit des points expérimentaux, ont été normalisées à l'unité.

de As plus volatiles comme la molécule AsAl . Mais l'on obtient des productions d'un ordre de grandeur inférieur à ceux de As sous forme atomique. De

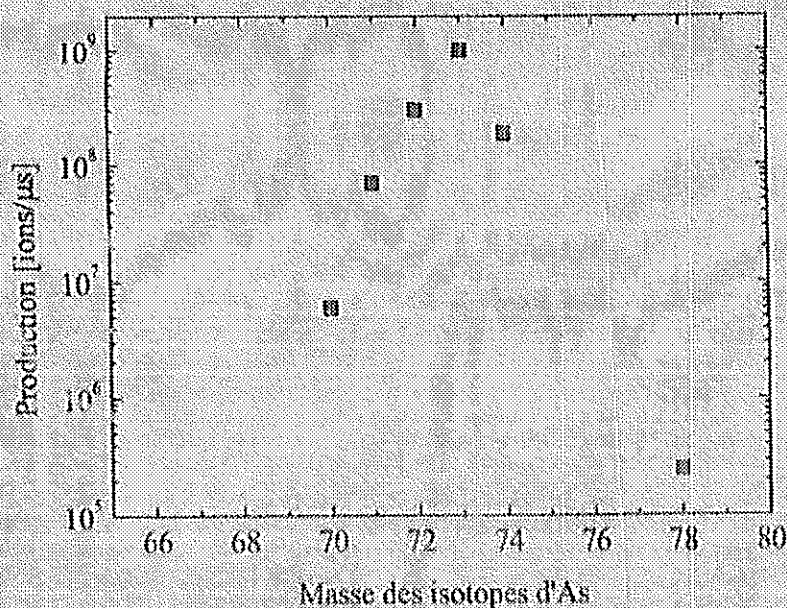


FIG. 3.6 – Production à ISOLDE (protons de 1,4 GeV) de As dans une cible de ZrO_2 connectée à une source FEBIAD de type MK5.

nouvelles idées sur une séparation chimique sont envisageables, comme par exemple l'utilisation de la molécule AsH_3 (à 1500 °C, la tension de vapeur de cette molécule est de 0,5 bar [Stu47], ce qui montre qu'elle est très volatile).

Le relâchement du Se

L'étude de la production du Se est détaillée dans le chapitre suivant. De la même façon que pour le Br et le As, nous avons cherché pour le Se, non métal du groupe 16, un composé volatile. Comme cela sera expliqué plus tard, nos études ont porté sur la molécule COSe . De la même façon que pour AlBr , la courbe de relâchement ne permet pas de déduire d'information sur la cinétique du relâchement du COSe , molécule particulièrement volatile.

Conclusion

En décrivant les courbes de relâchement mesurées en ligne par la paramétrisation développée à ISOLDE (équation 3.1), nous pouvons obtenir des indications sur la dynamique du relâchement. Cependant, il est difficile de distinguer les différents processus impliqués dans le relâchement. Des mesures hors lignes permettent de mieux étudier l'importance de la diffusion et de la désorption dans le relâchement. Nous allons donc poursuivre les études de relâchement avec des mesures hors ligne.

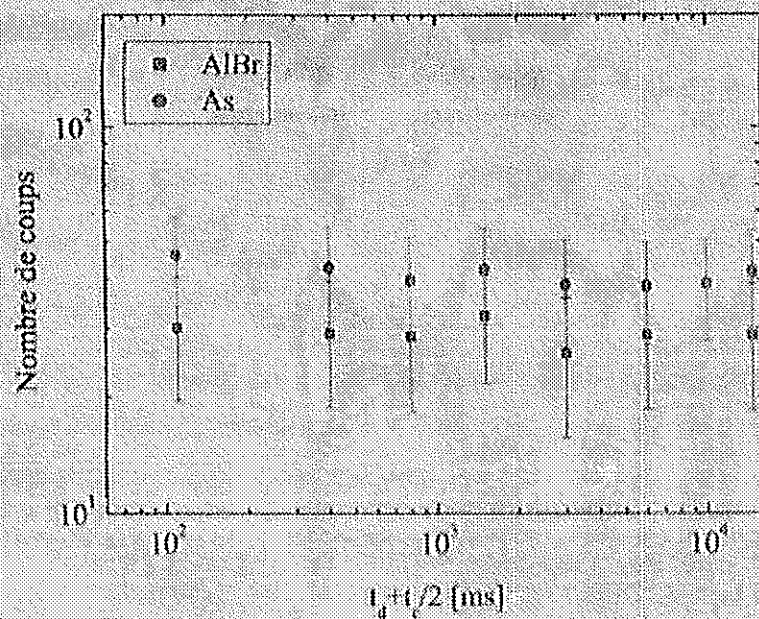


FIG. 3.7 - Relâchement de ^{80m}Br et de ^{74}As d'une matrice de ZrO_2 équipée d'une source MK5.

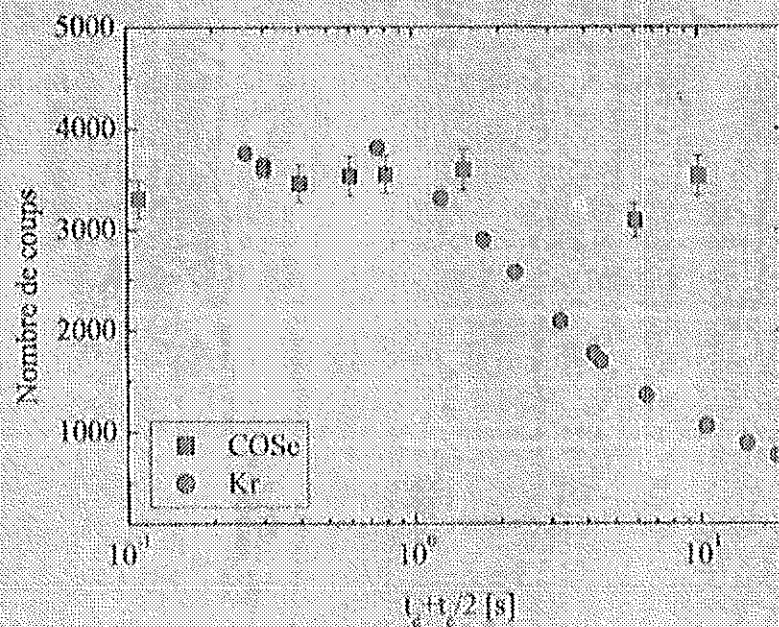


FIG. 3.8 - Relâchement du CO^{73}Se et du Kr d'une cible de ZrO_2 qui est respectivement équipée d'une source MK5 et d'une source MK7. La barre d'erreur est incluse dans la taille des points et les deux courbes ont été normalisées à l'unité.

3.2 Mesures hors ligne

Le relâchement d'un isotope donné est essentiellement décrit par deux processus: la diffusion dans la cible et l'effusion à travers la ligne de transfert et la source d'ions. Alors que les mesures en ligne permettent de décrire son comportement global, les mesures hors ligne sont indispensables pour déterminer quel processus domine la cinétique du relâchement de l'isotope dans l'ensemble cible/source. L'objectif de ce paragraphe est d'en présenter la démarche expérimentale tout en suivant la méthodologie décrite dans le chapitre 2. Nous nous focaliserons sur le développement des faisceaux de soufre, sélénium, tellure et d'étain.

3.2.1 Description du dispositif expérimental

Le choix de la cible

Lors de l'irradiation d'une cible ISOL de Ta qui a environ une masse totale de 265 g, le débit de dose¹ est de 500 mSv/h à 1 m de distance [Mul02]. C'est pourquoi des tests sur des échantillons de matériaux de cible prometteurs de quelques dizaines de milligrammes (avec des activités² de l'ordre de 2 mSv/h à 5 cm), sont nécessaires avant la construction d'une cible.

Tout d'abord, les cibles sont évidemment choisies de manière à avoir une section efficace de production suffisante (de l'ordre du mbarn). Pour la production du Se, S, Te et Sn déficients en neutrons, elles peuvent être composées de:

- Y, Zr, Nb pour la production du Se déficient en neutrons
- Ti, V pour la production de S déficient en neutrons
- La, Ce pour la production du Te et de Sn déficient en neutrons

Ensuite, les paramètres thermochimiques de la cible (présentés dans le paragraphe 2.2.2), doivent être favorables à une utilisation en ligne. La cible doit tout d'abord être stable à haute température. C'est le cas des métaux comme le Nb, Zr, V, Ti et Ce ainsi que des oxydes et des carbures comme le ZrO_2 , Y_2O_3 , VC, TiO_2 , CeO_2 et LaC puis de certains sulfures (CeS ...). La liste des matériaux sélectionnés pour cette étude est présentée dans le tableau 3.1. Il présente également leurs propriétés physico-chimiques: la température de fusion T_m et la température maximale d'utilisation T_{max} qui a été déterminée

1. Débit de dose une heure après l'arrêt du faisceau.

2. Pour une manipulation assez facile de l'échantillon du point de vue de la radioprotection.

à partir de la pression de vapeur p_{vapeur} . En effet, lors de son chauffage, la phase solide de la pastille est en équilibre avec sa phase vapeur (voir le paragraphe 2.2.2). p_{vapeur} atteignant la source d'ions doit être inférieure à 10^{-5} mbar.

Cible	A	B	densité [g/cm ³]	T_m [°C]	T_{max} [°C]	p_{vapeur} [mbar]	taille [µm]	λ [W/m ² °C]
Ti	feuil.	Ta	4,5	1657	1600	$2 \cdot 10^{-3}$	30	22 ^a
V	feuil.	Ta	6,1	1890	1700	$7,5 \cdot 10^{-3}$	25	31 ^e
Nb	feuil.	Ta	8,6	2470	2050	$3 \cdot 10^{-6}$	127,25	-
Mo	feuil.	Ta	10,2	2620	2300	$1,4 \cdot 10^{-4}$	50	138 ^a
Ta	feuil.	Ta	16,7	2996	2200	$5 \cdot 10^{-7}$	25	575 ^a
W	feuil.	Ta	19,3	3410	2200	$5 \cdot 10^{-8}$	50	178 ^a
Re	feuil.	Ta	21,0	3186	2300	$3 \cdot 10^{-8}$	40	48 ^c
TiO ₂	fibre	Re		1850	1600	$3 \cdot 10^{-4}$	9	-
TiO ₂	poud.	Re	4,2(2,6 ^d)	1850	1600	$5 \cdot 10^{-4}$	20-50	3 ^b
ZrO ₂	fibre	Ta		2700	2000	10^{-4}	6	-
ZrO ₂	poud.	Ta	5,6(3,8 ^d)	2715	2000	10^{-4}	50-100	2 ^b
CeO ₂	fibre	Re	6,86	2600	1300	$< 10^{-4}$	9	5 ^c
C	poud.	C	2,5(1,6 ^d)	3600	1800	$2 \cdot 10^{-7}$	-	140 ^c
VC	poud.	C	5,7(3,8 ^d)	2810	2000	$5 \cdot 10^{-4}$	<44	-
ZrC ₄	poud.	C	6,7	3540	2300	$1 \cdot 10^{-8}$	10	20
CeS	poud.	Mo	5,9(3,1 ^d)	2450	1900	10^{-3}	<44	39

TAB. 3.1 - *Propriétés physiques des matériaux de cible utilisés: structure (colonne A), densité, température de fusion T_m , température maximum d'utilisation T_{max} et pression de vapeur associée p_{vapeur} . La taille caractéristique représente le diamètre moyen des grains dans le cas de poudre (poud.) la section moyenne des fibres, et l'épaisseur de la feuille (feuil.). Lorsque les données ne sont pas connues, la case reste blanche. La colonne B indique le container utilisé pour le chauffage du matériau. Note a: voir la référence [CRC], b: voir la référence [Car78], c: voir la référence [ELE], d: densité après compression et chauffage, e: référence [Hof84].*

Les cibles sont soit sous forme de feuille, soit sous forme de fibre ou soit sous forme de poudre compactée dont la procédure de fabrication est expliquée en Annexe A. Le diamètre des grains a été déterminé grâce à des tamis de différents calibres et la largeur des fibres à partir d'images issues de la microscopie électronique [Kos02]. Cependant, on sait que le frittage (voir Annexe A) entraîne une évolution de la taille des grains pendant le chauffage. Celle-ci se traduit par une variation de la porosité, définie comme le rapport

entre la densité du matériau après compression et chauffage sur la densité théorique de la poudre non frittée. La porosité est environ de 65 % pour l'ensemble des matériaux (tableau 3.1).

Le choix du radio traceur

Le relâchement d'un élément est indépendant de l'isotope choisi [Men97]. On utilisera un isotope avec une durée de vie suffisamment longue puisque la mesure hors ligne nécessite environ une heure. Les propriétés nucléaires des traceurs sélectionnés pour cette étude sont exposées dans le tableau 3.2.

isotopes	$T_{1/2}$	E_γ [keV]	B[%]
^{28}Mg	20,9 h	941,72	38
^{38}S	2,8 h	1941,94	83
^{39}Cl	56 m	1267,18	54
^{41}Ar	1,8 h	1293,59	99
^{42}K	12,4 h	1524	18
^{48}Sc	43,7 h	1312,09	100
^{56}Mn	2,58 h	846,77	99
^{67}Ga	78,3 h	93,31	93
^{69}Ge	39,0 h	1107,01	36
^{71}As	65,3 h	174,95	82
^{73g}Se	7,2 h	67,07	78
^{77}Kr	74,4 m	129,64	81
^{75}Br	96,7 m	280,57	88
^{119m}Te	4,7 j	153,59	66
^{117m}Sn	13,6 j	158,60	87
^{128g}Sn	59,1 m	482,30	59
^{195g}Au	186,1 j	98,85	11
^{193}Au	18,6 h	186,17	9

TAB. 3.2 – Propriétés nucléaires des traceurs utilisés pour la présente étude: durée de vie $T_{1/2}$, l'énergie E_γ en keV de quelques raies représentatives, et le rapport d'embranchement B de ces raies [Fir96].

Deux techniques complémentaires permettent de doter un échantillon de radio traceurs:

- La méthode d'irradiation dite du RABBIT
- La méthode d'implantation

Méthode d'irradiation dite du RABBIT

Le "RABBIT" (RAPid Bringing to Beam Irradiation Technique) est un dispositif permettant d'envoyer des échantillons de matériaux en un point d'irradiation à proximité d'une station cible/source d'ISOLDE (front-end HRS). Ce système permet donc d'irradier rapidement des matériaux cible, notamment de façon parasite lors du fonctionnement en ligne du séparateur HRS d'ISOLDE. Les échantillons enfermés dans une capsule en polypenco sont transportés par air comprimé dans une canalisation d'environ 50 m. La durée du transport entre le point d'irradiation et le point de récupération d'échantillon est de 6 s. La possibilité d'avoir à portée de main un échantillon irradié à l'instant par des protons de 1 GeV présente des dangers. Des précautions d'exploitation et une procédure d'irradiation ont donc été établies [Lau01]. Notamment, avant toute irradiation, la production de l'isotope d'intérêt doit être estimée afin de limiter l'activité de l'échantillon au minimum. La capsule permet de contenir des échantillons dont le volume total est inférieur à un cylindre de diamètre $\Phi = 6,4$ mm et de longueur $L = 9,9$ mm. Elle a été conçue afin d'éviter toute contamination lors du transport, de limiter les doses reçues lors de sa manipulation avec des outils et d'avoir une bonne tenue mécanique sous irradiations. Réalisée en polypenco Q.200.5 (CellPack), la capsule peut tenir plus d'une centaine de pulses de protons à pleine intensité [Tav98]. Avant d'extraire l'échantillon, la capsule est laissée au repos un certain temps pour laisser décroître les isotopes de courtes durées de vie. Les irradiations sont réalisées sous le contrôle d'un membre de la radioprotection.

Méthode d'implantation

Deux chambres de collections utilisées par le groupe de physique du solide³ [Cor96] et disposées une sur la ligne GLM et l'autre sur la ligne GHM permettent d'implanter un faisceau d'ions radioactifs d'intérêt dans différents matériaux [Cor96]. Les ions délivrés par ISOLDE sont implantés à une énergie de 60 keV. Différents collimateurs dont un de 5×5 mm² permettent de focaliser sur des échantillons de 1 cm², le faisceau d'ions radioactifs.

Cette méthode est très "propre" car seul l'élément d'intérêt est présent tandis que la méthode dite du RABBIT a l'avantage de produire des radio traceurs qui ne sont pas encore disponibles sous forme de faisceaux. La différence fondamentale du point de vue de la modélisation de la diffusion par rapport à la méthode précédente est que les noyaux ne sont pas créés

3. La méthode d'implantation de traceurs radioactifs est bien connue en physique du solide pour étudier la diffusion dans un solide

uniformément dans la cible, ce qui rend la solution de l'équation 2.10 non rigoureusement valable dans ce cas.

Le profil d'implantation de l'ion radioactif, qui dépend de l'énergie d'implantation ainsi que de la masse de l'isotope implanté, a une distribution Gaussienne et peut être déterminé grâce au logiciel TRIM [Bie80]. Les profondeurs d'implantation des isotopes implantés de ^{67}Ga dans une matrice de ZrO_2 et de ^{193}Au dans une matrice de CeO_2 sont respectivement 2745 et 140 Å. Ainsi, l'implantation se produit à la surface de l'échantillon et ce d'autant plus que l'ion est lourd. Ce sont donc plutôt les phénomènes de surface qui sont mis en évidence par cette méthode. De ce fait, pour les éléments volatiles, cette méthode n'est plus applicable [Bey76].

Chauffage de l'échantillon et détermination de la fraction relâchée

Une fois irradié, l'échantillon est analysé par spectroscopie γ pour déterminer l'activité du radio traceur. Ensuite, l'échantillon est chauffé à une certaine température pour observer le relâchement de l'isotope dans ces conditions.

Le chauffage de l'échantillon s'effectue en le plaçant dans un four monté à l'intérieur d'une chambre à vide d'une unité d'évaporation (voir Annexe A). La pression atteinte est d'environ 10^{-6} mbar et ainsi, on peut reproduire les conditions en ligne. Ce four, comme le futur container de cible ne doit pas réagir avec le matériau utilisé. Le tableau 3.1 spécifie les matériaux de four qui n'ont montré aucun signe de réactivité (dépôt après chauffage, corrosion ...). Ce container est entouré d'un écran thermique afin d'avoir un chauffage homogène et optimum.

Après chauffage, l'échantillon est de nouveau analysé par spectroscopie γ (cf. Annexe B). L'activité fractionnelle $F(t)$ est aussi définie comme le rapport de l'activité après une période de chauffage A_i sur l'activité avant le chauffage A_0 corrigée de la décroissance de l'isotope traqué.

$$F(t) = A_i(t)/A_0(t) \quad (3.2)$$

Afin d'obtenir une courbe décrivant la fonction F en fonction de la température, on répétera cette mesure à différentes températures et pour chacune d'entre elles on utilisera de nouveaux échantillons.

3.2.2 Etude du relâchement de différentes matrices

Les figures 3.9-17 présentent nos mesures de relâchement. Elles montrent la dépendance en température de l'activité fractionnelle de différents isotopes

extraits de divers matériaux qui sont soit sous forme de feuille, soit sous forme de poudre compactée ou de fibre.

L'objectif de telles courbes est de sélectionner la meilleure matrice pour la production d'un élément donné. Nous commencerons par comparer le relâchement de différents isotopes pour une matrice donnée. On discutera de différents groupes de matrices réfractaires: tout d'abord les feuilles métalliques, puis les oxydes, les carbures et enfin les sulfures.

La diffusion dans les feuilles métalliques

Les premières études [And67] de relâchement ont montré que le Ta constitue un matériau de cible intéressant pour la production des terres rares déficientes en neutrons. Par la suite, Carraz et al. [Car78] et Hoff et al. [Hof84] ont étudié les propriétés de relâchement d'un certain nombre de matériaux. La dimension caractéristique intervenant pour une telle structure, est l'épaisseur qui devra être suffisamment petite (par exemple 25 μm pour le Ta) afin de minimiser le parcours de diffusion et donc le temps de diffusion.

- Matrice de Niobium

Les réactions de spallation d'une matrice de Nb par des protons de 1 GeV permettent la production des Ga, Ge, As, Se, Br, Kr, Rb déficients en neutrons avec une section efficace de production exploitable. Nous avons étudié leur relâchement qui est représenté sur la figure 3.9.

Pendant 15 minutes de chauffage à 1700 °C, plus de 95% du Se est extrait de la matrice tandis que les Ge, As, Ga et Br sont retenus dans l'échantillon. D'après le modèle semi-empirique de Eichler-Miédéma [Eic85, Bak98], le temps de désorption des Ga, Ge et As d'une feuille de Nb à 2000 °C, est respectivement d'environ 50 μs , 0,3 s et 0,5 s. L'effusion du Ge et de l'As limite donc fortement leur relâchement. Le Ga implanté est relâché plus rapidement d'environ un facteur 5 par rapport au Ga produit uniformément par réaction de spallation dans la cible. Le processus limitant est donc la diffusion dans la matrice.

Le temps de désorption [Eic85, Bak98] du Mn d'une surface de Nb à 2000 °C est d'environ 3 μs . Le Mn implanté à la surface d'une feuille est en effet relâché rapidement. Ceci confirme que le processus de désorption n'est pas limitant avec un tel matériau.

Nos études [Per02] montrent également que le Nb est favorable au relâchement du Kr.

- Matrice de Ti et V

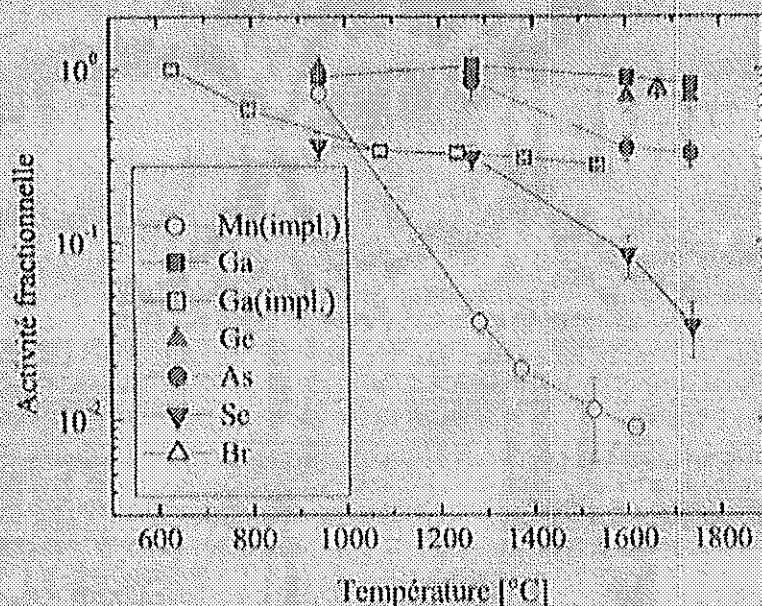


FIG. 3.9 – Relâchement des éléments As, Ga (implanté ou activé), Se, Mn (implanté), Ge, Br d'une feuille de niobium de 25 μm . Le temps de chauffage est de 15 minutes.

L'étude du relâchement des éléments S, Mg, Ar, K et Cl qui sont produits par réaction de spallation du Ti et V sont représentés sur la figure 3.10.

Les sections efficaces de production par réaction de spallation avec un faisceau de protons de 1 GeV sont comparables pour ces deux éléments. Par contre le relâchement est différent suivant les deux matériaux. L'activité fractionnelle montre que le relâchement des éléments croît suivant:

- pour une feuille de Ti d'une épaisseur de 30 μm : $\text{S} \ll \text{Cl} < \text{Ar} < \text{K} < \text{Mg}, \text{Sc}$
- pour une feuille de V d'une épaisseur de 25 μm : $\text{S} < \text{K}, \text{Mg}, \text{Ar}$

En général, les éléments sont mieux relâchés d'une feuille de Ti ce qui est très intéressant pour les éléments Cl, Mg et Sc. D'après le modèle de Eichler-Miedéma [Eic85, Bak98], le temps de désorption d'une surface de Ti à 1600 °C est d'environ 10 ns pour le Mg ce qui montre que le processus limitant est la diffusion pour cet élément. Cependant, même si nos mesures de relâchement et l'estimation des temps de désorption sont favorable à la production du Mg, la section efficace de production n'est pas exploitable.

Les métaux solides ne sont pas favorables au relâchement d'un certain nombre d'éléments. De plus, certains métaux ne sont pas suffisamment stables à haute température (volatilisation, réactivité avec le container...). Afin d'élar-

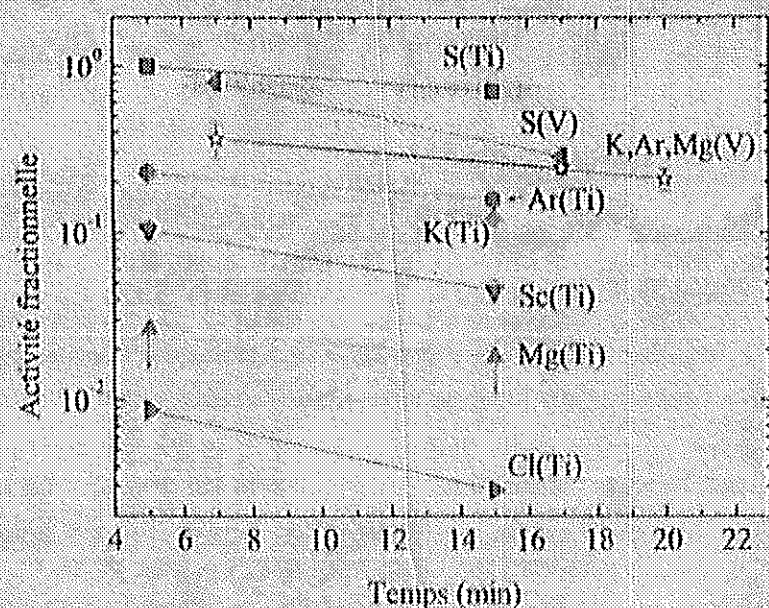


FIG. 3.10 – Relâchement d'une feuille de vanadium de 25 μm et de titane de 30 μm chauffées à 1420 °C. Les éléments concernés sont inscrits à côté de leur courbe de relâchement respective.

gir la gamme de faisceaux produits, il est nécessaire d'étudier d'autres composés: oxydes, carbures, sulfures...

La diffusion dans les oxydes

Certains oxydes, en particulier ceux composés de métaux ou de métalloïdes sont suffisamment stables pour être utilisés à hautes températures [Cam67].

Les oxydes ayant un point de fusion supérieure à 1700 °C sont les BeO, Al₂O₃, MgO, CaO, TiO₂, SrO, ZrO₂, BaO et un certain nombre de lanthanides comme La₂O₃, CeO₂, ThO₂ et UO₂. Les oxydes de cérium, chrome, cobalt, gallium, nickel, étain, titane et zinc sont facilement réduits [Cam67] certains en oxydes de plus bas point de fusion et d'autres en métaux. Quant aux oxydes de niobium, manganèse et vanadium, ils sont facilement oxydés en composés ayant un plus grand état d'oxydation mais qui ont un point de fusion plus faible [Cam67] (voir le paragraphe 2.2.2 pour le cas du TiO₂). Les oxydes d'étain, de zinc et de chrome se volatilisent facilement [Cam67] au dessous de leur point de fusion et ne sont donc pas adaptés pour une utilisation en ligne.

L'utilisation de cibles d'oxyde à ISOLDE remonte à la naissance du premier séparateur en ligne de type ISOL. Kofoed-Hansen et al. réalisèrent l'ir-

radiation par des neutrons d'une cible sous forme de poudre de UO_2 [Kof51]. Les premiers tests [Pat70] sur des cibles d'hydroxyde de TiO_2 , ZrO_2 , CeO_2 et ThO_2 (préparées par précipitation de solutions) puis étuvées sous vide, ont permis de mesurer des productions prometteuses pour les gaz rares.

Hansen et al. [Han73] ont en effet montré que les oxydes réfractaires sous forme de poudre et à haute température, réduisaient le temps de diffusion par rapport aux cibles métalliques (en particulier, les cibles de ThO_2 et CeO_2 se sont montrées intéressantes).

Initialement utilisées pour les gaz rares qui ont la plus faible affinité chimique (et sont donc en principe les mieux relâchés), les cibles d'oxyde se sont petit à petit étendues à la production d'une plus grande variété d'éléments. Pour cela, des études sur les propriétés de relâchement ont également été effectuées en fonction de la structure de la cible et de sa température [Car78].

Nos travaux, présentés ci-dessous, se basent sur ces années d'expériences et de développements. La démarche expérimentale utilisée, afin de choisir la matrice, a été introduite au paragraphe 2.2.2. En particulier, nous avons vu l'importance de choisir une matrice stable à haute température. Dans le cas des oxydes sous forme de poudre, les grains ont tendance à s'agglomérer (voir Annexe A et paragraphe 2.2.2 avec les remarques concernant le ZrO_2 et ThO_2). C'est pourquoi, nous comparerons différentes structures de cibles.

- Matrice de ZrO_2

Les mesures hors ligne par irradiation de matrices de ZrO_2 sous forme de tissus (section moyenne des fibres entre 4 et 6 μm) et de poudre (diamètre moyen des grains entre 50 et 100 μm), nous ont permis de comparer ces deux différentes structures. D'après la figure 3.12, l'utilisation de fibres est très favorable pour l'ensemble des éléments. Ceci motive donc l'utilisation en ligne d'une telle structure.

Lors de l'irradiation d'une cible fibreuse de ZrO_2 connectée à une source plasma MK5, nous avons obtenu une courbe de relâchement de l'As, Ge, Br et Se (figure 3.4 et 3.8) très plate tandis que les mesures hors ligne de la figure 3.11 montrent un bon relâchement de ces éléments d'une matrice de ZrO_2 . Ceci signifie que l'effusion est le processus limitant. Ces éléments sont en effet chimiquement réactifs et ont un long temps de séjour sur les parois du système lors de leur trajet.

D'après nos mesures en ligne (figure 3.6), le gallium est bien relâché d'une cible fibreuse de ZrO_2 combinée à une source laser. Le radio traceur du Ga a été introduit dans une matrice fibreuse de ZrO_2 soit par implantation ou par irradiation. Les courbes de la figure 3.12 montrent que le Ga implanté,

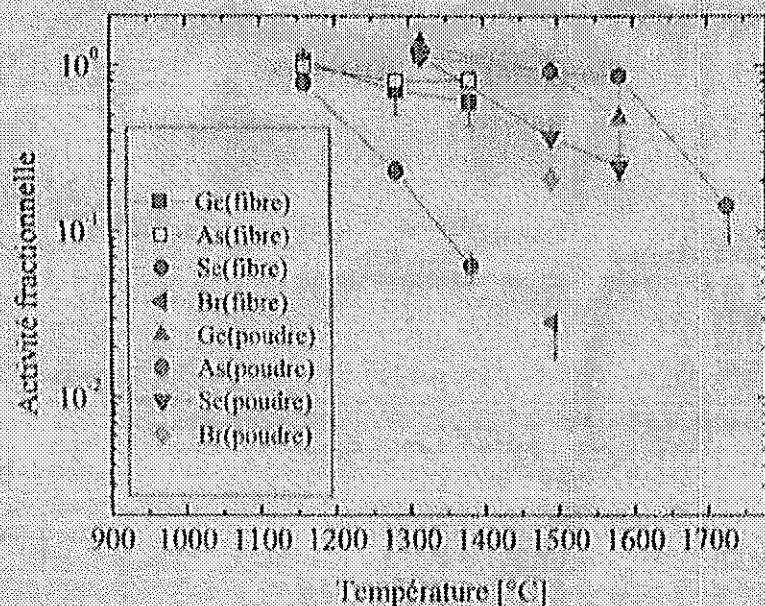


FIG. 3.11 - Relâchement du Ge, Se, Br et As d'une matrice de ZrO₂ sous forme de fibre (6 μ m) et de poudre (50 à 100 μ m). Le temps de chauffage est de 15 minutes.

