



**HAL**  
open science

## **IPHI - Irradiations de l'arrêt faisceau en nickel par des protons de 3 MeV**

D. Bondoux, R. Brissot, M. Fruneau, D. Marchand, J.A. Pinston, E. Vernay,  
A. Olivier, D. Gardes, M. Magistris, S. Million, et al.

► **To cite this version:**

D. Bondoux, R. Brissot, M. Fruneau, D. Marchand, J.A. Pinston, et al.. IPHI - Irradiations de l'arrêt faisceau en nickel par des protons de 3 MeV. 2005, pp.1-24. in2p3-00025200v1

**HAL Id: in2p3-00025200**

**<https://hal.in2p3.fr/in2p3-00025200v1>**

Submitted on 9 Dec 2005 (v1), last revised 12 Dec 2005 (v2)

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

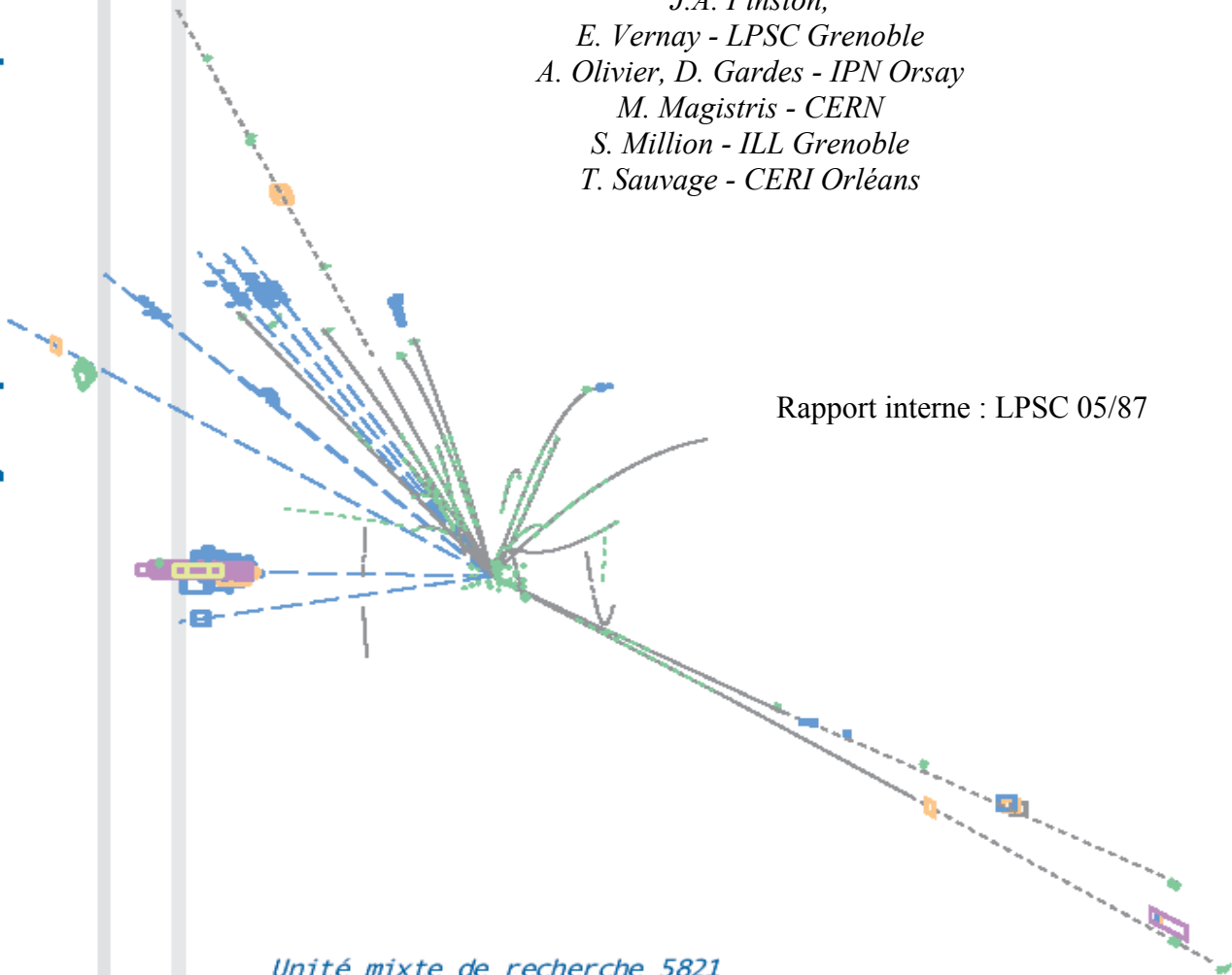
L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## IPHI

### Irradiations de l'arrêt faisceau en Nickel par des protons de 3 MeV

*D. Bondoux, R. Brissot, M. Fruneau, D. Marchand,  
J.A. Pinston,  
E. Vernay - LPSC Grenoble  
A. Olivier, D. Gardes - IPN Orsay  
M. Magistris - CERN  
S. Million - ILL Grenoble  
T. Sauvage - CERI Orléans*

Rapport interne : LPSC 05/87





# Sommaire

|              |  |    |
|--------------|--|----|
| <b>I.</b>    | <b>Introduction</b> .....  | 5  |
| <b>II.</b>   | <b>Rappels</b> .....   | 7  |
| <b>III.</b>  | <b>Le dispositif expérimental</b> .....                            | 8  |
|              | A. Tandem de l'IPN d'Orsay .....                                   | 8  |
|              | 1. L'irradiation .....   | 8  |
|              | 2. Détection .....   | 8  |
|              | 3. L'étalonnage .....  | 9  |
|              | 4. Traitement.....   | 9  |
|              | B. Van de Graaff du CERI d'Orléans .....                           | 9  |
|              | 1. L'irradiation .....   | 9  |
|              | 2. Détection .....   | 9  |
|              | 3. Etalonnage.....   | 9  |
|              | 4. Traitement.....   | 9  |
|              | C. Le laboratoire de basse activité au LP.....                     | 9  |
| <b>IV.</b>   | <b>Les irradiations</b> .....                                      | 10 |
| <b>V.</b>    | <b>Le Nickel à 3 MeV</b> .....                                     | 10 |
|              | A. Réactions sur le nickel pur à 3 MeV .....                       | 10 |
|              | B. Les impuretés du Nickel .....                                   | 15 |
| <b>VI.</b>   | <b>Analyses par activations neutrons</b> .....                     | 18 |
| <b>VII.</b>  | <b>Le choix du Nickel</b> .....                                    | 19 |
| <b>VIII.</b> | <b>Les débits de dose à la fin de la période d'essais</b> .....    | 19 |
| <b>IX.</b>   | <b>Activités et débits de dose en fonctionnement continu</b> ..... | 22 |
| <b>X.</b>    | <b>Nickel à 3 MeV et Cuivre à 3 et 5 MeV</b> .....                 | 22 |
|              | A. Nickel à 5 MeV .....  | 22 |
|              | B. Cuivre à 3 et 5 MeV .....                                       | 22 |
| <b>XI.</b>   | <b>Production de neutrons</b> .....                                | 24 |
| <b>XII.</b>  | <b>Conclusions</b> .....   | 24 |
| <b>XIII.</b> | <b>Références</b> .....  | 24 |



## **IPHI**

### **Irradiations de l'arrêt faisceau en Nickel par des protons de 3 MeV**

*D. Bondoux, R. Brissot, M. Fruneau, D. Marchand, J.A. Pinston, E. Vernay - LPSC Grenoble  
A. Olivier, D. Gardes - IPN Orsay  
M. Magistris - CERN  
S. Million - ILL Grenoble  
T. Sauvage - CERI Orléans*

#### **I. Introduction**

La qualification de IPHI impose l'arrêt du faisceau de 100 mA protons à 3 MeV pendant 6 mois aux heures ouvrables du laboratoire. La forme générale de l'arrêt faisceau (Fig 1) est un cône creux (diamètre 150 mm, hauteur 1500 mm) précédé d'une partie cylindrique (longueur 400 mm) refroidi à l'extérieur par de l'eau pour évacuer les 300 kW. Le matériau destiné à recevoir directement le faisceau doit être choisi d'une part en fonction de ses qualités mécaniques et thermiques, d'autre part en fonction de l'activation résiduelle induite : activité, gammas produits et période des radioéléments produits durant la phase de qualification et au bout de 6 mois de fonctionnement. Cela détermine les conditions d'accès à la casemate ainsi que les possibilités d'intervention sur l'arrêt faisceau lui-même. Les impuretés présentes peuvent dégrader très sensiblement les résultats obtenus pour un matériau pur.