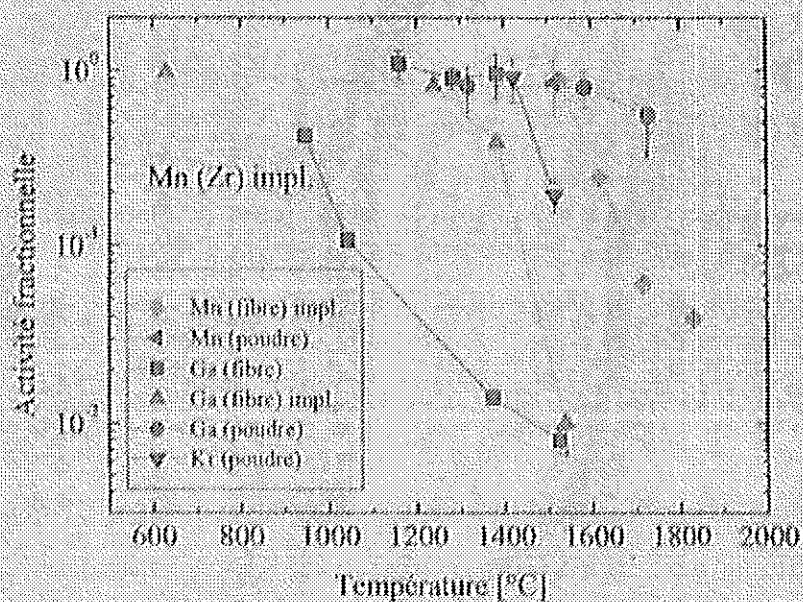


FIG. 3.12 - Relâchement du Ga (implanté ou non), Mn (implanté ou non) et Kr d'une matrice de ZrO₂ sous forme de fibre (6 μ m) et de poudre (50-100 μ m) ainsi que du Mn d'une feuille de Zr de 127 μ m. Le temps de chauffage est de 15 minutes.

est mieux relâché que le Ga introduit par irradiation. Le relâchement du Ga implanté ne faisant intervenir que le processus de désorption, on en déduit que le processus de diffusion dans la fibre, contrôle le relâchement de cet élément. L'utilisation de fibres dont les dimensions caractéristiques sont de quelques μm doit en conséquence être définitivement adoptée afin de limiter le chemin de diffusion.

D'après la figure 3.13, le Mn est beaucoup mieux relâché d'une feuille de Zr que d'une matrice de ZrO_2 . Ceci pourrait s'expliquer par le fait que le Mn forme un composé réfractaire⁴ avec l'oxyde présent. Le temps de désorption de la surface d'une feuille de Zr est d'environ 50 μs à 1800 °C d'après le modèle de Eichler-Miedema [Eic85, Bak98]. Nos résultats montrent que des faisceaux d'ions radioactifs de Mn pourraient être produits en équipant une cible de Zr d'une source d'ions laser.

- Matrice de TiO_2

Ce matériau existe soit sous forme de poudre que l'on compresse afin d'obtenir des pastilles solides (diamètre moyen des grains entre 20 et 50 μm), soit sous forme fibreuse [Kos02b] (section moyenne d'environ 9 μm).

L'utilisation d'une matrice fibreuse de TiO_2 est avantageuse pour le relâchement du K, Cl, S et Ar. En effet, à 1380 °C, plus de 80% des isotopes présents avant le chauffage ont été relâchés. L'utilisation d'une matrice fibreuse de TiO_2 est plus favorable qu'une feuille de titane pour le K et le S. La différence pour ces deux éléments est d'un ordre de grandeur entre ces deux matrices à 1380 °C. D'après le modèle de Eichler-Miedema [Eic85, Bak98], le temps de séjour du K sur une feuille de Ti à 1600 °C est d'environ 20 μs . Le processus limitant, dans le cas du relâchement d'une feuille de Ti, est donc la diffusion. Nous n'avons aucune donnée sur la désorption du soufre mais nous savons qu'il s'agit d'un élément chimiquement réactif (en effet, il appartient au groupe de l'oxygène). Une matrice d'oxyde améliore significativement son relâchement.

Il n'y a aucune différence entre ces deux matrices pour l'Ar. Ceci s'explique par l'inertie chimique de ce gaz rare. Lors de mesures en ligne, nous avons montré le relâchement rapide de l'Ar (figure 3.6) d'une cible fibreuse connectée à une source MK7.

D'après la figure 3.13, le Mg ainsi que le Sc (dont l'activité fractionnelle est proche de 1 après 15 minutes de chauffage à 1435 °C) ne sont pas relâchés d'une cible d'oxyde de titane, par contre ils le sont très bien d'une feuille de titane ou de vanadium. Ceci s'explique par le fait que ces éléments forment des composés réfractaires en se combinant avec l'oxygène contenu dans le TiO_2 .

4. Le point de fusion du MnO est de 1780 °C

En effet, le MgO et le Sc_2O_3 qui ont des propriétés réfractaires, ont déjà été utilisés comme matériau de cible à ISOLDE. On constate également que le relâchement du Cl est d'un ordre de grandeur inférieur dans une matrice de Ti.

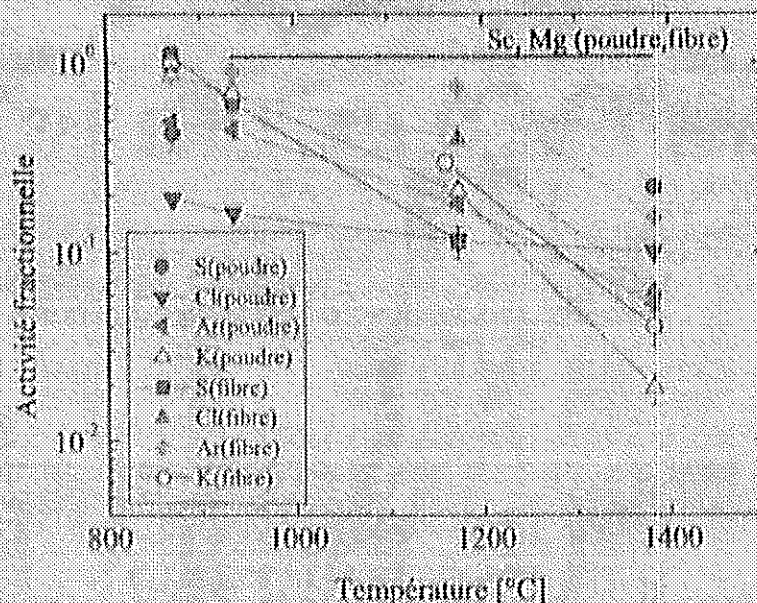


FIG. 3.13 - Relâchement du Mg, S, Cl, Ar, K et Sc d'une matrice de TiO_2 sous forme de fibre de (6 µm) et de poudre (20-50 µm). Le temps de chauffage est de 20 minutes.

- Matrice de CeO_2

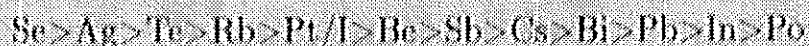
Sa forte réactivité sous atmosphère d'oxygène et pour des températures élevées, invite à prendre des précautions lors de sa manipulation. Après chauffage à 1800 °C, lors de son refroidissement, il peut s'enflammer. En effet, dans de telles conditions de température et de pression, le CeO_2 se décompose en Ce_2O_3 puis en CeO qui est inflammable.

Le Te et Sn ont été implantés avec une énergie de 60 keV dans une matrice fibreuse de CeO_2 (fabriquée par Zircar Zirconia [Zira]) dont la section de la fibre est d'environ 9 µm. Des courbes de la figures 3.17, on en déduit que ce matériau est prometteur pour ces deux éléments.

Des tests en ligne avec une source Mk7 , nous ont permis de valider la possibilité d'exploiter ce matériau en ligne (voir les courbes de production de $^{31-46}\text{Ar}$ dans la référence [Kos03]). Il reste donc à connecter ce matériau à une source MK5 afin d'évaluer la production du Te et Sn.

- Matrice de ThO_2

Ce matériau a été testé hors ligne pour l'étude du relâchement de différents éléments. Le coefficient de diffusion des éléments étudiés évolue entre $2 \cdot 10^{-3}$ et $8 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ et selon⁵ [Rec77]:



Hoff et al. ont conclu [Hof84] de leurs études hors ligne que les propriétés de relâchement d'une telle matrice étaient moins bonnes que celles des carbures. Des cibles de ThO_2 (constituées d'un container de Ta rempli de poudre de ThO_2) connectées à une source à ionisation de surface négative (surface en LaB_6) ont déjà été testées en ligne à ISOLDE pour la production du Cl, Br, I et At [Ewa84]. Durant cette même étude des indications sur le frittage de la cible ont été mises en évidence. En effet, les propriétés de relâchement sont dégradées avec le temps et la température. Ceci est une des caractéristiques des oxydes sous forme de poudre. Afin d'éviter cela, des matrices fibreuses de ThO_2 ont été fabriquées à ISOLDE en utilisant la même technique de fabrication que les fibres de TiO_2 [Kos02b]. Cependant, afin d'obtenir un produit plus pur et plus élaboré (ajout de composés stabilisants), une synthèse commercialisée, est préférable.

La diffusion dans les carbures

Les carbures de B, Si, ou de métaux de transition (incluant les alcalino-terreux et les actinides) présentent des propriétés attrayantes pour des applications à haute température [Cam67]. Ces carbures montrent en général une plus grande stabilité thermique que les oxydes leur correspondant, c'est par exemple le cas du ZrC par rapport au ZrO_2 (cf. tableau 3.1). Ce sont donc des matériaux adaptés à une utilisation sur un système ISOL.

Les travaux de G.A. Cowan [Cowan58] montraient que les produits de fission étaient plus ou moins bien relâchés d'une matrice de carbure d'uranium. Différentes cibles de carbure d'uranium ont été testées par la suite afin de déterminer leurs propriétés de relâchement [Car79, Hof84]. Ainsi, après 20 minutes de chauffage à 1900°C , 70% du $^{130\text{m}}\text{Cs}$ ($T_{1/2}=3,46 \text{ m}$) a été relâché. Cette cible s'est avérée particulièrement intéressante pour la production d'alcalins et du Ga, In, Tl [Car78, Bjø81].

En général, les cibles de carbures sont fabriquées avec un excès de graphite afin de préserver la structure poreuse à haute température. On utilisera par la suite la notation UC_x pour signaler cet excès. Pour plus de précision on notera ZrC_4 pour un rapport molaire du Zr sur le graphite de 1:4.

⁵ Cette notation signifie que le coefficient de diffusion du Se est supérieur à celui de Ag et ainsi de suite.

L'inconvénient des carbures est qu'ils contiennent un grand nombre d'impuretés [Ray87]. Par exemple, la présence de traces d'oxygène génère du CO qui est gênant pour les sources à ionisation de surface négative. En effet, le carbone se combine à la surface ce qui modifie la fonction de travail et donc l'efficacité d'ionisation. Pour les autres sources, ce gaz ne perturbe pas trop leur fonctionnement.

On a utilisé, pour chacun des carbures, un container en graphite. Des réactions chimiques, se traduisant par le collage des pastilles sur le container, ont en effet été constatées avec du tantale. Ceci s'explique par la formation autour de 1300 °C [Cam67], du composé TaC qui est très réfractaire ($T_m = 3880$ °C). Le rhénium est inerte vis à vis des carbures cependant, il est assez coûteux de l'usiner et de le souder.

- Matrice de C

Pour les cibles composées d'une matrice excédentaire en graphite, l'étude de la diffusion d'un élément dans le graphite permet d'avoir une idée de sa diffusion dans la matrice de carbure. En effet, si l'élément ne forme pas de composés réfractaires, par exemple avec l'uranium dans le cas d'une matrice de UC_x , il diffusera dans un milieu où les atomes de carbone sont en nombre majoritaire.

Le gallium, l'étain et l'or ont été implantés dans une matrice de graphite sous forme de disque de 1 mm d'épaisseur. Dès 1400 °C, plus de 94% de l'or implanté est sorti de la matrice (figure 3.14), ce qui était prévisible étant donné son caractère noble. A 1700 °C, plus de 90% de l'étain et du gallium ont été relâchés. Le graphite est donc favorable à une diffusion rapide pour ces trois éléments.

- Matrice de ZrC_x

Cette matrice a été obtenue par compression d'une poudre de ZrC comportant un excès de graphite. La figure 3.15 montre le relâchement mesuré du Ga (implanté ou activé), du Ge et du Se. Il se trouve que le relâchement du Se, de As et du Br (non représenté sur la figure) est moins bon que dans une matrice de ZrO_2 . Donc une matrice en graphite est défavorable au relâchement du sélénium.

Par contre, le relâchement du Ga d'une matrice de ZrC_x est meilleur par rapport à une matrice de ZrO_2 . De plus, le ZrC_x a une meilleure stabilité que le ZrO_2 à haute température (pression de vapeur plus basse à température égale). Avec une conductivité thermique dix fois supérieure à celle de ZrO_2 , le ZrC_x est plus approprié pour une exploitation avec des faisceaux primaires de

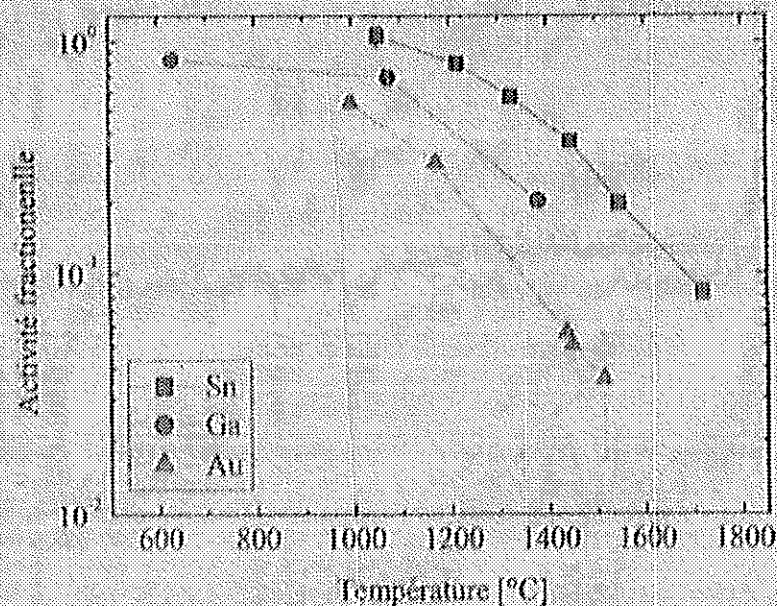


FIG. 3.14 - Relâchement de l'or, de l'étain et du gallium implanté dans une matrice de graphite.

fortes intensités (chapitre 5). Nous avons implanté du Ga dans une matrice de ZrC_x . Autour de 1800 °C, la quantité de Ga relâchée est supérieure de plus d'un ordre de grandeur à celle du Ga obtenu par irradiation. Ceci indique que le processus limitant le relâchement du Ga dans la matrice de ZrC_x est la diffusion dans les grains. On pourrait donc accélérer le relâchement du Ga en réduisant la taille moyenne des grains. La courbe de relâchement obtenue en ligne (figure 3.6) indique un très bon relâchement du Ga pour une cible UC_x combinée à une source RILIS.

- Matrice de VC

Une matrice de VC a été obtenue par compression de poudre. D'après la figure 3.16, à 1950 °C, plus de 88% des éléments radiotraceurs S, Mg, Ar et Cl ont été relâchés. A 1950 °C, la quantité de Cl relâchée est supérieure de plus d'un ordre de grandeur à celle de Cl relâchée d'une matrice de TiO_2 à 1400 °C⁶.

Contrairement à la matrice de TiO_2 dans laquelle le Mg était totalement retenu, le VC est favorable au relâchement de cet élément. Après 15 minutes de chauffage à 1420 °C, tout le Mg a été relâché d'une feuille de titane.

6. Comparer de telles températures a un sens puisqu'elles sont proches des températures maximum d'utilisation des deux matériaux (voir pour le cela le tableau 3.1).

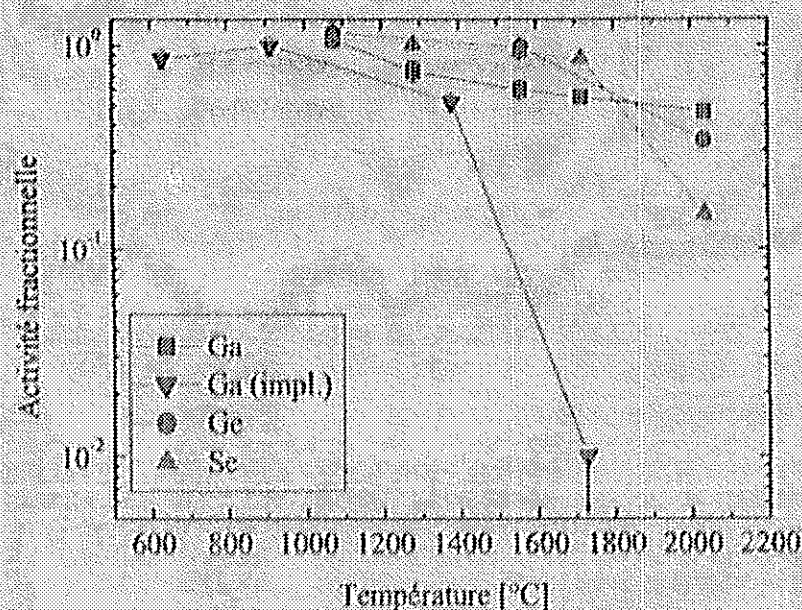


FIG. 3.15 – Relâchement d'une matrice de ZrC_4 sous forme de poudre. Le temps de chauffage est de 20 minutes.

Pour une cible de UC_x , la courbe de relâchement de l'Ar obtenue en ligne (figure 3.6) indique que le processus de diffusion⁷ est plus rapide que dans une matrice de ZrO_2 (les temps t_f et t_a sont plus petits). Cependant, les cibles de CaO ont été définitivement adoptées à ISOLDE [Rav87] pour la production de l'Ar déficient en neutrons, car leur production est nettement supérieure à celle obtenue dans une cible de VC.

La diffusion dans les sulfures

Les sulfures d'éléments du groupe 2, 3, 4, 5 forment pour la plupart des composés réfractaires et sont répertoriés dans le tableau 3.4 avec leur point de fusion et leur densité. Les sulfures de terre rare sont reconnus pour leur caractère réfractaire et leur grande stabilité. Des calculs thermodynamiques concernant la stabilité du réseau cristallin le confirme [Cam67]. Les principaux sulfures ayant les plus hauts points de fusion et donc une chaleur de formation plus négative⁸ sont: Ce_2S_3 ($\Delta H = -1187$ kJ/mol), CeS ($\Delta H = -455$ kJ/mol), US ($\Delta H = -305$ kJ/mol) et ThS_2 ($\Delta H = -397$ kJ/mol).

Nous avons en particulier étudié les propriétés des matrices de sulfure de cérium qui pourraient être intéressantes pour la production de l'étain déficient en neutrons ($\sigma_{prod} = 0,4$ mbarn pour l'isotope ^{108}Sn d'après le code

7. la désorption est négligeable puisqu'il s'agit d'un gaz rare.

8. Plus la chaleur de formation d'un composé est négative et plus celui-ci est stable.

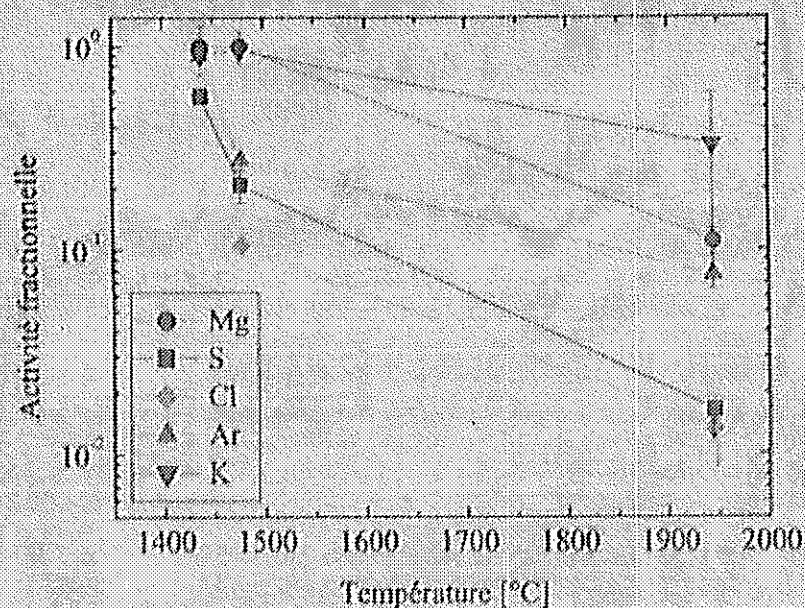


FIG. 3.16 – Relâchement d'une matrice de carbure de vanadium. Le temps de chauffage est de 20 minutes.

de R. Silberberg et C.H. Tsao [Sil73]).

Une étude thermochimique du système Ce-S a été effectuée pour la première fois par E.D. Eastman et al. [Eas50b, Eas50a, Eas51] afin de trouver un creuset pour les métaux fondus. Ce composé est apparu comme le moins réactif des sulfures vis à vis d'un grand nombre de métaux. De plus, le cérium est le plus abondant des terres rares. Les trois composés de sulfure de cérium existants sont le CeS, Ce₂S₃ et Ce₃S₄. Le CeS et le Ce₂S₃ sont fournis dans le commerce sous forme de poudre avec un degré de pureté de 99,9% (0,1 % d'impuretés métalliques diverses). Une synthèse du CeS à partir du Ce₂S₃ décrite dans la référence [Kri88] permet d'obtenir un composé plus pur mais nous avons utilisé celui de la compagnie CERAC.

D'après des calculs que nous avons effectué à l'aide de THERMOCALC, les réactions dominantes durant le chauffage du CeS(s) et le Ce₂S₃(s) sont respectivement la réaction 3.3 et 3.4 :



Nous avons déterminé la composition de la phase vapeur des composés de ces deux réactions à une température d'environ 1500°C :

- De la réaction 3.3, $p_{\text{tot}} = 2,2 \cdot 10^{-6}$ mbar, $p_{\text{CeS}} = 1,8 \cdot 10^{-6}$ mbar,

sulfures	T_m [°C]	ρ [g/cm ³]	sulfures	T_m [°C]	ρ [g/cm ³]
CaS ^b	2530	2,61	Ce ₂ O ₂ S	1950	6,11
US ^b	2470	10,87	Th ₂ S ₃ ^a	1950	7,88
CeS	2450	5,93	SmS	1940	6,01
NdS ^c	2443	6,36	V ₂ S ₃	1930	4,7
ThS ^b	2430	9,57	ThS ₂	1905	7,36
BaS	>2200	4,33	Sm ₂ S ₃	1900	5,84
BeS	>2200	2,47	Ce ₂ S ₃	1890	5,2
La ₂ S ₃	2150	4,91	Gd ₂ S ₃	1885	6,19
Y ₂ O ₂ S	2120	4,92	US ₂	1850	7,90
HfS ₂	~ 2100	6,03	ZnS	1850	4,1
YS ^a	2040	4,92	MoS ₂	1815	4,8
Nd ₂ S ₃	2010	5,49	Sm ₃ S ₄	1800	6,14
ThS ₂	>2000	7,36	Pr ₂ S ₃	1795	5,31
PrS ^a	>2000(est.)	6,03	Sc ₂ S ₃	1775	2,93
SrS ^a	>2000	3,67	CdS	1750	4,82
TiS ₂	>2000	3,28	Er ₂ S ₃	1730	6,21
U ₂ S ₃	>2000	8,81	LaS ₂	1650	4,9
MgS	2000	2,86	MnS	1615	3,99
La ₂ O ₂ S	1980	5,75	Y ₂ S ₃	1600	3,86
LaS ^a	1970	5,86	Cr ₂ S ₃	1550	3,92

TAB. 3.3 – Propriétés physico-chimiques (température de fusion T_m et densité ρ) des sulfures réfractaires. Elles proviennent de la référence [CER], excepté pour les éléments signalés des notes a, b et c correspondant respectivement aux références [Cam67, Ell65, Gro84].

$$p_g = 1,7 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$$

$$\sim \text{De la réaction 3.4, } p_{\text{out}} = 6,8 \cdot 10^{-6} \text{ mbar, } p_g = 5,6 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$$

Ainsi, le CeS est moins volatil que le Ce₂S₃ d'un facteur 4. Les pertes en masse du matériau seront donc moins importantes avec une cible de CeS. Le CeS peut être utilisé à une température maximum de 1827 °C [Eas50b], tandis que l'on obtient un composé Ce₂S₃ stable autour de 1500 °C. Le CeS est donc le composé le plus stable à haute température. La pression partielle de soufre est 10,6 fois plus importante lors de la volatilisation du Ce₂S₃. Ce matériau est donc intéressant si l'on a besoin d'un excès de soufre dans l'environnement de la cible.

Dans un creuset en graphite, le Ce₂S₃ produit du CS(g) [Eas51]. Nous avons donc préparé des pastilles de ces composés Ce₂S₃ dans des creusets

de Mo ou de W. Aucune trace de réactivité n'a été observée. Le problème provient surtout de la réactivité des vapeurs de soufre avec les matériaux de l'ensemble cible/source. Par exemple, une attaque chimique du niobium [Kir03] a été observée après l'ajout d'une grosse quantité de soufre. Une telle attaque est également prévue pour le tantale qui appartient au même groupe chimique. Autour de 500 °C, des vapeurs de Re_2S_7 sont observés [Kor94] à la sortie de certains volcans ce qui indiquent la possible volatilisation du rhénium comme sulfure. Tous ces matériaux sont donc à éviter. Le soufre réagit avec le molybdène pour former du MoS_2 qui lui même est très stable et donc entraîne une passivation de la surface. C'est pourquoi le Mo pourra être utilisé comme matériau pour le container mais également pour la ligne de transfert qui est habituellement en tantale. A HRIBF [Alt96] des mesures de relâchement du ^{38}Cl ont montré que le CeS était un matériau intéressant.

Nous avons étudié le relâchement de l'étain d'une matrice CeS en utilisant la méthode d'implantation. La figure 3.17 confirme que c'est un matériau prometteur puisqu'autour de 1500 °C plus de 90% de l'étain implanté a été relâché.

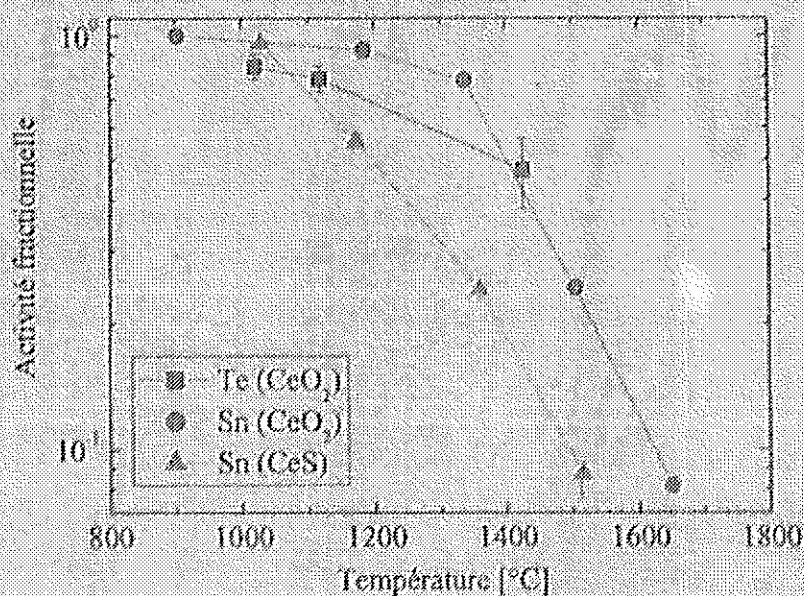


FIG. 3.17 – Relâchement du tellure et de l'étain implantés d'une matrice de CeO_2 , puis de l'étain dans le CeS. Le temps de chauffage est de 20 minutes.

3.2.3 Discussions : développement du Se, S, Te, Sn, Ge, Si

Des courbes expérimentales 3.9-12, que nous avons élaborées pour observer qualitativement le relâchement, on peut en déduire le paramètre de diffusion η ou le coefficient de diffusion D , si la désorption est négligeable. η s'exprime en fonction du coefficient de diffusion D et de la grandeur caractéristique du matériau a (diamètre des grains pour les poudres, section des fibres et épaisseur des feuilles):

$$\eta = \frac{D\pi^2}{a^2} \quad (3.5)$$

Afin d'exprimer η en fonction de l'activité fractionnelle et du temps de mesure, nous utilisons DIFFACT, un programme [Leit03] FORTRAN qui inverse la fonction $F(\eta, t)$:

$$F(T) = \frac{2n}{\pi^2} \sum_m c_m^{-1} \exp(-c_m \eta t) \quad (3.6)$$

Cette opération qui implique des sommes infinies (provenant de la résolution de l'équation de diffusion 2.10) est résolue numériquement grâce à une méthode de recherche géométrique itérative optimisée. En sortie, le programme donne le paramètre η . Connaissant la structure de l'échantillon, on peut en déduire D en fonction de T . Etant donnée l'incertitude sur les dimensions caractéristiques des grains et des fibres, nous exploiterons plutôt le paramètre η pour de telles structures. Nous allons, grâce à cette méthode, comparer différentes matrices pour un élément d'intérêt.

Le sélénium

Les matrices étudiées pour la production du Se déficient en neutrons sont le Nb et les composés de Zr. Le niobium et le molybdène ont été testés dans le passé pour étudier le relâchement du sélénium [Bey76]: le coefficient de diffusion du sélénium est 30 fois plus élevé dans une matrice de Nb pour une même température. Nous avons effectué une autre étude avec des feuilles de niobium de différentes épaisseurs (25 et 127 μm) afin de confirmer avec une statistique suffisante la variation du coefficient de diffusion du sélénium en fonction de la température. Nous avons supposé que le temps de désorption du Se d'une surface de Nb est négligeable. D'après la figure 3.18, ils ne suivent pas la loi d'Arrhenius (voir l'équation 2.12) et donc d'autres processus entrent en jeu: désorption ou réactions chimiques vis à vis du niobium.

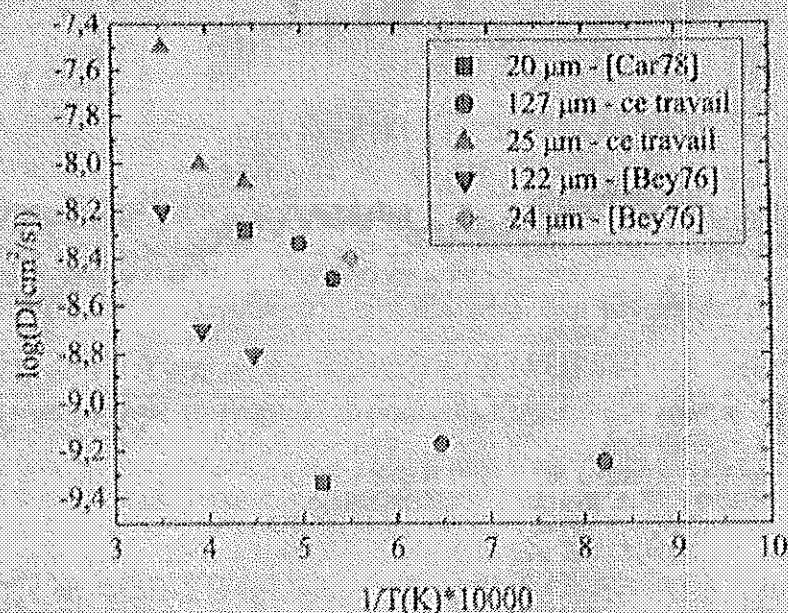


FIG. 3.18 - Evolution du coefficient de diffusion du sélénium dans des feuilles de niobium de différentes épaisseurs.

Pour une matrice poudreuse de ZrO_2 , des études hors ligne montrent que le Se est rapidement extrait même à des températures de 1600 °C [Hof84]. Une étude complémentaire a permis de tester différentes structures de matrice. Des figures 3.11 et 3.14, on a déduit le paramètre de diffusion du Se dans une matrice de ZrC_4 sous forme de poudre compactée et dans une matrice fibreuse et poudreuse de ZrO_2 . Ainsi, d'après la figure 3.19, on déduit que le meilleur relâchement est obtenu pour une matrice fibreuse. De nos mesures, le coefficient de diffusion du Se dans une matrice fibreuse de ZrO_2 est d'environ $4 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{s}$ à 1380 °C. Ce résultat peut être comparé à celui obtenu à GSI pour le Xe à 2000 °C: environ $4 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$.

Pour la production du sélénium riche en neutrons, une cible de ThO_2 serait préférable étant donné l'atmosphère d'oxygène créée. Nous avons en effet vu que le Se était réactif dans des composés de graphite, et donc une cible de UC_x ne serait pas adaptée.

Le soufre

Du point de vue de la section efficace, des composés de cible contenant du Cl, Ca, Sc, Ti ou V, seraient compatibles pour la production du soufre déficient en neutrons par réaction de spallation. De possibles composés réfractaires pourraient être: TiO_2 , TiC , VC , Sc_2O_3 et CaO . Le $CaCl_2$ a également été proposé [Rav94]. La première étude a été faite avec un échantillon de VC

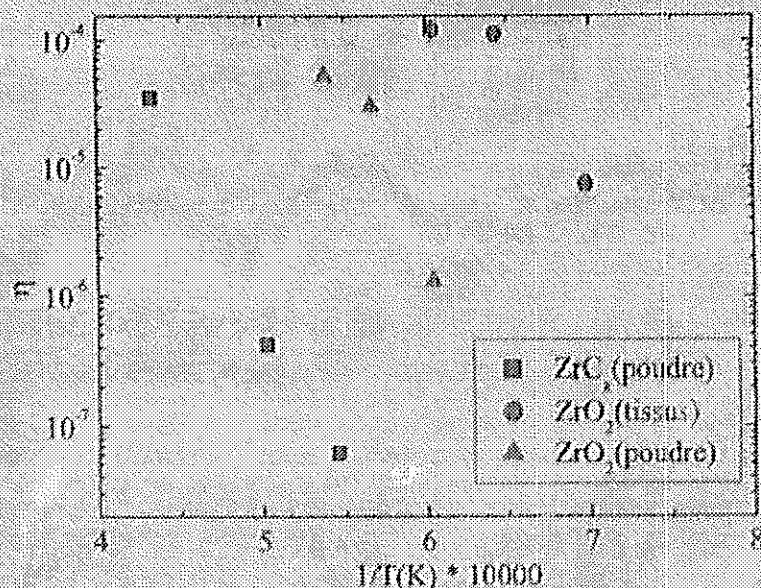


FIG. 3.19 - Evolution du paramètre η pour le relâchement du sélénium de différents matériaux.

[Car78] chauffé à 2300 °C. A partir de 2000 °C, un bon relâchement a été prédit pour Ar, Cl et S, bien que ce dernier n'ait pu être observé durant cette étude. Par contre, nous avons vu que l'activité fractionnelle de ces éléments est proche de l'unité dans une matrice de V (figure 3.10).

Afin de déterminer quelle pourrait être la meilleure cible pour la production du soufre, nous avons fait une étude du relâchement du ^{32}S en utilisant la technique du RABBIT. D'après la figure 3.20, le TiO_2 et le VC sont des matériaux prometteurs pour le relâchement du soufre. A 1380 °C pour le TiO_2 , plus de 75% du soufre a été relâché alors qu'il n'est absolument pas relâché d'une feuille de titane (figure 3.10). Son relâchement est nettement amélioré dans un environnement d'oxygène. Ceci s'explique par la forte réactivité du soufre vis à vis de certaines surfaces. Le processus de désorption est donc le processus limitant lors de son relâchement.

D'après la figure 3.20, on constate que le VC est également favorable au relâchement du soufre. De plus, il peut être porté à plus haute température pour accélérer le relâchement. Nous avons également déduit que le coefficient de diffusion du S dans une matrice de TiO_2 sous forme de fibre est d'environ $4 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$ à 1440 °C et d'environ $2 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$ dans une matrice de VC à 1950 °C.

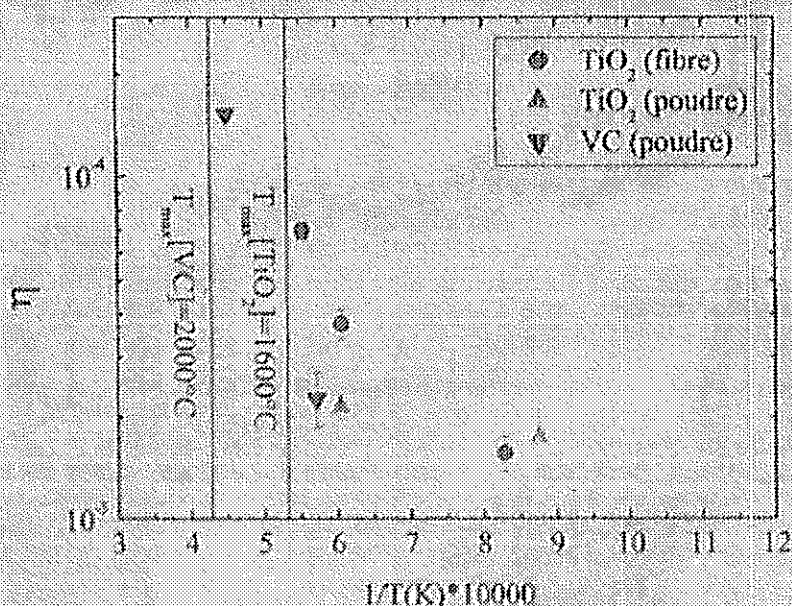


FIG. 3.20 – Evolution du paramètre η pour le relâchement du soufre de différents matériaux.

L'étain

Les faisceaux d'étains étant disponibles, la méthode d'implantation a été utilisée afin d'étudier le relâchement de cet élément de différentes matrices. La méthode d'irradiation est difficilement exploitable pour des cibles de la famille des lanthanides, à cause du grand nombre de raies γ provenant des autres produits de réaction.

Nos mesures de relâchement (figure 3.17) montrent que les matériaux de CeO_x et CeS_x sont prometteurs. Plus de 75% de l'étain présent est relâché, à partir de 1360 °C pour l'échantillon de CeS et à partir de 1500 °C pour une matrice de CeO_2 . Notamment, l'utilisation du CeS favorise le relâchement de l'étain grâce à la formation de SnS (cf. chapitre 4).

Pour les étains riches en neutrons, le composé de ThS , chimiquement similaire au CeS , se présente comme un bon matériau de cible.

D'après la systématique de Eichler, le temps moyen de séjour évolue pour différents matériaux à 2000 °C selon⁹: $W \gg Pt > Ta > Nb > Re > Mo$. Nos résultats sur l'implantation de l'étain dans différents matériaux (figure 3.21) montrent qu'il évolue selon: $W \gg Mo > Re > Ta > Nb$ pour des températures inférieures à 1700 °C. Le tantale, niobium, rhénium

9. Cette notation signifie que le temps moyen de séjour du W est largement supérieur à celui du Pt. Et celui du Pt est supérieur à celui du Ta.

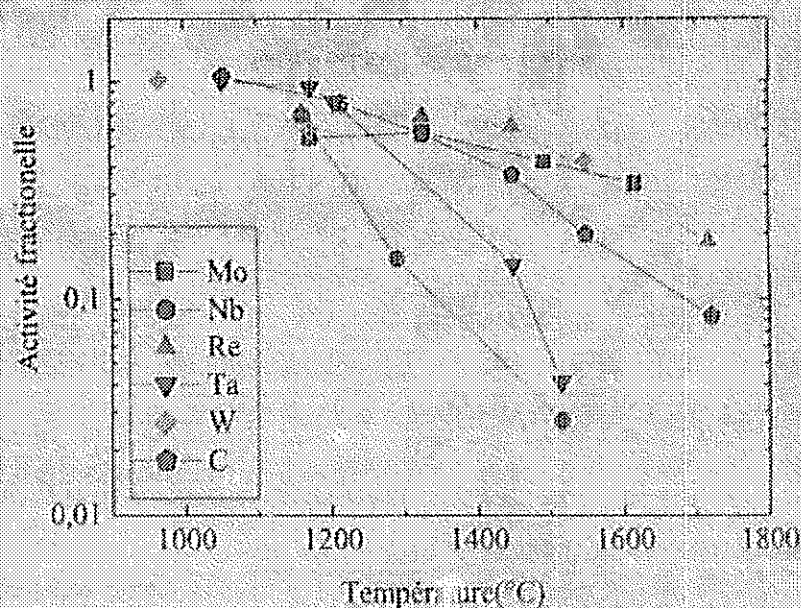


FIG. 3.21 – Relâchement de l'étain pour différentes feuilles métalliques. Le temps de chauffage est de 15 minutes.

et molybdène, qui sont les matériaux sur lesquels le temps d'adsorption de l'étain est le moins long, pourront être utilisés pour la construction de l'unité cible/source.

3.2.4 Conclusion

Alors que les oxydes d'alcalino-terreux (MgO , CaO , SrO , BaO ...) montrent [Rav87] de bonnes propriétés du point de vue de leur stabilité, les autres types d'oxydes ont l'inconvénient de se déstructurer avec le temps et des températures élevées. En optant pour une structure fibreuse, le ZrO_2 et le CeO_2 peuvent être stabilisés par l'ajout d'autres oxydes tels que le CaO .

Pour certains éléments comme le sélénium, le soufre et le tellure qui sont chimiquement réactifs, de tels composés générant une vapeur d'oxygène sont réellement avantageux. Pour d'autres éléments, les carbures sont préférables. De plus, ayant une conductivité thermique plus élevée que les oxydes (tableau 3.1), ils peuvent supporter des intensités de faisceaux assez élevées, ce qui est compatible avec les nouvelles générations d'installations pour la production de faisceaux d'ions radioactifs.

Relativement négligés comme matériau de cible, les sulfures montrent de bonnes propriétés de relâchement. Notamment, pour les étains déficients en neutrons, une matrice de CeS se présente comme très intéressante.

3.3 La séparation chimique

Nous allons présenter les différentes méthodes qui ont permis d'améliorer la séparation des éléments et notamment trouver celle qui sera la plus adaptée au cas de la technique ISOL. Un séparateur de masse n'est pas sélectif en Z . Comme nous l'avons vu, à moins de fabriquer un séparateur en masse ayant une résolution bien supérieure à 10000, les contaminants isobariques ne peuvent être séparés. Comme la séparation chimique est sélective en Z , on peut envisager de coupler une telle méthode de séparation, réalisée par la formation d'ions moléculaires, à un système ISOL afin d'améliorer la sélectivité. Elle permet également comme nous allons le voir, d'améliorer le relâchement d'un élément du système cible/source. Cette méthode qui vise à synthétiser "in situ" des composés chimiques volatiles est souvent appelée évaporation chimique.

3.3.1 La méthode radiochimique

Les méthodes de séparation radiochimiques qui sont nées au début des années 1910, ont permis l'extraction de l'ensemble des éléments du tableau de Mendeleïev et en particulier des transuraniens [Sea90]. Ainsi, différentes techniques (précipitations [Sea58], ...) ont été développées afin d'isoler un élément donné du mélange complexe d'éléments se trouvant dans une cible irradiée. Le principe est de transférer l'élément d'intérêt d'une phase à une autre, de sorte à éliminer les espèces non désirées.

Ces méthodes de séparation prenant plusieurs heures, des méthodes de séparation chimique plus rapides et continues ont été développées (voir les références [Her82, Mey80]) afin d'isoler des actinides ayant des durées de vie plus courtes.

De telles procédures de séparation ne peuvent pas, en générale, être associées au système de type ISOL. En effet, les composés apparaissent sous forme de solutions et sont donc incompatibles avec le fait que nos sources d'ions fonctionnent uniquement sous vide.

3.3.2 La méthode thermochromatographique

Une des techniques de séparation chimique qui peut être utilisée en parallèle avec un séparateur chimique est la méthode thermochromatographique. Les produits de réaction sont stoppés dans une phase gazeuse qui est injectée dans une colonne. Cette dernière a un gradient thermique de sorte que les espèces volatiles sont déposées en fin de colonne [Zva72].

Les différents tubes de transfert de nos source d'ions à plasma peuvent être utilisés pour effectuer de la chromatographie isothermique. Comme nous l'avons vu au chapitre 2, des tubes de différentes températures ont été réalisés afin d'obtenir une sélectivité chimique. On pourrait également envisager d'utiliser différents matériaux qui présentes une affinité chimique plus ou moins importante avec les produits de réaction. De tels travaux seront développés dans le cadre du projet TARGISOL dont un des objectifs est le développement de cibles et de sources d'ions sélectives et efficaces en y associant une séparation radiochimique.

La méthode chromatographique permet d'étudier la volatilité d'un noyau d'intérêt en fonction du gaz réactif utilisé, de la surface et de la température. Elle permet donc de déterminer son enthalpie de désorption qui est un paramètre important puisqu'il quantifie le temps passé par un ion sur une surface. Pour chacun des éléments développés dans cette thèse, une recherche bibliographique sur les séparations radiochimiques déjà effectuées a été menée afin de dégager leur réactivité chimique dans un environnement donné (température et matériau des surfaces ...).

3.3.3 La formation d'ions moléculaires

La méthode

L'idée que les produits de réactions stoppés dans la cible ISOL réagissent avec un composant, contenu soit dans la cible ou bien présent à son voisinage, est apparu dès les premiers développements de cibles de type ISOL, notamment pour la séparation des éléments réfractaires. La formation d'ions moléculaires de fluorure a permis de séparer le Ba [Rav75b, Rav75a], avec un rapport $\text{BaF}^+/\text{Ba}^+ = 10$. Le fluore existait alors sous forme d'impuretés dans une cible de lanthane.

L'addition contrôlée d'un flux gazeux de CF_4 , a permis d'améliorer la séparation de certains des éléments réfractaires [Hof80]. Il a en effet été montré que pour les éléments ayant un long temps de désorption, comme les éléments réfractaires, cette addition améliore considérablement leur relâchement. Des études hors ligne [Hof84] sur différents matériaux de cibles ont montrés que pour de tels éléments et en particulier pour ceux appartenant au groupe chimique 3 et 4, leur intensité pouvait être améliorée.

Cette méthode de séparation a également montré la possibilité d'une séparation sélective de ces éléments ainsi que de ceux du groupe 2 et des terres rares [Ede92].

D'autres types de molécules ont été testés. La formation d'oxyde a été utilisée par le groupe de JAERI [Ich92] afin de séparer les isotopes La du Ba-

rium. De plus, il a été constaté une amélioration du relâchement des éléments du groupe chimique 15 (groupe de l'azote) et 16 (groupe de l'oxygène) dans un environnement d'oxygène [Bj86b, Hag92]. La formation d'une molécule de $^{14}\text{N}^{13}\text{N}$ pour améliorer le relâchement de l'atome ^{13}N , a été étudiée par le groupe de Louvain-la-Neuve [Dec92].

La formation d'ions moléculaires est donc une longue histoire qui a permis d'augmenter l'intensité et la sélectivité de faisceaux produits. Cette méthode permet d'associer une séparation chimique à une séparation en ligne rapide. Pour les sources d'ions MK5, qui peuvent être associées à ce type de séparation, l'intensité totale extraite de la source ne doit pas excéder quelques μA , ce qui correspond à une pression maximum du gaz réactif de 10^{-4} à 10^{-3} mbar [Hof84] dans l'ensemble cible/source d'ions. Au delà, l'efficacité de la source d'ions est fortement diminuée. Il est important, afin d'optimiser le rapport XS^+/X^+ (ou XS est un sulfure), de connaître les propriétés thermodynamiques de la molécule.

Propriétés physico-chimique des ions moléculaires formés

De la cible à la source d'ions, les espèces radioactives gazeuses interagissent avec divers parois (cf. figure 2.8): surface de la cible, tube de transfert, éléments de la source ...). Ces parois sont composées de différents matériaux et ont une température donnée. Durant ces collisions gaz/surface, plusieurs phénomènes peuvent avoir lieu.

Tout d'abord, l'adsorption de l'atome ou de la molécule par une surface au cours de son trajet a pour effet de le(s) faire séjourner un certain temps dans le système. Ensuite, la molécule peut réagir chimiquement avec son environnement et éventuellement se dissocier. La connaissance des paramètres physico-chimiques de l'espèce atomique et de l'espèce moléculaire associée permet de quantifier ces phénomènes.

- Réactivité: l'enthalpie de désorption quantifie la réactivité entre un élément et une surface donnée et permet d'évaluer son temps moyen de résidence.
- Stabilité: l'énergie de dissociation est l'énergie qu'il faut fournir afin de dissocier la molécule. Plus elle est grande et plus le composé est stable.
- Volatilité: la pression de vapeur d'un élément traduit sa volatilité.

Le logiciel THERMOCALC, comme nous l'avons déjà vu, peut être utilisé pour évaluer ces différents processus. La limitation pour un tel calcul provient du fait que la phase gazeuse qui est celle relâchée hors de la cible, puis

ionisée et séparée, n'est pas vraiment en équilibre avec sa phase solide. Dans notre cas, cette phase correspond plutôt à la quantité infinitésimale d'atomes présents dans la cible après son irradiation.

Cependant, nous allons nous servir de ces paramètres thermochimiques afin d'évaluer le comportement général des éléments dans l'ensemble cible et source. Ainsi ce logiciel permet tout d'abord de déterminer les différentes réactions chimiques possibles entre la phase vapeur et son environnement. Puis il permet de déterminer la pression de vapeur des composés présents dans le système.

Chapitre 4

Etude de la production et du relâchement des faisceaux d'ions radioactifs du groupe 14 et 16

Les isotopes radioactifs O, S, Te, C, Si, Ge et Sn sont particulièrement intéressants pour la physique [NuP, EUR] mais leur production nécessitent des développements. En effet, soit ils ont (pour le S, Si, Ge, Sn) des propriétés physico chimiques défavorables à leur extraction hors de l'ensemble cible/source ou soit (pour le Te) il existe une forte contamination isobarique au point de détection. L'interaction de ces éléments dans l'environnement où ils évoluent, est particulièrement importante, afin de déterminer à quelle étape de leur transfert dans le système ISOL est due leur perte. Cette étude a été effectuée dans le souci de dégager une méthode pour étudier les isotopes des éléments chimiquement réactifs. L'étude de la formation, de la stabilité et de la volatilité de ces composés, ainsi que leur possible réaction avec les surfaces rencontrées lors de leur trajet doit être effectuée. En particulier, une collection de données thermochimiques provenant de la littérature va être faite afin de répondre au mieux à ces questions. Les mesures en lignes seront ensuite présentées.

4.1 Eléments du groupe 16

4.1.1 Etude thermochimique des éléments du groupe 16

Malgré leur volatilité à basse température ($T < 300\text{ }^{\circ}\text{C}$), qui d'après la figure 4.1 évolue selon $\text{S} > \text{Se} > \text{Te}$, le sélénium mais surtout le soufre ont de très faibles rendements dans des matériaux de cibles ayant une section

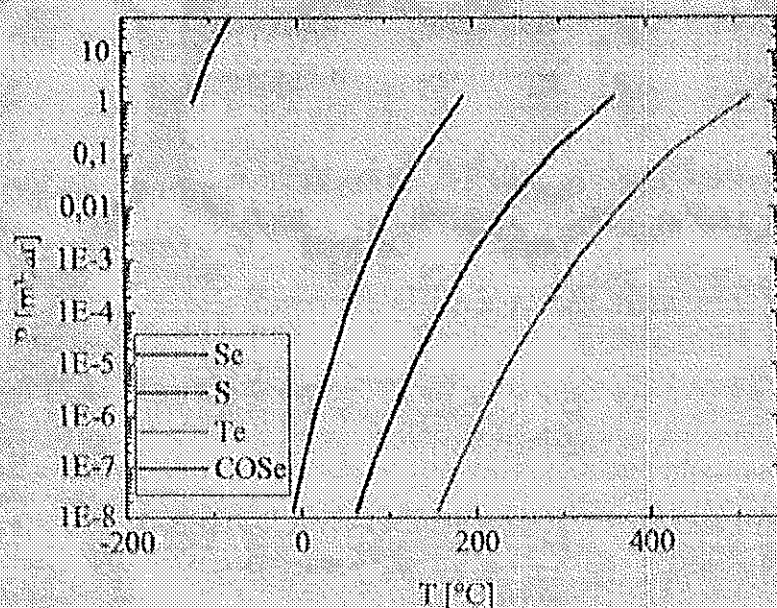


FIG. 4.1 – Tension de vapeur P (calculée avec *THERMOCALC*) du sélénium, soufre et tellure en fonction de la température T .

efficace de production élevée. Ces éléments appartiennent au groupe chimique de l'oxygène et vont donc être, comme ce dernier, chimiquement réactifs. La connaissance des propriétés physico chimiques de ces éléments dans leur environnement est donc importante. D'après le paragraphe 1.3.3, l'utilisation d'une molécule permet de maîtriser la réactivité d'un élément réactif.

Il est bien connu que les molécules CO_2 et CO sont volatiles. Le CO a d'ailleurs déjà été utilisé [Rav97] afin de transporter du carbone radioactif (^{14}C , ^{15}C). Inversement, les isotopes ^{14}O , ^{15}O ont été séparés sous la forme CO [Gae97]. L'oxygène, le soufre, le sélénium et le tellure appartiennent au même groupe du tableau de Mendeleïev et ont par conséquent des propriétés chimiques similaires. La réaction d'un monoxyde de carbone avec les éléments du groupe 14 pourra mener à la formation d'une molécule ayant des propriétés similaires au CO_2 , qui est une molécule volatile, stable et pouvant être ionisée. Les molécules COX ($X \equiv \text{Se}, \text{S}, \text{Te}$) sont en effet volatiles à température ambiante [Pas58], il reste à savoir si elles sont stables dans l'unité cible/source.

Les faisceaux de sélénium déficients en neutrons sont suffisamment bien produits pour que des études en ligne et hors ligne soient effectuées afin de mieux comprendre leurs propriétés de relâchement, d'ionisation ainsi que leur réactivité chimique. On pourra ensuite en tirer des conclusions pour le soufre et le tellure qui appartiennent au même groupe chimique.

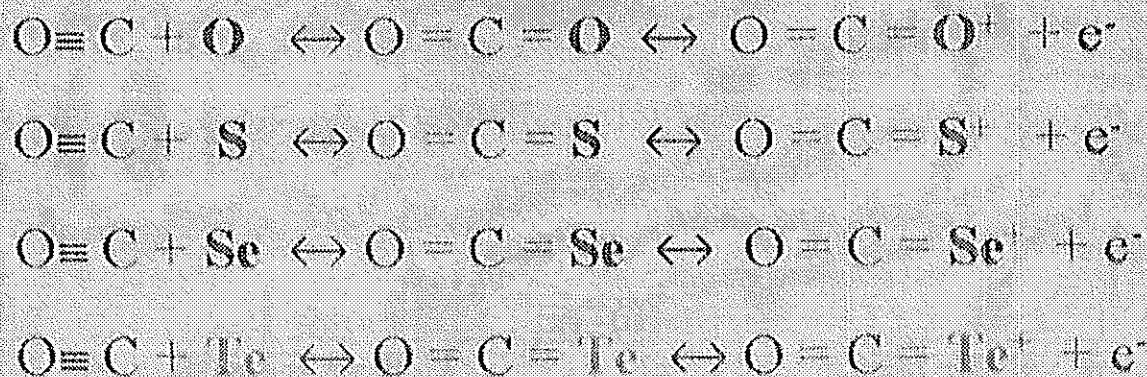


FIG. 4.2 – Réaction d'un monoxyde de carbone avec les éléments du groupe 14.

Le sélénium

La spectroscopie en masse du CO^{68}Se auprès d'ISOLTRAP [Her01], requiert une intensité d'environ 400 ions/ μC . Des faisceaux d'une intensité de 120 ions/ μC ont été obtenus [Bau94] en irradiant avec un faisceau de protons de 600 MeV, une cible de ZrO_2 connectée à une source MK5 dans laquelle un flux contrôlé de O_2 était injecté.

La molécule formée durant son transfert dans le système ISOL, permet d'obtenir une séparation chimiquement sélective [Hag92] du Se, cependant une amélioration de l'intensité et donc de l'efficacité de relâchement est nécessaire.

Nos études de relâchement (paragraphe 3.2.4) ont souligné le caractère réactif du sélénium vis-à-vis de certaines surfaces comme le Nb. Ce type de réactivité n'a pas été observé avec une cible de ZrO_2 . De plus, une telle matrice qui contient de l'oxygène, est favorable au relâchement du sélénium. D'après les résultats de la référence [Hag92], une pression de O_2 de $5 \cdot 10^{-4}$ mbar dans la cible n'est cependant pas suffisante pour atteindre les intensités de CO^{68}Se requises.

L'objectif de nos travaux est donc de comprendre le mécanisme de formation de la molécule ainsi que de déterminer les paramètres optimums pour l'unité cible/source afin d'améliorer la production du Se sous forme moléculaire.

Les données que nous avons trouvées dans la littérature concernant des températures d'exploitation n'excédant pas 800 °C. Le COSe a été préparé pour la première fois par la méthode de Pearson et Robinson [Pea32]. Cette méthode consiste à faire passer un flot de monoxyde de carbone sur du sélénium en poudre chauffé à 500 °C. Bien que le rendement soit seulement de quelques %, la principale réaction va conduire à la production quasiment

pure de COSe avec quelques traces de CSe₂ et CO₂. Il a en effet été montré [Bal73] que la réaction 4.1 est la réaction la plus probable.



A PSI, le transport des noyaux de Se sous forme moléculaire a été étudié [Wac01] en utilisant différents gaz réactifs afin de le séparer du Br [Wac00]. Il a été montré que la quantité de sélénium transportée, est cinq fois plus grande lorsqu'il est associé à du C₃H₆ plutôt qu'avec du CO. De plus, la température de dissociation est de 1050 °C pour la molécule C₃H₆Se alors qu'elle est de 800 °C pour le COSe. Une molécule organique s'avérerait donc intéressante. Pour le valider, il faudra s'assurer de plus, de sa compatibilité avec les différents éléments d'un ensemble cible/source (risque de formation de nitrure, diminution de l'efficacité de la source due à la présence d'hydrogène, réactions chimiques, etc.).

L'énergie de dissociation du COSe de 300 kJ/mol est assez basse (tableau 4.6) en comparaison de celle du CO₂. Une étude montre que tous les composés de sélénium tendent à se décomposer au contact de métaux, notamment la molécule de COSe [Pro73].

Ces études thermochimiques nous indiquent que dans un système cible et source d'ions, la réaction conduisant au COSe provient de la réaction du Se avec un environnement de monoxyde de carbone. De plus, à cause des nombreuses collisions avec les parois, on s'attend à ce que le COSe se dissocie à haute température (de l'ordre de 1800 °C). Un équilibre chimique entre le Se et COSe est à prévoir et la réaction 4.1 peut donc être réalisée dans les deux sens.

Le soufre

Des quantités macroscopiques de soufre s'évaporent majoritairement sous forme S₂ pour des températures comprises entre 800 et 2000 °C [Pas58]. S est un radical qui a tendance à s'associer à d'autres atomes. Ceci se traduit par une forte réactivité et il est donc nécessaire de choisir la séparation chimique adéquate pour un tel élément.

La réaction 4.2, similaire à la réaction 4.1, est exothermique [Lee64] ($\Delta H = 250$ kJ/mol) et donc favorisée énergétiquement.



Elle a déjà été utilisée [Lee64] afin de séparer du ³⁵S produit lors de la réaction nucléaire ³⁵Cl(n,p)³⁵S dans une mixture gazeuse de CO-C₂F₄Cl₂ à température ambiante (autour de 20 °C). 85% du ³⁵S présent a été retrouvé

sous forme CO^{35}S . La formation d'une molécule de COS est donc une méthode efficace de séparation et de transport du soufre.

Un faisceau stable de COS a déjà été observé avec une source d'ions FE-BIAD [And93]. En conséquence, une telle molécule pourrait être utilisée en ligne afin de séparer le soufre radioactif. Il convient pour cela d'adopter un matériau de cible favorable au relâchement du soufre. En effet, par exemple lors de l'irradiation d'une cible de CaO connectée à une source d'ions MK7 (ligne de transfert froide), nous n'avons observé aucune espèce radioactive de soufre sous forme atomique ou moléculaire (COS). Ceci est attribué à la réactivité du S avec le Ca qui est utilisé [Tec] dans les systèmes de combustion (qui doivent réduire au minimum les taux d'émission de SO_2), pour le capturer. Il faudra donc choisir une unité cible/source qui n'a pas d'affinité chimique avec le soufre. Enfin, la molécule de COS est d'après le tableau 4.6 plus stable que celle de COSe.

Conclusion

D'après les données thermochimiques précédentes, la formation d'une molécule de COSe et de COS est une voie prometteuse pour améliorer la production du soufre et du sélénium radioactif. Les réactions 4.1 et 4.2 conduisent en effet à des molécules volatiles et suffisamment stables pour pouvoir être utilisées pour une séparation chimique. Les molécules COX ($\text{X}=\text{Se}, \text{S}, \text{Te}$) sont en effet volatiles à température ambiante [Pas58]. De plus, d'après leur énergie de dissociation récapitulée dans le tableau 4.6, leur stabilité évolue selon : $\text{CO}_2 > \text{COS} > \text{COSe} > \text{COTe}$. Présentons à présent les résultats obtenus en ligne.