Le carbone, intéressant du point de vue de la radioactivité n'a pas été retenu pour des raisons de réalisation mécanique, de même pour les matériaux lourds comme le Tantale. Le Cuivre, envisagé au départ, produit une activité importante en  $^{65}\text{Zn}$  [Réf 1]. Finalement, nous avons choisi le Nickel déjà retenu pour l'arrêt de faisceau à 5 MeV protons de LEDA, [Réf 2]. Le Nickel déposé sur du Cuivre, solution intéressante pour le coût de la matière a été étudié mais la présence d'impuretés et les craintes d'un manque d'adhérence nous ont conduit à rejeter cette solution.

Pour le Nickel (et pour le Cuivre) les données expérimentales manquent à 3 MeV dans une zone d'énergie près des seuils de réaction. Daniel Gardès a proposé que des échantillons de Nickel soient irradiés au tandem d'Orsay. Ces expériences poursuivies au Van de Graaff d'Orléans ont permis de disposer de données plus fiables pour le Nickel pur, de calculer les activités pour l'arrêt de faisceau et d'estimer les débits de dose correspondants. Les activités dues aux impuretés de plusieurs qualités de Nickel ont aussi été étudiées, ce qui nous a permis de retenir et d'acheter la matière première pour l'arrêt faisceau.

## II. Rappels

Pour le Nickel et le Cuivre, les réactions les plus attendues avec des protons de 3 MeV sont des réactions p,n. Matteo Magistris a envisagé des réactions p, $\alpha$  pour le Nickel. Les réactions p, gamma sont également envisageables.

Pour toutes ces réactions, il convient de regarder attentivement celles qui produisent des éléments à période longue qui seraient très pénalisants à terme alors que les périodes de quelques heures demandent seulement de différer une éventuelle intervention d'une journée. On peut calculer l'activité pour une intensité et au bout d'un temps d'irradiation donné et son évolution au cours de la décroissance.

En supposant l'intensité constante pendant l'irradiation.

$$\text{Act}_i(t) = Y_i \cdot N_p \cdot A \cdot (1 - \exp(-0.693 \cdot t / T_{1/2}))$$

- $\text{Act}_i$  est l'activité de l'isotope produit en Bq à la fin de l'irradiation
- $Y_i$  est le rendement (yield) ou taux de production : probabilité de réaction par proton incident en cible épaisse.
- $N_p$  est le nombre de protons incidents par seconde
- $A$  est l'abondance isotopique
- $T_{1/2}$  est la demi-vie de l'isotope.

Au bout d'un temps de décroissance  $t_{\text{dec}}$ , l'activité est :

$$\text{Act}_i(t_{\text{dec}}) = \text{Act}_i(t) \cdot \exp(-0.693 \cdot t_{\text{dec}} / T_{1/2})$$

A partir de ces données, on peut calculer l'évolution du débit de dose connaissant les énergies et les intensités absolues des gammas produits.

Le rendement peut être calculé en intégrant les sections efficaces sur tout le parcours des protons à depuis l'énergie maximum jusqu'à l'arrêt. Pour le Nickel, le parcours des protons de 3 MeV est 30  $\mu\text{m}$ , compte tenu de l'inclinaison du cône, les protons sont arrêtés dans une couche de 1,5  $\mu\text{m}$ . Le peu de données dans des domaines d'énergie au voisinage des seuils de réaction permet tout au plus d'avoir une estimation. Expérimentalement, une valeur directe est obtenue en irradiant le matériau naturel et en relevant les spectres gamma en fonction du



temps après irradiation. On peut alors remonter à l'activité en fin d'irradiation pour chacune des réactions connaissant les intensités des raies et les périodes. Cependant, un même produit de réaction peut provenir de plusieurs types de réaction sur des isotopes différents de Nickel, voire sur des impuretés.

Le tableau 1 donne les réactions possibles avec des protons de 3 MeV sur du Nickel et du Cuivre naturels. L'énergie disponible pour la réaction a été calculée à partir des défauts de masse. On a mentionné les isotopes détectés.

| Elément          | Abondance isotope (%) | Réaction p, | Produit          | Energie Disponible à 3 MeV (keV) | T <sub>1/2</sub> | Gammas principaux (keV) | Intensités raie(s) % | Gamma vu   |
|------------------|-----------------------|-------------|------------------|----------------------------------|------------------|-------------------------|----------------------|------------|
| <sup>58</sup> Ni | 68                    | alpha       | <sup>55</sup> Co | 1663                             | 17,5 h           | 1408                    | 17                   |            |
| <sup>60</sup> Ni | 26                    | alpha       | <sup>57</sup> Co | 2736                             | 217 j            | 122                     | 82                   | <i>oui</i> |
| <sup>60</sup> Ni | 26                    | gamma       | <sup>61</sup> Cu |                                  | 3,4 h            | 656/908                 | 11/1,1               | <i>oui</i> |
| <sup>61</sup> Ni | 1,13                  | alpha       | <sup>58</sup> Co | 3489                             | 71 j             | 811                     | 95                   | <i>oui</i> |
| <sup>61</sup> Ni | 1,1                   | n           | <sup>61</sup> Cu | -19                              | 3,4 h            | 656/908                 | 11/1,1               | <i>oui</i> |
| <sup>62</sup> Ni | 3,59                  | alpha       | <sup>59</sup> Co | 3345                             | stable           |                         |                      |            |
| <sup>64</sup> Ni | 0,91                  | alpha       | <sup>61</sup> Co | 3663                             | 1,6 h            | 908                     | 3,6                  |            |
| <sup>64</sup> Ni | 0,91                  | n           | <sup>64</sup> Cu | 543                              | 12,7 h           | 1345                    | 0.47                 | <i>oui</i> |
| <sup>63</sup> Cu | 69,09                 | alpha       | <sup>60</sup> Ni | 6755                             | stable           |                         |                      |            |
| <sup>63</sup> Cu | 69,09                 | n           | <sup>63</sup> Zn | -1149                            | 38,4 m           | 669,6/962               | 8/6,5                | <i>oui</i> |
| <sup>63</sup> Cu | 69,09                 | gamma       | <sup>64</sup> Zn |                                  | stable           |                         |                      |            |
| <sup>65</sup> Cu | 30,8                  | n           | <sup>65</sup> Zn | 250                              | 243 j            | 1115                    | 50                   | <i>oui</i> |

Tableau 1 : Réactions possibles avec des protons de 3 MeV sur Ni et Cu naturels.

### III. Le dispositif expérimental

#### A – Tandem de l'IPN d'Orsay

##### 1. L'irradiation

Les échantillons carrés (50 mm \* 50 mm) sont disposés au fond d'une cage de Faraday avec anneau de garde polarisé à - 300 V dans une ligne de faisceau du tandem d'Orsay. Les irradiations ont duré quelques heures avec des intensités d'une fraction de microampère. Le courant du faisceau étant enregistré en continu et intégré sur des intervalles de temps réguliers.

##### 2. Détection

Une chaîne de spectrométrie gamma (détecteur Ge refroidi à l'azote liquide, préampli, ampli et acquisition OASIS) a été prêtée par Orsay pour l'acquisition hors ligne.

Après irradiation, les échantillons ont pu être placés directement contre la fenêtre du détecteur (sauf quand l'activité trop élevée nécessitait un éloignement de la source).

### **3. L'étalonnage**

La source d'Europium 152 présente des raies dans toute l'étendue du spectre et permet un étalonnage en énergie et une mesure de l'efficacité relative du détecteur en fonction de l'énergie. L'activité assez élevée ne permet pas des mesures au contact. Par ailleurs, la bonne connaissance des raies de  $^{61}\text{Cu}$  et  $^{64}\text{Cu}$  permet de vérifier l'étalonnage en énergie.

La source de  $^{60}\text{Co}$  (20 kBq) peut être mise en contact avec la fenêtre du détecteur. La géométrie est sensiblement identique à celle des échantillons, angle solide voisin de  $2\pi$  ; ce qui permet une mesure directe de l'efficacité de la détection.

### **4. Traitement**

Après acquisition, les spectres enregistrés avec le logiciel d'acquisition OASIS de l'IPN d'Orsay ont été traités avec le logiciel ORIGIN.

## **B – Van de Graaff du CERI d'Orléans**

### **1. L'irradiation**

Trois échantillons de Nickel ont été irradiés au Van de Graaff d'Orléans. Ce sont cette fois des disques de diamètre 30 mm disposés au fond d'une cage de Faraday munie d'un repousseur d'électrons. Les irradiations de 1.4 microampères en 3 heures environ ont été faites à charge égale, 0.0144 Cb dans de bonnes conditions de stabilité.

### **2. Détection**

Trois chaînes de spectrométrie semblables ont permis de relever en parallèle les spectres des trois échantillons irradiés.

### **3. Etalonnage**

Les trois chaînes étaient déjà étalonnées en énergie. L'efficacité relative en fonction de l'énergie a été calculée au moyen d'une source de  $^{152}\text{Eu}$ . Pour l'efficacité absolue, les spectres d'une source de  $^{56}\text{Co}$  ont été relevés, puis cette source a été mesurée au LBA du LPSC.