4.1.2 Le sélénium

Production du sélénium et de la molécule COSe

Le dispositif expérimental est le suivant. Une cible de ZrO_2 connectée à une source d'ions MK5 a été testée en ligne afin d'étudier la formation de la molécule COSe. Pour cela, on a utilisé la réaction 4.1 en injectant dans la source d'ions, un flux de CO_2 contrôlé par une fuite calibrée. Les différentes conditions expérimentales sont répertoriées dans le tableau 4.1. Les isotopes de longue durée de vie $\text{CO}^{70,71,72,73}\text{Se}$ et $^{70,71,72,73}\text{Se}$ ont été implantés sur des feuilles d'aluminium et leur spectrométrie gamma hors ligne a permis de déduire leur production qui est représentée sur la figure 4.3.

D'après la section efficace cumulative de production de Se, $\sigma_{\text{cum}}(\text{Se})$, déterminée avec le modèle semi empirique de Silberberg et Tsao [Sil73], nous

Condition n°	1	2	3	4	5	6
Φ_{CO_2} [mbar*s]	$1,5 \cdot 10^{-6}$ (a)	no	$3,4 \cdot 10^{-7}$	$1,7 \cdot 10^{-6}$	$1,7 \cdot 10^{-6}$	$4,7 \cdot 10^{-6}$
U [V]	175	120	120	120	60	130
$\epsilon_{ion}(Ar)$ [%]	-	4,4	2,4	4,3	4,0	5,2
$\epsilon_{ion}(Xe)$ [%]	8,1	15,2	20,4	31,7	33,6	15,0
CO [nA]	940	320	315	205	218	450
CO ₂ [nA]	107	26	43	19	19	
Référence	Hag92	ZrO ₂ /01	ZrO ₂ /01	ZrO ₂ /01	ZrO ₂ /01	ZrO ₂ /02

TAB. 4.1 – Conditions expérimentales: Φ_{CO_2} le flux de CO₂ ajouté (excepté pour la note (a) où il s'agit d'un flux de O₂), U la tension d'anode, ϵ_{ion} l'efficacité d'ionisation de l'Ar et du Xe et le courant de CO et CO₂. ZrO₂/01 et ZrO₂/02 correspondent à une unité de cible de ZrO₂ chauffée respectivement à 1898 °C et 1740 °C. Elle est connectée à une source d'ions MK5 et utilisée en 2001 et 2002. La température de la cathode est de 1850 °C. Le faisceau de protons incident est de 1,4 GeV excepté pour la condition n° 1.

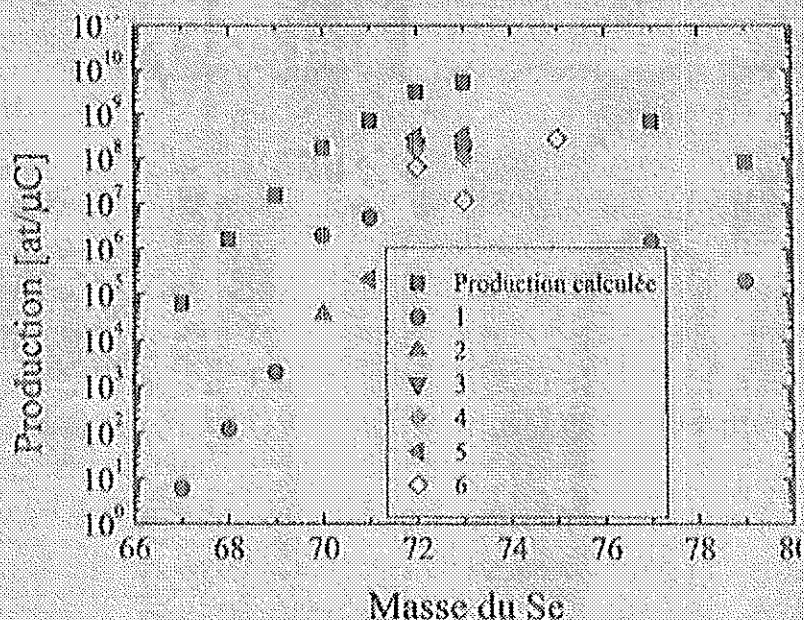


FIG. 4.3 – Production du COSe sous différentes conditions expérimentales (voir tableau 4.1).

avons calculé (voir le tableau 4.2) la production au sein de la cible de ZrO₂ irradiée par un faisceau de protons de 1,4 GeV. Le rapport entre la production mesurée et la production théorique, nous a permis de déduire une efficacité globale de production de Se sous forme atomique et sous forme moléculaire

Conditions expérimentale	Sans addition de CO ₂		Addition de CO ₂	
A (⁷⁶ Se)	72	73	72	73
$\sigma_{cum}(\text{Se})$ [mbarn]	13	22	13	22
$Y_{calc} (^{76}\text{Se} + ^{76}\text{SeCO})$ [at/ μC]	$3,4 \cdot 10^9$	$5,7 \cdot 10^9$	$3,4 \cdot 10^9$	$5,7 \cdot 10^9$
Y_{mes} [ions/ μC]	$4,3 \cdot 10^8$	$4,8 \cdot 10^8$	$5,1 \cdot 10^8$	$5,8 \cdot 10^8$
ϵ [%]	13	8	16	10

TAB. 4.2 - Détermination de l'efficacité globale ϵ de séparation du sélénium à partir de la production calculée Y_{calc} et de la production mesurée Y_{mes} .

ϵ de 6%.

Si l'on suppose une efficacité d'ionisation ϵ_{ion} comprise entre 10 % et 40% [Kir96], 20% à 70% du sélénium se trouve dans les ions Se^+ et COSe^+ . Cette perte en sélénium pourrait s'expliquer soit par la formation d'autres molécules (SeO_2 , SeC ...), soit par son adsorption par une des surfaces du système (TaSe ...).

La production de $^{76}\text{SeCO}$ a été mesurée pour une cible de ZrO_2 de même épaisseur et une source d'ions d'efficacité d'ionisation similaire mais suivie d'une ligne de transfert froide (source MK7). Une limite supérieure de détection de 300 at/ μC a été déterminée contre $2,06 \cdot 10^5$ at/ μC avec une ligne de transfert à 1850 °C (source MK5). On ne s'attendait pas à ce résultat. En effet, la molécule COSe est volatile à basse température et sa dissociation est favorisée pour des températures élevées. Ce résultat suggère que la molécule COSe est essentiellement formée dans la source d'ions. Ainsi, pour exploiter de façon plus efficace la source d'ions MK7, il faudrait injecter un flux de CO_2 plus important directement dans la cible.

D'après la figure 4.4, on constate que le rapport COSe/Se est en moyenne égal à 1,4. Tout d'abord, ce rapport est très bon étant donnée la tendance du COSe à se dissocier (cf. paragraphe 4.1.1). Ensuite, le fait que la formation de la molécule est un processus chimique, se traduit par l'indépendance du rapport avec la masse. Afin de tenter d'augmenter ce rapport en faveur de la formation de la molécule, on a effectué une réduction de moitié de la tension d'anode (de 120 à 60 V). Dans ce cas, l'énergie des électrons est moins importante, ce qui aurait dû permettre de réduire la dissociation des molécules formées. Cependant l'énergie de dissociation est si faible qu'il n'y a aucun effet sur la production du COSe .

D'après le tableau 4.1, on constate que le courant en CO et CO_2 ne varie pratiquement pas après addition de CO_2 dont le flux varie entre $3,4 \cdot 10^{-7}$ et $1,7 \cdot 10^{-6}$ mbar.l/s pour des paramètres de source identiques. Ceci s'explique par la présence d'une pression partielle de CO créée naturellement

dans la source d'ions, plus importante que celle injectée. En effet, le gaz résiduel d'oxygène oxyde la grille d'anode en graphite, ce qui crée une atmosphère de CO incontrôlable. Au cours d'une autre expérience, avec un flux de $4,6 \cdot 10^{-6}$ mbar · l/s, l'efficacité de formation de ^{73}Se et de ^{71}Se est de 38% et 30% au lieu de 58% sans ajout de gaz. La pression partielle de CO a donc un effet sur le fonctionnement de la source d'ions. L'efficacité d'ionisation du Xe a en effet chuté d'un facteur 2 après l'ajout d'un tel flux de gaz.

Ainsi, d'après ces résultats, il n'est pas nécessaire d'augmenter la pression partielle de CO existant naturellement pour former efficacement la molécule COSe.

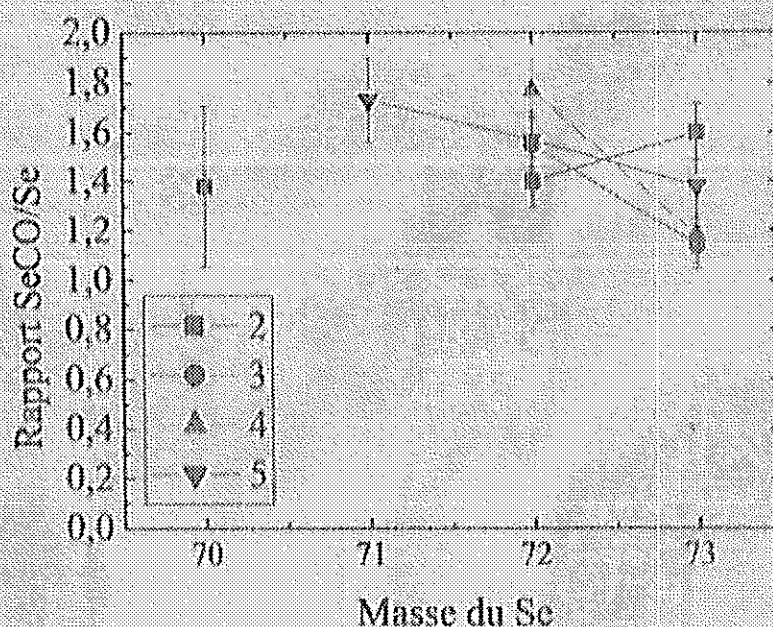


FIG. 4.4 - Rapport COSe/Se pour les différentes conditions expérimentales récapitulées dans le tableau 4.1.

La constante de temps τ du processus d'effusion (cf paragraphe 2.3.4) est directement reliée à l'efficacité d'effusion calculée dans le tableau 4.3. L'efficacité se décrit (d'après le paragraphe 2.3.3) par l'équation $\epsilon_{\text{eff}} = \mu/(\mu + \lambda)$. Le résultat du fit des points expérimentaux de la figure 4.5 donne $\tau = 1/\mu \simeq 40$ min avec une large barre d'erreur. Le temps de séjour moyen est donc assez élevé ce qui traduit la réactivité du Se et COSe.

Sélectivité chimique dans la région de masse du SeCO

La formation d'une molécule permet d'éloigner le sélénium d'une région en masse où un bruit de fond isobarique domine. Cependant, d'autres conta-

isotopes	$T_{1/2}$	$Y_{\text{S&T}}[\text{at}/\mu\text{C}]$	$Y_{\text{Jaeri}}[\text{at}/\mu\text{C}]$	$Y_{\text{mes}}[\text{at}/\mu\text{C}]$	ϵ_{eff}	ϵ_{norm}
^{68}Se	35,5 s	$8,6 \cdot 10^5$		120	$1,4 \cdot 10^{-4}$	$2,7 \cdot 10^{-3}$
^{69}Se	27,4 s	$8,8 \cdot 10^6$	$1,6 \cdot 10^6$	$2,0 \cdot 10^3$	$3,8 \cdot 10^{-4}$	$7,3 \cdot 10^{-3}$
^{70}Se	41,1 m	$1,1 \cdot 10^8$	$3,4 \cdot 10^7$	$2,0 \cdot 10^6$	$2,7 \cdot 10^{-2}$	$5,2 \cdot 10^{-1}$
^{71}Se	4,74 m	$4,9 \cdot 10^8$	$1,5 \cdot 10^8$	$5,0 \cdot 10^6$	$1,5 \cdot 10^{-2}$	$2,9 \cdot 10^{-1}$
^{72}Se	8,5 j	$2,4 \cdot 10^9$	$1,5 \cdot 10^9$			
$^{73\text{m}}\text{Se}$	7,1 h	$4,2 \cdot 10^9$	$3,4 \cdot 10^9$	$2,0 \cdot 10^8$	$5,2 \cdot 10^{-2}$	$1,0 \cdot 10^0$

TAB. 4.3 – Production théorique des isotopes du sélénium $Y_{\text{S\&T}}$ (en utilisant les sections efficaces de Silberberg et Tsao), Y_{Jaeri} (en utilisant les sections efficaces de Jaeri [Hag02]), production mesurée Y_{mes} pour une cible de ZrO_2 connectée à une source d'ions MK5, efficacité d'effusion ϵ_{eff} , et efficacité normalisée ϵ_{norm} .

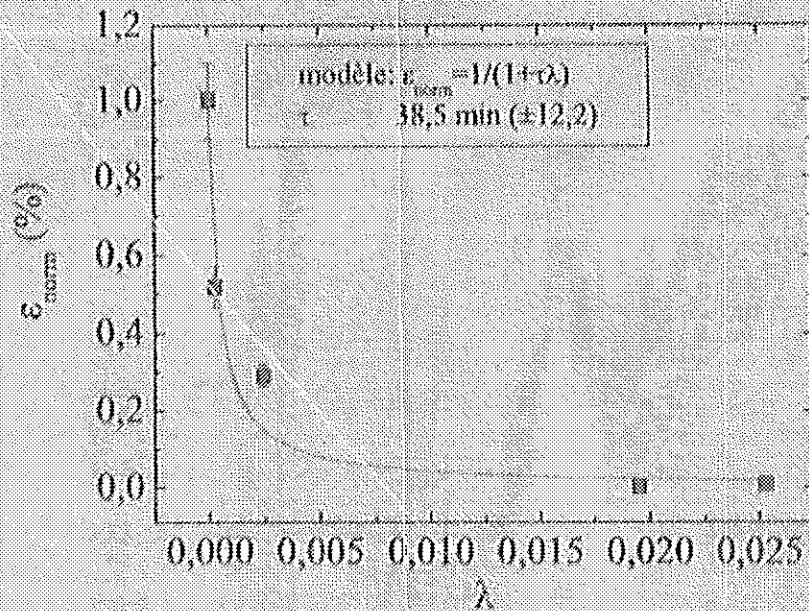


FIG. 4.5 – Efficacité d'effusion normalisée ϵ_{norm} en fonction de la durée de vie des isotopes du sélénium. La courbe (rouge) représente la fonction utilisée pour modéliser les résultats.

minations existent comme $^{27}\text{Al}^{70,71,72}\text{Br}$ à la masse $^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{69,70,71}\text{Se}$. Lors de l'irradiation de la cible de ZrO_2 avec un faisceau de 1 GeV, la production de CO^{71}Se et de Al^{70}Br est respectivement de $4 \cdot 10^6$ et $4 \cdot 10^3$ at/ μC . Une contamination en aluminium provenant du mode de production du ZrO_2 qui se fait dans un creuset en Al_2O_3 , entraîne en effet la formation de la molécule AlBr . Afin d'éliminer cette contamination, il faudrait utiliser un autre mode

de production pour cette céramique.

De plus, les isotopes de Ag, In et Cd peuvent être produits par spallation du HfO_2 qui est présent à quelques % en masse dans le ZrO_2 , ainsi que par spallation du container en tantale. La réalisation d'un prototype avec un container en niobium pour réduire cette contamination isobarique, est en cours d'étude.

Etude de la réactivité du sélénium

Un traceur (dont nous avons vu le principe au paragraphe 3.1.3) contenant 50 μg de sélénium a été préparé par évaporation d'une solution de $\text{Se}(\text{NO}_3)_2$ sur une feuille de tantale. Celui-ci a été introduit dans un tube de Ta relié à une source plasma MK5 puis chauffé par un passage de courant, afin d'évaporer le sélénium. Une bouteille contenant du CO_2 , a également été connectée afin d'étudier la formation de molécules. Pendant l'évaporation lente du sélénium dans la source d'ions, on mesure avec une cage de Faraday le courant des ions sélénium et des ions moléculaires formés en fonction du courant passant dans le tube de tantale (I_{cour}).

Les figures 4.7 et 4.8 montrent les spectres de masse des molécules trouvées pour l'ensemble des isotopes du sélénium (figure 4.6). Les molécules identifiées sont le COSe et le SeY ($A_Y = 32$) pour lesquelles on retrouve le rapport des abondances relatives du sélénium naturel. La molécule SeY ($A_Y = 32$) a ensuite été injectée, piégée et refroidie dans REXTRAP [Sch02]. L'oxygène n'ayant pas été observée, la molécule SeO_2 n'a probablement pas été injectée. Il s'agit donc de la molécule SeS qui n'a jamais été observée en ligne. En fait l'unité cible/source avait déjà été utilisée avec une fuite de SO_2 , ce qui explique la présence d'impuretés de soufre dans le système conduisant à la formation du SeS .



FIG. 4.6 – Spectre de masse centré sur ^{77}Se .

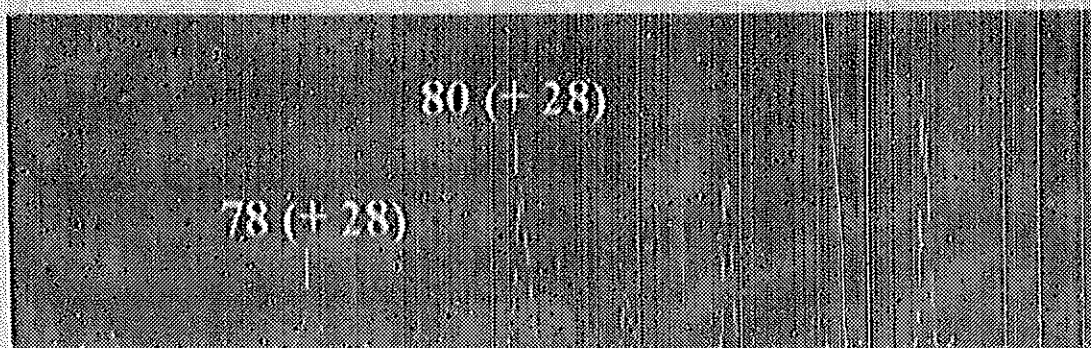


FIG. 4.7 – Spectre de masse centré sur $^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{80}\text{Se}$.

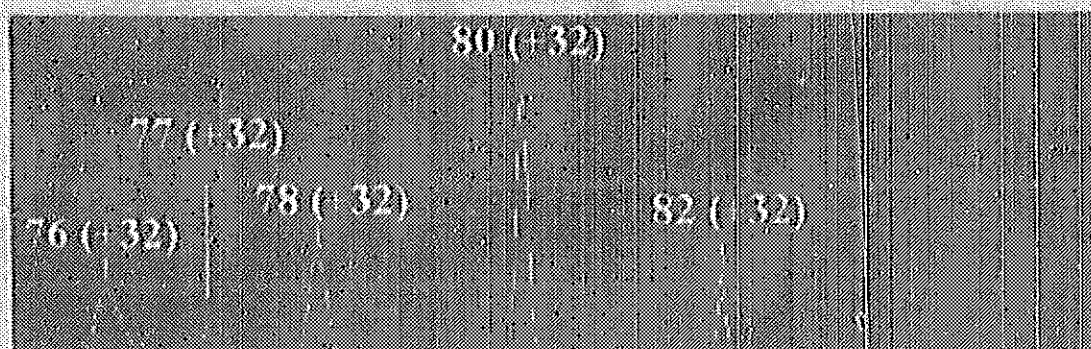


FIG. 4.8 – Spectre de masse centré sur $^{80}\text{Se}^{32}\text{S}$.

La figure 4.9 montre l'évolution du courant des ions Se, COSe, SeS et CO en fonction du courant de chauffage du traceur. Les rapports SeS/Se et le COSe/Se sont quasiment égaux. Cependant, l'existence d'une contamination provenant du GeS, rend la molécule SeS moins attractive du point de vue de la sélectivité.

Lors de la mesure de la masse du CO^{69}Se par ISOLTRAP [Her01], la molécule s'est cassée dans le RFQ. Ce piégeage utilise en effet un gaz d'hélium afin de ralentir les ions et contenant également des impuretés comme H_2O , N_2 . L'énergie à laquelle se produisent ces collisions s'étend de 10 à 100 eV avec un maximum à 10 eV. Dans de telles conditions, la molécule SrF^+ ne s'est pas dissociée, ce qui n'est pas le cas du COSe qui possède une énergie de dissociation D_0 de 2,83 eV contre 5,62 eV pour le SrF^+ . Quand à la molécule de SeS ($D_0=3,91$), elle est plus stable que celle de COSe.

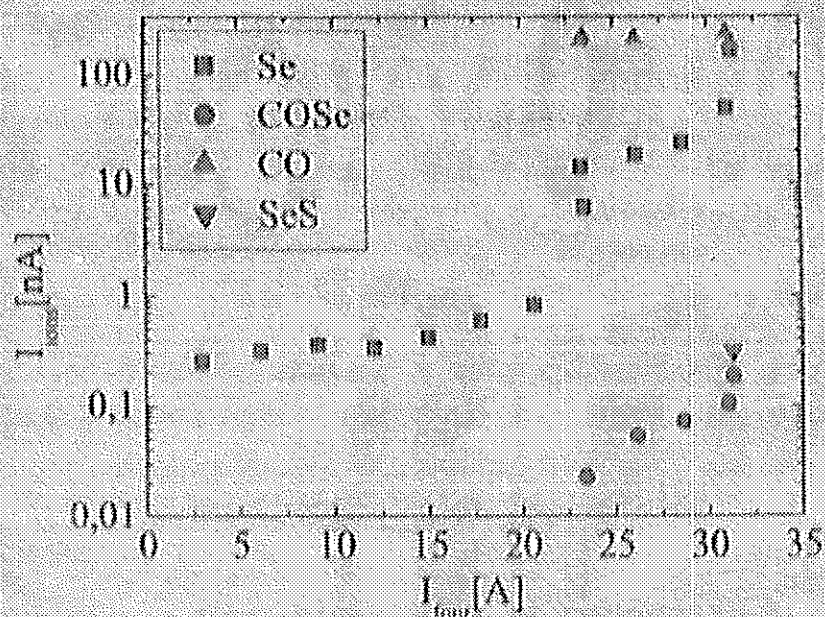


FIG. 4.9 – *Evaporation du sélénium et des molécules associées : courant d'ions (I_{ion}) en fonction du courant de chauffage du traceur de sélénium (I_{four}).*

4.1.3 Le soufre

Production du soufre

La spectroscopie βp du noyau de l'isotope ^{27}S , dont nous avons vu l'intérêt physique nécessiterait seulement 1 ion/s. Même si cela représente une faible production, il s'agit d'un véritable défi compte tenu de l'extrême réactivité du soufre. En effet, les faisceaux de soufre n'avaient jamais été produits jusqu'à présent à ISOLDE. A GANIL, les ions multichargés de $^{35}\text{S}^{6+}$, $^{37}\text{S}^{5+}$ [Lee97] résultants de la fragmentation du ^{36}S sur une cible de graphite, ont été observés et séparés sur SIRa, en intégrant la source au voisinage de la cible. Cependant, une telle configuration altère la source.

Nos mesures hors lignes révèlent que le TiO_2 et le VC sont des matériaux de cibles prometteurs pour cet élément, cependant sa réactivité vis-à-vis de l'environnement cible/source doit être étudiée.

Une cible de ZrO_2 connectée à une source MK5, a été utilisée pour la production du Se, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Se et Br. Bien que la section efficace de production du S ne soit pas optimale avec une telle matrice, nous avons effectué une collection de 3192 s, dans des conditions favorables à l'observation du S ou du COS (ajout de CO_2 , diminution de la température de la cible). Nous avons identifié le ^{38}S avec une production de $8 \cdot 10^3$ ions/ μC . Cependant, nous n'avons pu déterminer qu'une limite de dé-

section de $2 \cdot 10^5$ ions/ μC pour la production du CO^{38}S . En effet son signal est noyé dans un grand bruit de fond dû à la contamination isobarique du ^{66}Ga .

Afin de déterminer la production théorique du ^{38}S , nous avons utilisé la section efficace de production des isotopes $^{41,44}\text{Ar}$ qui ont un (A,Z) proche de celui du ^{38}S . Donc ces isotopes ont une section efficace quasi similaire. Les productions mesurées sont pour l' ^{41}Ar ($T_{1/2}=1,83$ h) de $4,0(3) \cdot 10^5$ at/ μC et pour l' ^{44}Ar ($T_{1/2}=11,87$ m) de $8,4(2) \cdot 10^3$ at/ μC . D'après le modèle de Silberberg et Tsao [Sil73], la production des isotopes ^{41}Ar et ^{44}Ar est respectivement de $1,0 \cdot 10^6$ at/ μC et $1,6 \cdot 10^5$ at/ μC . On déduit donc des efficacités globales de 2,3 et 5,3 % pour chacun de ces isotopes. En supposant une efficacité de relâchement de 100% pour l' ^{41}Ar qui est un gaz rare ayant une longue durée de vie, l'efficacité d'ionisation de cet isotope est égale à l'efficacité globale calculée. L'Ar étant injecté dans la source d'ions via une fuite calibrée, il est possible de déterminer avec précision son efficacité d'ionisation. Elle est d'environ 7%. On en déduit que le modèle de Silberberg et Tsao surestime d'un facteur 1,2 à 1,7 les sections efficaces de production. On a donc utilisé ce modèle pour déterminer les sections efficaces de production du ^{38}S . Si l'on suppose une efficacité d'ionisation comprise entre 10 et 20%, 9 à 24% du soufre se retrouve comme espèce atomique. Cette perte pourrait s'expliquer soit par le transport du soufre sous forme moléculaire (COS^+ , SC^+ ou SO^+) soit par son adsorption par une des surfaces du système (TaS...).

Une précision doit être faite concernant la production du ^{38}S . Le ^{38}S détecté pourrait éventuellement venir de la décroissance du ^{38}P . La production calculée avec le modèle semi empirique de Silberberg et Tsao [Sil73] est de $3 \cdot 10^4$ at/ μC . Si l'on suppose une efficacité d'ionisation de 20% [Kir96], une efficacité de relâchement supérieure à l'unité est déduite, ce qui n'est pas possible, étant donné que l'on n'a jamais observé de faisceau de phosphore à ISOLDE¹. Ainsi, le ^{38}S ne provient pas de la décroissance du ^{38}P .

La section efficace de production du soufre dans une matrice de TiO_2 est 26 fois plus grande que dans une matrice de ZrO_2 (d'après le modèle de Silberberg et Tsao [Sil73]). Ainsi, dans une cible de TiO_2 irradiée par un faisceau de protons de 1,4 GeV, on devrait obtenir un faisceau de ^{38}S avec un rendement de $4,08 \cdot 10^7$ ions/ μC .

Mesures hors ligne : Etude de la réactivité du soufre

Nous avons mis au point une nouvelle source d'ions MK5 pour étudier la chimie du soufre dans la source d'ions (figure 4.10). Le container, qui contient

1. Lors de la production [Lec97] du $^{35}\text{S}^{4+}$ ($1,3 \cdot 10^5$ at/ μC), $^{35}\text{P}^{6+}$ ($5,5 \cdot 10^3$ at/ μC) a été observé.

$$\text{SO}_2 + 2\text{C}(\text{graphite}) \rightleftharpoons \text{COS} + \text{CO} \quad (4.3)$$

Chambre de collection

Cage de Faraday et extraction

Entrée d'argon

Magnet

Deflecteur HV

Focalisation

Extraction HV & centrage en x-y

Source d'ions MK5

Entrée d'argon

M

Pompe tubo-moléculaire 500 l/s

Valve manuel

Pompe tubo-moléculaire 500 l/s

Pompes primaires

Valve de régulation (#83547 Fluka)

SO₂ en pression d'étain de 100 ml (128g) (#84693)

J Jauge
D Diaphragme
M Manomètre

FIG. 4.10 - Schéma de l'expérience en ligne pour l'étude de la réactivité du soufre.

Cette unité a été placée sur le séparateur hors ligne d'ISOLDE dont les différents éléments sont représentés sur la figure 4.10, afin d'effectuer des spectres de masse pour identifier les molécules formées dans la source d'ions. La mesure des courants d'ions extraits s'est faite à l'aide d'une cage de Faraday. La différence principale avec le séparateur en ligne est une tension d'accélération des ions de 30 kV au lieu de 60 kV.

Après avoir optimisé la source d'ions (tableau 4.4) en faisant varier la tension d'anode, ainsi que la distance de l'électrode d'extraction et la température de la ligne, un spectre de masse a été effectué afin de déterminer les impuretés présentes dans la source d'ions, sans ajout de SO_2 . Puis, après ajout du gaz, les courants COS^+ , CS^+ et S^+ ont été mesurés (tableau 4.5 et figure 4.11).

Paramètres	Tension	Courant	Unités
Haute tension	29	-	kV
Tension d'extraction	27.5	-	kV
Tension de focalisation	15.05	-	kV
Tension de cathode	356	4	V/A
Tension d'anode	168	160	kV/mA
Aimant	15	4	V/A

TAB. 4.4 - Paramètres d'optimisation de la source d'ions MK5.

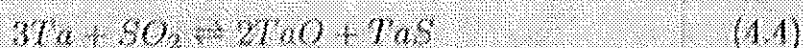
Les points expérimentaux sont des collections de données faites sur plusieurs jours. En raison de la difficulté du système à se saturer en soufre, il a fallu attendre plusieurs heures avant d'observer le premier courant de ^{32}S après injection du SO_2 . Après arrêt de l'injection du soufre dans la source d'ions, le courant de soufre $\text{I}(\text{S})$ décroît lentement jusqu'à épuisement, ce qui indique la présence d'une fuite dans le système ou bien la capture du soufre par un réservoir au sein de l'unité cible/source. On constate que le courant de COS , $\text{I}(\text{COS})$ évolue linéairement avec le courant $\text{I}(\text{S})$ de ^{32}S . Ainsi, la formation de la molécule COS croît avec la pression partielle de soufre se trouvant dans l'unité cible/source. On constate une légère saturation pour des forts courants de soufre qui est due au fait qu'il n'y a plus assez de CO disponible par rapport au soufre pour former la molécule de COS . Le rapport COS/S varie entre 1,5 à 4,5 lorsque la température de la source évolue de 1950 à 2150 °C. Le chauffage favorise donc la formation de la molécule COS via la réaction 4.3 dans cette gamme de température. Le soufre apparaît dans d'autres ions moléculaires comme le CS^+ observé avec un courant maximum de 650 nA² pour 1100 nA de COS^+ et il est 150 à 350 fois supérieur au cou-

2. Nous avons veillé à utiliser le composé $^{12}\text{C}^{34}\text{S}$ et non le $^{12}\text{C}^{32}\text{S}$ qui est sur la même

Date	4/6 14:20	7/6 11:00	7/6 13:45	7/6 14:10	7/6 14:35	7/6 15:50	7/6 16:35	7/6 16:50
Gaz		SO ₂						
Anode [V]	173	175	175	175	175	175	175	175
Cathode [A]	356	360	360	360	356	360	360	328
I(CO) [nA]	2270	8040	-	-	3050	-	-	-
I(¹³² Xe) [nA]	211	111	105	111	123	142	140	112
I(⁴⁰ Ar) [nA]	5240	2748	-	-	2926	-	-	-
I(S) [nA]	3,3	272,6	121,0	79,3	37,9	49,2	22,3	2,7
I(COS) [nA]	10,2	1136,6	494,3	355,1	210,9	188,0	101,1	4,1
I(CS) [nA]	84,1	661,1	-	-	331,7	-	-	-
COS/S				4,5				1,5
Date	11/6 10:15	11/6 17:05	12/6 8:40	12/6 11:10	12/6 16:30	13/6 8:40	13/6 16:00	14/6 9:00
Gaz			SO ₂				SO ₂	
Anode [V]	173	166	173	173	173	173	173	173
Cathode [A]	356	356	344	356	352	352	352	352
I(CO) [nA]	8250	8200	5160	5300	1940	6900	2530	4890
I(¹³² Xe) [nA]	248	187	240	234	272	246	241	255
I(⁴⁰ Ar) [nA]	4226	4344	4019	4255	3960	4728	3901	4890
I(S) [nA]	34,7	45,2	15,8	20,0	9,2	684,1	307,3	971,4
I(COS) [nA]	113,3	134,6	27,43	8,44	47,6	1490,3	654,9	624,8
I(CS) [nA]	346,	326,9	36,1	271,6	151,4	213,9	144,2	257,2
COS/S	3,3	2,9	1,7			2,7		

TAB. 4.5 – Evolution des courants de soufre (S), sulfure de carbone (CS) et de sulfure de carbonyl (COS) en fonction des paramètres de la source d'ions du tableau 4.6.

rant de soufre lorsque la température de la ligne augmente de 2020 à 2080 °C. D'autres molécules ont été observées comme le TaO (avec un courant maximum $I_{\max}$ de 28 nA) et le TaS ($I_{\max} = 1,6$ nA). La réaction possible lors du transport du gaz dans le tube de transfert en tantale serait:



Enfin, l'ajout de SO₂ ne modifie pas significativement l'efficacité d'ionisation de la source d'ions malgré les forts courants de soufre observés (jusqu'à 971 nA).

masse que le ¹²C¹⁸O₂

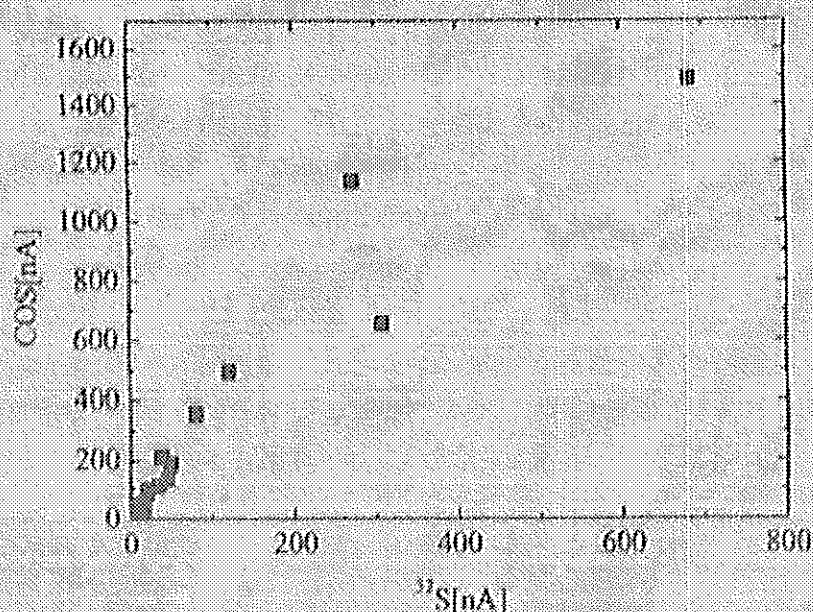


FIG. 4.11 – Evolution du courant de COS en fonction de celui de ^{32}S .

4.1.4 Le tellure

Les faisceaux de tellure riches en neutrons sont extraits d'une cible d' UC_x connectée à une source MK5, avec des rendements atteignant $7 \cdot 10^8$ ions/ μC pour le ^{132}Te . Cependant, de nombreux isobares sont également présents comme le Cs (particulièrement gênant avec un rendement de $4 \cdot 10^{10}$ ions/ μC), I, Sb, Sn et In qui sont produits de sorte que le ^{132}Te ne représente que 1,71% des isotopes observés sur la masse 132. Nous avons vu que l'utilisation d'ions moléculaires permet parfois de remédier au bruit de fond isobarique.

La présence [Zira] d'environ 1,5% en masse de Hf comme impuretés dans le ZrO_2 a permis l'observation des isotopes ^{116}Te et ^{117}Te . La collection de ces isotopes sur des feuilles d'aluminium a eu lieu durant l'expérience décrite au paragraphe 4.1.2. Encouragés par la possibilité du transport du sélénium sous la forme moléculaire COSe , nous avons étudié la formation de la molécule COTe . Un rapport $\text{COTe}^+/\text{Te}^+ \geq 0,7\%$ a été mesuré et ceci indépendamment de la masse du tellure, du flux de CO_2 injecté et des conditions de source. Ce rapport est une limite inférieure puisque la production du Te mesurée cumule également la production des pères (I^+ , Xe^+ , Cs^+) qui est probablement plus importante que dans le cas du Se. Le rendement (cumulatif) du ^{116}Te (ainsi que celui du ^{117}Te) est de $5,5 \cdot 10^5$ ions/ μC . Calculant la production dans la cible du ^{116}Te , on peut en déduire une efficacité globale d'environ 40%. Si l'on suppose une efficacité d'ionisation du Te comprise entre 10 et 50%

[Kir96], le Te est substantiellement relâché sous forme atomique. Cependant, il est possible que le Te soit relâché de la cible sous forme COTe et se dissocie durant l'ionisation.

Concernant les isotopes déficients en neutrons, d'après nos mesures hors ligne, le CeO_2 est un bon matériau pour la diffusion du Te. De plus, comme nous venons de le voir, l'efficacité globale de relâchement dans une cible de ZrO_2 est proche de 40%. Donc, une cible de CeO_2 sera parfaitement adaptée à la production du Te déficient en neutrons.

4.1.5 Conclusion

L'existence d'une pression partielle de CO dans la source d'ions permet la formation d'une molécule de COSe ayant un rendement proche du Se sous forme atomique. Le COSe et Se sont produits avec une efficacité plus grande avec une source MK5 qu'avec une source MK7 (ligne de transfert froide). Ceci est dû à la réactivité du Se. De plus, la formation du COSe permet d'éliminer une forte contamination isobarique dans la région de masse du sélénium déficient en neutrons.

Une expérience hors ligne, permettant d'injecter du soufre stable dans une source MK5, a permis de conclure à l'existence de molécules telles que le COS et CS. L'intensité de ces molécules est de 2 à 10 fois (suivant les paramètres de sources) plus importante que celle du soufre, ce qui confirme l'intérêt d'une séparation chimique du soufre. Cependant, des réserves concernant la reproductibilité de ces résultats avec du soufre radioactif doivent être faites tout comme c'était le cas avec du sélénium stable. En effet, les espèces radioactives sont créées en quantité infinitésimale et donc beaucoup plus faible que les atomes stables injectés.

molécule	rapport	E_{diss}	
COX	[%]	kJ/mol	eV
COTe	>0.70	187	1,94
COSe	58	300	2,83
COS	<95	380	3,71
COO	8	625	6,19

TAB. 4.6 - Energie de dissociation E_{diss} et le rapport $\text{COX}^+ / (\text{COX}^+ + \text{X}^+)$ (avec $\text{X} = \text{Se}, \text{S}, \text{Te}$).

D'après le tableau 4.6, récapitulant le rapport $\text{COX}^+ / (\text{X}^+ + \text{COX}^+)$ (avec $\text{X} = \text{Se}, \text{S}, \text{Te}$) et l'énergie de dissociation des molécules COX, ce rapport est lié à la force de liaison de la molécule COX. Ainsi, le COS devrait exister dans

un système où le soufre réagit préférentiellement avec le CO. Ceci pourrait être par exemple le cas d'une cible associée à une source MK5 dans laquelle serait injectée du CO₂.

Le faible rapport COTe/Te (avec la réserve qu'il s'agit d'une limite inférieure) est dû à la faible stabilité de la molécule COTe vis-à-vis de la dissociation en comparaison avec la molécule COSe. Le Te appartient aux métaux et donc sa réactivité n'est pas comparable à celle du Se.

4.2 Eléments du groupe 14

4.2.1 Etude thermochimique des éléments du groupe 14

Des faisceaux d'ions radioactifs d'étain et de plomb ont déjà été produits à ISOLDE. Par contre des faisceaux de silicium ne l'ont jamais été et le germanium est difficilement produit.

Ceci s'explique tout d'abord par leur faible volatilité. Comme cela a déjà été fait pour le groupe 16, la méthode d'évaporation chimique a été utilisée. Nous allons voir pourquoi, en l'utilisant, la production des éléments du groupe 14 devrait être améliorée en intensité et en pureté.

Les mono sulfures des éléments du groupe 14 ont la particularité d'être en général plus volatiles que l'espèce atomique elle-même. En effet, d'après la figure 4.12, la tension de vapeur d'un sulfure est augmentée de 5 ordres de grandeur par rapport à l'espèce atomique correspondante et pour une température donnée.

A GSI-ISOL, R. Kirchner a montré durant une expérience en ligne utilisant une source FEBIAD-B2-C [Kir97] que le temps moyen de désorption pour le germanium et l'étain est respectivement d'environ 1 s et 1 ms alors que celui des sulfures correspondants est 100 fois plus petit.

D'après les énergies de dissociation des sulfures répertoriées dans le tableau 4.7, la stabilité des sulfures évolue selon SiS > GeS > SnS > PbS. La séparation de l'étain comme sulfure a été obtenue [Str] par le groupe HRIBF à Oak Ridge grâce à la présence d'impuretés de soufre dans le matériau de cible. Nous avons étudié la faisabilité de la séparation du SnS à ISOLDE (voir paragraphe 4.2.2) à l'aide d'expériences en ligne et hors ligne. Afin de préparer celle du SiS et GeS, une recherche sur les propriétés thermochimiques de ces composés a été faite.

GeS

La section efficace de production du ⁶⁵Ge ($T_{1/2}=31$ s) lors de l'impact d'un faisceau de protons de 1,4 GeV avec des noyaux de Y et de Sr est

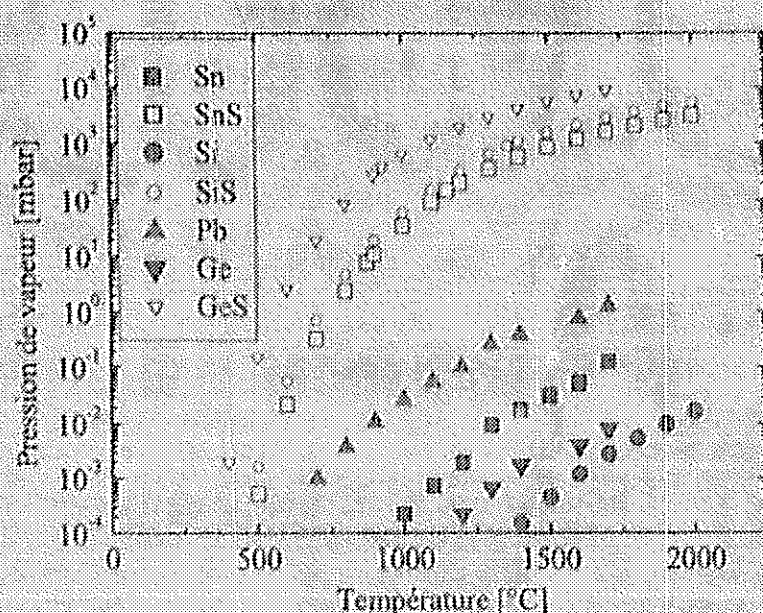


FIG. 4.12 – Comparaison des tensions de vapeur (calculées par ThermoCalc) de l'étain, silicium, germanium avec les sulfures correspondants.

respectivement 0,7 mbarn et 0,3 mbarn. D'après le tableau 3.1, YS et SrS ont des points de fusion supérieurs à 2000 °C. De plus, la tension de vapeur de YS est inférieure à $8 \cdot 10^{-5}$ mbar à 1200 °C [Cam67]. Ce sont donc de bons matériaux de cible pour une utilisation à haute température.

L'étude de la formation [Cop67] du GeS par réaction de Ge(g) avec du YS(g) nous a amené à proposer la réaction suivante:



Une cible de sulfure d'yttrium (ou sulfure de strontium) irradiée par un faisceau de protons pourrait produire par réaction de spallation des isotopes du germanium. Ceux-ci seraient ensuite transportés selon GeS grâce à la pression partielle de soufre existant lors du chauffage de la cible.

Une source micro-onde [Sak92] a déjà été utilisée afin d'extraire des ions Ge^+ sous la forme d'ions moléculaires. Des courants de GeS^+ dix fois plus élevés que ceux de GeO^+ ont été obtenus. L'ajout d'oxygène dans une cible de ZrO_2 [Hag92], n'a pas permis de mettre en évidence cette molécule. D'après les données thermochimiques du tableau 4.7, on constate que le GeO est plus stable que le GeS (énergie de dissociation plus grande). Cependant, le GeS est le composé le plus volatil. En effet, la température pour laquelle le GeS s'évapore avec une tension de vapeur de 1 mbar est inférieure à celle du GeO. Le sulfure apparaît donc comme le composé le plus favorable au transport

Molécule solide ou gaz	T _m [°C]	ΔH_{form} [kJ/mol]	E_{diss} [kJ/mol] à 298K	T[°C] (P _v [mbar]=10 ⁻⁴)
SiS(s)	940	-160,5	-	450
SiS(g)	-	116,6	614,5	-
SiO(s)	>1702	-437,6	-	850
SiO(g)	-	-	794,2	-
GeS(s)	938	-76,1	-	482 ^a
GeS(g)	-	96,9	547,6	-
GeO(s)	710	-255,4	-	614 ^a
GeO(g)	-	-	155	-
SnS(s)	882	-107,8	-	450
SnS(g)	-	112,4	463,9	-
SnO(s)	1630 ^b	-285,9	-	1000 ^b
SnO(g)	-	-	522,5	-

TAB. 4.7 – Quelques données thermochimiques des sulfures d'intérêts [Mil94]. La chaleur de formation ΔH_{form} , l'énergie de dissociation E_{diss} et la température pour une tension de vapeur P_v de 10⁻⁴ mbar (excepté pour la note a [Sak92] où $P_v = 1$ mbar). b: il s'agit du composé SnO₂.

du germanium.

SiS

La section efficace de production du Si, lors de l'impact d'un faisceau de protons de 1,4 GeV avec des noyaux de Sc est de 0,1 mbarn pour le ²⁶Si (T_{1/2}=2,21 s). Le point de fusion du Sc₂S₃ étant de 1775 °C, et sa tension de vapeur étant basse (< 8·10⁻⁵ mbar à 1200 °C [Cam67]), le Sc₂S₃ est un bon matériau de cible. Une cible de Sc₂S₃ pourrait donc être intéressante pour la production du silicium déficient en neutrons. En réagissant directement avec le soufre contenu dans le matériau de cible, le Si serait transporté sous la forme SiS.

Le sulfure de silicium a déjà [Coc89] été synthétisé dans sa phase vapeur en envoyant un flux de gaz de CS₂ sur du silicium chauffé dans un creuset en molybdène à 1500 °C. L'énergie de dissociation du SiS de 614 kJ/mol, indique que cette molécule est plus stable que le SnS (cf tableau 4.7). Comme il a été démontré [Str] que ce dernier survivait dans l'ensemble cible/source, on pourrait s'attendre à la même conclusion pour le sulfure de silicium. A 1099 °C, le SiS a une pression de 0,0834 bar (d'après un calcul fait par THERMOCALC), ce qui montre qu'il est extrêmement volatile. Le potentiel

d'ionisation du sulfure de silicium étant assez élevé (10,53 eV), cela indique qu'il est plus difficilement ionisable que le SnS.

4.2.2 L'étain

Production d'étains déficitaires en neutrons

Les noyaux d'étains déficitaires en neutrons peuvent être produits (voir tableau 4.8) par réaction de fusion-évaporation ou de fragmentation du projectile. Cependant, les productions de telles réactions sont faibles. La fragmentation du faisceau de ^{124}Xe a permis d'obtenir 1 événement en 62 heures de mesure [Sto01]. Les réactions de spallation utilisées à ISOLDE sont en compétition avec la réaction de fusion-évaporation $^{58}\text{Ni} + ^{50}\text{Cr}$ du point de vue de la section efficace de production σ_{fusion} . En effet, pour l'isotope ^{100}Sn [Cha96], σ_{fusion} est estimée à 40 nb.

Projectile	E[MeV]/A	Cible	Réactions	Installation
^{124}Xe	1100	Be	fragmentation	GSI-FRS
^{124}Xe	63	Ni	fragmentation	GANIL
^{112}Sn	1000	Be	fragmentation	GSI-FRS
^{58}Ni	3,9	^{50}Cr	fusion-évaporation	GSI-ISOL
p	1000	TeCl_4	spallation	ISOLDE
p	1000	LaC_x/gr	spallation	ISOLDE

TAB. 4.8 – Production de l'étain déficient en neutrons auprès de différentes installations.

La première cible utilisée à ISOLDE pour la production de l'étain déficient en neutrons était une cible de TeCl_4 [Als70]. Mais celle-ci a été abandonnée car son contrôle thermique est difficile. En effet, la maintenir à 120 °C, qui est sa température maximale d'utilisation, est difficile du fait du dépôt en énergie du faisceau de protons incident de 1 GeV.

Plus tard, une cible de LaC_x associée à une source laser a été utilisée. La production théorique au sein de la cible Y_{calc} a été calculée (voir figure 4.13) à partir du code de Silberberg et Tsao [Sil73]. De la production mesurée Y_{mes} (figure 4.13), on déduit une efficacité globale $\epsilon = Y_{\text{mes}}/Y_{\text{calc}} \simeq 1\%$. D'après les paramètres de délais trouvés dans le paragraphe 3.1, l'étain fait partie des éléments difficilement produits. L'efficacité de relâchement limite donc sa production. De plus, il est difficile de fabriquer une cible de LaC_x dépourvue d'oxygène. A des températures suffisamment élevées pour relâcher l'étain, c'est à dire au dessus de 1800 °C, des faisceaux intenses de LaO sont produits et peuvent fortement abaisser l'efficacité de la source d'ions.

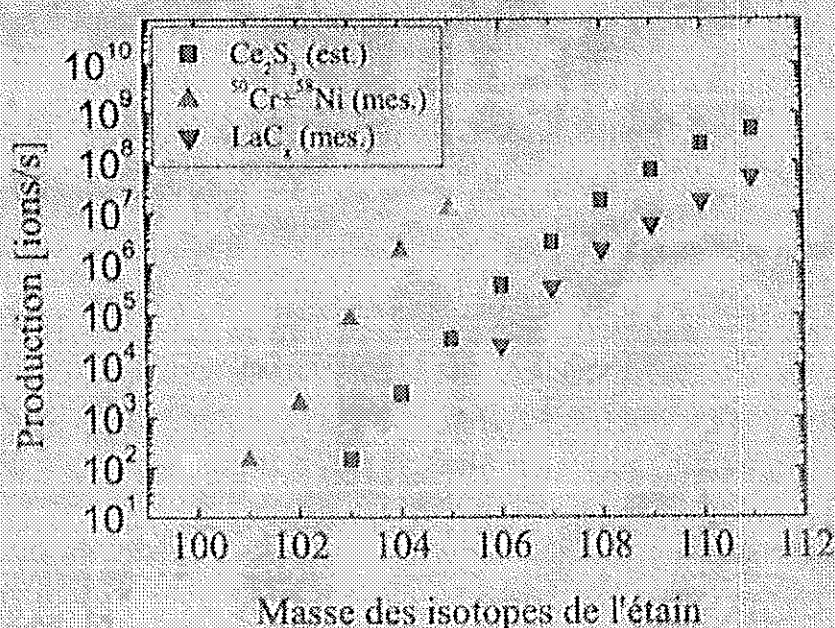


FIG. 4.13 – Production mesurée de l'étain déficient en neutrons d'une cible de 30 g/cm^2 de LaC_6 /graphite puis lors de la réaction de fusion-évaporation $^{50}\text{Cr}(^{58}\text{Ni}, \alpha n)^{106}\text{Sn}$ [Kar02] (dans ce cas l'étain a été séparé sous forme SnS) et production attendue dans le cas d'une cible de 30 g/cm^2 de Ce_2S_3 (l'étain est séparé sous forme SnS).

Les isotopes d'indium sont produits avec une section efficace de production par réaction de spallation, d'un ordre de grandeur supérieur à celle de l'étain. La figure 4.14 représente la production de l'indium mesuré auprès de différentes installations. Pour une même cible, l'In est extrait d'une source à ionisation de surface et d'une source laser avec la même intensité. L'indium est un contaminant isobarique gênant puisque l'étain est présent à moins de 1% à la masse 106. L'indium est produit par réaction de fusion-évaporation avec une production similaire aux réactions de spallation.

Afin de pallier le problème de contamination isobarique, nous avons vu que l'on pouvait séparer l'étain sous forme SnS . En effet, l'In n'est pas transporté sous forme InS ($\text{InS}^+/ \text{In}^+ < 3 \cdot 10^{-3}$ [Kir03]). Cette méthode a déjà [Kar02] été appliquée en associant une telle séparation chimique à la production de l'étain par réaction de fusion-évaporation. La figure 4.13 représente la production obtenue à GSI-ISOL et celle estimée avec une cible de Ce_2S_3 .

Nos études sur le relâchement de l'étain montrent en effet que le CeS est une cible prometteuse. L'utilisation d'une cible contenant du soufre favorise donc le relâchement de l'étain, ce qui confirme les mesures de désorption de R. Kirchner (voir paragraphe 4.2.1). Une estimation de la production d'une

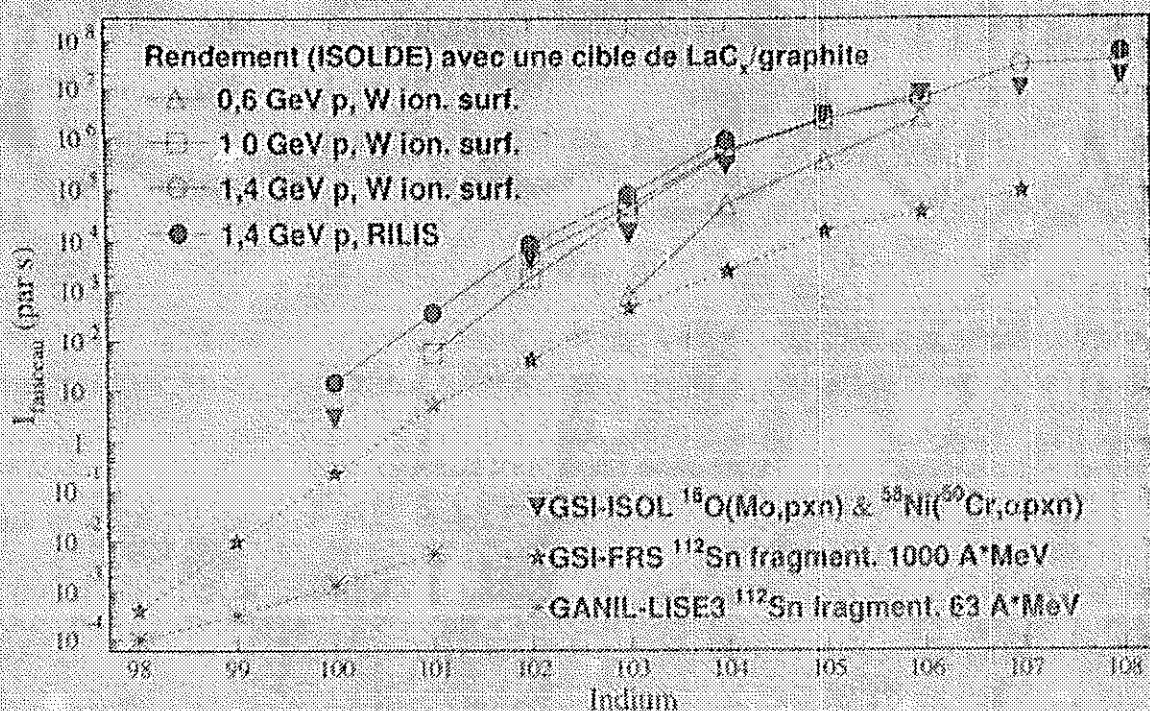


FIG. 4.14 – Production de l'indium mesurée auprès de différentes installations.

cible d'une épaisseur de 50 g/cm^2 , en supposant une efficacité globale de production de SnS de 5%, est présentée sur la figure 4.13. Cette efficacité peut être nettement améliorée et donc une cible de Ce_2S_3 pourrait être avantageuse par rapport à une cible de LaC_x de même épaisseur. Les mesures de relâchement hors ligne ont permis de montrer un bon relâchement de l'étain d'une cible de Ce_2S_3 . Cependant, il reste à trouver une solution pour maintenir la structure de ce matériau qui a tendance à s'agglomérer avec le temps et le chauffage.

Production d'étains riches en neutrons

Les réactions de fission sont très favorables à la production de ^{132}Sn qui se trouve sur un des pics de la distribution des fragments de fission. La section efficace de production calculée de l'étain très riche en neutrons est plus élevée dans le cas de la fission de ^{238}U que dans celle de ^{235}U . Il y a une différence de 2 ordres de grandeur pour le ^{138}Sn [Äys02]. En outre, la fission de ^{238}U induite par des neutrons rapides est prometteuse et a été choisie comme mode de production pour les futures installations comme EURISOL et SPIRAL.

Ceci a notamment été vérifié lors d'une expérience en ligne avec une cible d' $^{235}\text{UC}_x$ d'environ 50 g/cm^2 combinée à une source laser pour l'ionisation de

l'étain. Soit (cf figure 4.15, 4.16) le faisceau de protons interagissait avec le convertisseur en W, conduisant ainsi à la production de neutrons de spallation et engendrant ainsi la fission de la cible d' $^{238}\text{UC}_x$. Soit, il était directement envoyé sur la cible de production.

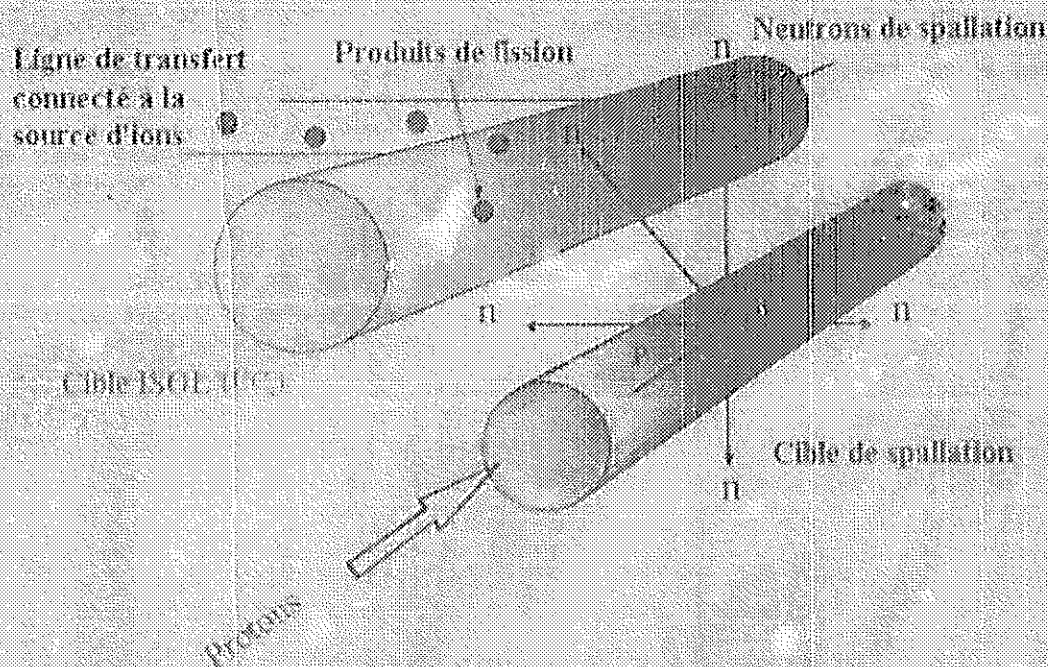


FIG. 4.15 - Schéma du convertisseur associé à une cible UC_x .

Le tableau 4.9 récapitule les données concernant la durée de vie et le mode de détection des isotopes étudiés (figure 4.17). Les isotopes ayant une durée de vie suffisamment longue ont été collectés sur une feuille d'aluminium et leur activité a été mesurée à l'aide d'un détecteur γ . Pour le $^{121\text{m}}\text{Sn}$ qui est un pur émetteur β , nous avons utilisé un détecteur β . Enfin, nous avons déterminé l'activité β des isotopes de plus courtes durées de vie grâce au système de "tape station". Les paramètres de relâchement de l'isotope $^{132\text{g}}\text{Sn}$ ont servi de référence pour effectuer le fit des courbes de relâchement des isotopes collectés par cette dernière méthode. L'intégration de ces courbes a permis d'obtenir la production des isotopes d'étain qui est représentée sur la figure 4.17. La production des isotopes $^{116,117,118}\text{Sn}$ a été mesurée par l'équipe de l'expérience en ligne IS378 à ISOLDE qui a eu lieu en parallèle avec les précédentes collections.

D'après la figure 4.17, on constate que la production d'étain déficients en

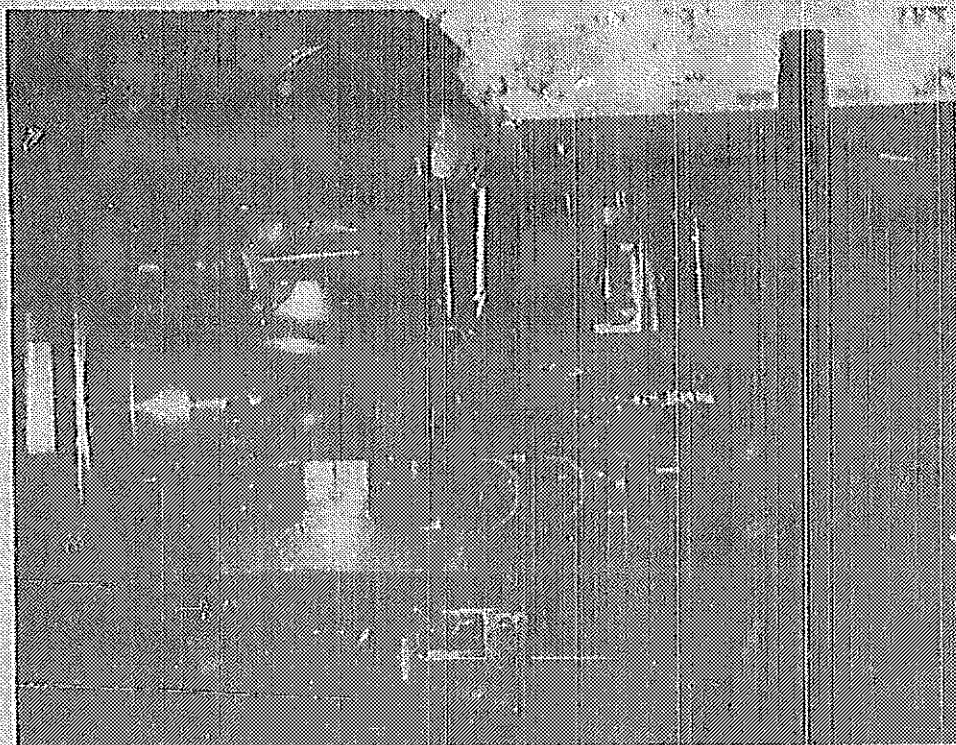


FIG. 4.16 - Photo de l'unité cible/source avec convertisseur.

neutrons est multipliée d'un facteur 200 lorsque le faisceau de protons bombarde directement la cible, tandis que ce rapport diminue pour les riches en neutrons (ou il n'est que de 3 en moyenne). L'utilisation d'un convertisseur nous a permis d'obtenir un faisceau suffisamment intense et pure pour déterminer le rapport d'embranchement de la décroissance βn de l'isotope ^{134}Sn (cf. Annexe C).