### **4. Traitement**

Les trois chaînes de spectroscopie délivrent directement les aires des pics. Les spectres ont également été traités avec le logiciel ORIGIN.

## **C - Le Laboratoire de Basse Activité au LP**

Le LBA (Laboratoire de Basse Activité) du LPSC [Réf 3] est un laboratoire de spectroscopie gamma dédié à la mesure des très faibles activités. Il bénéficie d'un agrément ministériel.

Les mesures par un détecteur Germanium haute pureté sont faites dans un blindage de plomb archéologique. Un détecteur de rayons cosmiques en anticoincidence et la purification en radon de l'air du local par des filtres à charbon actif permettent de réduire le bruit de fond jusqu'à 0,05 coup par seconde, intégré de 0 à 3MeV. La sensibilité obtenue est de 1 mBq par échantillon. Le système d'acquisition tient compte de la géométrie de la source et calcule les activités à l'arrêt de l'irradiation.

## IV. Les irradiations

*Avril 2004*

Cuivre CuC1 à 3 MeV

*Mai 2004*

Ni Goodfellow 99.98 % à 3 et 5 MeV (fourni par J.P. Richaud).

Carbone à 3 MeV.

Cuivre à 5 MeV.

Mesure des débits de dose près de la cible lors des irradiations par Matteo Magistris.

*Juillet 2004*

Nickel 99 et 99.98 % à 3 MeV (achetés à Goodfellow).

Cuivre CuC1 avec Nickelage électrolytique à 3 MeV.

La chaîne de spectrométrie ne fonctionne pas et les échantillons sont analysés quelques jours plus tard au LBA du LPSC.

*Octobre*

Nickel de variétés industrielles ( $^{201}\text{Ni}$ ), plaques de 2 mm, 99.7 % provenant de ThyssenKrupp, achetés chez l'importateur Heptal, mais de coulées différentes, (dénommés à tort Euramet A et B).

*Décembre (à Orléans)*

Trois échantillons de Nickel industriel, 99,7 %, achetés chez Heptal, prélevés sur des cylindres de 190, 111 et 44 mm, provenant de trois métallurgistes différents, respectivement Carpenter, Huntington et ThyssenKrupp. L'analyse des trois échantillons a conditionné l'achat des cylindres qui vont servir à la réalisation de l'arrêt de faisceau.

## V. Le Nickel à 3 MeV

### A - Réactions sur le Nickel pur à 3 MeV

La figure 2 montre les spectres du Nickel immédiatement après irradiation (en noir) puis après 18 heures (en rouge, multiplié par 10). On a noté quelques raies du  $^{61}\text{Cu}$  et la raie à 1345 keV de  $^{64}\text{Cu}$  qui décroît moins vite. La raie à 793 keV correspond à la somme des énergies du  $^{61}\text{Cu}$  à 283 keV et du 511 keV.

L'activité sur la raie à 511 keV provient (désintégration  $\beta$ ) de toutes les désintégrations avec des facteurs liés aux différents modes de désintégration.

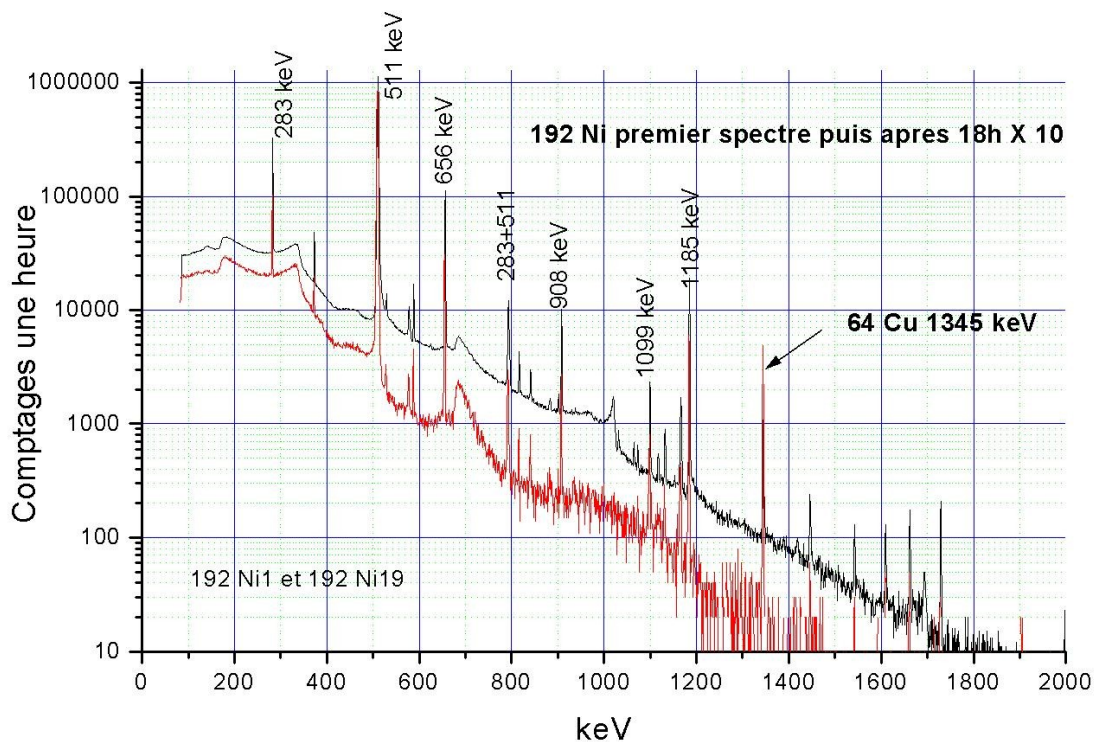


Figure 2 : Spectres du Nickel 192 relevés après irradiation puis après 18 heures de décroissance (échelle X 10)

Les résultats sont donnés dans les tableaux 2 à 4 pour les échantillons de Nickel cités plus haut. Cependant la détection sur place, immédiatement après l'irradiation n'a pu être faite en juillet. Si le  $^{64}\text{Cu}$  (demi-vie 12,7 h) a pu être mesuré au LBA, ce n'est pas toujours le cas pour le  $^{61}\text{Cu}$  (3,4 h) quand les échantillons n'ont pas été ramenés suffisamment tôt au LPSC.

Dans ces tableaux, nous faisons figurer les temps et intensités moyennes d'irradiation, les raies principales des produits de réaction,  $^{61}\text{Cu}$  et  $^{64}\text{Cu}$  et leur demi-vie. Le comptage sur ces raies à la fin de l'irradiation, est calculé en extrapolant à la fin de l'irradiation les comptages successifs en fonction du temps par une exponentielle. L'intensité de ces raies et l'efficacité du détecteur à cette énergie permettent de calculer l'activité en fin d'irradiation. Les raies à 656, 908, 1185 keV du  $^{61}\text{Cu}$  donnent des résultats semblables. Ce n'est pas le cas à 1099 keV pour une raison non expliquée.

On peut calculer l'activité en fin des 6 mois d'irradiation dans les conditions de référence : 100 mA, 8 heures par jour et 5 jours sur 7. Pour  $^{61}\text{Cu}$  et  $^{64}\text{Cu}$ , l'activité maximum est quasiment atteinte après 3 journées de huit heures chacune.

En supposant que  $^{61}\text{Cu}$  et  $^{64}\text{Cu}$  sont exclusivement produits par réactions (p,n) sur  $^{61}\text{Ni}$  et  $^{64}\text{Ni}$ , on calcule les taux de production sur ces deux isotopes en tenant compte de leur abondance dans le nickel naturel.