L'utilisation d'une source laser assure une sélectivité élevée, excepté pour les éléments à faible potentiel d'ionisation. Ainsi, les Cs et Ba sont ionisés thermiquement. Le chauffage de l'électrode d'extraction et de la paroi entraîne une émission thermoelectronique qui permet également d'ioniser Sb, Te et I. La production de ces éléments qui se fait par spallation, est réduite avec l'utilisation du convertisseur. Cependant, la spectroscopie β/γ du ^{136}Sn est à présent impossible à cause du bruit de fond isobarique dû à ^{136m}Cs . Le césium est également l'isobare le plus gênant pour l'étude du noyau ^{138}Sn .

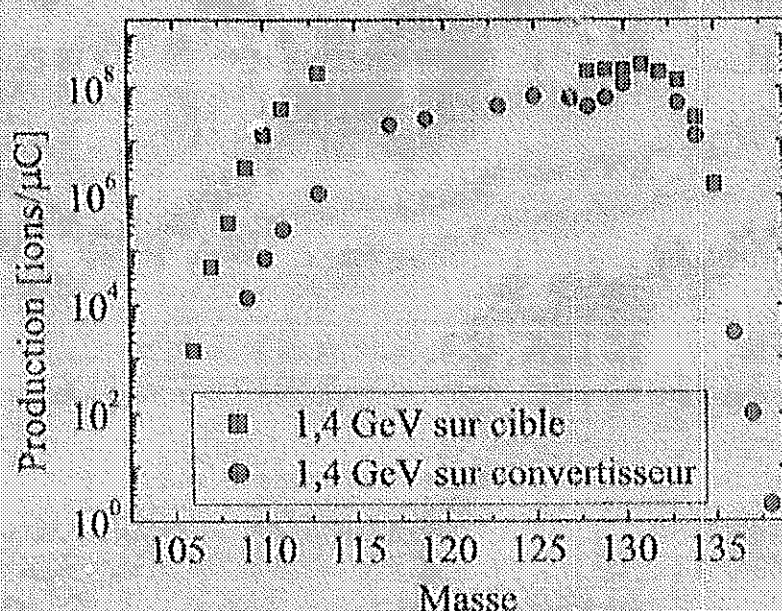


FIG. 4.17 – Production de l'étain riche en neutrons dans une cible d' UC_x précédée ou non d'un convertisseur et combinée à une source laser.

Isotope	^{106}Sn	^{107}Sn	^{108}Sn	^{109}Sn	^{110}Sn	^{111}Sn	^{113}Sn
$T_{1/2}$	2,1 m	2,9 m	10,3 m	18,0 m	4,11 h	35,3 m	115,1 j
Méthode	β	β	β	β	Coll(γ)	Coll(γ)	Coll(γ)

Isotope	^{117}Sn	^{119m}Sn	$^{121g+m}\text{Sn}$	$^{123g+m}\text{Sn}$	^{125g}Sn
$T_{1/2}$	13,6 j	293 j	50 a-27,0 h	40,1 m-129,2 j	9,64 j
Méthode	Coll(γ)	Coll(γ)	Coll(β)-Coll(γ)	Coll(γ)	Coll(γ)

Isotope	$^{127g+m}\text{Sn}$	^{128g}Sn	$^{129g+m}\text{Sn}$	^{130g}Sn	$^{131g+m}\text{Sn}$
$T_{1/2}$	4,1 m-2,1 h	6,9 m-2,2 m	1,7 m-3,7 m	50 s-39 s	39,7 s
Méthode	β	β	β	β	β

Isotope	^{132}Sn	^{133}Sn	^{134}Sn	^{135}Sn	^{136}Sn	^{137}Sn
$T_{1/2}$	6,5 s	1,44 s	1,12 s	530 ms	275 ms	185 ms
Méthode	β	β , Coll(γ)	β , Coll(γ)	β	β	βn

TAB. 4.9 – Quelques précisions sur les isotopes présentés sur la figure 4.17.

De plus, la forte probabilité d'émission de neutrons du ^{137}Te et ^{138}Te rend difficile l'observation de la décroissance du ^{137}Sn et ^{138}Sn en utilisant un détecteur de neutrons. Une résolution en masse largement supérieure à 10000 (comme nous l'avons expliqué au chapitre 2) ou une sélectivité chimique est requise afin d'agir sur cette contamination isobarique.

La formation du SnS permet de déplacer l'étain vers une région de masse où ce bruit de fond est absent, car la plupart de ces éléments ne forment pas de sulfures ionisés stables. En effet, d'après l'étude faite à GSI [Kir03], $\text{SbS}^+/\text{Sb}^+ < 5 \cdot 10^{-3}$, $\text{InS}^+/\text{In}^+ < 3 \cdot 10^{-3}$, $\text{CdS}^+/\text{Cd}^+ < 3 \cdot 10^{-4}$, $\text{AgS}^+/\text{Ag}^+ < 10^{-4}$ et $\text{AsS}^+/\text{As}^+ < 3 \cdot 10^{-2}$. Quant au TeS^+ , il est de quatre ordres de grandeur au dessous du seuil de détection [Str03].

Etude de la réactivité de l'étain : la formation de la molécule SnS

Il existe plusieurs options pour contrôler le processus de formation d'un sulfure afin de l'optimiser. Tout d'abord, il faut une pression partielle de soufre suffisante n'excédant pas 10^{-4} mbar afin de ne pas perturber l'opération de la source d'ions. Le soufre peut être transporté par les vapeurs d'un composé gazeux (SO_2 , H_2S), liquide (CS_2) ou bien solide (S , Ce_2S_3). Des critères comme la facilité d'utilisation, la toxicité et la corrosion devant être aussi pris en compte, le SO_2 a été choisi comme gaz réactif. Dans un premier temps, une expérience hors ligne utilisant un faisceau stable d'étain a été réalisée afin de déterminer l'efficacité de formation du SnS. Dans un second temps, le gaz de SO_2 a réagit avec les isotopes d'étain radioactif.

- Etude hors ligne

Un traceur³ d'étain de $37,63 \mu\text{g}$ a été installé à l'entrée d'une source d'ions MK5. La figure 4.18 montre l'évolution du courant d'étain en fonction du temps de chauffage du traceur pour un courant de ^{32}S de 145 nA et une température de source de 2080 °C. Ainsi la réponse du système au relâchement du soufre dans la source MK5 est de plusieurs minutes voir quelques heures. En intégrant le courant total, on déduit une efficacité d'ionisation de 9% pour l'étain. La probabilité de formation de l'ion moléculaire est d'environ 40% (figure 4.19) après la saturation du système en SnS^+/Sn^+ . Lors d'une expérience en ligne [Kir03] faite à GSI, une source FEBIAD-B2

3. L'utilisation du traceur permet de déterminer l'efficacité d'ionisation d'un élément. L'efficacité d'une source d'ions est déterminée en y injectant une quantité connue d'un élément stable. Pour cela, on effectue un dépôt par évaporation d'une solution diluée de cet élément, sur une surface en tantale. Ce traceur sera introduit dans un tube en tantale relié à la source d'ions. Ce tube est chauffé par effet Joule ce qui permet à l'élément de s'évaporer vers la source.

équipée d'une fuite de CS₂ ou de SO₂ a permis d'étudier la formation du SnS. Une probabilité de formation de 40% pour un courant de ³²S de 1000 nA a été déterminée. Ces résultats sont donc conformes à ceux que l'on a obtenu. En supposant une efficacité d'ionisation de SnS identique à celle du Sn, on en déduit une efficacité de séparation $\epsilon_{\text{sep}} = 40\% \cdot 9\% = 3,6\%$.

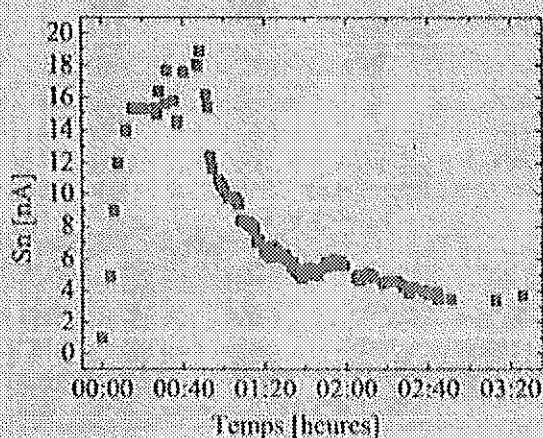


FIG. 4.18 - Evolution du courant d'étain pendant le chauffage du traceur.

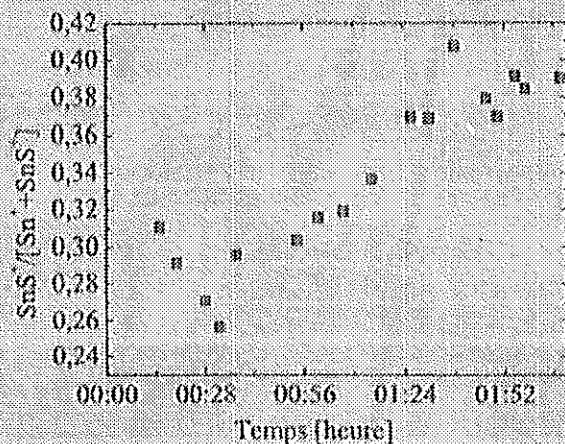
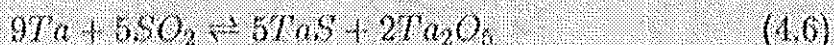


FIG. 4.19 - Rapport $\text{SnS}^+ / (\text{SnS}^+ + \text{Sn}^+)$ en fonction du temps de chauffage du traceur.

- Etude en ligne

L'étude de la formation de l'ion moléculaire SnS^+ , s'est faite en installant sur le séparateur en ligne une cible d' UC_x connectée à une source d'ions plasma MK5. Un flux de $9,56 \cdot 10^{-6}$ mbar · l/s de SO₂ est injecté dans la source. Le courant de ³²S (stable) mesuré à l'aide d'une cage de Faraday, a atteint environ 1 nA au bout de 7 jours. La saturation du système en soufre a donc été plus difficile qu'avec le dispositif utilisé lors de l'expérience hors ligne et ceci avec des fuites calibrées identiques. Cette observation confirme le fait que le soufre est très réactif et peut donc être adsorbé par les parois de tantale ou bien par la cible d' UC_x . Les deux réactions possibles sont:



Afin d'identifier les étains de courtes durées de vie, les isotopes ont été collectés grâce à un dérouleur de bande puis identifiés en ligne par spectrométrie γ . Les figures 4.20 et 4.21 représentent une partie du spectre enregistré à la masse 130 et à la masse 162. Les caractéristiques (principales raies γ , durée de vie ...) des isotopes identifiés sont récapitulées dans le tableau 4.10.

On a veillé à analyser le bruit de fond entre les mesures, en particulier celui dû aux longues durées de vie. Ayant effectué une calibration en efficacité, on a pu déterminer l'activité absolue des isotopes. D'après le tableau 4.11, les isotopes de I, Sb et Cs sont extraits avec une production respectivement 1000, 250 et 16 fois plus élevée que celle de l'étain à la masse 130. Ce sont donc d'importants contaminants isobariques.

Isotope	$T_{1/2}$	E_γ [keV]	I_γ [%]
^{130m}Sn	1,7 m	779,8	59(3)
		311,3	41(4)
		543,6	29(3)
^{130g}Sn	3,72 m	144,9	100(10)
		899,2	49(5)
		311,3	41(4)
^{130m}Sb	6,3 m	348,6	5,1(5)
		627,1	5,1(5)
^{130g}Sb	39,5 m	331,0	78(4)
		468,3	18(1)
		626,7	2,8(3)
^{130}I	12,36 h	668,8	96(3)
		739,5	82(3)
		418,0	34,2(10)
^{130m}Cs	3,46 m	80,4	34,6(15)
		148,3	5,09(15)
^{162}Yb	18,87 m	163,3	40,0(16)
		118,7	33,6(16)
		576,1	3,24(20)
		607,7	2,28(24)

TAB. 4.10 - Principales raies γ des isotopes identifiés dans les spectres de la figure 4.20 et 4.21: E_γ est l'énergie d'une raie et I_γ son rapport d'embranchement.

Durant cette expérience, l'ion moléculaire $^{130}\text{SnS}^+$ a été observé pour la première fois à ISOLDE avec un rapport $\epsilon = ^{130}\text{SnS}^+ / (^{130}\text{SnS}^+ + ^{130}\text{Sn}^+) \simeq 5\%$. Il est donc 8 fois plus faible que celui mesuré avec de l'étain stable sur le séparateur hors ligne. Ceci s'explique par le fait que l'on n'a pas pu saturer le système en soufre. Cependant, cette expérience nous a permis de mettre en évidence l'intérêt d'une séparation chimique.

Une spectroscopie γ à la masse 162, nous a montré que le bruit de fond dû au ^{130}Sb , ^{130}Cs et ^{130}I a été supprimé. Désormais, le ^{130}Sb présent provient

Isotope	Y[ions/ μ C]
^{130}Sn	$2,9 \cdot 10^5$
^{130m}Sn	$6,4 \cdot 10^5$
^{130}Sb	$1,9 \cdot 10^7$
^{130m}Sb	$1,5 \cdot 10^8$
^{130m}Cs	$1,7 \cdot 10^7$
^{130}I	$6,6 \cdot 10^8$
^{162}Yb	$2,4 \cdot 10^6$
^{130}SnS	$1,0 \cdot 10^4$
^{130m}SnS	$1,6 \cdot 10^3$

TAB. 4.11 – Production (cumulative) des isotopes observés à la masse 130 et 162. La barre d'erreur est d'environ 5% pour l'ensemble des résultats.

de la décroissance du ^{130}Sn . Les isobares ^{162}Yb et ^{162}Tm ont été observés à la masse 162 mais leur rendement de fission diminuera rapidement pour des masses plus élevées et ce bruit de fond ne sera donc pas gênant pour les noyaux plus lourds.

4.2.3 Le germanium

La production des noyaux de germanium riches en neutrons de cibles de Th/Ta et d'UC_x connectées à une source MK5 et la production des noyaux de germanium déficients en neutrons extraits d'une cible de ZrO₂ associée à une source MK5, sont représentées sur la figure 4.22. Le germanium fait partie du groupe des éléments chimiquement réactifs ce qui explique les faibles efficacités globales (par exemple, pour le ^{69}Ge (39 h), $Y_{\text{theo}}^4/Y_{\text{mes}} = 2,84 \cdot 10^9 / 2,10 \cdot 10^8 = 7,3\%$) et en particulier les faibles efficacités de relâchement.

Nous avons identifié le Ge sous forme atomique mais également sous forme moléculaire GeX^+ ($A^x=32$) lors de son extraction d'un cible de ZrO₂ connectée à une source MK5. N'ayant pas observé d'ions moléculaires GeO, on en conclut que le GeO₂ ne peut être formé. Le Ge a donc été observé sous la forme moléculaire GeS. Le soufre étant présent sous forme de traces dans la cible de ZrO₂, la production de GeS n'est pas optimale, ce qui explique la faible production observée sur la figure 4.22. L'injection d'un flux gazeux de SO₂ dans une source d'ions associée à une cible de ZrO₂ ou bien l'utilisation d'une cible de SrS permettrait un apport en soufre plus important. Nous avons effectué une expérience avec le séparateur hors ligne qui nous a permis

4. en utilisant la section efficace théorique de Silberberg et Tsao [Sil73]

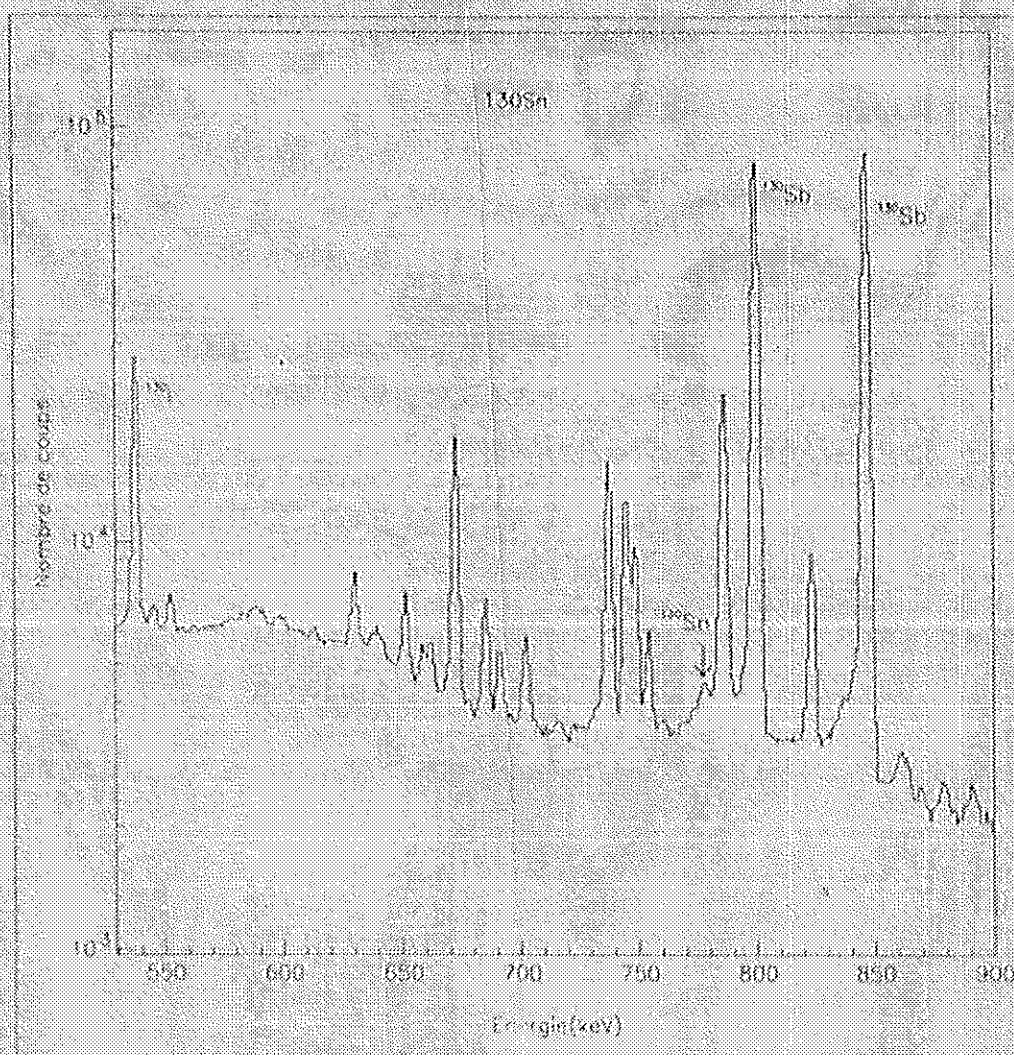


FIG. 4.20 - Spectre des noyaux de masse 130. Les noyaux identifiés sont: ^{130}I , ^{130}Sn , ^{130}Sb

d'étudier ce premier scénario.

Après le chauffage d'un traceur de $1\text{ }\mu\text{g}$ de germanium⁵ autour de $1700\text{ }^{\circ}\text{C}$, aucun faisceau de Ge n'a été observé. Soit la température n'est pas suffisante pour évaporer le germanium, soit celui-ci s'est évaporé instantanément à cause de la présence du soufre qui a déjà saturé tout le système ou bien le Ge est extrêmement réactif vis à vis du tantale. C'est pourquoi, un grain de germanium de $1,73\text{ mg}$ a été placé directement au contact de la cathode, chauffée à plus de $1900\text{ }^{\circ}\text{C}$. Un courant extrêmement faible de $0,7\text{ nA}$ est obtenu.

Comme nous l'avions constaté lors de l'expériences en ligne, l'ion moléculaire de GeO^+ n'a pas été observé. Par contre, nous avons déterminé un

5. Le traceur de germanium a été obtenu par la méthode PVD sur une feuille de Ta (Physical Vapor Deposition).

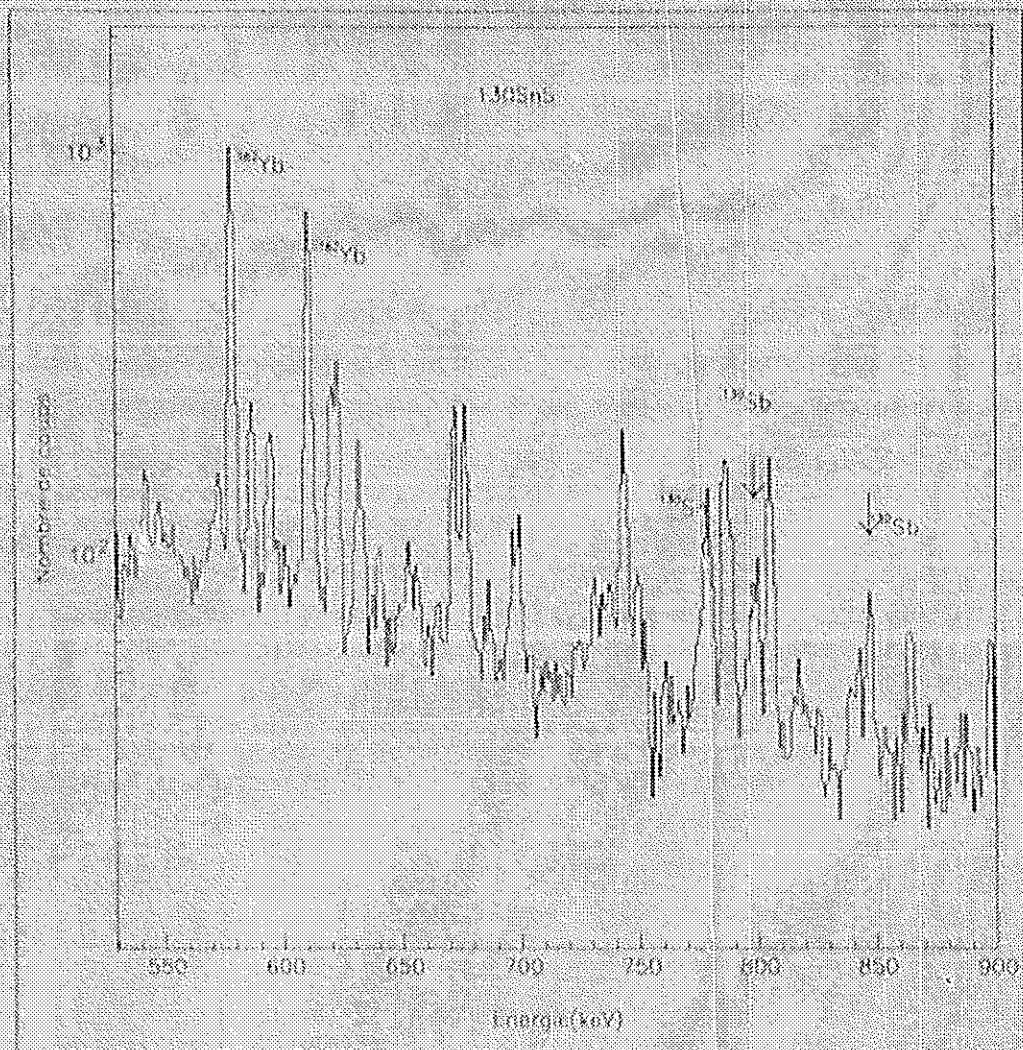


FIG. 4.21 - Spectre des noyaux de masse 162. Les noyaux identifiés sont: ^{162}Yb , ^{130}Sn , ^{130}Sb

rapport $\text{GeS}^+ / (\text{GeS}^+ + \text{Ge}^+) \simeq 65\%$, ce qui rend une telle molécule réellement prometteuse pour le transport du Ge.

4.2.4 Discussion

La séparation chimique de l'étain sous forme moléculaire SnS permet d'éliminer en grande partie le bruit de fond isobarique. Le rapport $\text{SnS}^+ / (\text{SnS}^+ + \text{Sn}^+) \simeq 5\%$ obtenu en ligne dans de telles conditions est donc prometteur. Une expérience [Ame03] a été approuvée à ISOLDE utilisant la séparation chimique SnS des isotopes $^{106,108,110}\text{Sn}$ avec le post accélérateur REX-ISOLDE. L'étude de la décroissance β/EC des isotopes d'étains déficitaires en neutrons produits par réaction de fusion-évaporation a été faite en utilisant une telle

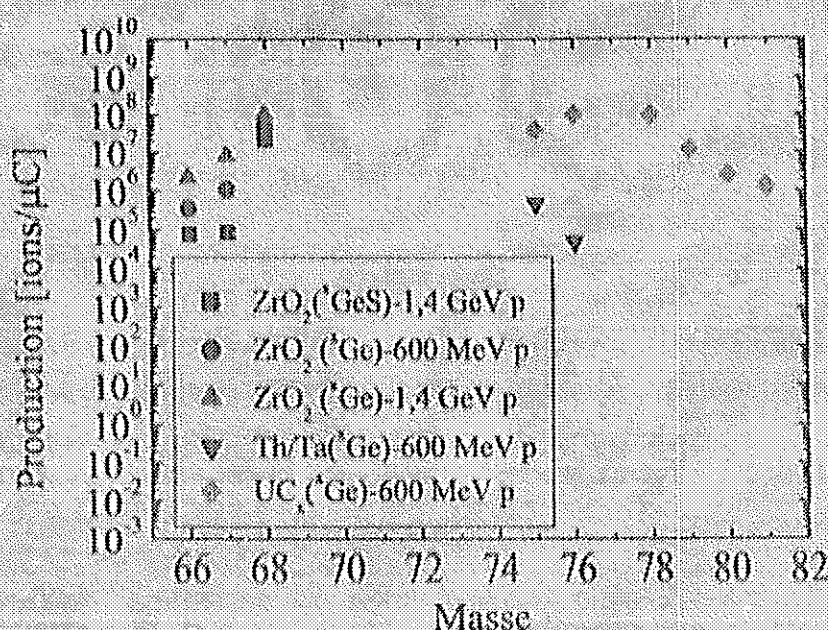


FIG. 4.22 – Production du germanium dans des cibles de Th/Ta, UC_x et ZrO₂ (sous forme atomique et comme GeS) connectées à une source d'ions MK5.

molécule au GSI-ISOL [Kar02]. Cette méthode de séparation chimique déjà reconnue ouvre donc des perspectives expérimentales et les travaux précédents ont montré que son application à ISOLDE est en bonne voie.

Quand au transport du Ge sous forme moléculaire GeS, nous avons montré sa faisabilité avec du Ge stable. Il reste donc à optimiser en ligne sa production.

Les expériences en ligne ont montré que le soufre injecté dans une unité cible/source est piégé dans ce système. En effet, les courants de soufre stable mesurés lors de l'expérience en ligne sont de l'ordre du nA alors que ceux extraits d'une source sans cible ni container (expérience avec le séparateur hors ligne) sont 10 à 1000 fois plus intenses. Un des pièges possible de soufre pourrait être la cible de UC_x puisque c'est la seule différence entre l'expérience en ligne et hors ligne. En effet, l'uranium pourrait former un composé comme US qui est réfractaire (d'après le tableau 3.4). Ces conclusions expérimentales à propos de la réactivité du soufre conforte le fait que le soufre doit être relâché sous forme moléculaire de l'ensemble cible/source.

Chapitre 5

Prédictions pour le projet EURISOL

5.1 Cibles et sources d'ions pour la production de l'étain

Actuellement de $2\ \mu\text{A}$, dans le cadre de la future génération de faisceaux d'ions radioactifs les faisceaux primaires devraient être de l'ordre de $100\ \mu\text{A}$ en mode "direct". L'étude de la dissipation de la puissance déposée dans la cible qui est de l'ordre de $5\ \text{kW}$ devient donc cruciale. En mode "indirect" (irradiation d'un convertisseur), elle ne sera plus que de $3,2\ \text{kW}^1$. L'utilisation d'un convertisseur associé à une cible de fission comme PUC_x est d'ailleurs l'option choisie pour le projet EURISOL. L'association d'une cible de $\text{UC}_2 + 2\text{C}$ avec une source laser qui est intéressante pour sa sélectivité et son efficacité ($\approx 10\%$), permet d'étudier, d'après le tableau 5.1, les isotopes d'étains jusqu'à la masse 138.

La technique d'évaporation chimique utilisant une addition de soufre, dont l'étude est présentée au chapitre 4, est prometteuse pour un relâchement rapide de l'étain et pour une meilleure pureté du faisceau séparé. A cause de la dynamique de l'équilibre chimique, une partie de l'étain est sous forme SnS non ionisable avec un laser. Une source d'ions plasma devra donc être utilisée. Une efficacité d'ionisation de 50% est attendue [Kir03] pour SnS^+ , en supposant qu'elle n'est pas différente de celle du Sn^+ . Une telle méthode sera très intéressante pour l'étude des noyaux se trouvant dans la région du ^{138}Sn ou au delà.

Nous allons présenter les extrapolations des intensités des isotopes d'étains

1. Estimation grossière en supposant un nombre de fissions de $10^{14}/\text{s}$

riches en neutrons en utilisant les paramètres de l'installation en projet EURISOL.

5.2 Prédiction des intensités

Les unités de cible/source d'ions développées à ISOLDE permettent d'obtenir des ions une fois chargés (1^+). Les faisceaux extraits seraient, dans le cadre de l'installation EURISOL, injectés dans un post accélérateur. Pour cela, un faisceau d'ions d'état de charge élevé sera avantageux du point de vue de la dimension (qui est inversement proportionnelle à la charge) et donc du coût.

Nous traiterons le cas où l'épluchage de charge 1^+ à n^+ est effectué avec une source EBIS (Electron Beam Ion Source) [Don89] car il s'agit du type de source utilisé à REX-ISOLDE. L'EBIS peut être associée à un piège ou à un RFQ (Radio Frequency Quadrupole) rempli de gaz refroidissant les ions. Des paquets d'ions sont donc formés, ce qui permet d'améliorer l'émittance du faisceau avant son injection dans la source EBIS.

Ce type d'installation a été réalisé sur le post accélérateur REX-ISOLDE [Hab00], composé d'une REXTRAP et d'une REXEBIS. Ainsi, des ions épluchés dans un rapport $A/q < 4,5$ sont accélérés à une énergie $< 2,2$ MeV/u. Le piège et la source d'ions EBIS ont respectivement un temps de piégeage t_{trap} de 0,02 s et un temps d'épluchage t_{opt} de charge de 0,02 s. L'efficacité de piégeage ϵ_{trap} est de 0,4 (dans REXEBIS [Wol02]). L'efficacité d'épluchage de la charge et de séparation est de 0,1 (pour le plus grand état de charge dans une REXEBIS). Enfin, la transmission lors de la post accélération ϵ_{tran} peut être de 0,85.