| Echantillon               | Temps irradi (mn) | I irradi ( $\mu\text{A}$ ) | Raie (keV) | Isotope          | $T_{1/2}$ (mn) | Comptage 15 mn fin irradi | Intensité raie (%) | Efficacité (%) | Bq fin irradi | Activité @ 6 mois/ 100mA p (Bq) | Abondance isotopique (%) | Rendement |
|---------------------------|-------------------|----------------------------|------------|------------------|----------------|---------------------------|--------------------|----------------|---------------|---------------------------------|--------------------------|-----------|
| <b>Ni Goodfellow mai</b>  |                   |                            |            |                  |                |                           |                    |                |               |                                 |                          |           |
| Orsay                     | 876               | 0,779                      | 656        | $^{61}\text{Cu}$ | 200            | 260000                    | 10,77              | 4,5            | 59608         | 6,6E+09                         | 1,1                      | 1,2E-06   |
| Orsay                     | 876               | 0,779                      | 908        | $^{61}\text{Cu}$ | 200            | 17312                     | 1,1                | 3,6            | 48575         | 5,3E+09                         | 1,1                      | 9,5E-07   |
| Orsay                     | 876               | 0,779                      | 1345       | $^{64}\text{Cu}$ | 762            | 5546                      | 0,47               | 2,73           | 48026         | 5,3E+09                         | 0,91                     | 2,0E-06   |
| <b>Ni 99.98 % juillet</b> |                   |                            |            |                  |                |                           |                    |                |               |                                 |                          |           |
| LBA                       | 670               | 0,22                       | 1345       | $^{64}\text{Cu}$ | 762            |                           | 0,47               |                | 12380         | 5,9E+09                         | 0,91                     | 2,2E-06   |
| <b>Ni 99 % Juillet</b>    |                   |                            |            |                  |                |                           |                    |                |               |                                 |                          |           |
| LBA                       | 1030              | 0,22                       | 1345       | $^{64}\text{Cu}$ | 762            |                           | 0,47               |                | 15000         | 5,3E+09                         | 0,91                     | 2,0E-06   |
| <b>Ni électro Juillet</b> |                   |                            |            |                  |                |                           |                    |                |               |                                 |                          |           |
| LBA                       | 710               | 0,22                       | 1345       | $^{64}\text{Cu}$ | 762            |                           | 0,47               |                | 11710         | 5,3E+09                         | 0,91                     | 2,0E-06   |

Tableau 2 : Irradiation de nickel en mai et juillet.

| Echantillon                 | Temps irradiation (mn) | I irradiation (uA) | Raie (keV) | Isotope          | T <sub>1/2</sub> (mn) | Comptage 10 mn fin irradiation | Intensité raie (%) | Efficacité % | Bq fin irradiation | Activité @ 6 mois/100mA p (Bq) | Abondance% | Rendement |
|-----------------------------|------------------------|--------------------|------------|------------------|-----------------------|--------------------------------|--------------------|--------------|--------------------|--------------------------------|------------|-----------|
| <b>Ni Euramet A Octobre</b> |                        |                    |            |                  |                       |                                |                    |              |                    |                                |            |           |
| Orsay                       | 1365                   | 0,155              | 656        | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 39850                          | 10,77              | 4,50         | 13704              | 7,28E+09                       | 1,10       | 1,30E-06  |
| Orsay                       | 1365                   | 0,155              | 908        | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 3089                           | 1,10               | 3,60         | 13001              | 6,91E+09                       | 1,10       | 1,23E-06  |
| Orsay                       | 1365                   | 0,155              | 1099       | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 1257                           | 0,24               | 3,20         | 27279              | 1,45E+10                       | 1,10       | 2,58E-06  |
| Orsay                       | 1365                   | 0,155              | 1185       | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 9095                           | 3,75               | 3,00         | 13474              | 7,16E+09                       | 1,10       | 1,28E-06  |
| Orsay                       | 1365                   | 0,155              | 1345       | <sup>64</sup> Cu | 762                   | 1049                           | 0,47               | 2,73         | 13626              | 5,87E+09                       | 0,91       | 2,17E-06  |
| LBA                         | 1365                   | 0,155              | 1345       | <sup>64</sup> Cu | 762                   |                                | 0,47               |              | 9140               | 3,94E+09                       | 0,91       | 1,46E-06  |
| <b>Ni Euramet B Octobre</b> |                        |                    |            |                  |                       |                                |                    |              |                    |                                |            |           |
| Orsay                       | 1250                   | 0,1736             | 656        | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 37217                          | 10,77              | 4,50         | 12799              | 6,10E+09                       | 1,10       | 1,09E-06  |
| Orsay                       | 1250                   | 0,1736             | 908        | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 3941                           | 1,10               | 3,60         | 16587              | 7,90E+09                       | 1,10       | 1,41E-06  |
| Orsay                       | 1250                   | 0,1736             | 1099       | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 1431                           | 0,24               | 3,20         | 31055              | 1,48E+10                       | 1,10       | 2,64E-06  |
| Orsay                       | 1250                   | 0,1736             | 1185       | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 8790                           | 3,75               | 3,00         | 13022              | 6,20E+09                       | 1,10       | 1,11E-06  |
| Orsay                       | 1250                   | 0,1736             | 1345       | <sup>64</sup> Cu | 762                   | 995                            | 0,47               | 2,73         | 12924              | 5,21E+09                       | 0,91       | 1,93E-06  |
| LBA                         | 1250                   | 0,1736             | 1345       | <sup>64</sup> Cu | 762                   |                                | 0,47               |              | 10020              | 4,04E+09                       | 0,91       | 1,49E-06  |

Tableau 3 : Irradiation de nickel industriel en octobre.

| Echantillon            | Temps irradi mn | I irradi uA | Raie keV | Isotope          | T <sub>1/2</sub> (mn) | Comptage 60 mn fin irradi | Intensité raie % | Efficacité % | Bq fin irradi | Activité @ 6 mois/ 100mA p (Bq) | Abondance isotopique% | Rendement |
|------------------------|-----------------|-------------|----------|------------------|-----------------------|---------------------------|------------------|--------------|---------------|---------------------------------|-----------------------|-----------|
| <b>Ni 192 décembre</b> |                 |             |          |                  |                       |                           |                  |              |               |                                 |                       |           |
| Dét 1                  | 166             | 1,446       | 656      | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 578000                    | 10,77            | 4,5          | 33128         | 4,3E+09                         | 1,1                   | 7,6E-07   |
| LBA                    | 166             | 1,446       | 908      | <sup>61</sup> Cu | 200                   |                           |                  |              | 26320         | 3,4E+09                         | 1,1                   | 6,1E-07   |
| Dét1                   | 166             | 1,446       | 1345     | <sup>64</sup> Cu | 762                   | 6237                      | 0,47             | 2,4          | 15359         | 3,6E+09                         | 0,91                  | 1,3E-06   |
| LBA                    | 166             | 1,446       | 1345     | <sup>64</sup> Cu | 762                   |                           |                  |              | 15730         | 3,7E+09                         | 0,91                  | 1,4E-06   |
| <b>Ni 11 décembre</b>  |                 |             |          |                  |                       |                           |                  |              |               |                                 |                       |           |
| Dét 2                  | 171             | 1,403       | 656      | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 454000                    | 10,77            | 3,5          | 33456         | 4,4E+09                         | 1,1                   | 7,8E-07   |
| LBA                    | 171             | 1,403       | 656      | <sup>61</sup> Cu | 200                   |                           |                  |              | 27670         | 3,6E+09                         | 1,1                   | 6,4E-07   |
| Dét 2                  | 171             | 1,403       | 1345     | <sup>64</sup> Cu | 762                   | 5007,8                    | 0,47             | 1,94         | 15256         | 3,6E+09                         | 0,91                  | 1,3E-06   |
| LBA                    | 171             | 1,403       | 1345     | <sup>64</sup> Cu | 762                   |                           |                  |              | 15210         | 3,6E+09                         | 0,91                  | 1,3E-06   |
| <b>Ni 41 décembre</b>  |                 |             |          |                  |                       |                           |                  |              |               |                                 |                       |           |
| Dét 3                  | 163             | 1,413       | 656      | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 288820                    | 10,77            | 2,7          | 27590         | 3,7E+09                         | 1,1                   | 6,6E-07   |
| LBA                    | 163             | 1,413       | 656      | <sup>61</sup> Cu | 200                   |                           |                  |              | 25250         | 3,4E+09                         | 1,1                   | 6,0E-07   |
| Dét 3                  | 163             | 1,413       | 1345     | <sup>64</sup> Cu | 762                   | 2753                      | 0,47             | 1,3          | 12516         | 3,1E+09                         | 0,91                  | 1,1E-06   |
| LBA                    | 163             | 1,413       | 1345     | <sup>64</sup> Cu | 762                   |                           |                  |              | 15210         | 3,7E+09                         | 0,91                  | 1,4E-06   |

Tableau 4 : Irradiation de nickel industriel en décembre

Le tableau 5 récapitule les taux de production de  $^{61}\text{Cu}$  et  $^{64}\text{Cu}$ .  
 Les valeurs pour  $^{61}\text{Cu}$  vont de  $6.10^{-7}$  à  $1.2.10^{-6}$  pour une valeur supposée de  $2.5.10^{-7}$ .  
 Pour  $^{64}\text{Cu}$ , les valeurs vont de  $1.1.10^{-6}$  à  $2.3.10^{-6}$  pour une valeur supposée de  $1.1.10^{-6}$ .

| Labo           | Date     | Echantillon | Spectro | $^{61}\text{Cu}$ | $^{64}\text{Cu}$ |
|----------------|----------|-------------|---------|------------------|------------------|
| <b>Orléans</b> | Décembre | 192         | LBA     | 6,0E-07          | 1,3E-06          |
|                |          | 192         | Labo    | 7,0E-07          | 1,3E-06          |
|                |          | 111         | LBA     | 6,4E-07          | 1,3E-06          |
|                |          | 111         | Labo    | 7,7E-07          | 1,3E-06          |
|                |          | 41          | LBA     | 6,0E-07          | 1,4E-06          |
|                |          | 41          | Labo    | 6,6E-07          | 1,1E-06          |
| <b>Orsay</b>   | Octobre  | Euramet A   | Labo    | 1,2E-06          | 2,3E-06          |
|                |          |             | LBA     |                  | 1,5E-06          |
|                |          | Euramet B   | Labo    | 1,1E-06          | 1,9E-06          |
|                |          |             | LBA     |                  | 1,5E-06          |
| <b>Orsay</b>   | Juillet  | 99,98%      | LBA     |                  | 2,2E-06          |
|                |          | 99%         | LBA     |                  | 2,0E-06          |
|                |          | Electro     | LBA     |                  | 2,0E-06          |
| <b>Orsay</b>   | Mai      | Goodfellow  | Labo    | 9,3E-07          | 2,0E-06          |

Tableau 5 : Récapitulatif des rendements.

## B - Les impuretés du Nickel

Les tableaux 6 à 8 présentent les produits de périodes supérieures à quelques heures, relevés sur les spectres des échantillons analysés au LBA. Les activités au bout de 6 mois d'irradiation ont été calculées.

| Echantillon               | Temps irradi (mn) | I irradi (uA) | Isotope          | $T_{1/2}$ (mn) | Bq fin irradi | Activité@ 6 mois/ 100mA p (Bq) |
|---------------------------|-------------------|---------------|------------------|----------------|---------------|--------------------------------|
| <b>Goodfellow Mai</b>     |                   |               |                  |                |               |                                |
|                           | 876               | 0,779         | $^{65}\text{Zn}$ | 351216         | 43,61         | 3,2E+08                        |
| <b>Ni 99.98 % Juillet</b> |                   |               |                  |                |               |                                |
|                           | 670               | 0,22          | $^7\text{Be}$    | 76320          | 0,19          | 3,1E+06                        |
|                           | 670               | 0,22          | $^{65}\text{Zn}$ | 351216         | 0,02          | 6,1E+05                        |
|                           | 670               | 0,22          | $^{67}\text{Ga}$ | 4694           | 0,13          | 1,5E+05                        |
| <b>Ni 99% Juillet</b>     |                   |               |                  |                |               |                                |
|                           | 1030              | 0,22          | $^7\text{Be}$    | 76320          | 30,00         | 3,2E+08                        |
|                           | 1030              | 0,22          | $^{57}\text{Co}$ | 391392         | 0,07          | 1,7E+06                        |
|                           | 1030              | 0,22          | $^{65}\text{Zn}$ | 351216         | 0,03          | 6,6E+05                        |
|                           | 1030              | 0,22          | $^{67}\text{Ga}$ | 4694           | 0,11          | 8,4E+04                        |
| <b>Ni électro Juillet</b> |                   |               |                  |                |               |                                |
|                           | 710               | 0,22          | $^{65}\text{Zn}$ | 351216         | 19,00         | 6,0E+08                        |
|                           | 710               | 0,22          | $^{67}\text{Ga}$ | 4694           | 153,00        | 2,3E+08                        |

Tableau 6 : Activités dues aux impuretés des Nickel, irradiations de mai et juillet.



| Echantillon                 | Temps irradi (mn) | I irradi (uA) | Isotope          | T <sub>1/2</sub> mn | Bq fin irradi | Activité@ 6 mois/ 100mA p (Bq) |
|-----------------------------|-------------------|---------------|------------------|---------------------|---------------|--------------------------------|
| <b>Ni Euramet A Octobre</b> |                   |               |                  |                     |               |                                |
|                             | 1365              | 0,155         | <sup>7</sup> Be  | 76320               | 0,34          | 3,9E+06                        |
|                             | 1365              | 0,155         | <sup>48</sup> V  | 22997               | 0,09          | 3,4E+05                        |
|                             | 1365              | 0,155         | <sup>54</sup> Mn | 449280              | 0,01          | 3,5E+05                        |
|                             | 1365              | 0,155         | <sup>57</sup> Co | 391392              | 0,13          | 3,1E+06                        |
|                             | 1365              | 0,155         | <sup>58</sup> Co | 101923              | 0,02          | 2,8E+05                        |
|                             | 1365              | 0,155         | <sup>65</sup> Zn | 351216              | 0,05          | 1,2E+06                        |
|                             | 1365              | 0,155         | <sup>67</sup> Ga | 4694                | 0,19          | 1,6E+05                        |
|                             | 1365              | 0,155         | <sup>77</sup> Br | 3420                | 0,18          | 1,1E+05                        |
| <b>Ni Euramet B</b>         |                   |               |                  |                     |               |                                |
|                             | 1250              | 0,1736        | <sup>7</sup> Be  | 76320               | 0,37          | 4,1E+06                        |
|                             | 1250              | 0,1736        | <sup>48</sup> V  | 22997               | 0,10          | 3,7E+05                        |
|                             | 1250              | 0,1736        | <sup>57</sup> Co | 391392              | 0,18          | 4,1E+06                        |
|                             | 1250              | 0,1736        | <sup>65</sup> Zn | 351216              |               | 0,0E+00                        |
|                             | 1250              | 0,1736        | <sup>67</sup> Ga | 4694                | 0,07          | 5,5E+04                        |

Tableau 7 : Activités dues aux impuretés des Nickel, irradiations d'octobre.

| Echantillon            | Temps irradi (mn) | I irradi (uA) | Isotope          | T <sub>1/2</sub> (mn) | Bq fin irradi | Activité @ 6 mois/ 100mA p (Bq) |
|------------------------|-------------------|---------------|------------------|-----------------------|---------------|---------------------------------|
| <b>Ni 191 Décembre</b> |                   |               |                  |                       |               |                                 |
|                        | 166               | 1,446         | <sup>7</sup> Be  | 76320                 | 0,07          | 7,0E+05                         |
|                        | 166               | 1,446         | <sup>48</sup> V  | 22997                 | 0,027         | 8,9E+04                         |
|                        | 166               | 1,446         | <sup>51</sup> Cr | 39888                 | 0,1           | 5,7E+05                         |
|                        | 166               | 1,446         | <sup>54</sup> Mn | 449500                | 0,03          | 6,5E+05                         |
|                        | 166               | 1,446         | <sup>57</sup> Co | 391392                | 0,06          | 1,3E+06                         |
|                        | 166               | 1,446         | <sup>58</sup> Co | 101923                | 0,01          | 1,2E+05                         |
|                        | 166               | 1,446         | <sup>65</sup> Zn | 351216                | 0,04          | 8,3E+05                         |
| <b>Ni 11 Décembre</b>  |                   |               |                  |                       |               |                                 |
|                        | 171               | 1,403         | <sup>7</sup> Be  | 76320                 | 10,5          | 1,0E+08                         |
|                        | 171               | 1,403         | <sup>48</sup> V  | 22997                 | 0,1           | 3,3E+05                         |
|                        | 171               | 1,403         | <sup>57</sup> Co | 391392                | 0,08          | 1,7E+06                         |
|                        | 171               | 1,403         | <sup>65</sup> Zn | 351216                | 0,62          | 1,3E+07                         |
|                        | 171               | 1,403         | <sup>67</sup> Ga | 4694                  | 0,23          | 1,6E+05                         |
| <b>Ni 41 Décembre</b>  |                   |               |                  |                       |               |                                 |
|                        | 163               | 1,413         | <sup>48</sup> V  | 22997                 | 0,077         | 2,6E+05                         |
|                        | 163               | 1,413         | <sup>57</sup> Co | 391392                | 0,15          | 3,3E+06                         |
|                        | 163               | 1,413         | <sup>65</sup> Zn | 351216                | 0,134         | 2,9E+06                         |
|                        | 163               | 1,413         | <sup>67</sup> Ga | 4694                  | 0,16          | 1,1E+05                         |

Tableau 8 : Activités dues aux impuretés du Nickel industriel, irradiations de décembre.