L'intensité du faisceau d'ions injectée dans l'EBIS est:

$$I_{\text{inj}} = I_{\text{mea}} \cdot \alpha_{\text{opt}} \cdot \alpha_{\text{ion}} \cdot I_{\text{beam}} \quad (5.1)$$

La production des isotopes d'étains riches en neutrons Y_{mea} , dans une cible d' ^{238}U d'environ 50 g/cm² (irradiée par des neutrons de spallation) est représentée sur la figure 4.6 et récapitulée dans le tableau 5.1. L'intensité du faisceau primaire I_{beam} est de 100 μA pour un faisceau de protons en incidence directe sur la cible de production ou de 4 mA s'il est en incidence sur un convertisseur. Une optimisation des paramètres de délais dans la cible EURISOL a été effectuée grâce à un code Monte Carlo [Leit03, EUR]. On en a déduit les paramètres α_{ion} et α_{opt} . α_{ion} est le rapport de l'efficacité d'ionisation attendue sur l'efficacité d'ionisation existante à ISOLDE. Avec une efficacité d'ionisation de 5%, un gain de 5 est attendu d'après les résultats

de simulation. Le gain α_{opt} , dû à l'optimisation de la cible, est déterminé à partir de la production et de la fraction relâchée simulée ([Leit03, EUR]).

Nous avons déduit de I_{inj} et de I_{mes} , le gain attendu α_{EUR} dans le cas du projet EURISOL:

$$\alpha_{EUR} = \frac{I_{inj}}{2[\mu A] \cdot I_{mes}} \quad (5.2)$$

Enfin, nous avons calculé (cf. tableau 5.1) la production attendue dans le cas de l'installation EURISOL en utilisant l'expression 5.3.

$$I_{acc} = I_{inj} \cdot \epsilon_{trap} \cdot \exp[-(\ln(2)/T_{1/2}) \cdot t_{trap}] \cdot \epsilon_{sep} \cdot \exp[-(\ln(2)/T_{1/2}) \cdot t_{ept}] \cdot \epsilon_{tran} \quad (5.3)$$

ZSn	$T_{1/2}$	I_{mes} [at/ μ C]	α_{opt}	I_{inj} [1/s]	α_{EUR}	I_{acc} [1/s]
109	18,0 m	$1,36 \cdot 10^4$	34,0	$9,25 \cdot 10^9$	$3,40 \cdot 10^5$	$3,14 \cdot 10^8$
110	4,11 h	$1,37 \cdot 10^4$	34,0	$9,32 \cdot 10^9$	$3,40 \cdot 10^5$	$3,17 \cdot 10^8$
111	35,3 m	$2,44 \cdot 10^5$	34,0	$1,66 \cdot 10^{11}$	$3,40 \cdot 10^5$	$5,64 \cdot 10^9$
113m	21,4 m	$1,09 \cdot 10^6$	34,0	$7,41 \cdot 10^{11}$	$3,40 \cdot 10^5$	$2,52 \cdot 10^{10}$
117m	13,60 j	$2,00 \cdot 10^7$	34,0	$1,36 \cdot 10^{13}$	$3,40 \cdot 10^5$	$4,62 \cdot 10^{11}$
119m	293,1 j	$2,59 \cdot 10^7$	34,0	$1,76 \cdot 10^{13}$	$3,40 \cdot 10^5$	$5,99 \cdot 10^{11}$
123m	40,06 m	$4,57 \cdot 10^7$	34,0	$3,11 \cdot 10^{13}$	$3,40 \cdot 10^5$	$1,06 \cdot 10^{12}$
125m	9,52 m	$6,90 \cdot 10^7$	26,3	$3,63 \cdot 10^{13}$	$2,63 \cdot 10^5$	$1,24 \cdot 10^{12}$
127m	4,43 m	$6,33 \cdot 10^7$	20,4	$2,58 \cdot 10^{13}$	$2,04 \cdot 10^5$	$8,77 \cdot 10^{11}$
128m	6,5 s	$4,37 \cdot 10^7$	1,9	$1,67 \cdot 10^{12}$	$1,91 \cdot 10^4$	$5,68 \cdot 10^{10}$
129m	2,23 s	$6,43 \cdot 10^7$	11,9	$1,53 \cdot 10^{13}$	$1,19 \cdot 10^5$	$5,22 \cdot 10^{11}$
130m	3,72 m	$1,18 \cdot 10^8$	15,2	$3,57 \cdot 10^{13}$	$1,52 \cdot 10^5$	$1,21 \cdot 10^{12}$
131g	56,0 s	$2,80 \cdot 10^8$	8,2	$4,61 \cdot 10^{13}$	$8,23 \cdot 10^4$	$1,57 \cdot 10^{12}$
132	39,7 s	$2,00 \cdot 10^8$	6,9	$2,74 \cdot 10^{13}$	$6,86 \cdot 10^4$	$9,33 \cdot 10^{11}$
133	1,45 s	$9,55 \cdot 10^7$	0,9	$1,65 \cdot 10^{12}$	$8,67 \cdot 10^3$	$5,63 \cdot 10^{10}$
134	1,12 s	$1,15 \cdot 10^7$	0,8	$1,74 \cdot 10^{11}$	$7,56 \cdot 10^3$	$5,93 \cdot 10^9$
135	530 ms	$1,02 \cdot 10^6$	0,5	$1,06 \cdot 10^9$	$5,20 \cdot 10^3$	$3,61 \cdot 10^7$
136	275 ms	$3,00 \cdot 10^3$	0,3	$2,00 \cdot 10^7$	$3,33 \cdot 10^3$	$6,79 \cdot 10^5$
137	185 ms	$1,00 \cdot 10^3$	0,3	$5,55 \cdot 10^5$	$2,78 \cdot 10^3$	$1,89 \cdot 10^4$
138	???	$2,00 \cdot 10^0$	0,1	$5,73 \cdot 10^3$	$1,43 \cdot 10^3$	$1,95 \cdot 10^3$

TAB. 5.1 - La production mesurée Y_{mes} , la production dans la cible Y_{cible} , la production estimée Y_{est} , le gain obtenu dans le cas du projet EURISOL α_{EUR} , le gain α_{opt} obtenu par optimisation des paramètres de relâchement de la cible, l'intensité Y_{inj} injectée dans la source EBIS et enfin l'intensité du faisceau d'ions post-accelérés Y_{acc} pour les isotopes d'étains riches en neutrons.

Ainsi, d'après nos calculs, des intensités très confortables² de $9 \cdot 10^{11}$ ions/s pour le ^{132}Sn pourront être accélérées.

2. Les calculs du rapport EURISOL montrent qu'avec un faisceau de 10^{11} ions/s., des études de nombreux nouveaux noyaux peuvent être entreprises par fragmentation.

Chapitre 6

Résumé et perspectives

Les travaux effectués durant cette thèse rentrent dans le cadre du projet EURISOL, visant à augmenter l'intensité des faisceaux existants d'un facteur 100 à 100000, ainsi qu'à produire des faisceaux d'éléments chimiquement réactifs. Pour cela, nous nous sommes appuyés sur plus de 35 ans de R&D à ISOLDE. Actuellement, le développement de tels faisceaux restent un véritable défi. La fragmentation en vol et la technique IGISOL sont des méthodes de production indépendantes de la chimie des éléments, cependant, les intensités obtenues sont très faibles. L'obtention d'intensités de faisceaux exploitables nous incite à développer des techniques destinées à la séparation en ligne pour les éléments à forte interaction chimique. Nous nous sommes concentrés sur les éléments des groupes 14 et 16.

Produits par réaction de spallation, de fission ou de fragmentation lors de l'impact d'un faisceau de protons sur une cible épaisse ($0,1$ à 1 mol/cm^2), les radioisotopes auront un rendement essentiellement limité par des pertes lors de leur transfert de la cible vers la source d'ions. L'objectif de nos travaux a été à la fois de comprendre ces pertes et de les réduire. Pour cela, nous avons utilisé différentes techniques en ligne (courbes de relâchement, mesures de production) et hors ligne (implantations, irradiations). Pour étudier le relâchement de différents échantillons cibles, nous avons rendu opérationnel et amélioré différentes installations (banc de chauffage, RABBIT, porte échantillons pour implantation ...).

Afin de favoriser le relâchement des noyaux produits dans la cible, celle-ci doit être chauffée à haute température. Dans ces conditions, nous avons montré de nos études thermochimiques, que les carbures et les sulfures sont plus stables que les oxydes. De nombreuses mesures hors ligne, nous ont permis

d'étudier les propriétés de relâchement de différentes matrices de carbure, de sulfure et d'oxyde de différentes structures. Pour cela, nous avons réalisé plus de 200 mesures hors ligne, ce qui a impliqué la préparation d'innombrables échantillons. Une quinzaine de matériaux différents a ainsi été testée. Par exemple, nous avons montré que le paramètre de diffusion η du sélénium dans une matrice fibreuse de ZrO_2 est de deux ordres de grandeur plus grand que dans une matrice poudreuse. Par ailleurs, les fibres d'oxyde présentent l'intérêt par rapport aux poudres de préserver une structure poreuse plus stable. Les choix de matériaux cibles dépendent de l'isotope d'intérêt à produire. Par exemple, les matrices fibreuses de TiO_2 et de CeO_2 se montrent très prometteuses pour la production en ligne du soufre et du tellure déficients en neutrons. Pour la production de Ga, nous avons montré que les cibles de ZrC_x sont préférables à celle de ZrO_2 . Pour la production du S et Ar, une cible de VC est avantageuse.

Considérant les différents intérêts physiques des noyaux riches et déficients en neutrons développés dans cette thèse, nous avons déterminé les intensités et la pureté des faisceaux à fournir nécessaires, pour que les mesures soient exploitables. Nous avons montré tout au long de ce manuscrit que la méthode de formation d'ions moléculaires permettait d'atteindre ces critères. Elle a non seulement l'intérêt de former des molécules plus volatiles que l'espèce atomique elle-même, mais également d'obtenir des faisceaux d'ions radioactifs d'une grande pureté.

Malgré un planning serré, réservé à des expériences de physiques, nous nous sommes efforcés de réaliser des essais en ligne de façon parasite. Ces expériences nous ont permis entre autre, d'étudier la production et le relâchement des éléments produits dans une cible de ZrO_2 associée à une source MK5. Ainsi, nos travaux de développement sont reconnus par la communauté scientifique. Nous avons obtenu du temps de faisceau pour étudier la formation et la stabilité de composés moléculaires de sélénium avec le dispositif expérimental REXTRAP.

Pour les éléments du groupe 14, la chimie du soufre a été explorée. Tout d'abord, nous avons démontré que le rendement du soufre radioactif est limité par sa réactivité au sein de l'ensemble cible/source. En effet, d'après nos études thermochimiques, le soufre forme soit de nombreux composés réfractaires mais peut également former des composés volatiles. Par exemple, le soufre a été utilisé pour transporter les éléments réfractaires comme le Sn et le Ge. Le ^{130}SnS a été séparé pour la première fois à ISOLDE d'une cible d' UC_x .

associée à une source plasma avec un rapport $\text{SnS}^+ / (\text{SnS}^+ + \text{Sn}^+) \simeq 5\%$. Cette efficacité pourra être améliorée en optimisant la quantité de soufre injectée dans la source. En effet, durant des expériences avec le séparateur hors ligne où du soufre stable, injecté sous la forme SO_2 , était extrait de la source d'ions avec des courants de l'ordre de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de nA, on a mesuré un rapport $\text{XS}^+ / (\text{XS}^+ + \text{X}^+)$ de 40 % pour $\text{X} = \text{Sn}$ et de 65 % pour $\text{X} = \text{Ge}$. Ainsi, lorsque le système cible/source est saturé en soufre, on obtient des rapports très intéressants. De plus, par ce procédé, la spectroscopie γ du ^{130}SnS nous a permis de mettre en évidence la quasi-élimination des contaminants ^{130}Sb , ^{130}Cs et ^{130}I . Une autre façon d'obtenir un faisceau d'étain pure est d'utiliser une source à ionisation laser. Cependant, par cette méthode, les contaminants Cs et Ba présents, sont issus de l'ionisation de surface dans le tube d'ionisation. Pour les isotopes d'étains riches en neutrons, nous avons pu réduire ces contaminants en irradiant un convertisseur de sorte à induire essentiellement des réactions de fission dans la cible par neutrons de spallation. De cette façon, la collection de ^{134}Sn nous a permis de déterminer le rapport d'embranchement de la décroissance β_n de cet isotope (Annexe C).

Une autre option permettant d'introduire du soufre est l'utilisation d'une cible contenant du soufre. Nous avons construit un prototype de cible de CeS_x , dont nous avons montré les bonnes propriétés de relâchement. L'unité de cible, composée d'une source MK5, est restée stable autour de 1500 °C et d'après nos mesures hors ligne, la production de l'étain déficient en neutrons devraient être améliorée avec un tel système. Nous avons également étudié la production des éléments du groupe 16 séparés comme COX ($\text{X} = \text{S}$, Se , Te). Conformément aux études thermochimiques, le Se est réactif et le temps d'effusion du Se est proche de 37 minutes. De plus, le COSe possède une faible énergie de dissociation. Différents paramètres de source comme la tension d'anode ou le courant de CO ont en effet été testés pour obtenir un rapport $\text{COSe}^+ / \text{Se}^+ \simeq 1.4$. Par notre démonstration, l'exploitation d'une telle molécule pourrait être envisagée par ISOLTRAP et REX-ISOLDE car elle permet d'éliminer les isobares As, Ge, Ga etc.

Pour le S (même groupe chimique que Se), nous avons démontré lors d'une expérience hors ligne que la molécule COS est une bonne candidate pour le transport et la séparation. Elle est stable, volatile et ionisable dans une source MK5. Nous avons extrait un faisceau d'ions radioactifs de soufre dans des conditions favorables à la formation de la molécule COS et ceci pour la première fois à ISOLDE.

Des travaux de développement sont encore nécessaires pour atteindre les objectifs fixés par le projet EURISOL. L'optimisation de la cible (choix des matériaux, structure ...) pour chacun des éléments proposés dans le cadre de ce projet est en bonne voie. En particulier, nous avons déterminé les paramètres déterminants concernant l'étain riche en neutrons.

Bien qu'une modélisation complète des processus physiques et chimiques d'un ensemble cible/source est délicate, l'ambition de dresser une méthode de traitement des éléments chimiquement réactifs a été réalisée. La connaissance qui en a été déduite nous a permis d'améliorer l'intensité et la pureté des faisceaux développés.

Annexe A

Fabrication des matrices prototypes

A.1 Le principe

Les pastilles sont fabriquées en utilisant la méthode bien connue du frittage¹. Elle permet de densifier les poudres à une température inférieure à leur point de fusion. Les transferts de masse qui vont se produire, de sorte qu'il ait une minimisation de l'énergie de surface, impliqueront des variations au niveau de la microstructure (voir la figure A.1): diminution de la porosité inter granulaire, croissance des grains. Le taux de frittage R , dépend [Bur70]:

- Du coefficient d'autodiffusion et de la température. Lors du chauffage d'un grain, il y a augmentation de la surface de contact entre les grains avec formation d'un cou (voir figure A.1). La loi [Joh63] de croissance de ce cou est:

$$x^{l_1}/r^{l_2} = K(T) \cdot t \quad (A.1)$$

où r est le rayon du grain, x (si l'on assimile le cou à un tore) est le grand rayon du tore, l_1 et l_2 sont des coefficients dépendant du processus de diffusion de la matière dans le cou, t le temps et $K(T) \sim (D_0/T) \cdot \exp(-Q/RT)$ où D_0 est le coefficient d'autodiffusion et Q l'énergie d'activation.

Le frittage implique en effet un ensemble de processus de diffusion. Par exemple, le fort taux de frittage des oxydes peut s'expliquer par une importante autodiffusion [Bor88] de l'oxygène.

¹ compression et chauffage d'une poudre

- De la dimension initiale des particules: $R_s \sim 1/L^3$. Plus les grains sont petits et plus R_s sera grand.
- De la pression de vapeur. Pour les matériaux de faible pression de vapeur, l'évaporation de matière est faible et donc l'agglomération des grains défavorisée.

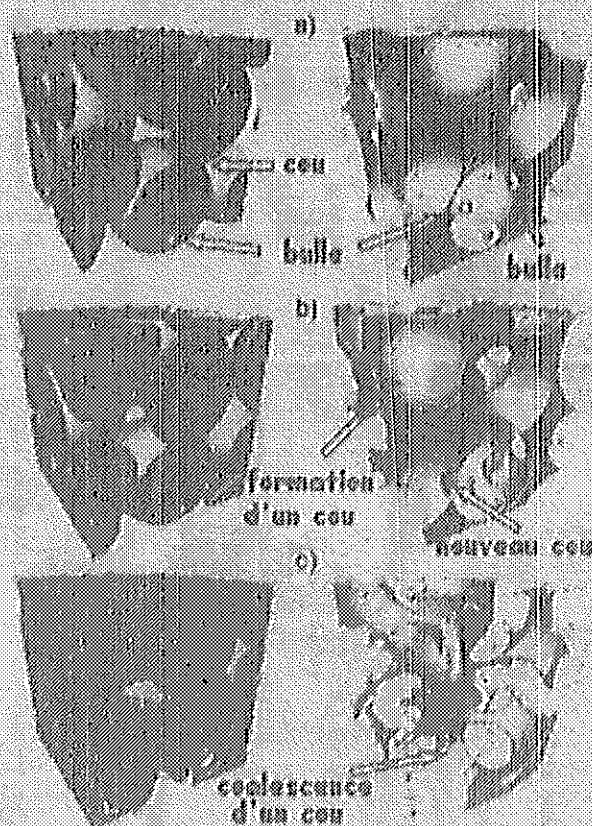


FIG. A.1 - Représentation des changements de la microstructure d'un matériau durant le processus de frittage. Tout d'abord (figure a), il se forme des cous entre les grains, ensuite ces cous grandissent, changeant la dimension des grains et menant à l'élimination des pores. La dernière phase (figure c) est la totale fermeture des pores.

A.2 La méthode

Quelques milligrammes de poudre, introduits dans un creuset, seront soumis à une charge donnée grâce à une presse hydraulique. Il faudra faire plusieurs tests afin de déterminer la pression minimum nécessaire (en général,

entre 50 et 100 bars) pour l'obtention de pastilles suffisamment solides. Elle sera ensuite chauffée afin que les impuretés s'évaporent et que les grains se resserrent. La figure A.2 représente l'unité de chauffage Balzer qui permet d'atteindre des hautes températures (plus de 2000 ° C) tout en maintenant des pressions de 10^{-6} mbar.



FIG. A.2 – Unité Balzer en cours de chauffage. La température est déterminée à l'aide d'un pyromètre.

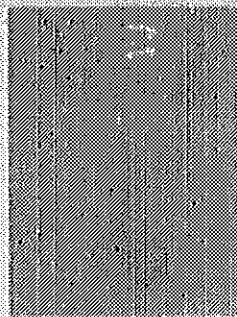


FIG. A.3 – Pastille de Ce_2S_3 de 1 cm^2 obtenu à partir de la compression et du chauffage d'une poudre de Ce_2S_3 .

Plus la température est élevée et plus les grains vont s'agglomérer. Afin d'avoir un meilleur relâchement, une porosité suffisante est requise afin d'avoir une longueur de diffusion aussi faible que possible. En générale, les matériaux de cible ont une densité de quelques g/cm^3 . Par contre, dans le cadre d'autres applications comme les céramiques pour l'ingénierie, la propulsion thermique

nucléaire, les matériaux des containers, des densités de l'ordre du tonne/m³ sont nécessaires.

Nous avons réalisé grâce à cette méthode, l'ensemble des pastilles utilisées dans le chapitre 3. La figure A.3 représente une photo d'une pastille de Ce₂S₃ et le container en molybdène qui a été utilisé pour son chauffage.

Le taux de frittage est un critère essentiel puisqu'il détermine l'évolution de la microstructure de la cible et donc des propriétés de relâchement. Les meilleurs matériaux pour les cibles, seront ceux qui auront un taux de frittage bas et donc une bonne stabilité thermique au cours du temps et de la température. La sélection passera donc par la vérification des différents paramètres dont le frittage dépend.

Annexe B

La méthode de détection hors ligne

La détection hors ligne des radio-isotopes présents dans un support donné s'est faite grâce à un détecteur γ ¹.

Les raies γ émises par le noyau sont détectées grâce à un détecteur germanium connecté via un pré-amplificateur et un amplificateur à un PC. Ainsi, en sortie du détecteur, le signal est amplifié puis transporté via un analyseur multi canal (MCA) vers un logiciel de détection Genie2K [Can] permettant l'acquisition et l'analyse des spectres. L'amplification a été choisie de sorte de couvrir les énergies comprises entre une dizaine de keV et environ 2,5 MeV. L'identification des noyaux est faite sur la base d'une bibliothèque, que l'on a élaboré en y introduisant l'ensemble des isotopes susceptibles d'être créés.

Nous avons calibré le détecteur en énergie et en efficacité (figure B.1) grâce à une source multi- γ (cf. tableau B.1).

Deux distances sont possibles pour le positionnement de l'échantillon dans le détecteur : $d_1 = 2$ cm pour les faibles activités et $d_2 = 10,5$ cm, afin d'éviter les erreurs sur le temps mort pour les fortes activités. Il faudra tenir compte de l'erreur systématique due aux changements de positions (de l'ordre de quelques %) dans le porte échantillon, ce qui affecte l'angle solide de l'échantillon par rapport à celui de la source de calibration.

L'activité est calculée par Genie2K en tenant compte de la décroissance durant le temps de comptage t_c (facteur K_c) et la décroissance entre la collection et le début de la mesure t_w (facteur K_w). L'activité est donc de la

1. La plupart des décroissances β peuplent un état excité d'un noyau de sorte qu'un γ est émis en même temps que le β . Les états nucléaires ayant une énergie bien définie, les énergies des γ émis lors de la transition d'un état à un autre sont bien définies, ce qui permet d'identifier sans ambiguïté un nucléide.

Isotope	$T_{1/2}$	Energie[keV]	BR[%]
^{241}Am	432,2 a	59.54	35.90
^{109}Cd	462,6 j	88.03	3.65
^{57}Co	271,79 j	122.06	85.68
^{57}Co	271,79 j	136.47	10.67
^{139}Ce	137.6 j	165.86	79.87
^{51}Cr	27,70 j	320.08	9.85
^{113}Sn	115,1 j	391.70	64.89
^{85}Sr	64,9 j	514.00	99.29
^{137}Cs	30,17 a	661.66	85.20
^{88}Y	106,6 j	898.04	64.1
^{60}Co	5,3 a	1173.24	99.89
^{60}Co	5,3 a	1332.50	99.98
^{88}Y	106,6 j	1836.06	99.36

TAB. B.1 – Caractéristiques des isotopes présents dans la source multi- γ de calibration.

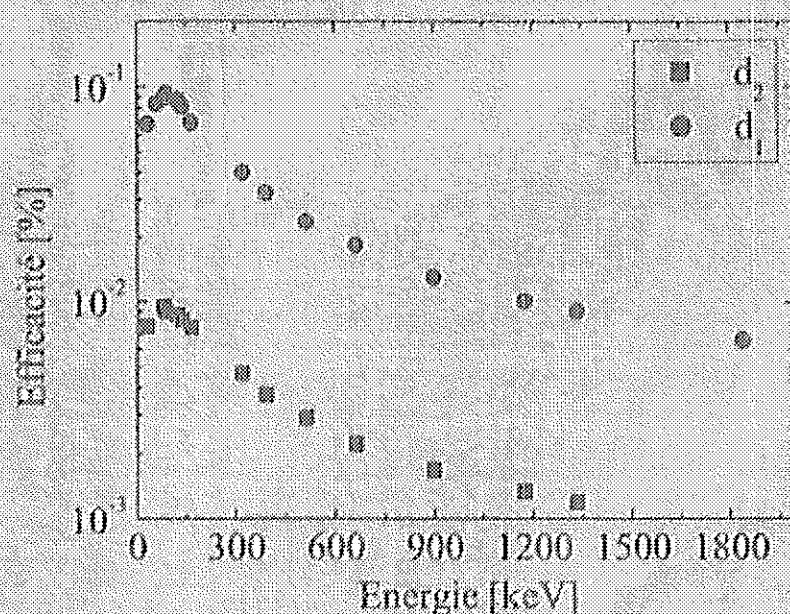


FIG. B.1 – Courbe d'efficacité du détecteur Germanium aux 2 distances $d_1 = 2$ cm et $d_2 = 10,5$ cm.

forme:

$$A_i = \frac{S}{\epsilon_{\gamma} \cdot I_{\gamma} \cdot K_c \cdot K_{\text{m}}} \quad (\text{B.1})$$

où

$$K_e = \frac{T_{1/2}}{\ln(2)t_e} \left[1 - \exp\left(-\frac{t_e \ln(2)}{T_{1/2}}\right) \right] \quad (\text{B.2})$$

$$K_w = \exp\left(-\frac{t_w \cdot \ln(2)}{T_{1/2}}\right) \quad (\text{B.3})$$

S est l'aire du pic d'énergie E_γ dont on a soustrait le bruit de fond, $I_\gamma(E_\gamma)$ est le rapport d'embranchement de la raie d'énergie E_γ et ϵ_γ l'efficacité.

Genie2K permet de tenir compte de l'erreur statistique, de l'erreur sur le rapport d'embranchement, sur l'efficacité et sur $T_{1/2}$. Il faudra cependant, apporter une correction due à la décroissance des parents vers l'isotope d'intérêt, ou bien quand c'est le cas², de l'état isomérique vers l'état fondamental.

2. On a par exemple rencontré les cas suivants: $^{73\text{m}}\text{Se} \rightarrow ^{73\text{g}}\text{Se}$, $^{80\text{m}}\text{Br} \rightarrow ^{80}\text{Br}$.

Annexe C

Calcul du rapport d'embranchement βn du ^{134}Sn

Le rapport d'embranchement de la décroissance βn , P_n du ^{134}Sn est connue avec une erreur relativement importante: $P_n = 17(13)\%$ [Aud97]. L'utilisation d'une cible d' UC_x combinée à une source à ionisation laser permet d'obtenir des faisceaux d'étains riches en neutrons très purs. Nous avons utilisé une cible équipée d'un convertisseur. Ce dernier, après irradiation par un faisceau de protons de 1,4 GeV, produit un flux de neutrons de spallation induisant la fission de la cible. Ainsi, un rendement de $1,2 \cdot 10^7$ ions/ μC est obtenu pour ^{134}Sn , ce qui est suffisant pour entreprendre une mesure du rapport d'embranchement βn du ^{134}Sn , visant à diminuer la barre d'erreur de la précédente mesure.

Pour cela, nous avons collecté le ^{134}Sn sur différentes feuilles d'aluminium, afin d'effectuer leur spectroscopie γ . En effet, les descendants de cet isotope, ^{134}Sb (par décroissance β) et ^{133}Sb (par décroissance βn), décroissent à leur tour respectivement vers le ^{134}Te , ^{133g}Te et ^{133m}Te . Les durées de vie de ces isotopes de tellure qui sont respectivement de 41,8 m, 12,5 m et 55,4 m, sont donc suffisamment longues pour déterminer leur activité avec la méthode que nous venons de décrire.

Le schéma de décroissance de $^{133}\text{Sb} \Rightarrow ^{133g,m}\text{Te}$ représenté sur la figure B.1, permet de déduire les rapports d'embranchements suivants:

$$^{133}\text{Sb} \Rightarrow \begin{cases} ^{133g}\text{Te} & 82,9\%(\pm 3,1) \\ ^{133m}\text{Te} & 17,1\%(\pm 2,4) \end{cases} \quad (\text{C.1})$$

^{133m}Te , ^{133}Te et ^{134}Te ont été clairement identifiés. Afin de vérifier l'existence des contaminants isobariques ^{134}In , ^{134}Te et ^{134}Sb dont la décroissance entraînerait la formation de ^{133m}Te , ^{133}Te et ^{134}Te , nous avons collecté les éléments extraits à la masse 134 avec le laser éteint. Ainsi, les éléments ionisés

Sachant que [Rud93]:



on aurait l'égalité: $A_{^{134}Te} = A_{^{134}Sb}$.

On en déduit le rapport d'embranchement β_n du ^{134}Sn :

$$P_n = \frac{A_{^{134}Sb}}{A_{^{134}Sb}} = 37.17\%(4.64\%) \quad (C.3)$$

Nous avons donc déterminé, grâce à une méthode relativement simple, le rapport d'embranchement β_n du ^{134}Sn avec une erreur réduite par rapport à la précédente mesure.

Annexe D

Formation d'éléments superlourds dans les réactions de fusion froide

Les réactions de fusion à basse énergie des noyaux de bismuth et de plomb avec des ions lourds, lesquelles sont appelées réactions de fusion froides, permettent de produire des transactinides. Les sections efficaces de formation de ces éléments superlourds qui ont été ou devraient être obtenues lors de réactions de fusion ont été calculées (par exemple [Smo01]).

On a déterminé si de telles réactions étaient possibles dans le cadre du projet EURISOL (c'est à dire si le nombre d'événements était raisonnable). Le ^{86}Se pourrait être produit dans une cible à haute intensité avec un rendement de fission 1,2%. Supposons un rendement de 10^{15} fissions/s, une efficacité de relâchement d'environ 50%, une efficacité d'ionisation de 20%, un épluchage de charge de 20% et une efficacité d'accélération de 80%. On en déduit une intensité du faisceau accéléré I_{beam} en ions/s:

$$I_{\text{beam}} = 10^{15} \cdot 1,2/100 \cdot 50/100 \cdot 20/100 \cdot 20/100 \cdot 80/100 = 2 \cdot 10^{11} \quad (\text{D.1})$$

Nous avons traité l'exemple du $^{116}\text{293}$ qui pourrait être produit par l'hypothétique réaction $^{208}\text{Pb}(^{86}\text{Se},n)^{116}\text{293}$ avec une section efficace calculée de [Smo01] 2,3 pb.

La barrière de Coulomb s'exprime selon:

$$B_{fu} = \frac{Z_T Z_P e^2}{r} \quad (\text{D.2})$$

où Z_T et Z_P sont respectivement les numéros atomiques de la cible et du projectile. Pour un faisceau de ^{86}Se interagissant avec une cible de plomb, l'interaction entre ^{208}Pb et ^{86}Se est non négligeable pour une distance effective r qui est approximativement exprimée comme:

$$r = R_P + R_T = r_0(A_P^{1/3} + A_T^{1/3}) \quad (D.3)$$

Avec $Z_T = 34$, $A_T = 86$, $Z_P = 82$, $A_P = 208$, $r_0 = 1,2$ fm et $r = 12,4$ fm, on déduit que $B_{fu} = 323$ MeV. Pour de telles énergies, la perte dans la cible est d'environ $16,5$ MeV/(mg/cm²) (d'après une simulation avec TRIM). Comme la largeur de la résonance est d'environ 15 MeV, l'épaisseur effective de la cible est $0,9$ mg/cm².

Le taux de production serait alors:

$$N = 2 \cdot 10^{11} \cdot 2,3 \cdot 10^{-36} \cdot \frac{6,022 \cdot 10^{23} \cdot 0,9 \cdot 10^{-3}}{208} = 0,1 [\text{Evt/jour}] \quad (D.4)$$

En supposant une efficacité de sélection (due à la méthode expérimentale qui consiste à sélectionner les noyaux par un filtre) d'environ 65% et une efficacité de détection d'environ 85%, on en déduit un taux de production final de 1,7 événements par mois.