| Elément          | Abondance isotope % | Analyses      | Réaction avec p | Produit          | Energie disponible à 3 MeV | T <sub>1/2</sub> | Gammas principaux (keV) | Intensité(s) γ % | Gamma vu | Données disponibles | mbarn à 3 MeV |
|------------------|---------------------|---------------|-----------------|------------------|----------------------------|------------------|-------------------------|------------------|----------|---------------------|---------------|
| <sup>7</sup> Li  | 100                 | ?             | n               | <sup>7</sup> Be  | 1350                       | 53j              | 477                     | 10               | oui      | rien                |               |
| <sup>10</sup> B  | 20                  | ?             | alpha           |                  | 4139                       | 53j              | 477                     | 10               | oui      | oui                 | 0,04          |
| <sup>48</sup> Ti | 73,7                | ?             | n               | <sup>48</sup> V  | -1795                      | 16j              | 983/1312                | 100/97           | oui      | rien                |               |
| <sup>47</sup> Ti | 7,5                 | ?             | gamma           |                  |                            | 16j              | 983/1312                | 100/97           | oui      | oui                 | ε             |
| <sup>51</sup> V  | 99,8                | ?             | n               | <sup>51</sup> Cr | 3257                       | 27,7 j           | 320                     | 10               | oui      | oui                 | 0,03          |
| <sup>54</sup> Cr | 2,36                | ?             | n               | <sup>54</sup> Mn | 840                        | 303j             | 834                     | 100              | oui      | oui                 | 0,02          |
| <sup>57</sup> Fe | 2,1                 | oui           | alpha           |                  | 3239                       | 303j             | 834                     | 100              | oui      | rien                |               |
| <sup>53</sup> Cr | 9,5                 | oui           | gamma           |                  |                            | 303j             | 834                     | 100              | oui      | rien                |               |
| <sup>57</sup> Fe | 2,1                 | oui           | n               | <sup>57</sup> Co | 1382                       | 270 j            | 122                     | 85               | oui      | oui                 | ~ 12          |
| <sup>60</sup> Ni | 26                  | oui           | alpha           |                  | 2736                       | 217j             | 122                     | 82               | oui      | rien                |               |
| <sup>56</sup> Fe | 91,8                | oui           | gamma           |                  |                            | 270 j            | 122                     | 85               | oui      | oui                 | 0,04          |
| <sup>58</sup> Fe | 0,3                 | oui           | n               | <sup>58</sup> Co | -89                        | 71j              | 811                     | 95               | oui      | oui                 | ~ 1           |
| <sup>61</sup> Ni | <i>1,13</i>         | <i>Nickel</i> | <i>alpha</i>    |                  | 3489                       | 71 j             | 811                     | 95               | oui      | rien                |               |
| <sup>57</sup> Fe | 2,1                 | oui           | gamma           |                  |                            | 71j              | 811                     | 95               | oui      | rien                |               |
| <sup>61</sup> Ni | <i>1,1</i>          | <i>Nickel</i> | <i>n</i>        | <sup>61</sup> Cu | -19                        | 3,4 h            | 656/908                 | 11/1,1           | oui      | oui                 | 3             |
| <sup>64</sup> Zn | 48,6                | oui           | alpha           |                  | 3844                       | 3,4h             | 656/908                 | 11/1,1           | oui      | rien                |               |
| <sup>60</sup> Ni | <i>26</i>           | <i>Nickel</i> | <i>gamma</i>    |                  |                            | 3,4 h            | 656/908                 | 11/1,1           | oui      | oui                 | 0,02          |
| <sup>64</sup> Ni | <i>0,91</i>         | <i>Nickel</i> | <i>n</i>        | <sup>64</sup> Cu | 543                        | 12,7h            | 1345                    | 0,5              | oui      | oui                 | 0,006         |
| <sup>63</sup> Cu | 69,1                | oui           | n               | <sup>63</sup> Zn | -1149                      | 38mn             | 669/962                 | 8/6.5            | non      | rien                |               |
| <sup>65</sup> Cu | 30,8                | oui           | n               | <sup>65</sup> Zn | 250                        | 243j             | 1115                    | 50               | oui      | oui                 | ~ 10          |
| <sup>67</sup> Zn | 4,1                 | ?             | n               | <sup>67</sup> Ga | 1217                       | 3,6 j            | 300                     | 16,8             | oui      | rien                |               |
| <sup>70</sup> Ge | 20,5                | ?             | alpha           |                  | 4182                       | 3,6 j            | 300                     | 16,8             | oui      | rien                |               |
| <sup>66</sup> Zn | 28                  | ?             | gamma           |                  |                            | 3,6 j            | 300                     | 16,8             | oui      | rien                |               |

Tableau 9 : Isotopes recensés lors des irradiations du nickel à 3 MeV. Les réactions avec le Nickel sont en rouge et italique. Le tableau mentionne la présence ou non de données dans la base EXFOR.

Le tableau 9 présente les produits de réaction recensés avec leurs origines possibles, les impuretés mentionnées ou non par les fournisseurs de Nickel et la présence ou non de données, souvent contradictoires, dans la base EXFOR pour ces réactions. L'énergie disponible à 3 MeV pour les réactions (p,n) et (p, $\alpha$ ) a été calculée à partir des défauts de masse.

La plupart des isotopes à période longue proviennent de réactions sur des métaux de transition, proches chimiquement du nickel, dont les points de fusion sont de l'ordre de 1500 °C, et dont la teneur annoncée par le fabricant est très variable.

### ***Le cuivre***

Le cuivre donne en particulier du  $^{65}\text{Zn}$  dont l'activité en fin d'irradiation et la demi-vie (243 jours) sont pénalisantes. Les irradiations de cuivre pur ont montré que  $^{65}\text{Zn}$  était le seul isotope produit avec le Cuivre naturel à 3 MeV (mais pas à 5 MeV). L'activité importante avec le Nickel déposé électrochimiquement sur du Cuivre nous a conduit à rejeter cette technique.

### ***Le fer***

La teneur en fer dans les échantillons n'est pas précisée pour tous les échantillons. Cependant, avec les analyses disponibles, pour  $^{57}\text{Co}$ , l'activité en Bq/Cb est proportionnelle à la concentration en fer, ce qui semblerait exclure les réactions  $^{60}\text{Ni}(p,\alpha)^{57}\text{Co}$ . Pour  $^{58}\text{Co}$ , les activités sont faibles, elles croissent avec la concentration en fer, mais ne permettent pas d'exclure une contribution mineure de la réaction  $^{61}\text{Ni}(p,\alpha)^{58}\text{Co}$ .

### ***Le Bore***

La présence de  $^7\text{Be}$  est plus surprenante, il semble que cet isotope provienne de la réaction sur le Bore :  $^{10}\text{B}_5(p, \alpha)^7\text{Be}_4$ . Le point de fusion du Bore est 2073 °C, on peut penser qu'il ne disparaît pas lors de la métallurgie du Nickel qui fond à 1455 °C ; il ne fait pas partie des éléments recherchés ni *a fortiori* quantifiés par les métallurgistes.

## **VI. Analyses par activations neutrons**

Robert Delmas (CEA Saclay) a analysé par activation neutrons l'échantillon Euramet A transmis par Berthier (IPNO). Deux prélèvements de la plaque ont été irradiés l'un une heure, l'autre 7 heures sur le réacteur Orphée. L'activité gamma est mesurée en fonction du temps, on en déduit la teneur en isotope considéré. La plupart des éléments de Na à U sont analysés, la radioactivité induite par le Nickel ( $^{65}\text{Ni}$ ) empêche cependant la détermination de la teneur de certains éléments. Dans le tableau xx, les résultats des analyses par activation et celles du métallurgiste sont exprimées en  $\mu\text{g/g}$  ainsi que les produits de réaction relevés au LBA avec leur provenance possible (Le Krypton n'est évidemment ni présent ni analysé et est mentionné pour mémoire).

| Elément       | Mn   | Ti              | Cr               | Fe               |                  | Cu               | Zn               | Ge               | Se | Kr |
|---------------|------|-----------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|----|----|
| Irradiation n | 1100 | -               | 37.2             | 478              |                  | 7.8              | 2.9              | <2               | ε  | -  |
| Métallurgie   | 1100 | -               | -                | 500              |                  | 100              | -                | -                | -  | -  |
| Produit       |      | <sup>48</sup> V | <sup>54</sup> Mn | <sup>57</sup> Co | <sup>58</sup> Co | <sup>65</sup> Zn | <sup>67</sup> Ga | <sup>77</sup> Br |    |    |

Tableau 10 : Comparaison des analyses par activation et de la fiche produit de l'échantillon Euramet A (coulée Thyssen 121480). Les résultats sont en µg/g.

## VII. Le choix du Nickel

Les premières irradiations ont montré que le Nickel était un matériau acceptable pour l'arrêt de faisceau à 3 MeV, moyennant des limitations d'accès de l'ordre du jour après irradiation, compte tenu de la demi vie de <sup>64</sup>Cu : 12.7 heures. Nous avons irradié d'abord du Nickel Goodfellow avant de passer à des variétés industrielles (201Ni) dont la concentration en impuretés, spécifiées ou non par le métallurgiste, est très variable et en tout cas peu prévisible avant l'achat. Compte tenu des sommes en jeu, 13000 €, nous avons pu conditionner l'achat des trois cylindres de Nickel à une analyse par irradiation préalable d'un échantillon prélevé sur chaque cylindre.

Nous avons pu finaliser l'achat des trois cylindres retenus (191, 11 et 41), correspondant aux cylindres de diamètre 190, 110 et 40 mm. La qualité du 191 et du 41 est bonne. Celle du 11 est moins satisfaisante, surtout pour <sup>65</sup>Zn, mais compte tenu de sa faible contribution, moins de 10 % de la surface interceptant le faisceau, nous l'avons accepté. Selon la méthode d'usinage (électroérosion et non tournage), il sera possible de n'utiliser que le 190 et le 41.

## VIII. Les débits de dose à la fin de la période d'essais

L'accès de la casemate dans laquelle se trouve l'arrêt de faisceau est interdit pendant le fonctionnement de l'accélérateur. Les murs en béton de 2 mètres assurent la protection contre les neutrons rapides produits par les réactions p,n.

Les débits de dose dus à l'activité résiduelle seront calculés à l'issue de la période d'essais. Les simulations ont été faites par M. Magistris et S. Million de l'ILL pour la plupart des isotopes avec le logiciel MICROSIELD. Ce logiciel calcule la somme des débits de dose sur chacun des gammas provenant de la désintégration, y compris les désintégrations β à 511 keV. Nous avons choisi une géométrie cylindrique simplifiée : activité surfacique uniforme à l'intérieur d'un cylindre de nickel L = 1500 mm, diamètre 80 mm, épaisseur 3 mm, entouré de 5 mm d'eau et de 3 mm de fer.

On en déduit les débits de dose à 1 m en  $\mu\text{Sv/h}$  par Bq.

Pour les autres isotopes, dont la contribution est plus réduite, nous avons utilisé une formule approchée [réf. 4] :

$DD\gamma = 1.0 \cdot 10^{-12} \cdot E\gamma \cdot \text{branchement}$  :  $DD\gamma$  est le débit de dose par Bq pour un  $\gamma$ , en  $\mu\text{Sv/h}$  par Bq,  $E\gamma$  est l'énergie du gamma considéré en keV, le branchement est exprimé en %.

Puis nous avons additionné la contribution des principaux gammas.

Pour les activités des produits de réactions sur le Nickel, nous avons retenu les valeurs maximales pour  $^{61}\text{Cu}$  et pour  $^{64}\text{Cu}$ , au bout des 6 mois d'irradiation, 8 heures sur 24 et 5 jours par semaine à 100 mA protons.

Pour les activités des impuretés, nous avons pris 100 % de celles du  $^{111}\text{Ni}$ , le rondin de plus gros diamètre et 10 % de celles du  $^{91}\text{Ni}$  (10 % de la surface totale), de qualité inférieure.

Le tableau 10 donne les débits de dose à 1 m de l'axe de l'arrêt de faisceau, blindé et non blindé, par Becquerel pour les isotopes les plus importants ainsi que les activités retenues en fin d'irradiation.

Les calculs ont été faits avec un blindage formé de 2 cm de plomb entouré de 5 mm de fer pour atténuer les X de 75 à 80 keV produits dans le plomb. Dans le calcul simplifié, nous avons supposé que le blindage divisait par 10 le débit de dose.

| Isotope   | $^{61}\text{Cu}$ | $^{64}\text{Cu}$ | $^{65}\text{Zn}$ | $^7\text{Be}$ | $^{57}\text{Co}$ | $^{67}\text{Ga}$ |
|---|------------------|------------------|------------------|---------------|------------------|------------------|
| Méthode de calcul                                 | Microshield      | Microshield      | Microshield      | Microshield   | Simplifié        | Simplifié        |
| Débit de dose en $\mu\text{G/h/Bq}$ non blindé    | 9,0E-08          | 2,4E-08          | 6,0E-08          | 6,0E-09       | 1,2E-08          | 1,3E-08          |
| Débit de dose en $\mu\text{G/h/Bq}$ avec blindage | 2,4E-09          | 3,8E-08          | 9,4E-09          | 4,0E-11       | 1,2E-09          | 1,3E-09          |
| Activité retenue (Bq)                             | 1,0E+10          | 6,0E+09          | 1,3E+06          | 1,0E+07       | 1,3E+06          | 1,3E+04          |

*Tableau 11: Débits de dose par Bq à 1 m de l'arrêt faisceau pour les principaux isotopes relevés.*

Les débits de dose en fonction du temps, après l'irradiation ont été calculés pour l'arrêt de faisceau blindé et non blindé (Figures 3 et 4). Pour mémoire, la limite réglementaire annuelle d'exposition pour le public est de 1 mSv soit pour une durée annuelle de travail de 1600 h, 0.6  $\mu\text{Sv/h}$ .

L'accès à la salle est possible dès le lendemain.

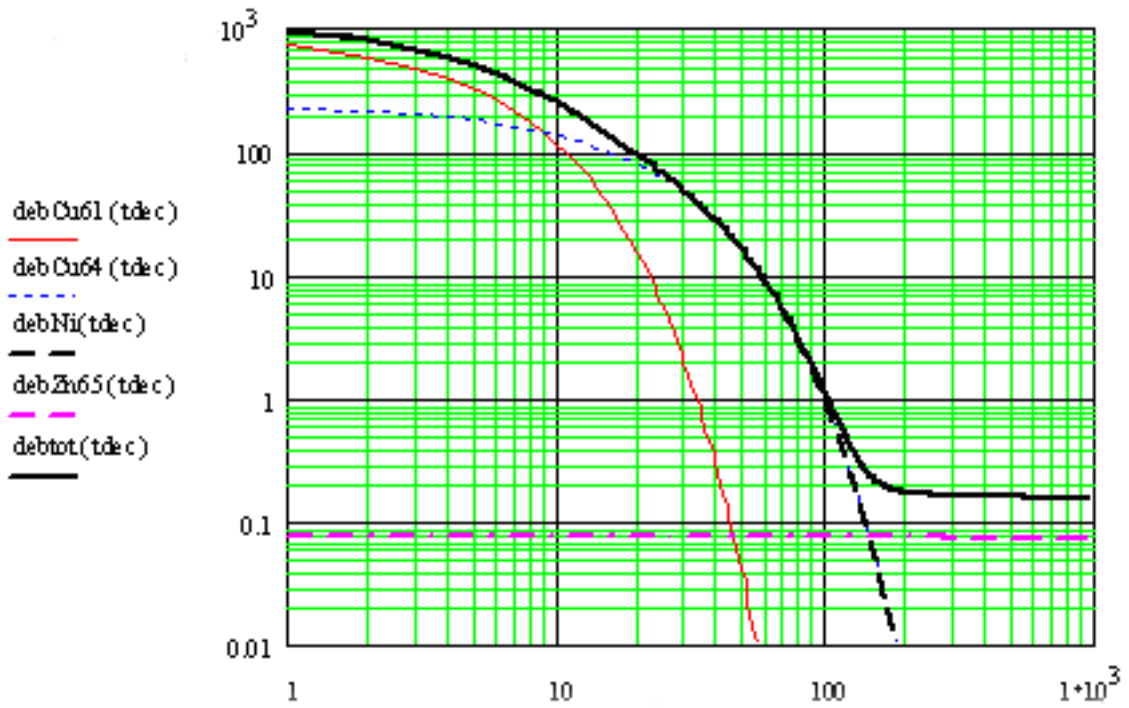


Figure 3: Débits de dose total et contributions des principaux radioéléments, à 1 m de l'arrêt faisceau non blindé en  $\mu\text{Sv/h}$  en fonction du temps en heures.

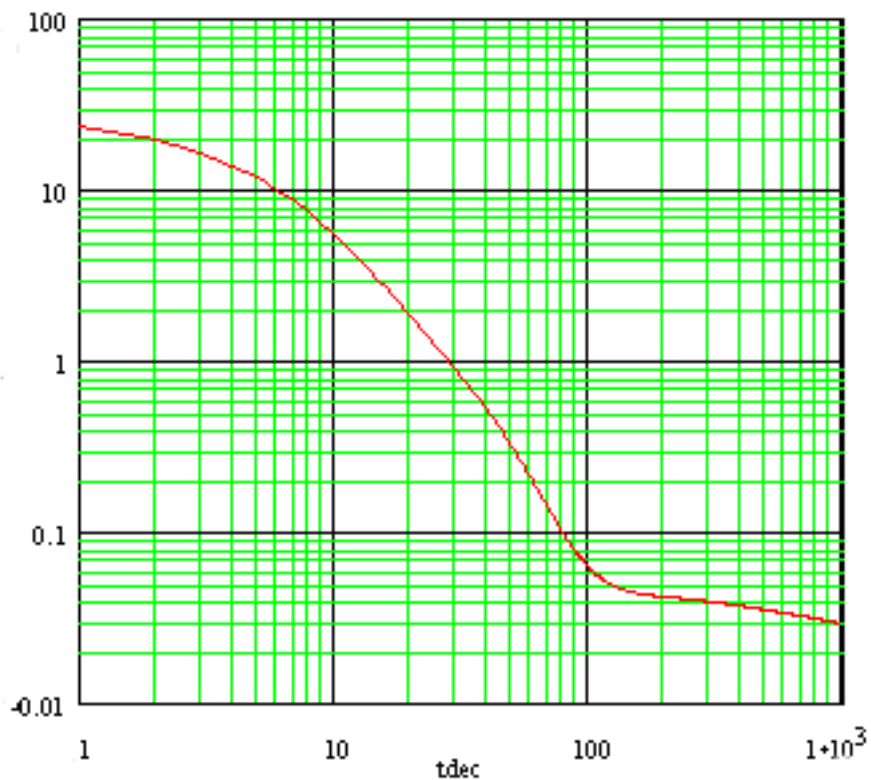


Figure 4: Débit de dose total, à 1 m de l'arrêt faisceau avec blindage en  $\mu\text{Sv/h}$  en fonction du temps en heures.