Ainsi, les futures générations de faisceaux d'ions radioactifs comme EURISOL permettront d'obtenir des faisceaux d'ions superlourds avec des rendements raisonnables pour leur identification.

Bibliographie

Bibliographie

- [Als70] J. Alstad, B. Bergersen, T. Jahnsen, A.C. Pappas and T. Tunaal, 'Tellurium tetrachloride as a target for production of tin and antimony', CERN report 70-3, Geneva (1970).
- [Alt96] G.D. Alton, 'Selection of targets and ion sources for radioactive ion beam generation at the Holifield radioactive ion beam facility', Rev. Sci. Instr. 67 (1996) 3831-3842.
- [Ame03] Coulomb excitation of neutron deficient Sn-isotopes using REX-ISOLDE, CERN-INTC-2003-010.
- [And67] M.L. Andersen and B. Scharff, 'Diffusion of rare earths out of various metals in the Ta-Au region', Ark. Fys. 36 (1967) 151-153.
- [And91] H. Andreassen et al., 'Mixtures of molten metals and graphite as targets for on-line mass separators', Nucl. Instr. Meth. B 58 (1991) 247-251.
- [And93] H. Andreassen, *Studier av molekyliondannelse i target og ionekilde ved isoldes isotopseparator*, Ph.D. thesis, Universitetet i Oslo (1993).
- [Arj85] J. Årje et al., Phys. Rev. Lett. 54 (1985) 99-101.
- [Aud95] G. Audi and A.H. Wapstra, 'The 1995 update to the atomic mass evaluation', NPA95 595 (1995) 409-480.
- [Aud97] G. Audi et al., 'The N_{UBASE} evaluation of nuclear and decay properties', Nucl. Phys. A 624 (1997) 1-124.
- [Äys02] J. Äystö and V. Rubchenya, 'Neutron-rich nuclei and fission; recent developments and future aspects', Eur. Phys. J. A 13 (2002) 109-115.

- [Bak90] H. Bakker et al., *Diffusion in Solid Metals and Alloys*, vol. III/26 of *Landolt-Börnstein*, Springer, Berlin (1990).
- [Bak98] H. Bakker, *Enthalpies in Alloys, Miedema's Semi-Empirical Model*, Trans Tech Publications, Switzerland (1998).
- [Bal73] R.S. Balchin et al., 'The formation of OCS_e from the Reaction of recoil Selenium Atoms with Carbon Monoxide', *Radiochim. Acta* 59 (1973) 5484-5493.
- [Bau94] P. Baumann et al., 'Beta decay properties of ^{67,68}Se and the astrophysical *rp*-process path', *Phys. Rev. C* 50 (1994) 1180-1184.
- [Bla03] K. Blaum et al., 'A novel scheme for highly selective laser ion', *Nucl. Instr. Meth. B* 204 (2003) 331-335.
- [Ben97] J.R.J. Bennett, 'Targets for production of high intensity radioactive ion beams', *Nucl. Instr. Meth. B* 126 (1997) 105-112.
- [Ben00] J.R.J. Bennett et al., 'Radioactive Nuclear Beam Facilities-NuPECC report 2000'.
- [Ben02] J.R.J. Bennett, 'An improved analytical model of diffusion through the RIST target', *Nucl. Instr. Meth. B* 204 (2002) 211-214.
- [Ber02] U.C. Bergmann et al., 'Light exotic isotopes: recent beam developments and physics applications at ISOLDE', *Nucl. Phys. A* 701 (2002) 363-368.
- [Ber02c] U.C. Bergmann, CERN-ISOLDE, Private communication.
- [Bey76] G.J. Beyer and A.F. Novgorodov, 'Tracer-Diffusion einiger kernreaktionsprodukte in polykristallinem niobium', *Radiochem. Radioanalyt. Lett.* 27 (1976) 341-352.
- [Bey77] G.J. Beyer and W.D. Fromm and A.F. Novgorodov, 'Trace diffusion of different nuclear reaction products in polycrystalline tantalum', *Nucl. Instr. Meth.* 146 (1977) 419-430.
- [Bie80] J.P. Biersack and L.G. Haggmark, 'A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets', *Nucl. Instr. Meth.* 174 (1980) 257-269.
- [Bj81] T. Bjørnstad et al., 'New targets for on-line mass separation of nuclei formed in 600 MeV proton and 910 MeV ³He reactions', *Nucl. Instr. Meth.* 186 (1981) 391-400.

- [Bjø86a] T. Bjørnstad et al., 'The doubly closed shell nucleus $^{132}_{50}\text{Sn}_{82}$ ', Nucl. Phys. A 453 (1986) 463-485.
- [Bjø86b] T. Bjørnstad et al., 'Methods for production of intense beams of unstable nuclei: new developments at ISOLDE', Phys. Scr. 34 (1986) 578-590.
- [Bjø87] T. Bjørnstad et al., 'Recent developments of high-temperature metal targets for ISOLDE', Nucl. Instr. Meth. B 26 (1987) 174-182.
- [Bla96] B. Blank et al., 'First spectroscopic study of ^{22}Si ', Phys. Rev. C 54 (1996) 572-574.
- [Bor88] R.J. Borg and G.J. Dienes, *An Introduction to Solid State Diffusion*, Academic Press, Boston (1988).
- [Bor91] V. Borrel et al., ' ^{91}Ar and ^{27}Si : Beta-delayed two proton emission and mass excess', Nucl. Phys. A 531 (1991) 353-369.
- [Bos85] U. Bosch et al., 'Beta-decay half-lives of new neutron-rich chromium-to-nickel isotopes and their consequences for the astrophysical r-process', Phys. Lett. B 164 (1985) 22-26.
- [Bos88] U. Bosch et al., 'Beta and gamma decay studies of neutron-rich chromium, manganese, cobalt and nickel isotopes including the new isotopes ^{60}Ni and ^{60}Mn ', Nucl. Phys. A 477 (1988) 89-104.
- [Bur70] J.E. Burke, *Chemical behaviour of inorganic materials* (1970).
- [Cam67] I. E. Campbell and E. M. Sherwood, *High temperature materials and technology*, The electrochemical society, New York (1967).
- [Can] <http://www.canberra.com>
- [Car46] H.S. Carslaw and J.C. Jaeger, *Conduction of Heat in Solids*, The Oxford University, Oxford (1946).
- [Car78] L.C. Carraz, I.R. Haldorsen, H.L. Ravn, M. Skarestad and L. Westgaard, 'Fast release of nuclear reaction products from refractory matrices', Nucl. Instr. Meth. 148 (1978) 217-230.
- [Car79] L.C. Carraz, S. Sundell, H. Ravn, M. Skarestad and L. Westgaard, 'High-temperature carbide targets for fast on-line mass separation of alkali and noble gas elements', Nucl. Instr. Meth. 158 (1979) 69-80.

- [CER] <http://www.cerac.com>.
- [Cha96] M. Chartier et al., 'Mass measurement of ^{100}Sn ', Phys. Rev. Lett. 77 (1996) 2400-1403.
- [Coc89] M.C.R. Cockett, 'High temperature photoelectron spectroscopy-A study of SiS', Appl. Radiat. Isot. 85 (1989) 75-83.
- [Cop67] P. Coppens et al., 'Mass spectrometric determination of the dissociation energies of the molecules GeS, ScS, YS, LaS and CeS', Trans. Far. Soc. 63 (1967) 2140.
- [Cor96] J.G. Correia, 'Radioactive ion beams for solid state physics research', Nucl. Instr. Meth. B 113 (1996) 501-506.
- [Cow58] G.A. Cowan and C.J. Orth, 'Diffusion of fission products at high temperatures from refractory matrices', in: 'Proc. 2nd Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, Geneva', vol. 7, United Nations, 1958 pp. 328-334.
- [Cra56] J. Crank, *The mathematics of diffusion*, The Oxford University Press, Oxford (1956).
- [CRC] R.E. Bolz and G.L. Tuve, *CRC Handbook of Tables for Applied Engineering Science*, Chemical Rubber Company, Boca Raton, CRC Press, 1973..
- [Cur98] P. Curie and M. Sklodowska-Curie, 'Sur une nouvelle substance radio-active contenue dans la pechblende', C. R. Acad. Sci. Paris 127 (1898) 175.
- [Cur34] I. Curie et F. Joliot, 'Un nouveau type de radioactivité', C. R. Acad. Sci. Paris 198 (1934) 254.
- [Dec92] P. Decrock et al., 'Extraction efficiency of ^{13}N ($T_{1/2} = 9.96$ min) atoms from a graphite target: comparison between off- and on-line obtained results', Nucl. Instr. Meth. B 70 (1992) 182-185.
- [Den97] P. Dendooven, 'The development and status of the IGISOL technique', Nucl. Instr. Meth. B 126 (1997) 182-189.
- [Dom90] M. Domskey et al., 'Target and ion source development at the TISOL facility at TRIUMF', Nucl. Instr. Meth. A 295 (1990) 291-298.

- [Dom03] M. Dombsky et al., 'ISAC target operation with high proton currents', Nucl. Instr. Meth. B 204 (2003) 191–196.
- [Don89] E.D. Donets, *The Physics and Technology of Ion Sources*, Electron Beam Ion Sources, John Wiley & Sons, New York (1989).
- [Ede92] R. Eder et al., 'The production yields of radioactive ion-beams from fluorinated targets at the ISOLDE on-line mass separator', Nucl. Instr. Meth. B 62 (1992) 535–540.
- [Eas50a] E.D. Eastman, L. Brewer, L.A. Bromley, P.W. Gilles and N.L. Lofgren, 'Preparation and properties of the sulfides of thorium and uranium', J. Am. Chem. Soc. 72 (1950) 4019–4023.
- [Eas50b] E.D. Eastman, L. Brewer, L.A. Bromley, P.W. Gilles and N.L. Lofgren, 'Preparation and properties of refractory cerium sulfides', J. Am. Chem. Soc. 72 (1950) 2248–2250.
- [Eas51] E.D. Eastman, L. Brewer, L.A. Bromley, P.W. Gilles and N.L. Lofgren, 'Preparation and tests of refractory sulfide crucibles', J. Am. Ceram. Soc. 34 (1951) 128–134.
- [Eic85] B. Eichler, H. Gäggeler, H. Rossbach and S. Hübener, 'Adsorption of volatile metals on metal surfaces and its applications in nuclear chemistry - evaluation of enthalpies for polonium on surfaces of transition metals and copper, silver and gold', Radiochim. Acta 38 (1985) 131–134.
- [ELE] Royal Society of Chemistry, <http://www.webelements.com>
- [Ell65] R.P. Elliot, *Constitution of Binary Alloys, First Supplement*, McGraw-Hill, New York (1965).
- [EUR] <http://www.ganil.fr/eurisol>
- [Ewa84] G.T. Ewan et al., 'Intense mass-separated beams of halogens and beta-delayed neutron emission from heavy bromine isotopes', Z. Phys. A 318 (1984) 309–314.
- [Fed00] V.N. Fedoseyev et al., 'The ISOLDE laser ion source for exotic nuclei', Hyp. Int. 127 (2000) 409–416.
- [Fir96] R.B. Firestone and V.S. Shirley, eds., *Table of isotopes*, Wiley, New York (1996).

- [Fro77] W.D. Fromm G.J. Beyer and A.F. Novgorodov, 'Trace diffusion of different nuclear reaction products in polycrystalline tantalum', Nucl. Instr. Meth. 146 (1977) 419-430.
- [Fro73] D.C. Frost and al., 'Photoelectron spectra of OCS_e, SCS_e and CSe₂', J. Chem. Phys. 59 (1973) 5484-5493.
- [Fuj81] M. Fujioka and Y. Arai, 'Diffusion of radioisotopes from solids in the form of foils, fibers and particles', Nucl. Instr. Meth. 186 (1981) 409-412.
- [Fyn00] H. O. U. Fynbo, 'The $\beta 2p$ decay mechanism of ³¹Ar', Nucl. Phys. A 677 (2000) 38-60.
- [Gae97] M. Gaelens, M. Huyse, M. Loiselet, G. Ryckewaert and P. Van Duppen, 'Development of radioactive ion beams of light elements at ARENAS³', Nucl. Instr. Meth. B 126 (1997) 125-129.
- [Gai91] J. J. Gaimard et K. H. Schmidt, 'A reexamination of the abrasion-ablation model for the description of the nuclear fragmentation reaction', Nucl. Phys. A 531 (1991) 709-745.
- [Gel96] R. Geller, *Electron Cyclotron Resonance Ion Sources and ECR Plasmas*, IOP, Bristol (1996).
- [Gil03] T.J. Giles et al., 'The high resolution spectrometer at ISOLDE', Nucl. Instr. Meth. B 204 (2003) 497-501.
- [Gro84] F. Gronvold, F. Drowart and E.F. Jr Westrum, *The Chemical Thermodynamics of Actinide Elements and compounds*, International Atomic Energy Agency, Vienna (1984).
- [Hab97a] D. Habs et al., 'The Munich Fission Fragment Accelerator', in: T. von Egidy et al., eds., 'Int. Workshop on Research with Fission Fragments, Benediktbeuern, October 1996', vol. 616, World Scientific, Singapore, 1997 pp. 18-28.
- [Hab97b] D. Habs et al., 'The REX-ISOLDE project', Nucl. Instr. Meth. B 126 (1997) 218-223.
- [Hab00] D. Habs et al., 'The REX-ISOLDE project', Hyp. Int. 129 (2000) 43-66.
- [Hag92] E. Hagebo et al., 'New production systems at ISOLDE', Nucl. Instr. Meth. B 70 (1992) 165-174.

- [Hag02] E. Hagebø, CERN-ISOLDE, Private communication.
- [Han73] F. Hansen, A. Lindahl, O.B. Nielsen and G. Sidenius, 'The application of ceramic oxides at high temperatures as ISOL-targets', in: G. Andersson and G. Holmen, eds., 'Proc. of the 8th Int. EMIS Conf. on Low Energy Ion Accelerators and Mass Separators', Chalmers University of Technology, 1973 pp. 426-431.
- [Her82] G. Herrmann and N. Trautmann, 'Rapid chemical methods for identification and study of short-lived nuclides', *Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.* 32 (1982) 117-147.
- [Her01] F. Herfurth et al., 'A linear radiofrequency ion trap for accumulation, bunching, and emittance improvement of radioactive ion beams', *Nucl. Instr. Meth. A* 469 (2001) 254-275.
- [Her02a] F. Herfurth et al., 'Accurate mass measurements of very short-lived nuclei', *Eur. Phys. J. A* 15 (2002) 17-20.
- [Hof80] P. Hoff et al., 'Production of molecular ions in the integrated target/ion-source of an isotope-separation-on-line system', *Nucl. Instr. Meth.* 172 (1980) 413-418.
- [Hof84] P. Hoff, O.C. Jonsson, E. Kugler and H. Ravn, 'Release of nuclear reaction products from refractory compounds', *Nucl. Instr. Meth.* 221 (1984) 313-329.
- [Ibr02] F. Ibrahim et al., 'Photofission for the production of radioactive beams: experimental data from an on-line measurement', *Eur. Phys. J. A* 15 (2002) 357-360.
- [Ich92] S. Ichikawa et al., 'Measurement of hold-up times in a thermal ion source for metallic monoxide ions of lanthanum and cerium', *Nucl. Instr. Meth. B* 70 (1992) 156-159.
- [Ign95] A.V. Ignatyuk et al., 'Analysis of dissipative effects in nuclear fission observed in fragmentation of ^{238}U projectiles', *Nucl. Phys. A* 593 (1995) 519-534.
- [Ina92] T.T. Inamura, 'Velocity distribution of RIKEN IGISOL ion beams', *Nucl. Instr. Meth. B* 70 (1992) 226-232.
- [Iti02] Y. Itikawa, 'Cross sections for electron collisions with carbon dioxide', *J. Phys. Chem. Ref. Data* 31 (2002) 749-767.

- [Jon00] B. Jonson and A. Richter, 'More than three decades of ISOLDE physics', *Hyp. Int.* 129 (2000) 1-22.
- [Jun98] A.R. Junghans, 'Projectile fragment yields as a probe for the collective enhancement in the nuclear level density', *Nucl. Phys. A* 629 (1998) 635-655.
- [Kar02] M. Karny et al., 'Beta decay studies of neutron-deficient Sn isotopes', GSI report 2002-01, p3.
- [Kim97] Y.-K. Kim et al., 'Electron-impact ionization cross sections of atmospheric molecules', *J. Chem. Phys.* 106 (1997) 3.
- [Kir76] R. Kirchner and E. Roeckl, 'Investigation of gaseous discharge ion sources for isotope separation on-line', *Nucl. Instr. Meth.* 133 (1976) 187-204.
- [Kir81a] R. Kirchner, 'Progress in ion source development for on-line separators', *Nucl. Instr. Meth.* 186 (1981) 275-293.
- [Kir81b] R. Kirchner, K.H. Burkard, W. Hüller and O. Klepper, 'The ion sources for the GSI on-line separator', *Nucl. Instr. Meth.* 186 (1981) 295-305.
- [Kir90] R. Kirchner, 'On the thermoionization in hot cavities', *Nucl. Instr. Meth. A* 292 (1990) 203-208.
- [Kir92] R. Kirchner, 'On the release and ionization efficiency of catcher-ion-source systems in isotope separation on-line', *Nucl. Instr. Meth. B* 70 (1992) 186-199.
- [Kir96] R. Kirchner, 'Ion sources for radioactive beams and related problems (Review)', *Rev. Sci. Instr.* 67 (1996) 928-933.
- [Kir97] R. Kirchner, 'Release studies of elementary and metal-fluoride ions at the GSI on-line mass separator', *Nucl. Instr. Meth. B* 126 (1997) 135-140.
- [Kir03] R. Kirchner, 'Review of ISOL target-ion-source systems', *Nucl. Instr. Meth. B* 204 (2003) 179-190.
- [Kof51] O. Kofoed-Hansen and K.O. Nielsen, 'Measurements on shortlived radioactive krypton isotopes from fission after isotopic separation', *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk* 26 (1951) 1-16.

- [Kor94] M.A. Korzhinsky, S.I. Tkachenko, K.I. Shmulevich, Y.A. Taran and G.S. Steinberg, 'Discovery of a pure rhenium mineral at Kudriavy volcano', 369 (1994) 51-52.
- [Kos02] U. Köster et al., 'Oxide fiber targets at ISOLDE', Nucl. Instr. Meth. B 204 (2002) 211-214.
- [Kos02a] U. Köster, Nucl. Phys. A 'Resonance ionization laser ion source', 701 (2002) 441-451.
- [Kos02b] U. Köster, 'Intense radioactive-ion beams produced with ISOL method', Eur. Phys. J. A 13 (2002) 255-263.
- [Kos03] U. Köster, 'Oxide fiber targets at ISOLDE', Nucl. Instr. Meth. B 204 (2003) 303-313.
- [Kri88] O.H. Krikorian and P.G. Curtis, 'Synthesis of CeS and interactions with molten metals', High. Temp. High. Pres. 20 (1988) 9-18.
- [Kud01] Yu. Kudryavtsev et al., 'A gas cell for thermalizing, storing and transporting radioactive ions and atoms. Part I: off-line studies with a laser ion source', Nucl. Instr. Meth. A 469 (2001) 412-435.
- [Kug00] E. Kugler, 'The ISOLDE facility', Hyp. Int. 129 (2000) 23-42.
- [Lal00] A.S. Lalleman, *Mesure de masses dans la région $N=Z=40$* , Ph.D. thesis, Université de Caen (2000).
- [Lau01] C. Lau, Note technique interne ISOLDE (2001).
- [Lau03] C. Lau et al., 'Production of neutron-rich surface-ionized nuclides at PARRNe', Nucl. Instr. Meth. B 204 (2003) 257-260.
- [Lec97] N. Lécresne et al., 'A new method for measuring the absolute efficiency of isotope separation on-line', Nucl. Instr. Meth. B 126 (1997) 141-145.
- [Lee64] E.K.C. Lee, Y.N. Tang and F.S. Rowland, 'The gas phase reactions of recoil sulfur atoms with carbon monoxide and carbon dioxide', J. Phys. Chem. 68 (1964) 318-322.
- [Leit03] Mario Santana-Leitner, Ph.D. thesis, probably 2003, Université de Barcelone.
- [Let97] J. Lettry et al., 'Pulse shape of the ISOLDE radioactive ion beams', Nucl. Instr. Meth. B 126 (1997) 130-134.

- [Lew94] M. Lewitowicz et al., 'Identification of the doubly-magic nucleus ^{100}Sn in the reaction $^{112}\text{Sn} + ^{\text{nat}}\text{Ni}$ at 63 MeV/nucleon' Nucl. Phys. A 332 (1994) 20-24.
- [Lew95] M. Lewitowicz et al., 'Observation of ^{100}Sn ' Nucl. Phys. A 583 (1995) 857-860.
- [Lip96] M. Lipoglavšek et al., 'Stability of $^{100}_{50}\text{Sn}_{50}$ deduced from excited states in $^{99}_{48}\text{Cd}_{51}$ ', Phys. Rev. Lett. 76 (1996) 888-891.
- [Lip98] M. Lipoglavšek et al., 'E2 polarization charge in ^{102}Sn ' Phys. Lett. B 440 (1998) 246-250.
- [Man00] M.A. Mangan, B.G. Lindsay and R.F. Stebbings, 'Absolute partial cross sections for electron-impact ionization of CO from threshold to 1000 eV', J. Phys. B 33 (2000) 3225-3234.
- [Mas] B. Massalski, ed., *Binary alloy phase diagrams*, American Society for Metals, Metals Park, Ohio, 1986.
- [Mac71] H.A.C. McKay, *Principles of radiochemistry*, Butterworth & Co, London (1971).
- [Meh96] T. Mehren et al., 'Beta-Decay Half-Lives and Neutron-Emission Probabilities of Very Neutron-rich T to Te Isotopes', Phys. Rev. Lett. 77 (1996) 458-461.
- [Men97] Mariano Menna, *Nuclear and radiochemistry at CERN-ISOLDE: target synthesis and diffusion studies*, Master's thesis, Università di Napoli "Federico II" (1997).
- [Mey80] R.A. Meyer and E.A. Henry, *Proc. Workshop Nucl. Spectrosc. Fission, Grenoble*, Bristol, London (1980).
- [Mil94] K.C. Mills, *Thermodynamic Data for Inorganic Sulphides, Selenides and Tellurides*, Butterworths, London (1994).
- [Mis93] V.I. Mishin et al., 'Chemically selective laser ion-source for the CERN-ISOLDE on-line mass separator facility', Nucl. Instr. Meth. B 73 (1993) 550-560.
- [Mor92] K. Morita et al., 'RIKEN isotope separator on-line GARIS/IGISOL', Nucl. Instr. Meth. B 70 (1992) 220-225.
- [Mul02] A. Muller, CERN, 'Private communication', .

- [NuP] <http://www.c12.physik.tu-muenchen.de/nupecc/>.
- [Oga98] Yu. Oganessian, 'Dynamical Aspects of Nuclear Fission', in: S. Gmuca Yu. Oganessian, J. Kliman, ed., 'Proc. of the 4th International Conference, Casta-Papzenicka, Slovak Republic, 19-23 October 1998', World Scientific, Singapore, 1998.
- [Pas58] P. Pascal, *Nouveau traité de chimie minérale*, Paris (1958).
- [Pat70] P. Patzelt, 'The hydroxides of titanium, zirconium, cerium (IV) and thorium for on-line production of noble gases', CERN report 70-3, Geneva (1970).
- [Pea32] T.G. Pearson and P.L. Robinson, 'Carbonylselenide. Part I. Preparation and Physical Properties', J. Chem. Soc. 83 (1932) 652-660.
- [Pel02] F. Landré-Pellemoine et al., 'Recent results at the SIRa test bench: Diffusion properties of carbon graphite and B₄C targets', Nucl. Phys. A 701 (2002) 491-494.
- [Per02] K. Perälä et al., 'Studies of release properties of ISOL targets', Nucl. Instr. Meth. B 204 (2003) 272-277.
- [Rav75a] H.L. Ravn, S. Sundell, L. Westgaard and E. Roeckl, 'Short-lived isotopes of alkali and alkaline-earth elements studied by on-line isotope separator techniques', J. Inorg. Nucl. Chem. 37 (1975) 383-393.
- [Rav75b] H.L. Ravn, S. Sundell, L. Westgaard and the ISOLDE Collaboration, 'Target techniques for the ISOLDE on-line isotope separator', Nucl. Instr. Meth. 123 (1975) 131-144.
- [Rav87] H.L. Ravn et al., 'Use of refractory oxides, carbides and borides as targets for on-line mass separation', Nucl. Instr. Meth. B 26 (1987) 183-189.
- [Rav89] H.L. Ravn and B.W. Allardyce, *On-line mass separators*, vol. 8 of *Treatise on Heavy-Ion Science*, Plenum Press, New York (1989).
- [Rav94] H.L. Ravn et al., 'Comparison of radioactive ion-beam intensities produced by means of thick targets bombarded with neutrons, protons and heavy ions', Nucl. Instr. Meth. B 88 (1994) 441-461.
- [Rav97] H.L. Ravn et al., 'Bunched release of gases from oxide targets', Nucl. Instr. Meth. B 126 (1997) 176-181.

- [Ree77] Teja Reetz, *Stofftransport in Metallen und Oxiden*, Ph.D. thesis, TU Dresden (1977).
- [Rud90] G. Rudstam et al., 'Yields of products from thermal neutron-induced fission of ^{235}U ', *Radiochim. Acta* 49 (1990) 155-191.
- [Rud93] G. Rudstam, K. Aleklett and L. Siliver, 'Delayed Neutron Branching Ratios of Precursors in the Fission Product Region', *At. Data Nucl. Tables* 53 (1993) 1.
- [Sai99] M.G. Saint-Laurent, J. Äystö, J. Vervier, A.C. Mueller and S. Brandenburg, 'SPIRAL-Phase II: a R&D programme investigating the optimal conditions for producing neutron-rich radioactive beams by fast neutron induced fission', *Nouvelles du GANIL* 65 (1999) 10.
- [Sak92] N. Sakudo and T. Matsuo, 'Ge⁺ ion extraction from a microwave ion source', *Rev. Sci. Instr.* 63 (1992) 2444-2446.
- [Sch95] R. Schneider et al., 'Production, identification, and half-life measurement of ^{100}Sn ', *Nucl. Phys. A* 588 (1995) 191-196.
- [Sch98] K.H. Schmidt et al., 'Fission experiments with secondary beams', in: G. Pioni, H. Faust, S. Oberstedt and F.J. Hambsch, eds., 'Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, Second Int. Workshop, Seyssins, France', *AIP Conf. Proc.* 447, Woodbury, NY, 1998 pp. 407-419.
- [Sch94] R. Schneider et al., *Z. Phys. A* 348 (1994) 241.
- [Sch01] J. Schöafelder et al., 'SHIPTRAP - a capture and storage facility for heavy radionuclides at GSI', *Nucl. Phys. A* 701 (2001) 579-582.
- [Sch02] P. Schmidt et al., 'Bunching and cooling of radioactive ions with REXTRAP', *Nucl. Phys. A* 701 (2002) 550-556.
- [Sea58] G. T. Seaborg, *The Transuranium Elements*, Yale University Press, New Haven (1953).
- [Sea90] G. T. Seaborg and W. D. Loveland, *The Elements beyond Uranium*, John Wiley & Sons, New York (1990).
- [Sil73] R. Silberberg and C.R. Tsao, 'Cross Sections of Proton-Nucleus Interactions at High Energies', *NRL Report 7593*, Naval Research Laboratory, Washington (1973).

- [Smo01] R. Smolanczuk, 'Formation of superheavy elements in cold fusion reactions', Phys. Rev. C 63 (2001) 044607.
- [Smo02] P.W. Schmor, 'Target handling at high-intensity RNB facilities', Nucl. Phys. A 701 (2002) 480-485.
- [Ste86] R. Stevens, *An Introduction to zirconia, Zirconia and Zirconia Ceramics*, Twickenrum, UK (1986).
- [Sto01] Andreas Stolz, *Untersuchung des Gamov-Teller-Zerfalls in der Nachbarschaft von ^{100}Sn* , 2001, TU München.
- [Stu] http://www.phy.ornl.gov/hribf/usersgroup/news/spring2_01.html
- [Str03] D.W. Stracener, 'Status of radioactive ion beams at HRIBF', Nucl. Instr. Meth. B 204 (2003) 42-47.
- [Stu47] D.R. Stull, 'Vapor pressure of pure substances organic compounds', Ind. Eng. Chem. , 39 (1947) 317-540.
- [Sun92] S. Sundell, H. Ravn and the ISOLDE Collaboration, 'Ion source with combined cathode and transfer line heating', Nucl. Instr. Meth. B 70 (1992) 160-164.
- [Sym79] T.J.M. Symons et al., 'Measurements on shortlived radioactive krypton isotopes from fission after isotopic separation', Phys. Rev. Lett. 79 42 (1979) 40.
- [TAR] <http://www.ganil.fr/targisol>
- [Tav98] M. Tavlet et al., *Compilation of Radiation Damage Test Data, Part II*, 2nd edition: thermoset and thermoplastic resins, composite materials, 1998, CERN 98-01.
- [Tec] <http://phenix-limited.com/technology.html>.
- [Thi91] F.-K.Thielemann et al., 'Element Synthesis in Stars', Prog. Part. Nucl. Phys. pp. 572-574.
- [Tmc] <http://www.thermocalc.com>.
- [Ver97] J. Vervier, 'Recent achievements and experiments at the Louvain-la-Neuve Radioactive Nuclear Beam facility', Nucl. Phys. A 616 (1997) 97-106.

- [Vil00] A.C.C. Villari et al., 'RNB production at SPIRAL/GANIL', in: J.L. Duggan and L.L. Morgan, eds., 'Applications of Accelerators in Research and Industry, Proc. of the Sixteenth Int. Conf., Denton', AIP Conf. Proc., Woodbury, NY, 2000 pp. 254-256.
- [Vil02] A.C.C. Villari et al., 'Ion source developments for RNB production at SPIRAL/GANIL', Nucl. Phys. A 701 (2002) 476-479.
- [Vil03] A.C.C. Villari and the SPIRAL group, 'First results at SPIRAL-GANIL', Nucl. Instr. Meth. B 204 (2003) 31-41.
- [Wac00] M. Wachsmuth et al., 'On-line gas-phase separation of short-lived bromine nuclides from precursor selenium', Radiochim. Acta 88 (2000) 873-877.
- [Wac01] W. Wachsmuth et al., 'Transport yields of selenium nuclides at the Sinq gas-jet facility', PSI annual report, 2001.
- [Wal81] R.K. Wallace et S.E. Woosley, Astr. J. Comp. 45 (1981) 493.
- [Wat99] L.S. Waters, "MCNPXTM USER's MANUAL", Los Alamos National Laboratory, preprint TP0-E83-G-UG-X-00001, Novembre 1999, Los Alamos National Laboratory.
- [Wol02] B. Wolf et al., Rev. Sci. Instr. 73 (2002) 682.
- [Wor94] L. Van Wormer et al., Astr. J. Comp. 432 (1994) 326.
- [Zirb] <http://www.a-m.de/english/lexikon/zirkonoxid.htm>.
- [Zira] <http://www.zircarzirconia.com>.
- [Zva72] I. Zvara et al., Sov. Radiochem. 14 (1972) 115.