## IX. Activités et débits de dose en fonctionnement continu

Comme dit plus haut, les conditions nominales sont celles d'un fonctionnement 8 heures par jour, 5 jours sur 7 pendant 6 mois.

On peut en déduire les activités pour 30 mA et 100 mA en continu pendant 6 mois par rapport aux conditions nominales. Pour  $^{61}\text{Cu}$  (3.4 h), l'activité est proche de la saturation et quasi proportionnelle au courant, pour  $^{64}\text{Cu}$  (12.7 h), le fonctionnement en continu entraîne une activité à saturation voisine du double du fonctionnement aux heures ouvrables (tableau 11). Pour les impuretés à période longue, les activités sont proportionnelles aux courants moyens. Pour les débits de dose, à 100 mA continus, il suffit d'attendre 12 heures de plus pour retrouver les mêmes conditions d'accès (pour  $^{64}\text{Cu}$ ). A plus long terme, le débit de dose reste en dessous de la limite réglementaire.

| Conditions          | $^{61}\text{Cu}$ | $^{64}\text{Cu}$ | Impuretés  |
|---------------------|------------------|------------------|------------|
| 100 mA ,8h/24, 5j/7 | $1*10^{10}$      | $6*10^9$         | $1.5*10^7$ |
| 30 mA continus      | $0.4*10^{10}$    | $4*10^9$         | $1.9*10^7$ |
| 100 mA continus     | $1.22*10^{10}$   | $1.3*10^{10}$    | $6.3*10^7$ |

Tableau 12 : Activités à l'arrêt après 6 mois, en Bq, pour différents modes de fonctionnement.

## X. Nickel à 3 MeV et Cuivre à 3 et 5 MeV

### A - Nickel à 5 MeV.

A 5 MeV, l'énergie disponible pour la réaction  $^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$  devient proche de 2 MeV (tableau 13), le taux de production augmente sensiblement et passe à  $4*10^{-6}$  alors que pour  $^{64}\text{Cu}$ , il n'y a pas de changement notable.

### B - Cuivre à 3 et 5 MeV

A 3 MeV, la réaction  $^{63}\text{Cu}(p,n)^{63}\text{Zn}$  est en dessous du seuil (tableau 1), à 5 MeV, près de 900 keV sont disponibles, ce qu'on retrouve sur le tableau 14. Les activités en  $^{65}\text{Zn}$  sont importantes, ce qui conduirait à un débit de dose de l'ordre de 10  $\mu\text{Sv/h}$  à 1 mètre pour du cuivre massif avec blindage.

| Echantillon              | Temps irradi (mn) | I irradi (uA) | Raie (keV) | Isotope          | T <sub>1/2</sub> (mn) | Comptage 15 mn fin irradi | Intensité raie % | Efficacité % | Bq fin irradi | 6 mois/ 100mA p (3,7E+5 Cb) | Abondance % | Rendement |
|--------------------------|-------------------|---------------|------------|------------------|-----------------------|---------------------------|------------------|--------------|---------------|-----------------------------|-------------|-----------|
| <b>Ni Goodfellow mai</b> |                   |               |            |                  |                       |                           |                  |              |               |                             |             |           |
| Orsay                    | 876               | 0,779         | 656        | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 1000000                   | 10,77            | 4,50         | 229261        | 2,52E+10                    | 1,10        | 4,50E-06  |
| Orsay                    | 876               | 0,779         | 908        | <sup>61</sup> Cu | 200                   | 78000                     | 1,10             | 3,60         | 218855        | 2,41E+10                    | 1,10        | 4,29E-06  |
| Orsay                    | 876               | 0,779         | 1345       | <sup>64</sup> Cu | 762                   | 30000                     | 0,47             | 2,73         | 259787        | 2,88E+10                    | 0,91        | 1,07E-05  |

Tableau 13 : Irradiation du Nickel à 5 MeV.

| Echantillon | Temps irradi mn | I irradi uA | Raie keV | Isotope produit  | T <sub>1/2</sub> (mn) | Comptage 10 mn fin irradi | Intensité raie % | Efficacité % | Bq fin irradi | Activité @6 mois/ 100mA p (Bq) | Abondance % | Rendement |
|-------------|-----------------|-------------|----------|------------------|-----------------------|---------------------------|------------------|--------------|---------------|--------------------------------|-------------|-----------|
| Cu 3 MeV    |                 |             |          |                  |                       |                           |                  |              |               |                                |             |           |
|             | 401             | 0,839       | 669      | <sup>63</sup> Zn | 38                    | 0                         | 8,00             | 4,40         | 0             | 0,00E+00                       | 70,00       | 0,00E+00  |
|             | 401             | 0,839       | 962      | <sup>63</sup> Zn | 38                    | 0                         | 6,50             | 3,50         | 0             | 0,00E+00                       | 70,00       | 0,00E+00  |
|             | 401             | 0,839       | 1115     | <sup>65</sup> Zn | 351216                | 43000                     | 50,60            | 3,20         | 4426          | 6,52E+10                       | 30,00       | 3,56E-06  |
| Cu 5 MeV    |                 |             |          |                  |                       |                           |                  |              |               |                                |             |           |
|             | 60,33           | 0,807       | 669      | <sup>63</sup> Zn | 38                    | 1050000                   | 8,00             | 4,40         | 497159        | 9,30E+10                       | 70,00       | 2,12E-07  |
|             | 60,33           | 0,807       | 962      | <sup>63</sup> Zn | 38                    | 593000                    | 6,50             | 3,50         | 289621        | 5,42E+10                       | 70,00       | 1,24E-07  |
|             | 60,33           | 0,807       | 1115     | <sup>65</sup> Zn | 351216                | 15300                     | 50,60            | 3,20         | 1575          | 1,60E+11                       | 30,00       | 8,74E-06  |

Tableau 14 : Irradiation de Cuivre à 3 et 5 MeV



## XI. Production de neutrons

En prenant comme source essentielle les réactions p,n , sur  $^{61}\text{Ni}$  et  $^{64}\text{Ni}$ , la production de neutrons rapides est de  $2 \cdot 10^{10}/\text{s}$  à 100 mA. Leur énergie maximale est 3 MeV et leur distribution est relativement isotrope. L'épaisseur de béton,  $d_{(1/10)}$  qui atténue d'un facteur 10 un flux de neutrons de 3 MeV est 20 cm [Réf 5]. Pour une incidence normale, les deux mètres de la casemate introduiront une atténuation minimale de  $10^{10}$ .

Une faible partie de ces neutrons sera thermalisée par les 3 mm de la chemise d'eau autour de l'arrêt de faisceau. Les sections efficaces de capture de ces neutrons sur les matériaux voisins (Ni, Fe, Cr) sont faibles, quelques mbarn. Pour le Nickel, les produits sont stables sauf  $^{59}\text{Ni}$  qui ne produit pas de  $\gamma$ , de même pour le fer qui produit  $^{55}\text{Fe}$ , également sans  $\gamma$ . Seul le chrome de l'acier inoxydable donne  $^{51}\text{Cr}$  de période 27 jours. Le cuivre produit  $^{64}\text{Cu}$  qui est déjà produit par réactions p,n sur le Nickel

## XII. Conclusion

La série d'expériences sur le nickel a permis de vérifier que ce métal était un bon candidat pour l'arrêt des protons à 3 MeV en raison d'une activité résiduelle acceptable et d'une décroissance de l'activité avec une demi-vie de 12,7 heures. Les impuretés des cylindres que nous avons achetés n'introduisent qu'une activité résiduelle réduite.

## Références

- [1] : T.P. Intrator et al. - NIM **188** (1981) pp 347-352.
- [2] : H. Vernon and al., "Status update on the low-energy demonstration accelerator (LEDA)", APT Technical Project Office, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, 87545.
- [3] : A. Benabed, R. Brissot – Le Laboratoire de Mesure des Faibles Activités – Rapport interne RI ISN 96.12.
- [4] : J. Shapiro – Radiation Protection – Ed. Harvard University Press, p. 89 (2002).
- [5] : J. Kantele - Handbook of Nuclear Spectroscopy, p 165, Academic Press (1994).